

原位 TEM 双离子束辐照钨的位错环演化研究

马鹏飞¹, 刘艳², 曹留烜², 张亚培^{1,*}, 李修锐¹, 田文喜¹, 秋穗正¹, 苏光辉¹

(1. 西安交通大学核科学与技术学院, 陕西 西安 710049; 2. 厦门大学能源学院, 福建 厦门 361105)

摘要: 钨由于在高温下具有优良的抗辐照性能而被认为可应用于聚变堆中面向等离子体材料(PFM, plasma-facing material)。聚变堆中产生大量热负荷和中子以及氢氦气体原子使钨的应用面临苛刻的环境考验。为了进一步探究钨应用于 PFM 时辐照损伤剂量对其辐照性能的影响机制, 本文采用 Kr⁺ & He⁺ 双离子束以不同的辐照损伤剂量对钨进行辐照。通过原位 TEM 观察辐照损伤剂量对 <100> 和 1/2<111> 位错环的演化现象影响, 并对其演化进行量化分析。结果表明, 辐照损伤剂量的增加导致 1/2<111> 位错环生成与长大以及 <100> 位错环消失。Kr⁺ & He⁺ 双离子束辐照下, <100> 位错环的增殖与湮灭对钨的机械性能产生重大影响。本文深化了对钨的辐照损伤研究, 为钨在聚变堆中的应用提供基础。

关键词: 面向等离子体材料; 钨; 双离子束辐照; 原位 TEM; 位错环

中图分类号: TL341 文献标志码: A 文章编号: 1000-6931(2025)04-0874-10

doi: 10.7538/yzk.2024.youxian.0600

In-situ TEM Study of Dislocation Loop Evolution in Tungsten under Dual-ion Beam Irradiation

MA Pengfei¹, LIU Yan², CAO Liuxuan², ZHANG Yapei^{1,*}, LI Xiurui¹,

TIAN Wenxi¹, QIU Suizheng¹, SU Guanghui¹

(1. School of Nuclear Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

2. School of Energy, Xiamen University, Xiamen 361105, China)

Abstract: Fusion reactors are regarded as the ultimate source of energy for addressing future power problems. However, prior to the building of fusion power plants, a number of scientific obstacles including significant degradation of plasma-facing material (PFM). Due to its excellent irradiation resistance at high temperature, tungsten is considered a promising PFM for fusion reactor. The application of tungsten in fusion reactor faces stringent environmental challenges, primarily due to the substantial thermal loads, neutron flux, and gas atoms such as hydrogen and helium generated during fusion. Numerous studies have employed ion irradiation to simulate the service environment of PFM and to develop fusion reactor materials with strong irradiation resistance. High-energy ion irradiation induces lattice defects, including interstitial atoms and vacancies, which often aggregate into two-dimensional dislocation loops with Burgers vectors of 1/2<111> or <100> in body-centered cubic (BCC) materials. In the study of dislocation loops, the irradiation damage dose and damage rate

收稿日期: 2024-08-02; 修回日期: 2024-10-20

基金项目: 国家自然科学基金(12375173)

* 通信作者: 张亚培

significantly influence the formation and evolution of dislocation loops. Gas ion irradiation of tungsten materials exacerbates dislocation loop reactions, with the ratio of $1/2\langle 111 \rangle$ to $\langle 100 \rangle$ dislocation loops varying with the irradiation damage dose. Current research on the irradiation resistance of tungsten mainly focuses on irradiation temperature, dose, and ion species effects of single ion beam or *in-situ* sequential beam irradiation, while studies on the synergistic effects by irradiation damage dose of simultaneous dual-ion beam irradiations in tungsten via *in-situ* TEM remain insufficient. Therefore, the present experiment primarily investigated the effects of varying irradiation damage doses on tungsten under high temperature conditions (700 °C) using dual-ion beam Kr^+ & He^+ irradiation. *In-situ* TEM was employed to observe the evolution of $\langle 100 \rangle$ and $1/2\langle 111 \rangle$ dislocation loops under different irradiation damage doses, with a quantitative analysis of the dislocation loop evolution. In the unirradiated tungsten, no pre-existing dislocation loops are observed. As irradiation progresses, dislocation loops gradually nucleate, forming small-sized dislocation loops. The nucleation process spans the entire dislocation loop evolution loops process. As the dislocation loops grow, they interact and merge or absorb some point defects, eventually presenting as dislocation lines. Due to the entanglement of dislocation lines and loops, a dislocation network structure is formed. Increasing the irradiation damage dose also leads to the growth of $1/2\langle 111 \rangle$ dislocation loops and the annihilation of $\langle 100 \rangle$ dislocation loops. This dislocation loop evolution mechanism can be attributed to two main factors: the reaction between $1/2\langle 111 \rangle$ dislocation loops forming $\langle 100 \rangle$ dislocation loops and the reaction at specific locations and temperatures where $\langle 100 \rangle$ dislocation loops transform into $1/2\langle 111 \rangle$ dislocation loops. The formation and annihilation of $\langle 100 \rangle$ dislocation loops under Kr^+ and He^+ dual-ion beam irradiation are expected to significantly impact the mechanical properties of tungsten. This study deepens the understanding of the microstructural evolution of irradiation-induced defects in tungsten, providing a fundamental basis for the application of tungsten in fusion reactor.

Key words: plasma-facing material; tungsten; dual-ion beam irradiation; *in-situ* TEM; dislocation loop

人们对核能发电的利用可分为核裂变和核聚变,核裂变发电发展至今已具有相对成熟的技术,而核聚变的研发依旧受制于核材料的研发。聚变堆中面向等离子体材料(PFM, plasma-facing material)承受大量热负荷和中子辐照后,材料中原子形成位移损伤导致性能严重退化。与此同时由于嬗变反应形成的氦气极易在PFM中滞留,与空位结合形成氦空位簇,从而导致材料出现氦脆现象^[1-2]。钨具有极低的溅射产率和氦滞留率,较高的熔化温度和热导率,以及优良的抗溅射侵蚀性,因此成为聚变反应堆PFM的主要候选材料。

高能离子辐照会诱发晶格缺陷,包括间隙原子和空位,这些缺陷往往会在体心立方(BCC)材料中聚集成伯氏矢量 \mathbf{b} 为 $1/2\langle 111 \rangle$ 或 $\langle 100 \rangle$ 的二维位错环^[3-6]。在对位错环的辐照效应研究中,辐照损伤剂量和损伤率对位错环的形成和演变具有重要影响。在高损伤率下观察到位错环的空间均

匀分布,而在低损伤率下观察到位错环不均匀分布^[7-8]。同时,损伤率对位错环的尺寸和密度也有一定程度的影响^[5,9]。El-Atwani等^[3]采用连续或同时 Kr^+ & He^+ 对钨进行原位辐照,并在双束条件下开展原位TEM观察来确定 $\langle 110 \rangle$ 和 $\langle 200 \rangle$ 位错环 \mathbf{g} 矢量的特征。然而他们的实验没有考虑到辐照温度和辐照损伤剂量对 $\mathbf{b}=\langle 100 \rangle$ 位错环比率的影响。Guo等^[10]通过重离子和氦离子辐照,发现随着辐照损伤剂量增加,位错环转变为复杂的位错缠结,并揭示了在高通量氦等离子体暴露下的位错缠结分解和氦气泡的形成。Chrominski等^[11]对钨开展自离子辐照研究,在辐照损伤剂量达到0.23 dpa时便发现了位错缠结的现象,但Yi等^[12]采用2 MeV离子源,在辐照损伤剂量达到3.6 dpa时仍未观察到位错缠结,样品中仅存在位错环。利用离子辐照模拟研究位错环的影响因素时,不同辐照损伤剂量对于位错环的分布、尺寸和数量

的影响受到了不同程度的关注。然而,目前对不同程度辐照损伤剂量下位错环演化观察存在不一致的现象,仍缺乏进一步的实验观察研究以及深入的理论分析。

因此,本文利用原位 TEM 多离子束辐照实验设备,使用 400 kV 离子注入机和 30 kV 氩氦同源离子束对钨在 700 °C 下开展 Kr⁺ & He⁺ 双束同时辐照,原位 TEM 观察位错环的生成和演化行为,分析位错环产生的类型,总结辐照损伤剂量对于位错环的数量、尺寸和密度的影响,探究不同辐照损伤剂量下 <100> 和 1/2<111> 位错环的演化现象。

1 实验材料和设备

1.1 实验材料与样品制备

本文材料采购于厦门虹鹭钨钼工业有限公司。原材料是直径为 8.9 mm、长度为 105 mm 的多晶钨棒(99.98%),钨棒被切割成直径为 3 mm、厚度约为 0.5 mm 的圆片,如图 1 所示。为了避免在加工过程中产生的缺陷对辐照演变产生影响,使用管式炉(TFH-1200-80-440-N,科密仪器)在 1 200 °C 的氩气环境中对圆形钨薄片进行 2 h 的退火,使其发生再结晶过程,从而消除加工过程中引入的位错环。

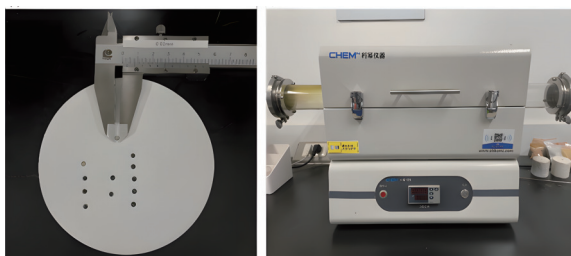


图 1 切割的钨薄片与热处理的管式炉
Fig. 1 Tungsten foil sample and heat treatment furnace

实验使用 TEM 观察材料微观结构,利用双喷电解法将钨薄片制备成可用于电镜观察的样品。样品的制备过程主要分为以下 5 个阶段。1) 减薄:将钨薄片放置在 T 型样品架上,使用热熔胶对样品进行固定,分别使用 600 目、800 目、1 000 目、1 200 目、1 500 目、2 000 目的碳化硅砂纸对钨薄片的两个表面进行研磨和减薄,最终获得厚度约为 60 μm 的钨薄片。2) 除胶:将样品放置在丙酮溶液中,使用超声波清洗机清洗样品表面残留的

热熔胶。3) 双喷电解:配制 2% 的 NaOH 溶液,在 298 K、43 V 的条件下,使用双喷电解减薄仪(DJ-2000,北京德东科技有限公司)进行双喷。当样品出现小孔洞之后,使用乙醇溶液清洗样品表面残留的双喷液,得到最终的 TEM 实验样品。4) 观察:样品制备完成后需要在 TEM 下观察是否有符合条件的薄区域。未进行辐照实验的钨样品表面如图 2 所示,可以看到样品表面比较光滑,没有杂质与坑洞。5) 保存:制备好的实验样品被储存在氩气环境下的手套箱中,以减少实验前样品表面可能发生的氧化。

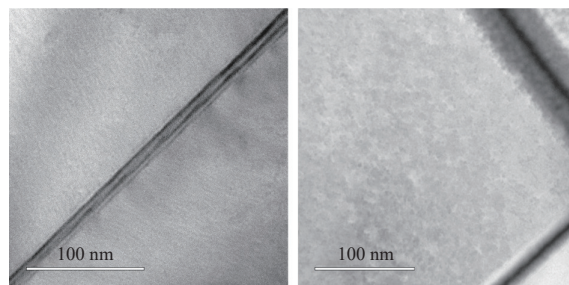


图 2 未辐照的钨样品微观区域 TEM 图
Fig. 2 Non-irradiation TEM image of tungsten sample

1.2 实验设备与软件处理

采用厦门大学的多离子束辐照设备进行实时原位 TEM 辐照。联机设备中 400 kV 离子注入机和透射电镜的夹角为 68°,50 kV 氩氦同轴离子源和透射电镜的夹角为 68°。联机设备可以实现 H₂⁺、He⁺、重离子、重离子 & H⁺、重离子 & He⁺、重离子 & H₂⁺ & He⁺ 不同模式的离子辐照,可在多离子束辐照下进行 TEM 实时原位观察,拍摄照片或者录像。

SRIM 软件^[13-15]是一种模拟载能粒子入射靶材后的阻止以及射程分布的软件。模拟完成后得到 VACANCY.txt 和 RANGE.txt 文件,可以通过式(1)、(2)计算辐照损伤(DPA, displacement per atom)和离子分布浓度 c 。

$$\text{DPA} = \frac{\text{Fluence} \left(\frac{\text{ions}}{\text{cm}^2} \right) \times 10^8 \left(\frac{\text{\AA}}{\text{nm}} \right) \times R \left(\frac{\text{vacancies}}{\text{ions} \times \text{\AA}} \right)}{N_0 (\text{atoms/cm}^3)} \quad (1)$$

$$c = \frac{\text{Fluence} \left(\frac{\text{ions}}{\text{cm}^2} \right) \times \left(\frac{\text{atoms/cm}^3}{\text{atoms/cm}^2} \right)}{N_0 (\text{atoms/cm}^3)} \quad (2)$$

式中:Fluence 为注入离子的通量; N_0 为靶材料的

单位体积密度; vacancies 为 VACANCY.txt 文件中 vacancies1 和 vacancies2 之和; $\frac{\text{atoms/cm}^3}{\text{atoms/cm}^2}$ 为 RANGE.txt 文件中 ion 列。VACANCY.txt 和 RANGE.txt 通过 SRIM 软件在对应条件计算所得。

2 实验方案

基于多离子束辐照实时原位 TEM 分析设备, 采取入射能量为 400 keV 的 Kr^+ 、30 keV 的 He^+ , 设计双束同时辐照实验, 观察位错环的演变。将钨

棒制备成直径为 3 mm 的 TEM 样品后, 放入可加热的样品杆加热至辐照温度 (700 ± 5) °C, 采用对同一样品剂量递增的方式开展原位离子辐照实验。 Kr^+ & He^+ 同时辐照损伤剂量为 0.214 dpa Kr^+ & 0.105 dpa He^+ 、0.428 dpa Kr^+ & 0.211 dpa He^+ 、0.856 dpa Kr^+ & 0.421 dpa He^+ 、1.284 dpa Kr^+ & 0.632 dpa He^+ 和 1.713 dpa Kr^+ & 0.843 dpa He^+ 。详细数据如表 1 所列。本文中“&”表示同时进行离子辐照。

表 1 双束同时辐照 (Kr^+ & He^+) 实验方案

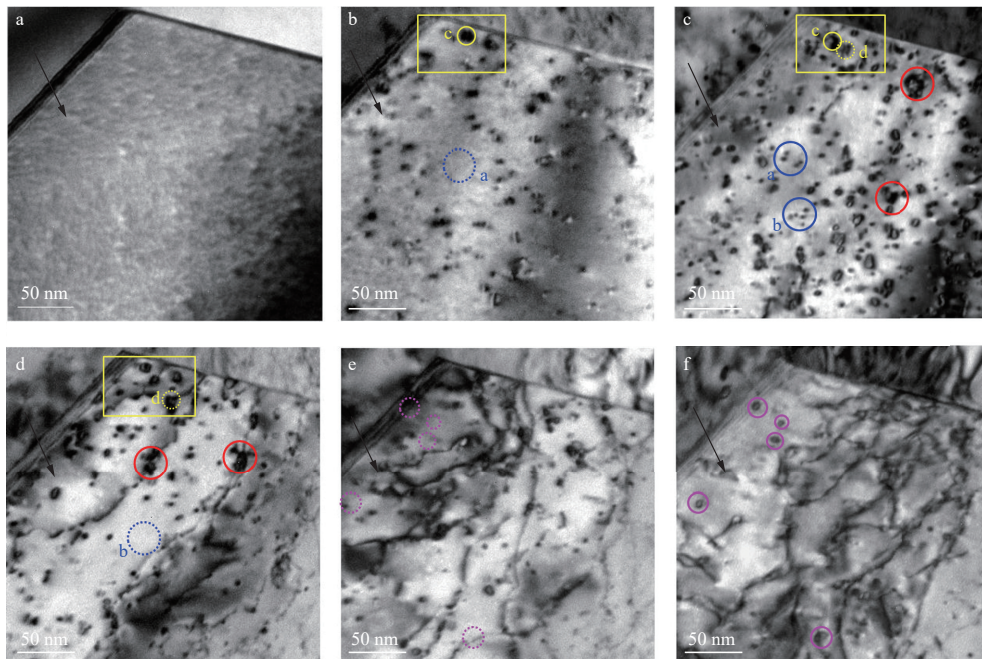
Table 1 Dual-ion beam simultaneous irradiation (Kr^+ & He^+) experimental setup

样品编号	辐照通量/ m^{-2}	辐照损伤剂量/dpa
D0		
D1	$1.29 \times 10^{18} \text{ Kr}^+ \text{ \& } 1.98 \times 10^{19} \text{ He}^+$	0.214 & 0.105
D2	$2.58 \times 10^{18} \text{ Kr}^+ \text{ \& } 3.96 \times 10^{19} \text{ He}^+$	0.428 & 0.211
D3	$5.16 \times 10^{18} \text{ Kr}^+ \text{ \& } 7.92 \times 10^{19} \text{ He}^+$	0.856 & 0.421
D4	$7.74 \times 10^{19} \text{ Kr}^+ \text{ \& } 1.19 \times 10^{20} \text{ He}^+$	1.284 & 0.632
D5	$1.03 \times 10^{20} \text{ Kr}^+ \text{ \& } 1.58 \times 10^{20} \text{ He}^+$	1.713 & 0.843

3 实验结果

不同辐照损伤剂量下, g 矢量为 $1\bar{1}0$ 时, 钨的

位错环形态随辐照损伤剂量演变过程如图 3 所示。随着 Kr^+ & He^+ 的辐照损伤剂量增加, 先形成



a—0 dpa; b—0.214 dpa Kr^+ & 0.105 dpa He^+ ; c—0.428 dpa Kr^+ & 0.211 dpa He^+ ; d—0.856 dpa Kr^+ & 0.421 dpa He^+ ; e—1.284 dpa Kr^+ & 0.632 dpa He^+ ; f—1.713 dpa Kr^+ & 0.843 dpa He^+

图 3 钨的位错环形态随辐照损伤剂量演变过程

Fig. 3 Evolution of dislocation loop morphology in tungsten with irradiation damage dose

位错环再形成位错线,最后相互缠绕形成位错网络。钨的位错环形态在辐照中的演变行为主要概括为以下几个过程。

1) 位错环的生成

未辐照的钨的位错环形态如图 3a 所示,未辐照的钨中没有杂质、坑洞和已存在的位错环等。在辐照损伤剂量增加至 0.214 dpa Kr⁺ & 0.105 dpa He⁺(图 3b)的过程中,位错环逐渐成核,明显出现许多小尺寸的位错环。同时,成核的过程会贯穿整个位错环的演变过程,在辐照损伤剂量为 1.713 dpa Kr⁺ & 0.843 dpa He⁺(图 3f)时,也可以看到新的位错环生成(图 3f 中新生成的位错环用紫色实线圆圈表示,对其相应位置没有形成位错环的状态在图 3e 中用紫色虚线圆圈表示)。

2) 位错环的移动

随着辐照损伤剂量的增加,位错环沿着 g 矢量的方向进行滑移。图 3b 中黄色方框内黄色实线圆圈标记的 c 位错环在图 3c 中移动至黄色方框内黄色实线圆圈标记的位置,而图 3c 中黄色虚线圆圈标记的 d 位错环在图 3d 中移动至黄色方框内黄色虚线圆圈标记的位置。

3) 位错环的长大

随着辐照损伤剂量继续增加,已经形成的小尺寸位错环(位错环直径小于 9 nm)呈现出长大趋势,在辐照损伤剂量增加至 0.428 dpa Kr⁺ & 0.211 dpa He⁺(图 3c)时,大尺寸位错环(位错环直径大于 9 nm)变多。随着位错环尺寸增加,部分位错环出现相互接触的现象(图 3c、d 中红色实线圆圈)。位错环的长大主要有两种形式,一是小尺寸的位错环相互合并形成大尺寸的位错环,二是位错环吸收移动的团簇和点缺陷并长大^[3,16-17]。

4) 位错线的生成

随着位错环不断长大,相互接触的位错环会发生反应,从而生成更大尺寸的位错环。位错环逐渐以线的形式出现在样品中,为形成位错网络做准备。

5) 位错环的消失

在辐照的过程中,不仅会形成新的位错环,还会出现已经形成的位错环消失的现象(图 3b 中蓝色虚线圆圈表示 a 区域不存在位错环,图 3c 中蓝色实线圆圈表示 a 区域生成的新位错环。图 3c 中蓝色实线圆圈表示 b 区域存在位错环,图 3d 中

蓝色虚线圆圈表示 b 区域位错环消失)。产生这种现象的原因有 3 种:一是位错环移动或者长大,形成一个新的位错环;二是强缺陷阱(如 TEM 样品表面)的存在导致位错的湮灭;三是在移动过程中遇到空位或者间隙原子,位错环会产生收缩直至消失。

6) 位错网络的形成

辐照损伤剂量达到 1.284 dpa Kr⁺ & 0.632 dpa He⁺时(图 3e),出现了相互联结的位错网络。这是由于辐照损伤剂量增加,使得位错环相交和位错线发生相互缠绕形成的。由于生成了位错网络,位错环的数量也明显减少。随着辐照损伤剂量进一步增加(图 3f),位错网络更加复杂和密集,位错环的数量也明显进一步减少。

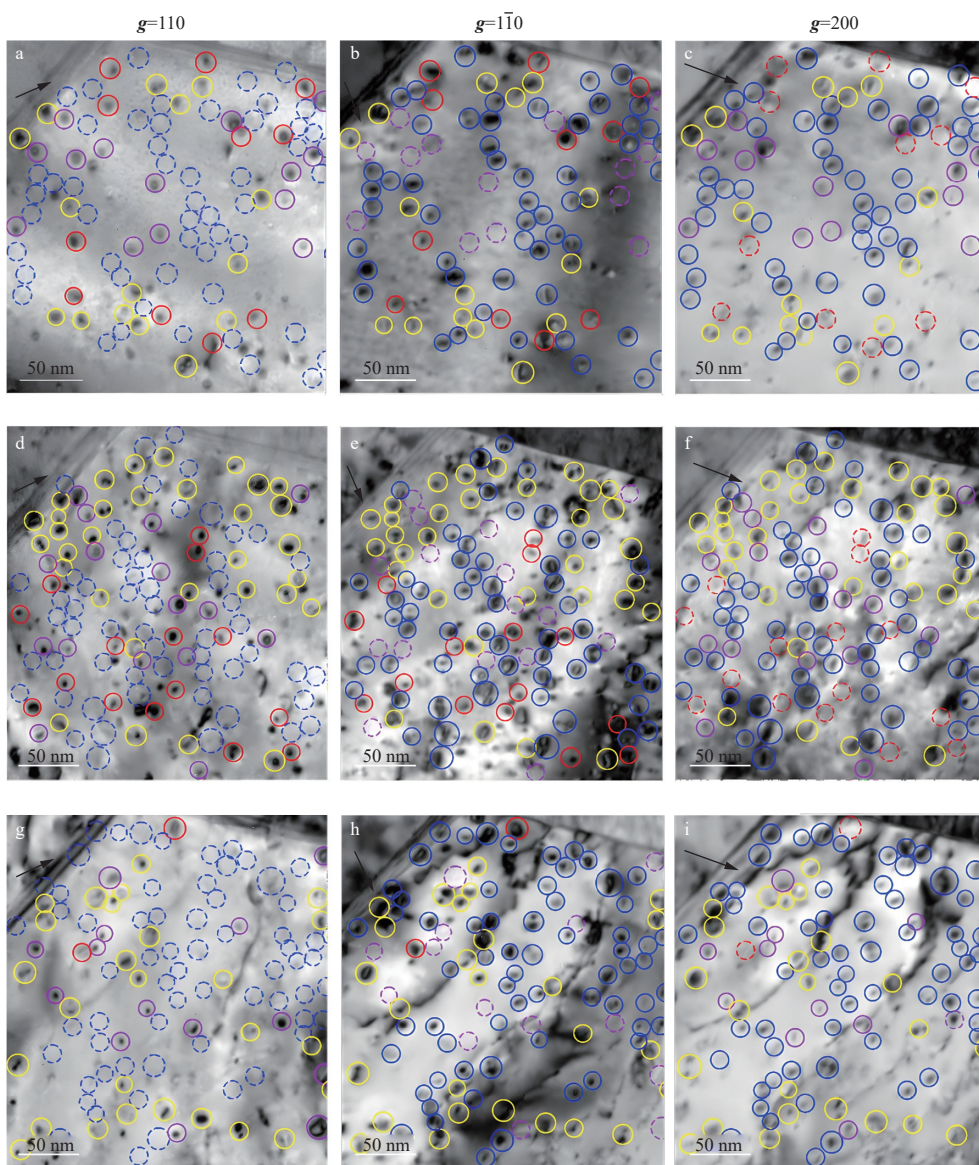
4 分析与讨论

4.1 TEM 位错演化统计

在 Kr⁺和 He⁺同时辐照时,不同辐照损伤剂量下位错环的状态如图 4 所示,其中实线圆圈和虚线圆圈分别表示可见位错环和不可见位错环。在 [001] 晶带轴附近,采取 3 个衍射矢量 $g=110$ 、 $1\bar{1}0$ 和 200,在相同的放大倍数下拍摄 TEM 图像。在设置的所有实验条件下辐照后,均出现了位错环。离子辐照后钨微观区域产生刃位错 [100] 和 [010],螺位错 $1/2[111]$ 和 $1/2[1\bar{1}\bar{1}]$ 以及 $1/2[\bar{1}11]$ 和 $1/2[1\bar{1}\bar{1}]$ 。根据 $g \cdot b=0$ 的不可见判断原则,若位错环在 $g=110$ 、 $1\bar{1}0$ 和 200 时均能观察到,则属于 [100] 位错环(黄色圆圈)。若其仅在 $g=200$ 下不可见,而在 $g=110$ 、 $1\bar{1}0$ 可见时,则属于 [010] 位错环(红色圆圈)。对于 $1/2[111]$ 和 $1/2[1\bar{1}\bar{1}]$ 位错环(紫色圆圈),其仅在 $g=1\bar{1}0$ 时不可见,在 $g=110$ 和 200 下可见。而当 $g=110$ 时, $1/2[\bar{1}11]$ 和 $1/2[1\bar{1}\bar{1}]$ 位错环(蓝色圆圈)不可见,其在 $g=1\bar{1}0$ 和 200 下可见。从图 4 中可看出,辐照损伤剂量为 0.214 dpa Kr⁺ & 0.105 dpa He⁺时,出现了稀疏的小尺寸的位错环。随着辐照损伤剂量增加至 0.428 dpa Kr⁺ & 0.211 dpa He⁺,位错环数量明显增加。当辐照损伤剂量继续增加至 0.856 dpa Kr⁺ & 0.421 dpa He⁺时,位错环相互合并形成位错线而导致位错环数量明显减少。在不同辐照损伤剂量下,主要产生 $1/2[\bar{1}11]$ 和 $1/2[1\bar{1}\bar{1}]$ 位错环,其次是 [100] 位错环。

4.2 <100>和 $1/2\langle 111 \rangle$ 位错环演化分析

对图 4 中不同类型位错环的尺寸和数密度进



a~c——0.214 dpa Kr⁺ & 0.105 dpa He⁺; d~f——0.428 dpa Kr⁺ & 0.211 dpa He⁺;
g~i——0.856 dpa Kr⁺ & 0.421 dpa He⁺

图4 钨在不同辐照损伤剂量下位错环的TEM图像(700 °C)

Fig. 4 TEM image of tungsten dislocation loop at different irradiation damage doses (700 °C)

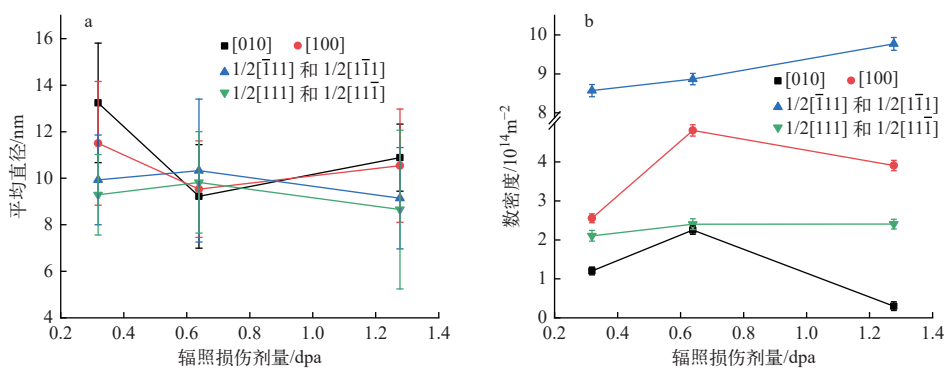


图5 不同类型位错环的尺寸(a)和数密度(b)

Fig. 5 Size (a) and number density (b) of different types of dislocation loop

行统计,结果如图5所示。从图5a可以看出随着辐照损伤剂量增加,[010]和[100]位错环的平均直径呈现先减小后增加的趋势,1/2[111]和1/2[11 $\bar{1}$]、1/2[$\bar{1}$ 11]和1/2[1 $\bar{1}$ 1]位错环的平均直径呈现先增加后减小的趋势。图5b显示随着辐照损伤剂量增加,位错环的数密度表现出明显差异,[010]和[100]位错环的数密度随辐照损伤剂量增加先增加后减小,1/2[$\bar{1}$ 11]和1/2[1 $\bar{1}$ 1]位错环的数密度呈现一直上升的趋势,而1/2[111]和1/2[11 $\bar{1}$]位错环的数密度先是小幅度增加,随后不发生明显变化。

在上述的位错环统计中,[010]和[100]位错环属于<100>位错环,1/2[111]、1/2[$\bar{1}$ 11]、1/2[1 $\bar{1}$ 1]和1/2[11 $\bar{1}$]位错环属于1/2<111>位错环。对于两种位错环的数量统计如图6所示。在辐照过程中,1/2<111>位错环的数量均大于<100>位错环。随着辐照损伤剂量增加,<100>位错环的数量出现先增加后减少的趋势。这是因为在辐照损伤剂量为1.277 dpa(0.856 dpa Kr⁺ & 0.421 dpa He⁺)时,已

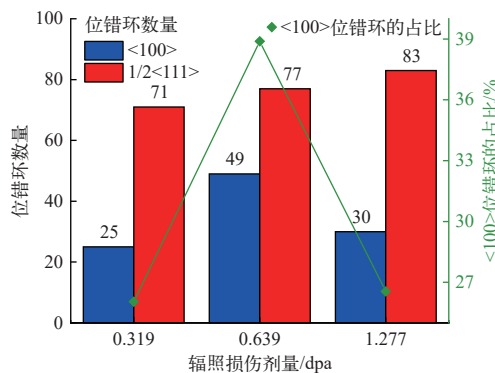


图6 不同辐照损伤剂量下位错环的数量统计

Fig. 6 Number of dislocation loop at different irradiation damage doses

经出现了许多位错线,趋向于形成位错网络(图3d)。1/2<111>位错环的数量则一直呈现增加趋势。图6统计结果显示,在辐照损伤剂量为0.319 dpa(0.214 dpa Kr⁺ & 0.105 dpa He⁺)时,<100>位错环的占比为26%,1/2<111>位错环的占比为74%。当辐照损伤剂量达到0.639 dpa(0.428 dpa Kr⁺ & 0.211 dpa He⁺)时,<100>位错环的占比增加至38.9%。最后,当辐照损伤剂量增加至1.277 dpa(0.856 dpa Kr⁺ & 0.421 dpa He⁺)时,<100>位错环的占比减小至26.55%。Du等^[18]的研究表明1/2<111>位错环之间反应会形成<100>。然而Ding等^[19]认为在1173 K下原位辐照钨时,相同尺寸的<100>位错环会合并生成1/2<111>位错环,而当尺寸不同时,<100>位错环会被1/2<111>位错环吸收。本文中<100>和1/2<111>位错环的演化现象是由这几种复杂的位错反应机制所导致。并且,高温下离子辐照更有利于<100>位错环的形成,而<100>位错环相对于1/2<111>位错环的低移动性会导致钨产生辐照硬化和脆化等机械性能退化^[16]。

<100>和1/2<111>位错环的平均直径和数密度如图7所示。辐照损伤剂量从0.319 dpa增加至1.277 dpa时,<100>位错环的平均直径先下降后增加,从12.06 nm减小为9.43 nm再略微增大,数密度先增加后减小,从 $3.76 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ 增大至 $7.06 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ 后降低至 $4.21 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ 。1/2<111>位错环的平均直径先增加后下降,从9.8 nm增加至10.22 nm再降低至9.04 nm,数密度则一直增加,从 $10.68 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ 增加至 $11.26 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ 后,继续增加至 $12.17 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ 。从图7a中可以看出<100>和1/2<111>位错环平均直径相差不大,这表明位错反应时大位错环吸收反应发生较少。图7b中

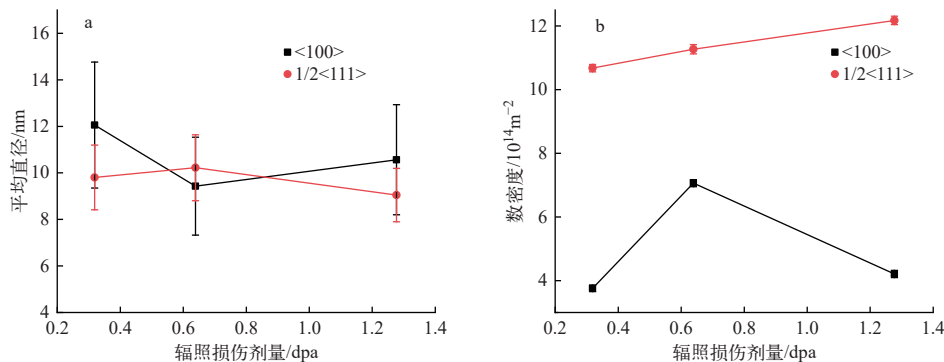


图7 不同辐照损伤剂量下<100>和1/2<111>位错环的尺寸(a)和数密度(b)

Fig. 7 Size (a) and number density (b) of <100> and 1/2<111> dislocation loops at different irradiation damage doses

<100>位错环的数密度减小主要归因于随着辐照损伤剂量增加, 相同尺寸的<100>位错环之间互相反应形成 $1/2<111>$ 位错。从而导致 $1/2<111>$ 位错环的数密度一直增加^[19]。Kr⁺和 He⁺同时辐照对比单束顺序 He⁺和 Kr⁺辐照, 钨中微观区域均形成了<100>和 $1/2<111>$ 位错环, 整体位错环损伤在同时辐照时最小且位错环比例也存在差异。在 He⁺注入过程中, 由于 $1/2<111>$ 位错环具有高移动性, 它们之间互相接触可能结合形成尺寸更大的位错环; 而 Kr⁺注入会产生新的尺寸更小的位错环, 导致位错环平均直径下降及数密度增加^[3]。同时辐照 Kr⁺和 He⁺过程中, 这几种机制共同作用导致位错环尺寸和数密度发生变化。

图 8 所示为在 3 个辐照损伤剂量下, <100>和 $1/2<111>$ 位错环的尺寸分布。从图 8a 可看出 <100>位错环在不同辐照损伤剂量下尺寸分布具有较大差异, 辐照损伤剂量为 0.214 dpa Kr⁺ & 0.105 dpa He⁺时, 位错环尺寸呈现双峰值分布, 主要分布范围为 9~11 nm 和 13~15 nm。相同温度下<100>位错环周围的数密度越大, 它们相互作用的可能性就越大。当尺寸相似的<100>位错环在高数密度区域相互接触时产生相互作用, 进而生成 $1/2<111>$ 位错环, 导致形成双峰分布。其位错环尺寸的最小值(~7.33 nm)大于另外 2 个辐照损伤剂量下位错环尺寸的最小值。随着辐照损伤

剂量增加至 0.428 dpa Kr⁺ & 0.211 dpa He⁺, 位错环尺寸分布不再呈现双峰分布, 主要分布区间在 7~13 nm 之间, 3~7 nm 之间的小尺寸位错环也随之出现。这种<100>位错环尺寸呈现单峰分布的原因可能是随着辐照损伤剂量增加, 尽管高数密度区域<100>位错环相互作用形成 $1/2<111>$ 位错环, 但<100>位错环在该尺寸范围内的增殖多于相互作用湮灭。辐照损伤剂量继续增加至 0.856 dpa Kr⁺ & 0.421 dpa He⁺, 位错环的尺寸分布又呈现双峰分布, 大尺寸位错环的数量明显减少且位错环的尺寸也有所增长。位错环尺寸主要分布在 7~9 nm 和 11~13 nm。这是由于位错环尺寸不断增大, 位错环之间发生反应, 进而相互缠结形成位错线。从图 8b 可知 $1/2<111>$ 位错环在不同的辐照损伤剂量下均呈现正态分布。辐照损伤剂量从 0.214 dpa Kr⁺ & 0.105 dpa He⁺增加至 0.428 dpa Kr⁺ & 0.211 dpa He⁺时, 占比最大的位错环尺寸分布区间均为 9~11 nm, 然而其相对百分比下降并生成了更多小尺寸位错环, 与此同时原来生成的位错环也逐渐长大。辐照损伤剂量继续增加至 0.856 dpa Kr⁺ & 0.421 dpa He⁺时, 主要占比区间为 7~9 nm。在辐照过程中, 大尺寸位错环趋向于减少而小尺寸位错环的数量明显增加。产生这一现象的原因主要是位错环移动相互聚集形成位错线^[16-17, 20-21]。

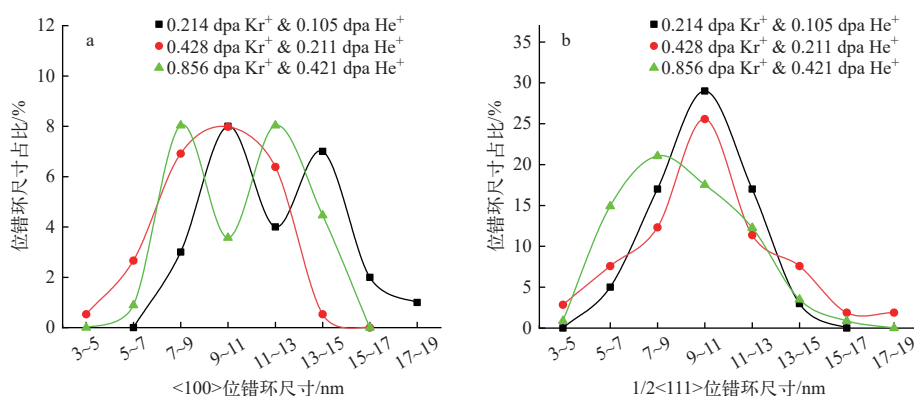


图 8 不同辐照损伤剂量下位错环的尺寸分布

Fig. 8 Dislocation loop size distribution at different irradiation damage doses

5 结论

本文在 700 °C 下通过原位 TEM 观察研究 Kr⁺ & He⁺在同时辐照时, 辐照损伤剂量增大时产生的位错环种类、数量、尺寸和数密度, 并进行统

计与定量分析, 主要结论如下。

1) 辐照损伤剂量为 0.319 dpa 时, 样品表面分布着零星位错环; 当辐照损伤剂量达到 1.277 dpa 时, 位错环相互聚集形成明显的位错线。辐照损

伤剂量增加至 1.916 dpa 时,形成明显的位错网络。

2) Kr^+ & He^+ 同时辐照钨导致 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2\langle 111 \rangle$ 位错环的产生。不同辐照损伤剂量下, $1/2\langle 111 \rangle$ 位错环的数量均大于 $\langle 100 \rangle$ 位错环。不产生位错线时,辐照损伤剂量的增加导致 $\langle 100 \rangle$ 位错环的占比增加。辐照损伤剂量为 0.319 dpa 时,形成了占比为 26% 的 $\langle 100 \rangle$ 位错环和占比为 74% 的 $1/2\langle 111 \rangle$ 位错环。辐照损伤剂量增加至 0.639 dpa 时, $\langle 100 \rangle$ 位错环的占比增加至 38.89%。辐照损伤剂量增加至 1.277 dpa 时,开始形成位错线, $\langle 100 \rangle$ 位错环的占比降低至 26.55%。

3) 通过对不同尺寸范围内的位错环进行分析得出结论,随着辐照损伤剂量增加,逐渐出现小尺寸的 $1/2\langle 111 \rangle$ 位错环,同时位错环的尺寸逐渐增加,随后形成位错线。 $\langle 100 \rangle$ 位错环随着辐照损伤剂量的增加,出现小尺寸位错环和大尺寸位错环的消失。当形成位错线后,位错环的演变主要表现为位错环尺寸的增长。

本文研究了 Kr^+ & He^+ 原位离子辐照钨的位错环演化,更加真实地模拟了聚变装置中快中子和 He 粒子流对结构组件和分流器的辐照效应。采用 Kr^+ & He^+ 离子同时注入的条件,钨中微观区域主要形成了 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2\langle 111 \rangle$ 位错环,位错环间相互作用导致 $\langle 100 \rangle$ 位错环比例先增加后减小,从而对钨的机械性能产生重大影响。

本文对钨原位离子辐照条件下位错环损伤机制和演变与辐照条件剂量的研究,有助于设计能够承受核聚变条件的新材料。

参考文献:

- [1] 白若玉,王珂,白亚奎,等. H、He 离子辐照对国产 ZIRLO 合金氧化膜的影响[J]. *原子能科学技术*, 2018, 52(11): 2020-2027.
BAI Ruoyu, WANG Ke, BAI Yakui, et al. Comparison of H and He ion irradiation impact on oxide film of domestic ZIRLO[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2018, 52(11): 2020-2027(in Chinese).
- [2] 陈倩,张柯,刘仁多,等. 高温 He 离子辐照 GH3535 合金的损伤效应[J]. *原子能科学技术*, 2020, 54(4): 688-695.
CHEN Qian, ZHANG Ke, LIU Renduo, et al. Irradiation damage in GH3535 alloy under He ion irradiation at high temperature[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2020, 54(4): 688-695(in Chinese).
- [3] EL-ATWANI O, CUNNINGHAM W S, TRELEWICZ J R, et al. Revealing the synergistic effects of sequential and simultaneous dual beam irradiations in tungsten via *in situ* TEM[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2020, 538: 152150.
- [4] PENG Q, MENG F, YANG Y, et al. Shockwave generates $\langle 100 \rangle$ dislocation loops in BCC iron[J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 1-6.
- [5] LI M, KIRK M A, BALDO P M, et al. Study of defect evolution by TEM with *in situ* ion irradiation and coordinated modeling[J]. *Philosophical Magazine*, 2012, 92(16): 2048-2078.
- [6] LUO F, GUO L, CHEN J, et al. Damage behavior in helium-irradiated reduced-activation martensitic steels at elevated temperatures[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, 455(1-3): 339-342.
- [7] HERNÁNDEZ-MAYORAL M, HEINTZE C, OÑORBE E. Transmission electron microscopy investigation of the microstructure of Fe-Cr alloys induced by neutron and ion irradiation at 300 °C[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2016, 474: 88-98.
- [8] HALEY J C, de MORAES S S, WADY P, et al. Microstructural examination of neutron, proton and self-ion irradiation damage in a model Fe₉Cr alloy[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2020, 533: 152130.
- [9] CHEN D, MURAKAMI K, YANG H, et al. Flux effects on point defect behavior by tracking loop evolution using combined irradiation method[J]. *Scripta Materialia*, 2022, 207: 114311.
- [10] GUO W, WANG S, GE L, et al. Dislocation loop and tangle evolution of peak damage region in tungsten irradiated by heavy ion and deuterium plasma[J]. *Nuclear Fusion*, 2020, 60(3): 034002.
- [11] CHROMINSKI W, CIUPINSKI L, BAZARNIK P, et al. TEM investigation of the influence of dose rate on radiation damage and deuterium retention in tungsten[J]. *Materials Characterization*, 2019, 154: 1-6.
- [12] YI X, JENKINS M L, HATTAR K, et al. Characterisation of radiation damage in W and W-based alloys from 2 MeV self-ion near-bulk implantations[J]. *Acta Materialia*, 2015, 92: 163-177.
- [13] ZIEGLER J F. Transport of ions in matter[R/OL]. <http://www.srim.org>.
- [14] BIRSACK J P, HAGGMARK L G. A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets[J]. *Nuclear Instruments and Methods*, 1980, 174(1): 257-269.

- [15] ECKSTEIN W. Computer simulation of ion-solid interactions[M]. Germany: Springer Science & Business Media, 2013.
- [16] LI Y, WANG L, RAN G, et al. *In-situ* TEM investigation of 30 keV He⁺ irradiated tungsten: Effects of temperature, fluence, and sample thickness on dislocation loop evolution[J]. *Acta Materialia*, 2021, 206: 116618.
- [17] DING Y F, LI Y P, LIU X Y, et al. *In-situ* transmission electron microscopy observation of the evolution of dislocation loops and gas bubbles in tungsten during H₂⁺ and He⁺ dual-beam irradiation[J]. *Tungsten*, 2021, 3(4): 434-447.
- [18] DU Y, YOSHIDA K, SHIMADA Y, et al. *In-situ* WB-STEM observation of dislocation loop behavior in reactor pressure vessel steel during post-irradiation annealing[J]. *Materialia*, 2020, 12: 100778.
- [19] DING Y, GUO L, LI Y, et al. *In-situ* TEM observation and MD simulation of the reaction and transformation of loops in tungsten during H₂⁺ & He⁺ dual-beam irradiation[J]. *Scripta Materialia*, 2021, 204: 114154.
- [20] LIU X, LI Y, RAN G, et al. *In-situ* TEM analysis on early-stage evolution of dislocation loops in 30 keV H₂⁺ irradiated W[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2022, 852: 143730.
- [21] LIU X, WU Y, LI Y, et al. *In situ* studies on the evolution of damage microstructures in tungsten under heavy ion irradiation and post annealing[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2023, 160: 104677.