

钨中氢同位素热脱附实验的速率理论模拟研究

邹达人 金硕 许珂 吕广宏 赵振华 程龙 袁悦

Simulation of the experiments on thermal desorption spectroscopy of hydrogen isotope in tungsten with the framework of rate theory

Zou Da-Ren Jin Shuo Xu Ke Lü Guang-Hong Zhao Zhen-Hua Cheng Long Yuan Yue

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 072801 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.072801

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.072801>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I7>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于蒙特卡洛和器件仿真的单粒子翻转计算方法

Calculation of single event upset based on Monte Carlo and device simulations

物理学报.2014, 63(19): 196102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.196102>

低能氢原子沿不同角度轰击钨(001)表面的反射概率及入射深度分布的分子动力学研究

Molecular dynamics simulation of low-energy hydrogen atoms bombarding tungsten (001) surface at different angles and their depth distribution

物理学报.2013, 62(22): 227901 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.227901>

近玻尔速度 Ne^{2+} 离子穿过碳膜引起的电子发射

Secondary electron emission from carbon foils by Ne^{2+} near Bohr velocity

物理学报.2013, 62(15): 157901 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.157901>

低剂量率 ^{60}Co γ 射线辐照下 SOI MOS 器件的退化机理

Degradation mechanism of SOI NMOS devices exposed to ^{60}Co γ -ray at low dose rate

物理学报.2012, 61(24): 246101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.246101>

辐照下背栅偏置对部分耗尽型绝缘层上硅器件背栅效应影响及机理分析

Back-gate bias effect on partially depleted SOI/MOS back-gate performances under radiation condition

物理学报.2012, 61(20): 206102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.206102>

钨中氢同位素热脱附实验的速率理论模拟研究*

邹达人 金硕† 许珂 吕广宏 赵振华 程龙 袁悦

(北京航空航天大学, 物理科学与核能工程学院, 北京 100191)

(2014年7月19日收到; 2014年10月15日收到修改稿)

本文采用基于速率理论的模拟方法研究钨材料中氢同位素氘的热脱附谱. 热脱附数据来源于520 K下受等离子体辐照的多晶钨, 入射离子能量为40 eV, 剂量为 1×10^{26} D/m². 通过调节速率理论中的俘获能、俘获率等参数, 最终获得与实验相符合的热脱附拟合谱. 拟合结果表明, 钨中俘获的氘存在于三种俘获态, 俘获能分别为1.14 eV, 1.40 eV和1.70 eV, 相应脱附温度峰值为500 K, 600 K和730 K. 这三个俘获能分别对应于第一原理计算得到的空位俘获第3—5个氢原子的俘获能(含零点振动能修正)、空位俘获第1—2个氢原子的俘获能, 空位团簇对氢原子的俘获能. 模拟结果表明, 在本辐照实验条件下, 钨中空位及空位团簇是氘在钨中的主要俘获态.

关键词: 氢同位素, 热脱附谱, 速率理论

PACS: 28.52.Fa, 79.20.Rf, 61.80.Jh

DOI: 10.7498/aps.64.072801

1 引言

当今世界, 人类对能源的需求越来越大, 世界能源危机日益突出. 为了人类社会的可持续发展, 人类将目光投向了高效、清洁、安全的热核聚变能. 实现可控热核聚变最有效的途径之一是磁约束聚变, 即在托卡马克装置中用强磁场约束及高温的等离子体发生聚变反应. 该装置现阶段面临的主要问题之一就是高温等离子体对面对等离子体材料(plasma facing material, PFM)的辐照损伤. 因为在热核聚变反应过程中, PFM不仅要承受来自等离子体的高能热流辐照, 还要受到脱离磁场约束的各种粒子, 如氘(D)、氚(T)、氦(He)、中子、杂质粒子等的轰击^[1]. 这些相互作用将导致PFM的损伤, 如烧蚀、开裂、起泡、熔化等, 这对材料的性能、服役时间、安全性都是极大挑战. 钨(W)由于其熔点高、溅射率低、高热导率、低肿胀、低T滞留且不与T发生化学反应等优点, 被认为是托卡马克装置面对等离子体材料的主要候选材料之一^[2]. 如何提

高W材料的抗辐照性能也成为现今研究的重点.

目前, 国内外已有大量的实验工作对W的抗辐照性能进行了研究. 其中, 热脱附谱(TDS)作为一种有效的研究手段, 主要是用来研究氢(H)及其同位素、He等在PFM中的滞留情况. 实验中, 将样品放置在真空环境中程控加热, 随着温度的升高样品将释放杂质元素气体. 样品加热的同时采用四极质谱仪对真空中残余气体的组分进行检测, 根据检测结果, 判断杂质元素在样品中的俘获状态和滞留量. 多伦多大学的Poon小组^[3]利用位于UTIAS(University of Toronto Institute for Aerospace Studies)的TDS设备对W中D, He的俘获问题进行了系统的研究与分析, 在多晶W样品上, 辐照能量500 eV, 辐照剂量 $F=1 \times 10^{24}$ D/m²·s, 辐照温度300—700 K的条件下, 发现D的滞留量随着温度升高而增加. 国内, 复旦大学的金晓峰等用热脱附谱研究氢在Si(100)清洁表面的吸附^[4]. 表面物理与化学国家重点实验室的向鑫等利用TDS研究了数千伏注入电压下碳(C)掺杂对

* 科技部国际热核聚变实验堆(ITER)计划专项(批准号: 2013GB109002)、教育部博士点基金(批准号: 20111102110038)和国家教育部回国人员科研启动基金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jinshuo@buaa.edu.cn

铝(Al)中He行为的影响^[5]. 核工业西南物理研究院的郑永真等研究了重粒子对托卡马克装置抗辐照性能的影响^[6]. Li等研究了液态锂在第一壁材料中的影响^[7]. 在实际等离子体与壁材料相互作用过程中, 低能大束流是其主要特点. 边界等离子体能量一般在100—500 eV之间, 偏滤器部位甚至达到1 eV到几十eV, 束流密度为 10^{20} D/m²·s量级以上, 但一般的离子注入或者加速器无法满足这样的实验参数要求.

在理论研究^[8]方面, 北航计算小组用第一原理的方法, 通过研究W中缺陷对H的俘获, 提出了氢泡成核微观机理^[9-11], 以及通过研究应力与H在W中的溶解能的关系, 提出了氢泡级联长大的机理^[12]及H泡生成的极限浓度^[13]. 在此基础上, Liu等使用第一原理模拟结合缺陷释放理论对W中H释放的温度进行了计算, 其计算结果表明, W中空位H复合体释放H₃V, H₄V中H原子的温度大约在400 K, 释放H₁V, H₂V中H原子的温度约为500 K^[14]. 该结果与实验测得的结果的550 K, 700 K温度^[15]存在较大误差, 其原因可能是由于其模型没有考虑H在W中的扩散, 及W表面的复合释放过程所导致. 为解决第一原理计算中未考虑扩散等行为、计算尺度过小等问题, 可以基于速率理论方程建立模型, 从更大的尺度对W中H同位素的TDS谱进行研究. Causey等使用爱达荷国家实验室基于速率理论开发的TMAP (Tritium Migration Analysis Program) 模拟软件拟合了热脱附实验过程, 研究了气泡对TDS谱型的影响^[16]. 结果表明, 气泡会导致峰值向高温区移动, 气泡越大, 越往高温区移动. Masashi Shimada等使用该软件拟合了存在辐照损伤情况下的TDS谱, 结果表明只有存在辐照损失的情况下才存在高俘获释放能的俘获态^[17]. Sang等基于流体的模拟方法, 将离子诱导产生俘获态包含于速率理论计算模型中, 通过计算模拟给出H同位素在金属材料中滞留情况^[18].

综上, 由于受到实验条件的限制, 目前国内对于W中低能大束流条件下D的注入实验还较少. 加之该条件下D在W体内的滞留俘获形式还不十分明确. 而通过直接分析TDS实验得到的TDS谱, 难以定量获得D滞留时各俘获态种类及各俘获态数量关系. 因此, 本文采用基于速率理论的模拟方法通过拟合该极限条件下获得的TDS谱, 从而定量分析W中D滞留的俘获态及俘获量. 本文先从实验入手, 采用的热脱附数据来源于经D等离子

体辐照(离子入射能量40 eV、辐照剂量为 1×10^{26} D/m²)的多晶W. 热脱附过程中升温速率为1 K/s, 最高温度为1273 K. 随后通过基于速率理论模拟的方法, 在考虑扩散影响的情况下建立一维模型, 模拟整个热脱附实验过程, 将模拟所得的热脱附谱和实验得到的热脱附谱进行对比, 从而分析得出D辐照后W材料体各缺陷对应的俘获释放能、及各俘获能对应的缺陷浓度. 参照第一原理计算结果, 拟合得到的俘获能揭示了辐照实验后W样品中D的主要缺陷类型, 以期为进一步理解D在W材料中滞留的行为及机理提供依据.

2 实验及实验结果

2.1 实验内容

多晶W板轧制后在1673 K下保温1 h做再结晶处理, 平均晶粒尺寸55 μm. 样品尺寸10 mm × 10 mm × 1.5 mm的方形薄片. 辐照前进行机械抛光, 并在 5×10^{-5} Pa的真空试管内进行1273 K去应力退火处理, 保温时间为60 min. 等离子体辐照实验在荷兰FOM-DIFFER研究所的Pilot-PSI上进行, 离子入射能量为40 eV、束流密度为 1.4×10^{24} D/m²·s, 辐照剂量为 1×10^{26} /m². 相关文献表明500 K左右温度段材料中D的滞留量较大, 易于后续的热脱附测量^[19], 故为保证实验时W中D的行为更加显著, 将辐照实验温度定为520 K.

热脱附测试也在DIFFER研究所中的TDS装置上运行, 样品夹持在陶瓷加热片上, 以1 K/s的速度线性加热至1273 K. 脱附测试过程中, H₂, HD, D₂等信号由四极质谱仪测得. 质谱仪测得的D₂或H₂信号通过D或H的标准漏孔进行绝对定标以确定实际脱附速率. 脱附行为以D₂信号为准, 计算总滞留量时同时考虑D₂和HD信号中D对总滞留的贡献.

2.2 实验结果及讨论

通过以上实验, 可以得到了图1所示的W中D的热脱附谱实验结果, 图中显示该谱线并不是一条光滑的曲线, 而存在很大的波动, 甚至在低温和高温段出现了低于0的数值, 我们认为这是实验设备导致的实验误差导致的.

通常情况下, W在经过低能高束流密度等离子体辐照后, 与材料中缺陷结合的D一般会在

400—1300 K之间释放. 研究结果显示, 一般情况下, 对于未进行预辐照的 W 样品, D 的脱附发生在 550 K 及 650 K 附近的两个温度段内. 低温段的释放峰被认为是与空位结合的第一个 D 原子和第二个 D 原子的脱附有关, 高温段的脱附与气泡中的 D 分子以及俘获在空位团簇中的 D 有关^[20]. 如图所示, 原始样品分别在 500—550 K 之间以及 650—700 K 之间有一个峰.

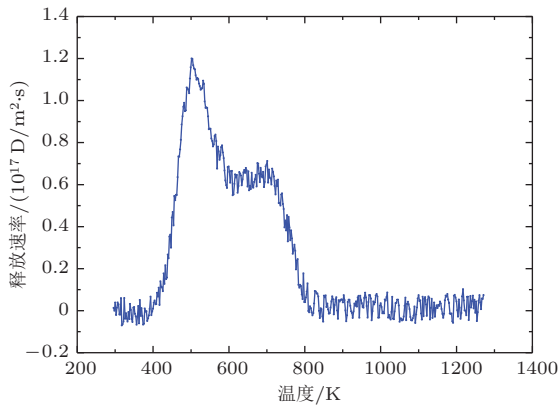


图1 W 中 D 的热脱附谱, 升温速率为 1 K/s

3 计算模型

本文使用基于速率理论的数值模拟方法来拟合实验中的热脱附过程. 速率理论主要是用来描述多粒子体系中各种粒子数或粒子状态随时间变化的理论. 在 TDS 实验过程中, 可用来计算描述各种杂质元素(浓度)随时间的变化. 另一方面因为速率理论能够对一个宏观肉眼可见的尺度范围进行高效的模拟, 而其他的一些模拟手段比如第一原理、分子动力学、蒙特卡洛等手段其模拟尺度都偏低, 很难达到这样一个数量级, 因此我们选用基于速率理论的模型来对 TDS 进行拟合.

3.1 模型介绍

热脱附的过程中, D 在 W 中主要有如下几种行为: 俘获(trapping); 俘获释放(trapping release); 扩散(diffusion). 其中俘获是描述间隙位的 D 原子与缺陷复合形成复合体的过程, 俘获释放是描述 D 从形成的缺陷 D 复合体逃逸出去变成间隙位 D 原子的过程, 扩散是描述间隙位 D 原子在 W 晶格中自由扩散的过程. 此外, 还存在一个样品被加热过程中逐渐升温的热输运过程^[21]. 以上几个行为过程如图 2 所示.

首先使用速率方程

$$\frac{\partial C_{\text{trap}}}{\partial t} = \frac{a_t C_{\text{emp}} C}{N} - a_r C_{\text{trap}} \quad (1)$$

来描述俘获和俘获释放这两种行为, (1) 式中的 C_{trap} 表示已经俘获了 D(即已经形成缺陷 D 复合体) 缺陷的浓度, 在模拟的时候需要给程序设定一个初始的复合体浓度分布, Li 等的研究表明初始深度分布会对热释放率有一定的影响^[22], C_{emp} 表示表示还能继续俘获 D 的缺陷(如空位、晶界等)的浓度, C 表示间隙位 D 原子的浓度, a_t 表示缺陷的俘获系数, a_r 表示缺陷的俘获逃逸系数, t 表示时间, N 表示钨的晶格原子密度. 当 $a_t C_{\text{emp}} C / N > a_r C_{\text{trap}}$ 时, 俘获行为占主导地位, 复合体的浓度逐渐增加; 反之则俘获释放占主导地位, 复合体浓度下降, 缺陷和间隙位 D 原子浓度上升. 在 TDS 过程中, 间隙位 D 原子在表面复合最终释放出去, 导致 C 下降, 故通常俘获释放占主导地位, D 原子从复合体中逐渐释放出去. 根据速率理论, 俘获系数和俘获逃逸系数可以分别用以下公式描述:

$$a_t = \frac{D}{\lambda^2}, \quad (2)$$

$$a_r = \nu_0 \exp\left(-\frac{E_t}{kT}\right), \quad (3)$$

式中的 D 表示钨中氢的扩散系数, λ 是晶格常数, ν_0 是德拜频率, E_t 表示该缺陷对 D 元素的俘获释放能, 该能量包括结合能和迁移能^[23,24], k 是波尔兹曼常数, T 表示温度.

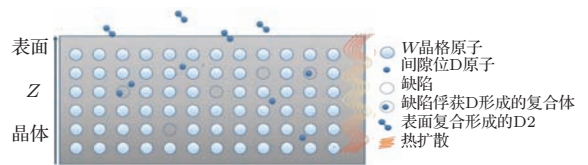


图2 (网刊彩色) W 中 D 的分布示意图

对于 D 原子在 W 材料中的扩散行为, 用如下的公式进行描述:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla \cdot J - \frac{\partial C_{\text{trap}}}{\partial t}, \quad (4)$$

式中 $\frac{\partial C}{\partial t}$ 表示了间隙位 D 原子浓度随时间的变化, J 表示 D 原子的扩散通量, 可以通过如下的公式获得:

$$\nabla \cdot J = \frac{d}{dz} \left[-D \left(\frac{dC}{dz} + C \frac{Q}{kT^2} \frac{dT}{dz} \right) \right], \quad (5)$$

式中 $\frac{d}{dz}$ 表示对深度取微分, Q 表示局域热量.

对于W样品逐渐升温的热输运过程,可用如下方程描述:

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (\kappa \nabla T), \quad (6)$$

式中 ρ 表示W原子密度, C_p 表示W的比热容, κ 表示W的热导率.

3.2 数值方案

实验过程中,注入后的D主要滞留在W表面,分布深度不超过nm量级,而样品大小达到了mm量级.这样大的数量级上的差异,使得间隙位D原子在垂直于深度方向的浓度梯度相比于深度方向的浓度梯度可以忽略不计.因此,我们使用一维的简化模型就足以模拟和分析D在W中的扩散行为.

在具体计算过程中,W的热导率、比热容、原子密度、D在W中的扩散系数以及 ν_0 德拜频率参考了Spork的工作^[25]. Tyburska等^[26]以及Hoen等^[27]的研究数据表明,在低能大束流注入条件下D的主要滞留分布区间为0—0.5 μm ,大于0.5 μm 后滞留量显著下降.在模拟计算时采用均匀分布更能代表脱附曲线^[28],因此在本计算模型中,将初始的深度分布设定为注入深度范围内(0—0.5 μm)浓度均匀分布.模拟的初始温度和升温速率根据TDS实验过程分别设定为300 K和1 K/s.向W材料注入D离子后,在室温条件下经过一定时间的放置后才会进行TDS实验,放置期间,大多数间隙位D原子的从W表面释放出去,剩下的D原子多以缺陷D复合体的形式存在.故模拟时设定初始的间隙位D原子的浓度 $C = 0$.缺陷D复合体的初始浓度 C_{trap} 是拟合过程中一个主要的可调节参数,该参数与D的滞留量有直接关系,通过调节该参数,使得实验与计算所得图形包围的面积尽可能相等.初始缺陷浓度 C_{emp} 也会对谱形有一定的影响,关于其影响的详细讨论详见本文第4节.缺陷的俘获释放能 E_t 对TDS谱中各个脱附峰对应的温度存在极大影响,由于受到缺陷种类的限制,再结合我们计算的第一原理结果^[29]可以得到, E_t 的最可能的取值范围是 1.1 ± 0.5 eV, 1.4 ± 0.5 eV, 1.7 ± 0.5 eV, 2.1 ± 0.5 eV.

基于以上公式和参数,使用有限差分法^[30]进行数值模拟计算.通过有限差分法,将连续的一维空间变成若干个离散的网格,将连续的时间按照时间步长为单位划分成若干个时间节点.具体计算时以一个单位时间为计算步长,从已知的初始情况

开始,计算下一个时间步长的各个物理量,并逐步递推出往后所有时间节点的物理量.拟合过程中,通过调节 E_t 、初始 C_{trap} 和初始 C_{emp} 这三个参数来拟合TDS谱.参考后文4.2部分中双俘获态的结果,对于高能俘获态,初始 C_{emp} 为0; C_{trap} 受到总滞留量的限制,多种缺陷初始 C_{trap} 的和即为W中D的总滞留量应与TDS谱反应出来的总滞留量相等,各俘获态的初始 C_{trap} 参数的设定也受到TDS谱中各释放峰峰高的制约.因此可调节的主要参数为 E_t ,最后我们在此基础上考察了W中不同能量对应的不同俘获态对D的俘获情况.

4 模拟结果与讨论

4.1 参数对谱形的影响

为避免过多的因素对模拟结果产生影响,首先研究单一俘获态条件下,相关参数对TDS谱型的影响.通过选用不同的俘获释放能和俘获率($C_{\text{trap}}/(C_{\text{trap}} + C_{\text{emp}})$)得到的数值模拟结果如图3所示.

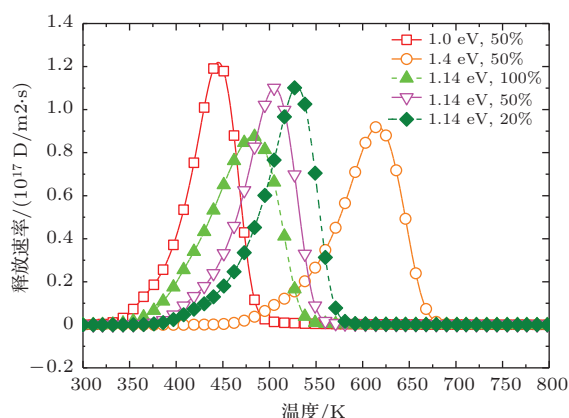


图3 (网刊彩色) W中D的释放速率与温度的关系(不同俘获能和俘获率的释放速率)

先考察单峰状态下俘获能对谱型的影响.图3中从左至右三条实线分别对应的俘获释放能分别为1.0 eV, 1.14 eV, 1.4 eV,对应态的俘获率都是50%,通过对比这3条模拟热脱附曲线不难发现,随着俘获释放能的升高,俘获释放速率的峰值往高温区移动.且峰的半高宽也逐渐增大.从理论上来说,随着俘获释放能越高,D从缺陷中逃逸需要吸收的能量也就越高,故对应峰值的温度也就越高,模拟结果与之相符合.

其次考察单峰时俘获率对谱型的影响.图3中两条虚线和中间的实线对应同样的俘获释放能(均

为1.14 eV), 但俘获率分别为20%, 50%, 100%(通过调节总的缺陷的量来保证W中滞留的D的总量是相等的). 对比这三条曲线不难发现, 当俘获率较高的时候, D的释放曲线会更加的“矮宽”, 即峰高更低, 半高峰更宽, 释放的起始温度和峰值温度都会更低. 随着俘获率的下降, 一直下降到50%这个阶段, 释放曲线的峰值逐渐增加, 半高宽渐渐变窄, 峰值温度缓慢上升. 但以50%俘获率为分界点, 再继续降低俘获率时, 峰高、半高峰以及释放的起始温度几乎不变, 但峰值对应的温度会逐渐增加.

我们再来对比俘获释放能和俘获率的影响. 当俘获率从100%降低到20%时, 峰值对应的温度升高了约50 K. 当能量从1.0 eV上升到1.4 eV时, 峰值对应的温度升高了近200 K. 不难发现, 相比于俘获率, 俘获释放能对峰位的影响居于主导作用.

由于实验结果并非单峰, 为了进一步考察俘获能、俘获率对谱型的影响, 本文研究了存在两种俘获态情况. 在进行双俘获态模拟时固定一个俘获态的俘获释放能1.14 eV和俘获率50%, 主要考察另一个新增的俘获态对谱形的影响. 双峰模拟研究结果表明, 与单峰一样存在随着俘获释放能的升高, 俘获释放速率的峰值往高温区移动的印象, 其趋势也与单峰基本无异. 但俘获率与单峰拟合结果差异较大, 拟合结果如图4所示. 点虚线与短划虚线的区别仅仅只是调整了次级峰的俘获率. 研究结果表明, 随着俘获率的降低, 原来1.14 eV的主峰降低, 1.4 eV次级峰的高度增加. 理论上来说, D元素更愿意与高俘获态的缺陷结合, 这样更为稳定. 依据能量最低原理, W中的D杂质元素会优先填充高能俘获态, 对应于本文模拟结果, 当高能和低能的俘获态并存的时候, 高能俘获态的俘获率必然是100%. 这与数值拟合得到的结果符合. 可见, 对于高能俘获态, 可以忽略俘获率这一参数的影响.

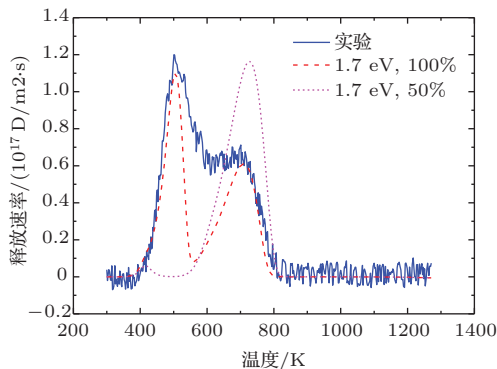


图4 (网刊彩色) W中D的释放速率与温度的关系(双俘获态的情况)

4.2 实验拟合结果

在前文参数分析的基础上, 对实验结果进行了数值拟合. 由于实验结果存在多个峰值, 同时对数个峰值拟合会导致调节参数过多, 于是本文采用从单峰到多峰的递进拟合方案. 具体方案如下: 首先, 拟合单一俘获态的情况, 通过调节该俘获态的俘获释放能 E_t 、初始缺陷D复合体浓度 C_{trap} 和空位浓度 C_{emp} 这三个参数对实验结果的最高峰进行拟合; 再将单峰拟合结果与实验结果进行对比, 分析其差值并针对差值的峰位添加第二个俘获态, 主要通过调节第二俘获态的三个参数对实验结果进行双峰拟合; 再进一步对比双峰拟合结果与实验结果, 继续分析差值并引入第三个俘获态, 最后得到如图5所示的拟合结果.

最终的拟合结果我们一共引入了三种俘获态, 这三种俘获态对应的俘获释放能分别为1.14 eV, 1.4 eV和1.7 eV. 我们使用第一原理模拟的方法计算了W中空位对H的俘获能^[29], 将实验结果与第一原理模拟结果比较可得. 这三种俘获态分别对应的缺陷类型为: 空位俘获第3—5个D; 空位俘获第1—2个D; 空位团簇俘获D. 它们分别俘获的D的量为5:4:5. 本实验结果并不存在1.7 eV以上的俘获能, 而D从W中小气泡脱附出去对应的俘获释放能约为2.1 eV. 这可以说明本实验中的样品并没有存在小气泡这种类型的缺陷.

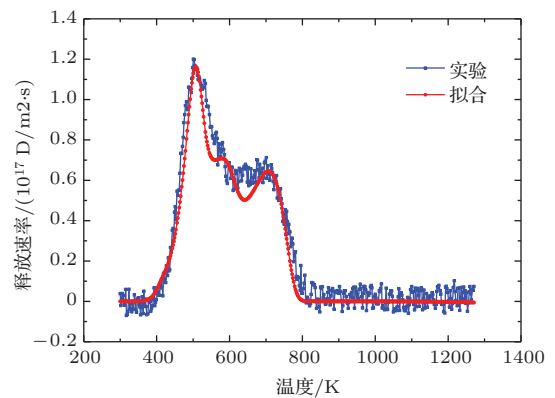


图5 (网刊彩色) TDS谱的拟合结果(蓝线表示实验结果, 红线表示模拟结果)

在550 K和650 K温度附近, 实验结果的释放速率比拟合结果要略高. 分析认为这是由于W材料还会存在一些其他过渡态的缺陷, 这些过渡态缺陷的俘获释放能对应于空位俘获1个到多个D原子(对应550 K)、空位俘获到空位团簇俘获(650 K)之间. 缺陷的多样性, 导致了俘获释放能的多样性,

反映在就是和与拟合结果存在一定的偏差.

5 结 论

本文首先采用实验模拟的方法获得被低能大束流的D注入后的W样品,再使用TDS实验分析W中D元素的滞留情况.随后通过基于速率理论模拟的方法,模拟整个热脱附实验过程.拟合结果表明,对于低能大束流中W的D辐照,主要存在3种俘获态,这三种俘获态对应的俘获释放能分别为1.14 eV, 1.4 eV和1.7 eV,俘获的D的量分别为5:4:5,其俘获类型分别为W中空位对第3, 4, 5个D原子的俘获、空位对第1, 2个D原子的俘获、空位团簇对D原子的俘获.研究结果进一步表明俘获释放能对拟合的TDS谱有较大影响.当俘获释放能上升时,TDS谱线峰值会随之往高温区移动,D原子需要更大的能量才能从缺陷中逃逸出去.俘获率对峰高和峰位有一定的影响,但其影响仅限于最低能的峰,这是由于当W材料有多个俘获态并存的时候,高俘获释放能对应的俘获态总是处于填满的状态,即俘获率总是100%,这样有利于是材料处于更稳定的低能状态.对于最低能峰,高俘获率较比低俘获率有更高的释放峰、其峰值对应温度也更高.为更多地考察不同D注入条件下对缺陷种类的影响,我们还将基于速率理论模拟手段对更多地TDS谱进行拟合研究.

此外,作者程龙感谢Gregory De Temmerma研究员提供的在Pilot-PSI平台开展实验的机会.

参考文献

- [1] Maier H, Luthin J, Balden M, Linkeb J, Kocha F, Bolt H 2001 *Surf. Coat. Technol.* **142-144** 733
- [2] Hao J K 2006 *Fusion Materials* (Beijing: Chemical Industry Press) pp86-99 (in Chinese) [郝嘉琨 2006 聚变堆材料(北京:化学工业出版社)第86-99页]
- [3] Poon M, Haasz A A, Davis J W, Macaulay-Newcombe R G 2003 *J. Nucl. Mater.* **313** 199
- [4] Jin X F, Feng Y Q, Zhusng C Q, Wang X 1984 *Acta Phys. Sin.* **33** 754 (in Chinese) [金晓峰,丰意青,庄承群,王迅 1984 物理学报 **33** 754]
- [5] Xiang X, Chen C A, Liu K Z, Peng L X 2009 *Rare Material* **33** 510 (in Chinese) [向鑫,陈长安,刘柯钊,彭丽霞 2009 稀有金属 **33** 510]
- [6] Zheng Y Z, Qiu Y, Zhang P, Huang Y, Cui Z Y, Sun P, Yang Q W 2009 *Chin. Phys. B* **18** 5406

- [7] Li C Y, Allain J P, Deng B Q 2007 *Chin. Phys.* **16** 3312
- [8] Lu G H, Zhou H B, Becquart C S 2014 *Nucl. Fusion* **54** 086001
- [9] Liu Y L, Zhang Y, Zhou H B, Lu G H, Liu F, Luo G N 2009 *Phys. Rev. B* **79** 172103
- [10] Zhou H B, Liu Y L, Jin S, Zhang Y, Luo G N, Lu G H 2010 *Nucl. Fusion* **50** 025016
- [11] Sun L, Jin S, Li X C, Zhang Y, Lu G H 2013 *J. Nucl. Mater.* **434** 395
- [12] Zhou H B, Jin S, Zhang Y, Lu G H 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 135502
- [13] Sun L, Jin S, Zhou H B, Zhang Y, Zhang W Q, Ueda Y, Lee H T, Lu G H 2014 *Phys. J.: Condens. Matter* **26** 395402
- [14] You Y W, Kong X S, Wu X B, Xu Y C, Fang Q F, Chen J L, Luo G N, Liu C S, Pan B C, Wang Z G 2013 *AIP Advances* **3** 012118
- [15] Veen A V, Filius H A, Vries J D, Bijkerk K R, Rozing G J, Segers D 1988 *Nucl. J. Mater.* **155-157** 1113
- [16] Causey R A, Doerner R, Fraser H, Kolasinski R D, Smugeresky J, Umstadter K, Williams R 2009 *J. Nucl. Mater.* **390-391** 717
- [17] Shimada M, Hatano Y, Calderon P, Oda T, Oya Y, Sokolov M, Zhang K, Cao G, Kolasinski R, Sharpe J P 2011 *J. Nucl. Mater.* **415** S667
- [18] Sang C F, Bonnin X, Warrierr M J, Rai A, Schneider R, Sun J Z, Wang D Z 2012 *Nucl. Fusion* **52** 043003
- [19] Ogorodnikova O V, Roth J, Mayer M 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 034902
- [20] Poon M, Haasz A A, Davis J W 2008 *J. Nucl. Mater.* **374** 390
- [21] Causey R A 2002 *J. Nucl. Mater* **300** 91
- [22] Li R S, Zhou Y L, Zhang B L, Deng A H, Hou Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 046604 (in Chinese) [李仁顺,周宇璐,张宝玲,邓爱红,侯氢 2011 物理学报 **60** 046604]
- [23] Tompkins F C 1978 *Chemisorption of Gases on Metals* (London: Academic Press) pp55-65
- [24] Ogorodnikova O V, Roth J, Mayer M 2003 *J. Nucl. Mater* **313-316** 469
- [25] Spork C 2013 *Ph. D. Dissertation* (Utrecht: University of Utrecht)
- [26] Tyburska B, Alimov V K, Ogorodnikova O V, Schmid K, Ertl K 2009 *J. Nucl. Mater* **395** 150
- [27] Hoen M H J, Tyburska-Püschel B, Ertl K, Mayer M, Rapp J, Kleyn A W, Zeijlmans van Emmichoven P A 2012 *Nucl. Fusion* **52** 023008
- [28] Eleveld H 1996 *Hydrogen and helium in selected fusion reactor materials* (Delft: Technische Universiteit) pp73-80
- [29] Sun L, Jin S, Li X C, Zhang Y, Lu G H 2013 *J. Nucl. Mater.* **434** 395
- [30] Patankar S V 1980 *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow* (London: Hemisphere Publishing Corporation) pp148-185

Simulation of the experiments on thermal desorption spectroscopy of hydrogen isotope in tungsten with the framework of rate theory*

Zou Da-Ren Jin Shuo[†] Xu Ke Lü Guang-Hong Zhao Zhen-Hua
Cheng Long Yuan Yue

(School of Physics & Nuclear Energy Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

(Received 19 July 2014; revised manuscript received 15 October 2014)

Abstract

Simulation of thermal desorption spectroscopy (TDS) of the hydrogen isotope-deuterium in tungsten has been investigated in this paper based on rate theory. Data are obtained using polycrystalline tungsten, which is under the irradiation of a plasma with an energy of 40 eV and a dose of 1×10^{26} D/m² at 520 K. By adjusting the trapping energy, trapping rate, and other parameters in the rate theory, we can obtain the TDS simulation spectrum, which coincides with the experimental results. It is found that there mainly exist three trapping states for deuterium in tungsten, whose trapping energies are 1.14, 1.40 and 1.70 eV, and the temperature peaks of them is 500, 600 and 730 K, respectively. These three trapping energies correspond to the energy for trapping the 3rd-5th hydrogen by vacancy (the zero point energy correction has been taken into account), the energy for trapping the 1st-2nd hydrogen by vacancy, and the energy for trapping the hydrogen by vacancy cluster, obtained from first-principle calculation, respectively. It is suggested that the vacancy and vacancy cluster are the main trapping objects for deuterium in tungsten, under the experimental condition mentioned above.

Keywords: hydrogen isotope, thermal desorption spectroscopy, rate theory

PACS: 28.52.Fa, 79.20.Rf, 61.80.Jh

DOI: 10.7498/aps.64.072801

* Project supported by the International Thermonuclear Experimental Reactor Program of the Ministry of Science and Technology of China (Grant No. 2013GB109002), and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20111102110038), and the Scientific Research Foundation for Returned Scholars, Ministry of Education of China.

[†] Corresponding author. E-mail: jinshuo@buaa.edu.cn