УДК 621.039.619:634

ХАРАКТЕРИСТИКИ ПЛЁНОК, ПОЛУЧЕННЫХ ПРИ БОРОНИЗАЦИИ СТЕНОК В ТОКАМАКЕ ASDEX UPGRADE, И ИХ ВЛИЯНИЕ НА ЗАХВАТ ДЕЙТЕРИЯ ВОЛЬФРАМОМ

К.А. Мошкунев, В.А. Курнаев, А.А. Русинов (Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва, Россия), К. Шмид, А. Вильтнер, В. Якоб (Институт физики плазмы Общества им. Макса Планка, Гархинг, Германия)

Методами ядерных реакций, эллипсометрии и растровой электронной микроскопии исследованы характеристики плёнок на вольфраме, полученных при боронизации стенок в токамаке ASDEX Upgrade. Также изучено их влияние на захват водорода в вольфрамовую подложку при облучении потоками дейтериевой плазмы с параметрами, близкими к ожидаемым в ИТЭР. Структура бороводородных плёнок различна для разных случаев боронизации. Метод ядерных реакций показывает, что для боронизованной мишени проникновение водорода в вольфрам затруднено даже после полного распыления плёнки бора дейтронами. Это происходит за счёт того, что бор, присутствующий в верхних слоях вольфрамовой подложки, подавляет проникновение водорода.

Ключевые слова: вольфрам, захват, дейтерий, метод ядерных реакций, эллипсометрия, боронизация.

STRUCTURE OF FILMS GENERATED IN ASDEX UPGRADE AFTER BORONIZATION AND THEIR INFLUENCE OF HYDROGEN RETENTION IN TUNGSTEN SUBSTRATE. K.A. MOSHKUNOV, V.A. KURNAEV, K. SCHMID, A. WILTNER, W. JACOB. Structure of boronized films was studied by nuclear reaction analysis (NRA), ellipsometry and electron microscopy. The Influence of these films on the deuterium retention in tungsten substrate was studied by nuclear reaction analysis. D irradiation was performed at plasma conditions relevant to ITER. NRA shows that boron prevents hydrogen diffusion in tungsten even when the film is completely sputtered as confirmed by ellipsometry measurements. This happens due to boron remaining in the near-surface layer of the substrate.

Key words: tungsten, retention, deuterium, NRA, ellipsometry, boronization.

ВВЕДЕНИЕ

Одним из методов улучшения характеристик плазмы в исследовательских термоядерных установках является широко применяемая боронизация стенок разрядной камеры (см., например, [1—7]). Эффект такой процедуры со временем уменьшается [8, 9], что связано с эрозией и деградацией нанесённых слоёв, поэтому процедуру боронизации необходимо повторять вновь и вновь. В связи с проблемой накопления трития чрезвычайно важным является вопрос о влиянии этих плёнок на захват и удержание водорода в материалах первой стенки. По аналогии с углеводородными плёнками, которые в настоящее время считаются самыми опасными с точки зрения накопления трития [10], можно ожидать, что и бороводородные плёнки могут, несмотря на их эффективность в улучшении параметров плазмы, увеличивать захват изотопов водорода в материалах подложки.

Данная работа посвящена исследованию структуры плёнок, осажждённых при боронизации на вольфрамовые образцы, и захвату в эти образцы дейтерия при облучении потоками плазмы. Выбор вольфрама обусловлен тем, что в токамаке ASDEX Upgrade первая стенка покрыта вольфрамом и, кроме того, вольфрам является материалом дивертора, а в одном из возможных сценариев — всей стенки ИТЭР.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ПРОЦЕДУРА

Суть процедуры боронизации состоит в напылении на первую стенку токамака плёнок с высоким содержанием бора. Боросодержащим газом в токамаке ASDEX Upgrade является диборан B_2D_6 . Сначала в камере зажигается тлеющий разряд в гелии при давлении $4 \cdot 10^{-3}$ мбар с током 6 А и потенциалом относительно стенки 500 В. После 5 часов горения в разряд добавляется до 10% диборана, и спустя 4 часа после этого разряд выключается.

Манипулятор с образцами вдвигался в камеру вровень с первой стенкой чуть ниже средней плоскости. Боронизация проводилась два раза — в сентябре и ноябре 2008 г., они будут упомянуты как первая и вторая соответственно.

В качестве подложки был выбран вольфрам, изготовленный фирмой Plansee AG. Образцы размером $8 \times 8 \times 1$ мм были вырезаны из стержня, отполированы механически до зеркального блеска и потом подвергнуты электрохимическому травлению для удаления повреждённого полировкой слоя. Затем они были отожжены при температуре 950 °С в течение 15 часов для снятия напряжения и удаления первичных дефектов без рекристаллизации образца.

Характеристики плёнок, нанесённых на образцы при боронизации, были определены методами растровой электронной микроскопии, ядерных реакций (МЯР) и эллипсометрии. Для определения оптических и эрозионных свойств плёнок одновременно с их облучением дейтронами проводились эллипсометрические измерения на установке PLAQ [11].

Отношение поперечного r_{ort} и продольного r_{par} к плоскости рассеяния компонентов поляризации отражённого от поверхности изначально линейно поляризованного света (He—Ne-лазер) определяется толщиной и коэффициентом преломления материала плёнки. Это отношение соответствует паре эллипсометрических углов Ψ и Δ , связанных следующим образом:

$$\frac{r_{\text{ort}}}{r_{\text{par}}} = \tan(\Psi)e^{i\Delta}.$$

Изменение толщины плёнки будет сопровождаться изменением значений Ψ и Δ . Система эллипсометрии, установленная на PLAQ, позволяет получать значения Ψ , Δ один раз в несколько секунд, таким образом, возможен мониторинг толщины плёнки в реальном времени. Соотнесение значения Ψ , Δ с толщиной плёнки производится с помощью простейшего моделирования. Используя полученную зависимость углов эллипсометрии Ψ , Δ от времени и взяв комплексный коэффициент преломления пленки $n + ik$ как подгоночный параметр, можно получить значение её толщины и величин n и k . Эти параметры затем были использованы для сканирующей эллипсометрии Jobin Yvon PZ 2000 в ИФП, с помощью которой было определено распределение толщины плёнки по поверхности.

Для облучения использовалась дейтериевая плазма при давлении дейтерия $\sim 10^{-2}$ мбар, основным компонентом плазмы были молекулярные ионы D_3^+ , что при потенциале смещения 450 В соответствует энергии падающих на поверхность частиц ~ 150 эВ/D. Плотность потока на образец составляла $2 \cdot 10^{19}$ $D_3^+/(m^2 \cdot c)$, что приводило, согласно показаниям инфракрасной камеры, к нагреву образцов до температуры 300 °С. В экспериментах с облучением образцов второй боронизационной кампании был вынужденно изменён тракт передачи СВЧ-энергии в плазму. Это привело к увеличению мощности накачки плазмы и соответствующему увеличению потока частиц на образец. Поэтому температура образцов составляла уже ~ 350 °С.

Количество захваченного дейтерия было оценено МЯР на ускорителе в ИФП. Для определения концентрации бора, дейтерия и углерода (всегда присутствующего в токамаке ASDEX Upgrade, даже после полной замены обращённых к плазме элементов на вольфрамовые) использовался пучок $^3\text{He}^+$ с энергией 3,15 МэВ. Вычисление концентрации проводили с помощью моделирования спектра протонов программой SIMNRA [12]. После облучения некоторые образцы были исследованы в ИПФ методом вторичной ионной масс-спектрометрии (ВИМС). Для проверки воспроизводимости все эксперименты по внедрению дейтерия и анализ его захваченного количества проводили дважды.

ХАРАКТЕРИСТИКИ ПЛЁНОК ПОСЛЕ БОРОНИЗАЦИИ

Поверхность вольфрамового образца перед экспонированием в токамаке показана на рис. 1, а. Видны зерна с характерным размером 2 мкм, поры, а также множество небольших бугорков, обусловленных методом подготовки образцов. Рельеф поверхности плёнки после первой боронизации представлен на рис. 1, б. Извлечённая из токамака плёнка (см. рис. 1, б) имеет блистерообразную структуру поверхности с характерными размерами «вздутый» ~ 5 мкм и незакрытыми порами. После облучения ионами дейтерия в установке PLAQ и практически полного стравливания плёнки на поверхности (см. рис. 1, в) видны остатки плёнки в виде удлинённых гребней. Их присутствие свидетельствует о неоднородности плёнки, также, возможно, являвшейся причиной упомянутых вздутий.

Рис. 1. Поверхность чистого вольфрама (а), плёнки после первой (б) и второй (в) боронизации, а также плёнка после первой боронизации и облучения ионами дейтерия (г)

Плёнка после второй боронизации представлена на рис. 1, *в*. Видно, что структура плёнок при двух процедурах боронизации разная. Это подтвердилось и в эллипсометрических измерениях. Из сравнения рис. 2, *а, б* видно, что коэффициенты преломления отличаются. Кроме того, для плёнки, полученной после второй боронизации, n и k несколько меняются на начальной стадии распыления, что может быть связано с влиянием нагрева образца под облучением. Особенностью плёнки, осаждённой в первой кампании, является то, что для удовлетворительного воспроизведения результатов было необходимо ввести в модель шероховатость плёнки (разброс по толщине) ~ 30 нм. Из рис. 1, *б* становится понятно, что такое введение оправдано и может быть отнесено к наблюдаемой регулярной неоднородности поверхности. Для плёнки после второй боронизации такое дополнение модели не потребовалось, и на рис. 1, *в* не видно «вздутий», а только тонкие «швы», которые не дают своего вклада в эллипсометрические измерения. Скорость эрозии при плотности потока $6 \cdot 10^{19}$ D/(м²·с) составила 0,04 нм/с.

Рис. 2. Результаты эллипсометрических измерений при травлении плёнки ионами дейтерия. Эксперимент и расчёты для плёнок первой (*а*) и второй (*б*) боронизаций

Полученные оптические коэффициенты были использованы для сканирующей эллипсометрии, результаты которой представлены на рис. 3 вместе с фотографией образца. Плёнка достаточно однородная, с флуктуацией 40 нм при средней толщине 300 нм. Продолговатое пятно слева на рисунках — следы облучения в ускорителе, приведшего к некоторому утончению плёнки.

Рис. 3. Внешний вид образца с пленкой после первой боронизации и результаты измерения её толщины: *а* — фотография образца (круг — след электрополировки, светлые уголки были затенены от плазмы), *б* — эллипсометрическая топография толщины плёнки

Согласно проведённому МЯР-анализу плёнок от первой боронизации, в котором измерялись концентрации только В, С и D, для всех образцов, одновременно прошедших боронизацию, доли этих элементов одинаковы с 5%-ной точностью. Средняя по образцам концентрация для В составила 86%, для С — 6%, для D — 8%.

Сравнивая с результатами исследования бороводородных плёнок [13], где коэффициент преломления $n > 2,1$, можно сделать вывод, что исследуемые в этой работе плёнки ($n = 1,6—1,8$) могут быть по аналогии с

классификацией углеводородных плёнок охарактеризованы как «мягкие». Однако в мягких углеводородных плёнках концентрация водорода достигает 40% (ат.), в то время как в наших плёнках она не более 8% (ат.).

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЯ ЗАХВАТА ДЕЙТЕРИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Облучение ионами дейтерия проводили сразу для двух образцов, один из которых был опорным, т.е. чистый отполированный вольфрам, в то время как другой был боронизован в токамаке. Это позволило из сравнения свойств образцов сделать выводы о влиянии плёнки на захват дейтерия. Были проведены две серии облучений, в одной плёнка распылялась до толщины примерно 10 нм (состояние плёнки определяли по показаниям эллипсометрии), в другой облучение длилось в течение времени в 1,5 раза больше, чем необходимо для полного распыления плёнки. Это отвечает дозам $3 \cdot 10^{23} \text{ D/m}^2$ и $5 \cdot 10^{23} \text{ D/m}^2$ соответственно.

Далее образцы были подвергнуты МЯР-анализу, спектры протонов, полученные в $^3\text{He}(\text{D}, ^4\text{He})p$ -реакции, представлены на рис. 4. Спектр состоит из большого пика на канале 1230, соответствующего дейтерию, захваченному у поверхности образца, и широкого плеча справа от этого пика. Последняя часть ответственна за дейтерий, захваченный на большей глубине, причём чувствительность методики падает с глубиной, ограничивая исследуемый диапазон глубиной 8 мкм. Отдельно на рис. 4, а обозначены пики, соответствующие реакции ^3He с бором, подтверждающие частичный характер распыления плёнки.

Рис. 4. Спектры протонов для случаев частичной (а) и полной эрозии (б) плёнки от первой боронизации. Спектры сглажены для удобства восприятия

Как видно, в чистом вольфраме дейтерий присутствует с большой концентрацией как в приповерхностном слое (этому соответствует пик в левой части спектра), так и в глубине. Воспроизведение экспериментальных спектров моделированием даёт удовлетворительный результат, если модель состоит из полки высокой концентрации на первых 300 нм и плато низкой концентрации, простирающегося на глубины гораздо большие, чем предел видимости для МЯР. Плечо в правой части спектра позволяет определить величину средней концентрации дейтерия в области плато, но не позволяет определить распределение по глубине. У образца с плёнкой правое плечо на спектре отсутствует, что говорит об отсутствии дейтерия в глубине вольфрама. Пик соответствует захвату только у поверхности как в случае с частичной, так и в случае с полной эрозией плёнки.

Оценка показывает, что за счёт плато, имеющего хоть и небольшое значение концентрации, но простирающегося на большие глубины, дейтерия в чистом вольфраме может накапливаться в разы больше, чем в боронизованном.

Присутствие дейтерия только в приповерхностном слое образца с плёнкой можно было бы приписать захвату только в плёнку, когда дейтерий не достигает вольфрама при внедрении, а в плёнке его диффузия мала. Но этот аргумент невозможно применить в случае полной эрозии плёнки, когда очищенная вольфрамовая подложка была облучена дозой $2 \times 10^{23} \text{ D/m}^2$. При этих дозах дейтерий уже проникает в глубину вольфрама, не покрытого плёнками [14, 15]. Тем не менее в нашем случае дейтерий присутствует только в поверхностном слое (рис. 4, б). Таким образом, в процессе распыления плёнки поверхность вольфрамовой подложки оказывается модифицированной, предотвращая проникновение дейтерия вглубь образца.

Рис. 5. Данные ВИМС для образцов: опорного (а) и с частично распылённой плёнкой от первой боронизации (б) при одинаковой дозе облучения $3 \cdot 10^{23} \text{ D/m}^2$ ионами D_3^+ с энергией 450 эВ: ∇ — В; $\blacksquare$ — О; $\times$ — С; — — W

Измерения, проведённые методом ВИМС (рис. 5), показали, что в образце с частично распылённой плёнкой бор присутствует вплоть до глубины в 400 нм. Присутствие бора на таких глубинах можно объяснить за счёт большой пористости исходного материала (см. рис. 1), а на меньших глубинах — за счёт ионного перемешивания при бомбардировке ионами дейтерия. Полученный результат сходен с данными работы [16] по захвату дейтерия в облучённый углеродом вольфрам. В ней было показано, что профиль захвата дейтерия соответствует профилю внедрения углерода, и если дейтерий внедрялся не глубже углерода, то он не проникает вглубь образца. В случае частично распылённой плёнки дейтерий захватывается в диапазоне 300—400 нм, что как раз соответствует глубине проникновения бора (рис. 5, б).

Следует также отметить пик плотности углерода, наблюдаемый в опорном образце и расположенный на глубине 11 нм (рис. 5, а). Подобный пик отсутствует в необлучённом и покрытом плёнкой образцах. Это наблюдение очень похоже на представленное в работе [16], где это явление объяснялось дейтерий-стимулированной диффузией углерода, при которой он способен проникать на глубины гораздо большие, чем ионные пробеги.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено исследование характеристик плёнок, нанесённых при боронизации токамака ASDEX Upgrade на вольфрамовые подложки. Изучены их структура, показатель преломления и элементный состав. Важной особенностью захвата изотопов водорода в боронизированные вольфрамовые образцы оказалось то, что даже при полном распылении плёнки проникновение водорода внутрь образца в присутствии примеси бора затруднено. Согласно методу ядерных реакций, водород накапливается только в тонком модифицированном приповерхностном слое. Таким образом, наряду с улучшением параметров плазмы боронизация снижает количество водорода, захватываемого в вольфрам.

REFERENCES

1. Gruber O. — Fusion Eng. Des., 2009, doi:10.1016/j.fusengdes.2009.02.037.
2. Lipschultz B. et al. — J. Nucl. Mater., 2007, vol. 363—365, p. 1110.
3. Noda N. et al. — J. Nucl. Mater., 1999, vol. 266—269, p. 234.
4. Sagara A. et al. — J. Nucl. Mater., 1997, vol. 241—243, p. 972.
5. Winter J. — Plasma Phys. Control. Fus., 1996, vol. 38, p. 1503.
6. Higashijima S. et al. — J. Nucl. Mater., 1995, vol. 220—222, p. 375.
7. Sharapov V.M. et al. — J. Nucl. Mater., 1995, vol. 220—222, p. 730.
8. Ryter F. et al. — Fus. Eng. Des., 1990, vol. 12, pp. 267—271.
9. Schneider U. et al. — J. Nucl. Mater., 1990, vol. 176—177, pp. 350—356.
10. Causey R.A. — J. Nucl. Mater., 2002, vol. 300, p. 91.
11. Landkammer B., von Keudell A., Jacob W. — J. Nucl. Mater., 1999, vol. 264, p. 4855.
12. Mayer M. — In: Proc. of the 15th Intern. Conf. on the Application of Accelerators in Research and Industry. American Institute of Physics Conference Proceedings, 1999, vol. 475, p. 541.
13. Annen A., Saß M., Beckmann R., von Keudell A., Jacob W. — Thin Solid Films, 1998, vol. 312, pp. 147—155.
14. Alimov V.Kh., Ertl K., Roth J., Schmid K. — J. Nucl. Mater., 2000, vol. 282, p. 125.
15. Causey R., Wilson K., Venhaus T., Wampler W.R. — J. Nucl. Mater., 1999, vol. 266—269, p. 467.
16. Poon M., Haasz A.A., Davis J.W., Macaulay-Newcombe R.G. — J. Nucl. Mater., 2003, vol. 313—316, pp. 199—203.

AUTHORS

Moshkunov K.A. National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Kashirskoye shosse 31, 115409 Moscow, Russia

Kurnaev V.A. National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Kashirskoye shosse 31, 115409 Moscow, Russia

Rusinov A.A. National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Kashirskoye shosse 31, 115409 Moscow, Russia

Schmid K. Max Planck Society Institute of Plasmas Physics, Garching, Germany

Wiltner A. Max Planck Society Institute of Plasmas Physics, Garching, Germany

Jacob W. Max Planck Society Institute of Plasmas Physics, Garching, Germany

Received 16 July 2009
Problems of Atomic Science and Technology
Ser. Thermonuclear Fusion, 2009, issue 4, pp. 24—28