

CLAM 钢、EUROFER97 钢与钨在 HT-7 托卡马克中辐照后的表面分析

李 强^{1,2}, 黄群英¹, 郁金南³, 李建刚¹, 吴宜灿¹, 何晓雄^{1,2}

(1. 中国科学院等离子体物理研究所, 安徽 合肥 230031; 2. 合肥工业大学, 安徽 合肥 230039;
3. 中国原子能研究院, 北京 102413)

摘要:两种低活化马氏体钢(CLAM、EUROFER97)以及钨被放入 HT-7 托卡马克的刮削层中,以研究托卡马克装置中高温等离子体与低活化马氏体钢和钨表面的相互作用。通过 SEM 装置观察,发现某些样品的表面形貌发生了很大变化。低活化马氏体钢的表面起泡比较密集,钨的表面起泡比较稀少,且直径较大。在一些样品的表面,还观察到了等离子体灰尘以及明显的被等离子体冲击后的痕迹。另外,XPS 分析发现样品表面的某些元素成分也发生了变化,而且处在托卡马克装置中不同位置处的样品,其表面硅的含量呈现出明显的规律性。

关键词:低活化马氏体钢 CLAM; EUROFER97; 钨; HT-7 托卡马克; 辐照; 表面分析

中图分类号: TL61.3 **文献标识码:** A **文章编号:** 0258-0918(2004)02-157-07

Surface analysis of CLAM steel, EUROFER97 steel and W irradiated in HT-7 Tokamak

LI Qiang^{1,2}, HUANG Qun-ying¹, YU Jin-nan³, LI Jian-gang¹, WU Yi-can¹, HE Xiao-xiong^{1,2}

(1. Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei of Anhui Prov. 230031, China;

2. Hefei University of Science and Technology, Hefei of Anhui Prov. 230039, China;

3. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: Samples of two kinds of low activation ferritic/martensitic steels, i. e. CLAM steel and EUROFER97 steel, and W were irradiated in HT-7 Tokamak to investigate the interaction with plasma. Surface morphology observation of some samples with Scanning Electron Microscope (SEM) show great changes after irradiation. It is easy to observe the dense small bilisters on surfaces of CLAM steel, EUROFER97 steel and sparse big blisters the on surface of W when they are closer to the center plasma. Plas-

收稿日期: 2003-07-14; 修回日期: 2003-10-09

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10375067); 中国科学院知识创新工程资助项目

作者简介: 李 强(1977-), 男, 安徽人, 合肥工业大学硕士毕业, 主要从事反应堆材料研究

ma dust and trace struck by plasma are observed on sample surfaces when they are farther to the center plasma. X-ray Photoelectron Spectroscopy (XPS) shows that chemical compositions of sample surfaces are changed, and it is obvious that the composition of silicon on sample surfaces due to its sputtering and redeposition varies with samples' distance from plasma.

Key words: low activation ferritic/martensitic steels CLAM and EUROFER97; tungsten; HT-7 Tokamak; irradiation

0 引言

由于低活化马氏体钢具有良好的抗辐照肿胀和热物理性能,最有希望成为实验聚变堆第一壁和包层结构材料^[1,2],也是正在进行研究的聚变驱动次临界系统(Fusion Driven Sub-critical System, FDS)的首选结构材料之一^[3,4]。最近,将低活化马氏体钢作为托卡马克装置真空室第一壁材料,研究其与等离子体相容性,包括对等离子体控制、稳定性以及杂质释放等方面影响的实验正在日本进行^[5]。钨作为高原子序数的直接面向等离子体材料,由于其具有高熔点、抗等离子体溅射、高热导率等特点,被考虑用于受到高热流、高注量率等离子体辐照的偏滤器靶板材料^[6,7]。在 ASDEX 托卡马克上,用钨逐步取代碳基材料作为真空室第一壁材料的实验研究,已初步说明钨作为第一壁材料的可行性和优点^[8~11]。基于上述情况,在 HT-7 托卡马克装置的 2003 年春季实验中,低活化马氏体钢 CLAM(China Low Activation Martensitic steel)^[4]、EUROFER97^[12] 以及多晶钨的样品被放入等离子体边界刮削层中,以研究高温等离子体对样品表面的影响。

实验过程中,同种样品被同时放置在距离等离子体中心远近不同的两个位置,以考察在同样的放电条件下,两个位置处的样品所受到的损伤与等离子体密度与温度之间的大致关系。样品在等离子体轰击前后,均进行了表面的扫描电镜(SEM)观察和 X 射线光电子能谱(XPS)面成分分析,结果显示样品被等离子体辐照之后,表面都受到不同程度的损伤,而且放置在距离中心等离子体远近不同的两个位置处的同种样品的损伤情况有所不同。对于观察到的现象,本文中作了探索性的解释。

1 辐照实验

1.1 样品制备

表 1 列出了 CLAM 钢和 EUROFER97 钢的主要成分,样品经真空熔炼并经热轧和冷轧后在 1 253 K 淬火 30 min, 1 033 K 回火 90 min。钨为纯度 99.99% 的多晶体。样品尺寸为 15 mm×7 mm×1.5 mm,每种材料的样品表面都经过打磨并且抛光。所有样品在实验之前都放在丙酮溶液中用超声波清洗,再用酒精清洗,然后用热空气吹干。

表 1 CLAM 钢与 EUROFER97 钢的主要化学成分(质量百分数)

Table 1 Chemical compositions of CLAM steel and EUROFER97 steel(wt%)

	Fe	Cr	Mn	W	Si	V	C	Ta	Ni
CLAM	Bal	8.85	0.42	1.50	0.01	0.20	0.084	0.072	0.02
EUROFER97	Bal	8.82	0.37	1.10	0.005	0.19	0.10	0.068	0.021

1.2 实验系统

HT-7 是中等尺寸带限制器位形的超导托卡马克装置,大半径 $R=1.22$ m,小半径 $a=$

0.27 m。真空室第一壁和内衬所用材料是 1Cr18Ni9Ti 不锈钢,限制器材料是涂有碳化硅层的石墨。样品架及样品在 HT-7 托卡马克

中的位置如图 1、2 所示,样品架有上下两个平行半圆面,高度相差 1 cm。样品架被真空磁力传送机构送至等离子体刮削层,上半面距离等离子体中心 $r=29$ cm(1 号位置),下半面距离等离子体中心 $r=30$ cm(2 号位置)。每种材料在上半面和下半面上各有 1 块样品且对称分布,样品表面与环向平行,直接面向等离子体。辐照期间 HT-7 装置中心等离子体平均参数:等离子体电流 $I_p = 125$ kA,电子密度 $n_e = 1.5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$,电子温度 $T_e = 700$ eV,离子温度 $T_i = 450$ eV;样品被辐照 802 炮,其中破裂

200 炮,平均每炮放电时间 $\tau = 1500$ ms。边界电子温度与密度的情况如图 3 所示,边界离子温度是电子温度的 0.5~1 倍,密度与电子密度相同。在欧姆放电情况下(辐照期间欧姆放电占 80%以上),计算得出辐照在 1 号位置样品上的离子注量率约为 $6.80 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,电子注量率约为 $3.87 \times 10^{24} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,辐照在 2 号位置样品上的离子注量率约为 $1.68 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,电子注量率约为 $0.96 \times 10^{24} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

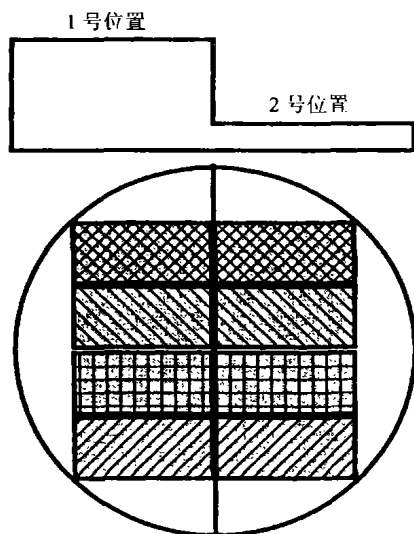


图 1 面对等离子体样品架示意图
Fig. 1 Sample shelf in plasma side

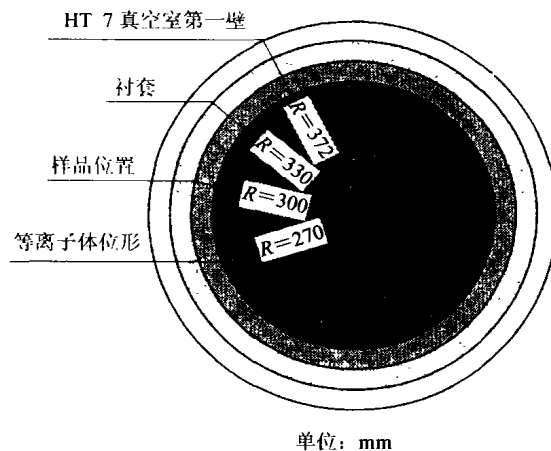


图 2 样品在 HT-7 中的径向位置
Fig. 2 Radial position of sample in HT-7

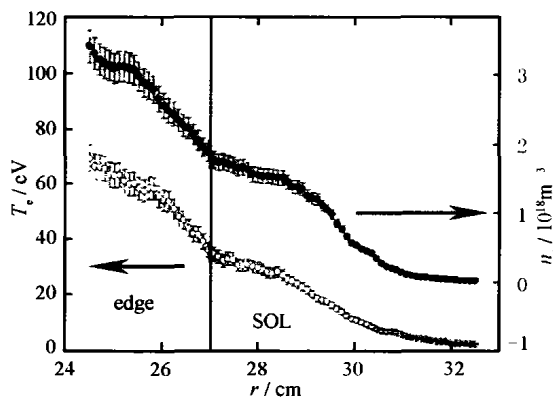


图 3 装置边界电子温度与密度
Fig. 3 T_e and n_e of HT-7 Tokamak boundary

2 实验结果与讨论

2.1 表面形貌

2.1.1 表面起泡

处在 1 号位置的 3 种样品,辐照均引起了表面起泡,为表述方便起见,表面起泡中每个鼓包称做浮泡,浮泡的数量及大小分布如图 4 所示。经等离子体辐照的样品表面如图 5 所示,CLAM 钢和 EUROFER97 钢表面的浮泡比较密集,大部分直径小于 $1 \mu\text{m}$ 。浮泡有沿线分布的倾向,在 EUROFER97 钢的表面,这种倾向较为明显,而在 CLAM 钢的表面,大多数浮泡已连成片状。钨表面的浮泡数量则少得多,大部分直径为 $1 \sim 5 \mu\text{m}$ 。对金属表面起泡产生的

过程,有两种理论:一种是气体驱动理论^[13],认为由于注入样品表面的气体不断聚集,从而压力不断增大,最终将表面顶起,产生鼓包(浮泡);另一种是侧向应力驱动理论^[14],认为表面起泡的形成主要是由于辐照过程中所产生的侧向应力引起的。对 316 L 不锈钢,在 α 粒子辐照下表面起泡的产生过程,有人认为气体驱动理论较为合理^[15]。最近,有人在用低能量(小于 100 eV)高注量率(大于 $10^{21} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)的氦离子束辐照钨表面的实验中,所观察到的现象与图 3 c1 非常类似,钨表面在氦离子束的辐照下发生表面起泡^[16],即产生了大量的浮泡。可能是注入的氦在钨内扩散的过程中将与钨中固有的缺陷团不断结合,随着与某一缺陷团结合的氦越来越多,就会形成氦泡,这种氦泡的压力由于氦的聚集会不断增大,最终在表面产生鼓包(浮泡)。

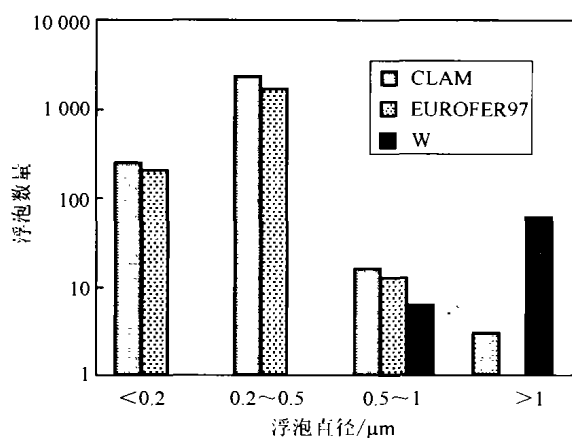


图 4 1 号位置样品表面浮泡数量与大小分布

Fig. 4 Number and size of No. 1 samples' surface blister

在 HT-7 托卡马克中,辐照在样品表面的主要是等离子体中的氢、氦和电子。在伴有能量和密度几乎与氢、氦粒子束相同的电子束辐照的情况下,由于电子质量是氢的 1836.15 分之一,其主要作用是能量沉积升高样品温度;而氢、氦粒子束轰击使样品在温度升高的情况下产生表面起泡。这种氢、氦粒子和电子协同作用产生表面起泡的过程,还是可以用气体驱动理论解释的。图 5 a1、b1 所示浮泡趋向于沿线分布的现象,可能与马氏体钢 CLAM 和 EU-

ROFER97 的组织结构有关。通常对于含碳量低于 0.6 % 的钢,在由奥氏体快速淬火到马氏体时,将形成板条马氏体,板条与板条之间存在小角度晶界。马氏体钢 CLAM 与 EUROFER97 的含碳量均为 0.1 %,是板条马氏体组织。这样,当氢、氦注入到样品内,在扩散的过程中将更容易在板条与板条之间的晶界上形成气泡核,气泡不断增大,最后在温度和气泡内压力的作用下,大的气泡在样品表面形成沿晶界排列的鼓包(浮泡)。但氢、氦在马氏体钢和钨内扩散与聚集的过程并不完全相同。从浮泡数量上看,显然马氏体钢表面浮泡密度高,直径小;而钨表面浮泡密度低,直径大。这是因为氢、氦在马氏体钢内扩散率高,容易聚集形核、生长,形成气泡;同时马氏体钢刚度不高,容易表面起泡。在钨内空位迁移率很低,氢、氦在钨内扩散率不高,因此氢、氦聚集在表皮下,由于钨的刚度高,气泡必须生长到足够大才能表面起皮,导致在钨表面气泡密度低,且直径大。从以上分析可知,需要提高低活化马氏体钢、钨、钼等高原子序数材料抗等离子体的辐照能力,必须对氢、氦等离子在材料内聚集形核条件等进行深入研究。

2.1.2 等离子体灰尘与冲击痕

从图 3 中可以看出,距离等离子体中心 29 cm 处的 1 号位置的电子密度和温度与离子密度和温度分别是距离等离子体中心 30 cm 处的 2 号位置的 1 倍左右,辐照在 1 号位置样品上的离子注量率和电子注量率是辐照在 2 号位置样品上的 4 倍左右。这种差别对样品的影响体现在,1 号位置上 3 种样品的表面在被等离子体辐照后都产生表面起泡,而 2 号位置上 3 种样品在被等离子体辐照后的表面形貌呈现出与 1 号位置样品不同的情况,只观察到极少数由于等离子体辐照而产生的表面浮泡。图 5 a2 为 CLAM 钢被辐照后的表面情况,基本上看不出有什么变化。图 5 b2 是 EUROFER97 钢被辐照后的表面情况,表面上分布着一些凹坑,这种现象实验之前就观察到,只是实验前凹坑边界较清楚,实验后由于等离子体的轰击使得边界变得平坦了。那些颗粒状的浮片可能是沉积

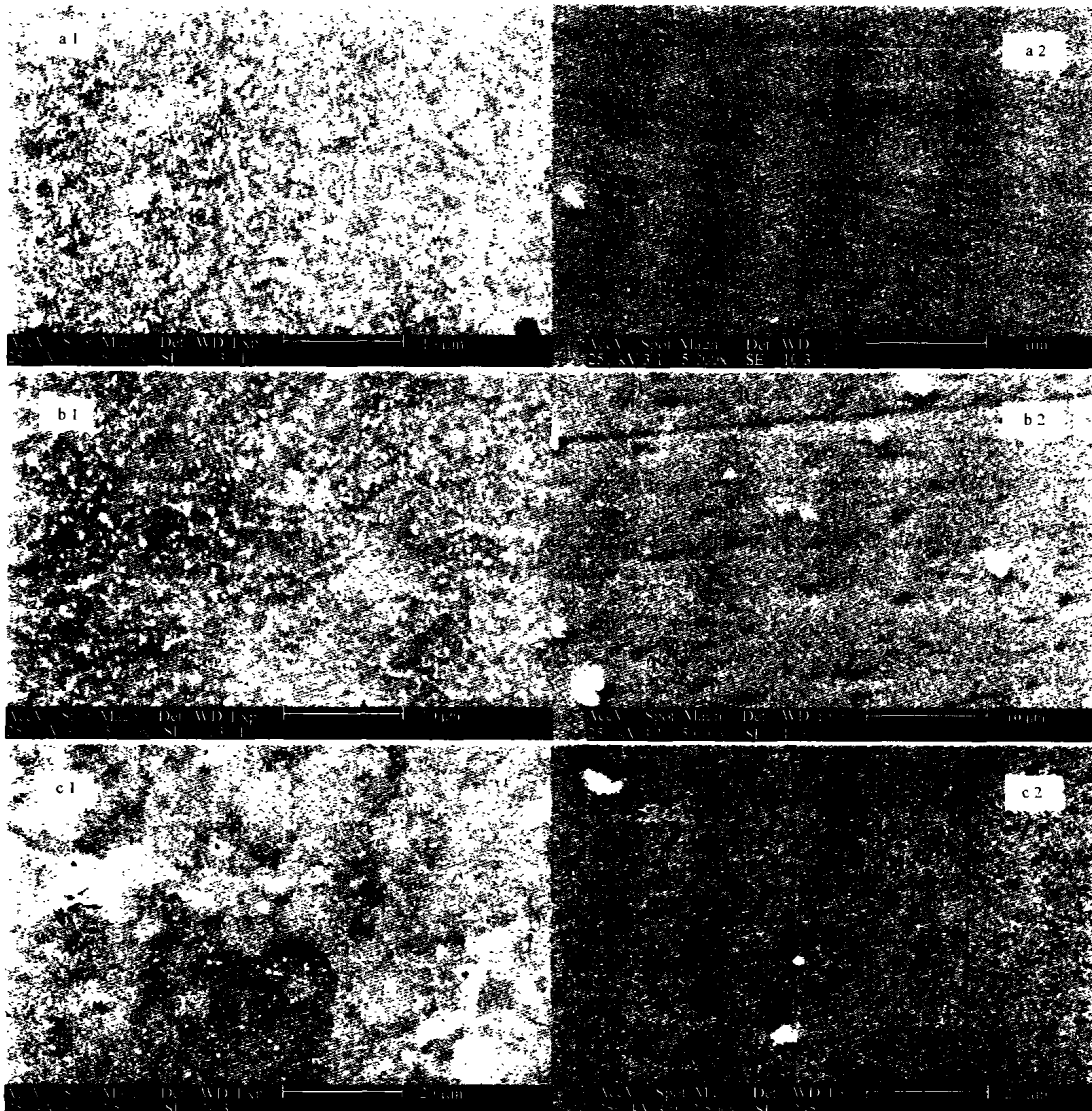


图5 辐照后样品的SEM图(a1、b1、c1分别为1号位置上的CLAM钢、EUROFER钢和钨;a2、b2、c2分别为2号位置上的CLAM钢、EUROFER钢和钨)

Fig. 5 The SEM figure of samples irradiated (a1、b1、c1 are CLAM steel, EUROFER97 steel and tungsten in No. 1 place; a2、b2、c2 are CLAM steel, EUROFER97 steel and tungsten in No. 2 place)

在样品表面的等离子体灰尘。在2号位置的2种马氏体钢表面,没有明显发现由于被等离子体辐照而产生的典型现象,如表面起泡、烧蚀痕等。这主要是由于在正常的情况下,处于这一位置的等离子体密度与温度还在马氏体钢的可承受范围之内。在这种情况下,沉积在样品表面的热量很快就传到了样品架上,这样就不会由于过热使样品表面起泡、烧蚀。另外,由于等离子体的轰击而向样品表面内注入氢、氧的量

没有达到表面起泡的阈值剂量,而不呈现表面起泡。

图5 c2显示了钨表面的变化情况,表面布满了被等离子体轰击后留下的斑痕。大部分斑痕是孤立的,这些斑痕好像是表面起泡并破裂后与基体脱离留下的痕迹。从图中还可以看出,在面积较大的斑痕处有一些由直径约为 $1\mu\text{m}$ 左右颗粒状浮片构成的碎屑。从这种碎屑及斑痕的形态来看,这种现象好像是斑痕所

在处的表面起泡(或表面起皮)连续的脱离基体并且聚集在一起所形成的。虽然钨比马氏体钢抗等离子体溅射的能力要强,但与同位置的马氏体钢相比,钨表面的损伤情况要严重得多。造成这种现象的原因必然是钨样品受到了非正常运行状态的高温、高密度等离子体的轰击。当正常运行的等离子体受到某种因素的影响而破裂时,等离子体的能量可能会集中在真空室或者限制器上的某处释放,而造成对它们的烧蚀损伤。从图 5 c2 所示的信息,可以推测出当等离子体破裂时,如果它的能量集中于钨样品表面释放而对其造成损伤的大致过程。当破裂的等离子体将能量集中于样品上时,由于作用时间比较短,注入样品表面的高密度氢、氦来不及扩散而迅速聚集成一片状气泡,又因为能量集中,使得样品表面温度很高导致强度变弱。这样,这一片状气泡就很容易顶起表面产生表面起泡并破裂。

2.2 表面成分

通过 XPS 分析,发现样品表面的碳、氧、氮等非金属元素以及铁、铬、锰等金属元素的含量都发生了一些变化,但变化量不大,尚未有明显的规律。对于硅,2 号位置上的 3 种样品表面含量较高,而 1 号位置上的 3 种样品表面并不明显。图 6 是样品表面硅的 2p 和 2s 电子的 XPS 谱图。可以看出在 2 号位置的 CLAM 钢、EUROFER97 钢以及钨表面显示出明显的峰值,而在 1 号位置的 3 种样品表面没有探测到明显的峰值。造成这种情况的原因可能是因硅化而附着于真空室内壁以及涂有碳化硅层的石墨限制器表面的硅,由于受到等离子体以及逃逸电子和离子的溅射而进入运行的等离子体中,但这些硅最终会沉积在其他地方,包括样品的表面。由于 1 号位置处的离子与电子密度约为 2 号位置处的 2 倍左右,所以不断沉积在 1 号位置样品上的硅,又不断被溅射出去,而 2 号位置样品表面硅的被溅射速率小于沉积速率,在这种情况下,硅就会逐渐在 2 号位置样品的表面积累起来。

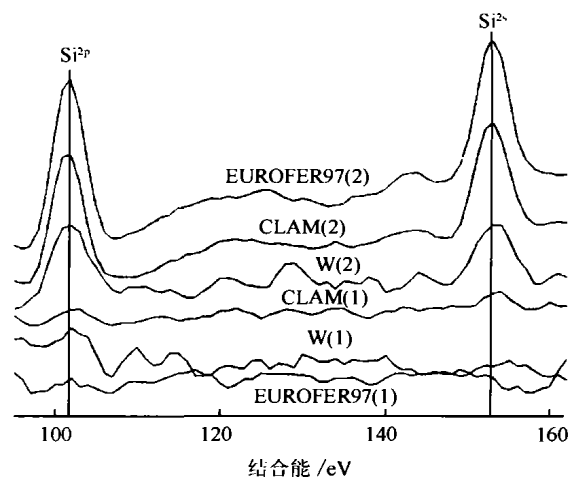


图 6 辐照后样品表面硅的
2p 和 2s 电子的 XPS 谱图

Fig. 6 The Si 2p, Si 2s photoelectron peaks
of samples (1)—1 号位置样品;(2)—2 号位置样品

3 结论

通过对低活化马氏体钢 CLAM、EUROFER97 和钨在 HT-7 托卡马克装置中的辐照实验,发现在距离等离子体中心 29 cm 处的 3 种样品;在高温等离子体的辐照下,均产生表面起泡。2 种低活化马氏体钢表面的鼓包(浮泡)密度高于钨的鼓包(浮泡)密度,但钨表面的鼓包(浮泡)尺寸较大。从处于距离等离子体中心 30 cm 的 3 种样品的表面形貌来看,马氏体钢表面并没有受到什么损伤。2 个不同位置上的同种样品表面形貌的这种差别,说明材料与托卡马克中等离子体的相互作用随材料距离等离子体中心远近的不同而发生很大的变化,反映了等离子体边缘的离子、电子密度和温度的变化。在 XPS 的分析结果中,处于 2 个位置上的样品表面硅含量的差别也说明这一点。值得注意的是,处于 30 cm 位置上的钨样品表面有明显的等离子体冲击痕。从钨与马氏体钢的抗等离子体辐照的能力来看,可以认为钨样品受到了非正常运行的等离子体的冲击,可能是等离子体受某种因素的影响而破裂时,其能量集中在样品表面释放所致。正是这种托卡马克中能量比较集中的非正常状态运行的等离子体,是造

成钨、钼等高原子序数材料损伤的主要原因之一。

对北京大学万发荣教授, HT-7 项目组李成富老师、张晓东研究员、杨愚副研究员、龚宪祖副研究员和徐国盛博士等给予的热情帮助, 表以最真诚的谢意。

参考文献:

- [1] Hishnuma A, et al. Current status and future R&D for reduced-activation ferritic/martensitic steels [J]. J. Nucl Mater, 1998, 258~263;193~204.
- [2] Klueh RL, et al. Ferritic/martensitic steels-overview of recent results [J]. J Nucl Mater, 2002, 307~311;455~465.
- [3] Wu YC. et al. The fusion-driven hybrid system and its material selection [J]. J Nucl Mater, 2002, 307~311; 1 629~1 636.
- [4] 黄群英, 等. 聚变堆低活化马氏体钢发展综述[J]. 核科学与工程, 2004, 24(1);56~64.
- [5] Tsuzuki K, et al. Recent activities on the compatibility of the ferritic steel wall with the plasma in the JFT-2M tokamak [J]. J Nucl Mater, 2002. 307~311;1 386~1 390.
- [6] Janeschitz G, et al. The ITER divertor concept [J]. J. Nucl Mater, 1995, 220~222;73~88.
- [7] Naoaki yoshida. Review of recent works in development and evaluation of high-z plasma facing materials [J]. J Nucl Mater, 1999, 266~269;191~206.
- [8] Krieger K, et al. Plasma-wall interaction at the ASDEX Upgrade tungsten heat shield [J]. Fusion Eng Des, 2001, 56~57;189~193.
- [9] Neu R, et al. Impurity behaviour in the ASDEX Upgrade divertor tokamak with large area tungsten walls [J]. Plasma Phys Control Fusion, 2002, 44;811~826.
- [10] Maier H, et al. J Nucl Mater, 2002, 307~311;116~120.
- [11] Krieger K, Development of tungsten coated first wall and high heat flux components for application in ASDEX Upgrade [J]. J Nucl Mater. 2003, 313~316;327~337.
- [12] Lucon E, Mechanical tests on two batches of oxide dispersion strengthened RAFM steel (EUROFER97) [J]. Fus. Eng. Des, et al. Erosion and migration of tungsten employed at the main Upgrade [J]. Chamber first wall of ASDEX, 2002, 61~62;683~689.
- [13] Evans J H, An interbubble fracture mechanism of blister formation on helium-irradiated metals [J]. J Nucl Mater, 1977,68;129~140.
- [14] EerNisse E P, et al. Role of integrated lated stress in surface deformation of He-implanted surfaces [J]. J Appl Phys, 1977, 48;9~17.
- [15] Yu J, et al. The blistering of 316L stainless steel irradiated with energetic alpha particles at 500°C [J]. J Nucl Mater. 1992, 191~194;818~821.
- [16] Ye M Y, et al. Blister formation on tungsten surface under low energy and high flux hydrogen plasma irradiation in NAGDIS-I [J]. J. Nucl. Mater, 2003, 313~316;72~76.