

He-Ar 混合等离子体辐照对钨表面微观结构演化及氦滞留行为的影响研究*

金重阳¹⁾ 王真厚^{1)†} 张学希²⁾ 王浩¹⁾ 吴锦涛¹⁾ 彭瑶¹⁾ 王越¹⁾ 田悦¹⁾

孙长江¹⁾ 桑超峰^{1)†}

- 1) (大连理工大学物理学院, 三束材料改性教育部重点实验室, 大连 116024)
2) (中国科学院兰州化学物理研究所, 润滑材料全国重点实验室, 兰州 730000)

摘要

氢同位素在器壁材料中的滞留是亟待解决的关键问题之一。对于未来聚变堆, 反应产物氦 (He) 与外源杂质氩 (Ar) 协同辐照诱导的材料损伤及其对燃料滞留的影响目前尚不明确, 尤其是 Ar 对 He 辐照诱导的微观结构形成及氦滞留行为的调控机制仍缺乏系统研究。本工作依托 MPS-LD 直线等离子体装置, 在入射能量 30 eV、样品温度 1023 K 条件下, 研究了不同 Ar 混合比例 (0%、3%、5%、8%) 的 He-Ar 混合等离子体预辐照对钨表面微观结构演化及氦 (D) 滞留行为的影响。结果表明, 纯 He 等离子体辐照, 随剂量增加可使钨表面依次形成纳米孔洞、条纹状结构, 并在剂量达到 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 时演化为厚度约 176.0 nm 的致密的“绒毛”层, 层内存在大量 He 泡, 显著增加了氦的捕获位点, 使氦滞留量由未预辐照样品的 $5.1 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 增加至 $7.8 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ (提高约 15 倍)。混合 Ar 后, “绒毛”结构生长受到抑制。Ar 混合比例为 3% 时, 在相同 He 剂量下, 钨表面损伤层厚度降至 56.8 nm, 氦滞留量相应降为 $3.39 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$; Ar 比例增至 8% 时, “绒毛”结构基本消失, 氦滞留量较纯 He 条件下下降约 80%。研究表明, 适量混合 Ar 可有效抑制 He 诱导的钨材料表面辐照损伤, 并降低氦滞留。

关键词: 钨材料, 氦氩等离子体, 绒毛, 氦泡, 氦滞留

基金: 国家磁约束核聚变能研究专项 (批准号: 2024YFE03160001)、国家自然科学基金 (批准号: U2441223)、辽宁省科技计划联合计划 (批准号: 2024JH2/102600021) 和中央高校基本科研业务费 (批准号: DUTZD25210) 资助的课题。

† 通信作者. E-mail: zhenhou@dlut.edu.cn

† 通信作者. E-mail: sang@dlut.edu.cn

1 引言

钨因具备高熔点、高热导率、低溅射产额以及低氢同位素滞留率等优异性能，被视为国际热核聚变实验堆（ITER）及未来示范堆（DEMO）中面向等离子体材料的首选^[1-3]。在聚变装置实际运行过程中，第一壁与偏滤器靶板不仅要承受高通量氢同位素氘（D）和氚（T）粒子的持续轰击，还不可避免地受到多种杂质粒子的协同辐照，包括 D-T 聚变反应的产物氦灰（He）和为降低偏滤器靶板热负荷而引入的惰性气体（如氩 Ar、氖 Ne、氮 N）^[4-7]。研究表明，Ar 杂质在偏滤器区域的浓度通常为 0.1% - 5%，在强辐射或脱靶运行条件下，该浓度可进一步升高至约 10%^[8-10]。杂质粒子会显著改变等离子体与壁材料的相互作用，诱导表面产生复杂的微观结构，直接影响氢同位素在材料中的滞留。氢的同位素氚（T）具有放射性，其在材料中的滞留会影响氚自持及装置安全性，因此需要有效抑制其滞留水平。理解多杂质粒子（如 He 和 Ar）混合辐照对氢同位素滞留的影响对控制和预测氚滞留具有重要意义^[11,12]。

目前，人们已经开展了大量的单一杂质（即 He 或 Ar）对氢同位素滞留影响的研究。针对 He 杂质辐照，研究发现采用 He 等离子体辐照会在钨近表层诱导形成大量纳米气泡、孔洞及位错等缺陷，这类缺陷可显著增加氚在钨中的滞留量^[13-19]。低能高通量 He 等离子体辐照还会使钨表面形成更为复杂的绒毛结构^[20-23]。有研究指出，高剂量氦辐照形成的绒毛结构会降低氚滞留^[24]；也有研究发现该结构会大幅增强氚滞留，使氚几乎全部被绒毛层捕获^[25]。

关于 Ar 杂质对 D 滞留的作用，现有研究表明其主要通过两种机制影响。一是 Ar 离子通过级联碰撞在钨近表层产生位移损伤，改变材料的缺陷结构，进而影响氚的捕获、迁移与脱附行为；同时，Ar 离子辐照还能引入大量空位型缺陷与 Ar-空位复合物，作为强捕获陷阱提升氚的滞留。另一方面，Ar 辐照引起较强的

物理溅射，导致明显的表面侵蚀，改变表面形貌与近表层成分，进一步影响氦在表面及近表面区域的滞留特性^[26-32]。

尽管已有关于单一 He 或 Ar 杂质的研究为理解钨中损伤与氢同位素滞留机制提供了很好的理论基础，但在 He 和 Ar 共存条件下，钨材料表面的微观结构演化以及氢同位素的滞留行为仍缺乏系统研究，特别是 Ar 注入对 He 诱导纳米结构形成及其对氢同位素滞留的影响机制尚不明确，此外，托卡马克中 Ar 杂质含量的变化对这些效应的影响仍需要明确。

本研究利用多种等离子体模拟直线装置 MPS-LD，开展了 He-Ar 混合辐照条件下微观结构演化以及氦滞留行为的实验研究。分析了不同 Ar 混合比例（0%、3%、5%、8%）对 He 诱导钨表面纳米结构形成与演化的影响，阐明了微观结构变化与氦滞留行为之间的关联机制。

2 实验

2.1 样品材料

本研究采用高纯度(>99.95%)热轧态钨，通过线切割加工为10 mm×10 mm×2 mm的标准样品。样品经不同粒度的SiC砂纸逐级打磨并抛光至镜面状态，随后依次在丙酮与无水乙醇中进行超声清洗。为消除机械加工产生的残余应力及吸附的杂质气体，辐照前将样品置于真空度为 1×10^{-4} Pa的石英管中，在1173 K条件下退火1小时，后自然冷却至室温。

2.2 实验装置及等离子体参数诊断

辐照实验在大连理工大学 PSI&APD 团队自主搭建的多种等离子体模拟直线装置 Multiple Plasma Simulation Linear Device (MPS-LD) 上进行^[33]，装置结构如图 1 所示。该装置由长度约 3 m 的圆柱形真空腔体组成，腔体外部配置 11 个亥姆霍兹线圈，可产生最高约 0.4 T 的多位形轴向磁场。装置左侧为螺旋波等离子

体源，可产生高密度的稳定等离子体束流。样品靶板与等离子体束轴向垂直，其轴向位置可在 0 - 1650 mm 范围内调节，以满足不同实验工况需求。

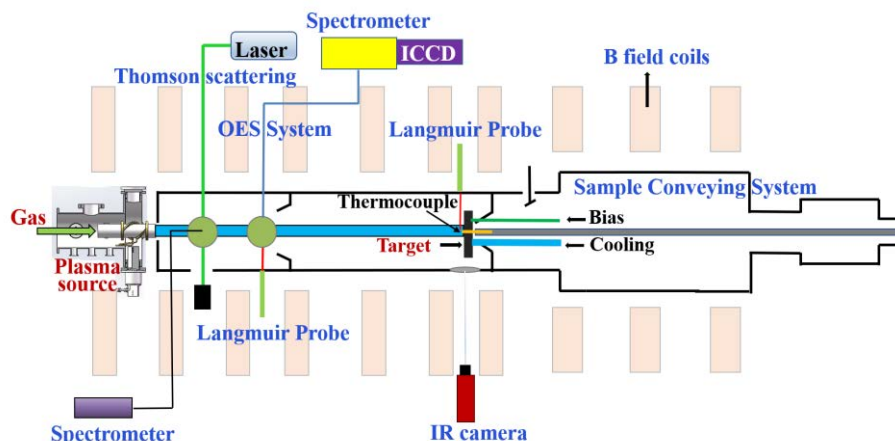


图 1. MPS-LD 装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the MPS-LD device.

本实验通过独立质量流量计精确控制 He 与 Ar 的进气比例。He 流量恒定为 200 sccm，通过调节 Ar 流量（0 - 16 sccm），获得不同气体混合比例，分别为 0%、3%、5%和 8%。

为准确获得放电实验中混合等离子体的离子组分及束流密度参数，采用发射光谱、汤姆逊散射与朗缪尔探针联合诊断的方法。首先，利用 Omni-λ750i 型高分辨率光谱仪及 ICCD 相机在等离子体源区测量 He I（447.1 nm）谱线强度，并结合碰撞辐射模型估算 He⁺浓度。基于汤姆逊散射测得的电子密度 ($n_e \sim 10^{18} \text{ m}^{-3}$) 和电子温度 ($T_e = 5\text{-}10 \text{ eV}$)，在准中性假设条件下，反演出 Ar⁺离子浓度，具体方法参照文献^[34]。然后，通过朗缪尔探针对靶区总束流密度进行了测定，最终获得了不同 Ar 混合比例下的等离子体束流密度，详见表 1。结果表明，随着氩气比例升高，Ar⁺束流密度由 0 增加至 $3.1 \times 10^{21} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ，He⁺束流密度则由 $2.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 降低至 $1.9 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ，总束流密度略微下降。该现象与混合气体放电中的能量平衡及粒子输运特性有关。在螺旋波等离子体源中，混合气体比例的变化会影响碰撞频率与功率沉积。在固定功率下引入 Ar，增强了激发、辐射等非电离耗能，

并提高了电子与中性粒子碰撞频率，从而使电子温度与电子能量分布的高能尾下降。由于 He 放电对电子能量分布尾部高度敏感，高能尾的下降直接导致了 He 的电离效率降低，从而产生的 He⁺离子数量减少，He⁺束流密度下降，He-Ar 总束流密度随之下降^[35-37]。另外，由于 Ar 的第一电离能（15.8 eV）低于 He（24.6 eV），其电离更为容易，实际等离子体中 Ar⁺占比（ f_{Ar^+} ）通常高于气体流量比例^[38]。

表 1 不同 Ar 混合比例下 He - Ar 混合等离子体的离子组分与束流密度参数

Table 1. Ion composition distribution and flux of He-Ar mixed plasmas at different Ar ratios

辐照气体	$\Gamma_{total} / m^{-2} s^{-1}$	Ar ⁺ 占比/ f_{Ar^+}	$\Gamma_{He^+} / m^{-2} s^{-1}$	$\Gamma_{Ar^+} / m^{-2} s^{-1}$
He	2.4×10^{22}	0	2.4×10^{22}	0
He+3%Ar	2.4×10^{22}	4.2%	2.3×10^{22}	1.0×10^{21}
He+5%Ar	2.3×10^{22}	8.7%	2.1×10^{22}	2.0×10^{21}
He+8%Ar	2.2×10^{22}	14.1%	1.9×10^{22}	3.1×10^{21}

2.3 辐照实验设计

1. He-Ar混合等离子体预辐照

为系统研究He辐照剂量与Ar混合比例对钨表面微观结构演化的影响，本实验设计分为三部分：

- 1) 纯He预辐照：He束流密度为 $2.4 \times 10^{22} m^{-2} s^{-1}$ ，通过改变辐照时间控制He辐照剂量，分别为 1.44×10^{25} ， 2.16×10^{25} ， 4.32×10^{25} ， $8.64 \times 10^{25} He m^{-2}$ ，研究He诱导钨表面微观结构演化规律。
- 2) 低比例Ar混合预辐照：保持与纯He组一致的He辐照剂量，分析3% Ar混合后钨表面微观结构的变化，明确少量Ar混合对He诱导结构演化过程的影响。
- 3) 提高Ar混合比例预辐照：固定He辐照剂量为 $8.64 \times 10^{25} m^{-2}$ ，提高Ar混合比（3%、5%和8%），进一步研究Ar浓度对微观结构演化的影响规律。

实验中，利用朗缪尔探针测得等离子体电势约为20 V，钨表面He⁺入射能量为偏压电势与等离子体电势之和^[39]；通过调节靶板偏压，将入射能量控制在30 eV。样品表面温度通过安装在样品背面的热电偶实时监测，并结合水冷系统进行调节，辐照期间样品温度维持在1023 ± 30 K。

2. 低能氘（D）等离子体辐照

He-Ar预辐照完成后，所有样品均进行低能氘等离子体辐照，以分析不同预辐照条件下的氘滞留行为。氘束流密度 I_D 为 $5.0 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ，辐照时长为1小时，对应氘辐照剂量为 $1.8 \times 10^{25} \text{ D m}^{-2}$ 。本实验采用和He-Ar辐照一致的方法，将样品温度维持在 $500 \pm 30 \text{ K}$ ，该温度下钨中氘滞留效应最为显著^[40]，同时控制入射能量为30 eV。

2.4 微观结构表征方法

辐照前后钨样品的表面微观形貌采用场发射扫描电子显微镜（HITACHI UHR FE-SEM SU8600）进行表征。截面样品利用聚焦离子束（FIB）-扫描电子显微镜联用设备（Helios 5Hydra UX FIB-SEM）制备，具体流程为：首先在样品表面沉积铂保护层，随后采用聚焦离子束对辐照样品进行切割并逐步减薄，最终获得厚度小于100 nm的截面透射电镜试样。截面微观结构采用透射电子显微镜（TEM, Talos F200X）观察，利用高角环形暗场扫描透射电子显微镜（HAADF-STEM）模式分析辐照诱导产生的损伤层形貌。

2.5 钨中氘的滞留与脱附分析

氘等离子体辐照钨样品中的氘滞留与热脱附行为采用超高真空热脱附谱系统（Thermal Desorption Spectroscopy, TDS）进行表征^[10]。所有样品在 $1 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 高真空环境中，以10 K/min的升温速率由300 K加热至1173 K，并在1173K保温10分钟。样品温度预先通过与样品直接接触的热电偶进行了校准。实验采用四极杆

质谱仪 (QME220, Pfeiffer) 实时记录加热过程中释放的 D_2 (4 amu)、HD (3 amu)、HDO (19 amu) 及 D_2O (20 amu) 的信号强度。由于实验中的 HDO 和 D_2O 信号很低, 在氡脱附谱及滞留量分析中不做考虑。氡脱附行为主要依据 D_2 信号分析, 氡总滞留量通过对 D_2 和 HD 的热脱附谱积分求得。

3 结果与讨论

3.1. 氦氩等离子体辐照钨表面微观结构演化

为系统研究 He-Ar 混合等离子体预辐照钨表面微观结构的演化机制, 首先开展纯 He 等离子体预辐照实验, 明确钨表面微观结构随 He 辐照剂量的变化; 在此基础上, 引入不同比例 Ar 进行混合预辐照, 分析 Ar 对 He 诱导微观结构演化的影响。

纯 He 预辐照前后钨样品的表面 SEM 形貌如图 2 所示, 未辐照钨样品表面整体平整, 无明显缺陷结构 (图 2 (a))。随着 He 辐照剂量由 $1.44 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 增至 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$, 钨表面依次形成纳米孔洞、条纹状结构, 并最终演化为致密纳米“绒毛”层。在较低剂量 $1.44 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 和 $2.16 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 条件下, 样品表面形成大量纳米孔洞 (图 2 (b)、(c))。随着剂量升高, 孔洞密度增大, 部分相邻孔洞发生合并, 表明近表层 He 泡的生长过程持续加剧。当剂量进一步增至 $4.32 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 时, 孔洞逐渐演化为周期性排列的条纹状结构 (图 2 (d))。当剂量达到 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 时, 表面形成典型的致密绒毛结构 (图 2 (e))。该结构演化过程主要由 He 泡驱动, 在高束流密度 ($\Gamma_{\text{He}^+} = 2.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) 和较高温度 $1023 \pm 30 \text{ K}$ 条件下, He 在钨近表层不断富集并形成气泡, 气泡的膨胀引发局部应力积累, 进而驱动表面物质向外迁移, 最终形成纳米纤维状“绒毛”结构^[41,42]。

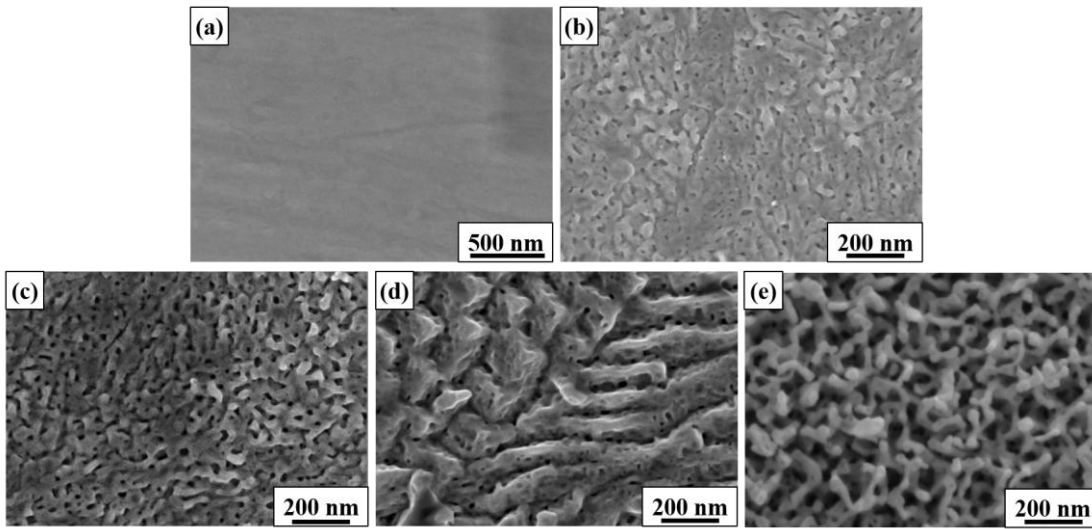


图2. 不同He辐照剂量下钨表面SEM形貌图: (a) 未辐照; (b) $1.44 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; (c) $2.16 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; (d) $4.32 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; (e) $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; 辐照期间, He^+ 束流密度 $\Gamma_{\text{He}^+} = 2.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, 样品温度 $1023 \pm 30 \text{ K}$

Fig.2. SEM images of tungsten surface morphologies after He plasma irradiation at different fluences: (a) unirradiated; (b) 1.44×10^{25} , (c) 2.16×10^{25} , (d) 4.32×10^{25} , and (e) $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$. He^+ flux was $2.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, and the sample temperature was maintained at $1023 \pm 30 \text{ K}$ during irradiation.

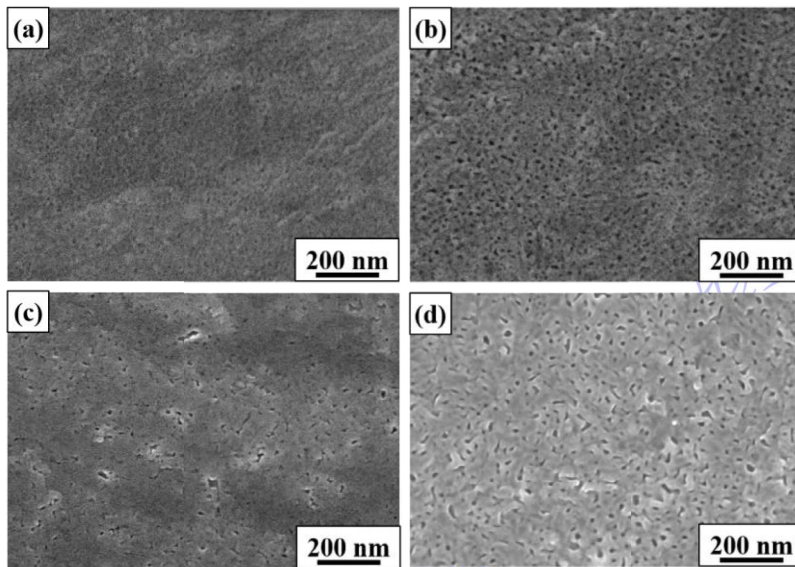


图3. He+3%Ar混合等离子体预辐照后钨样品的表面SEM形貌图: (a) $1.44 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; (b) $2.16 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; (c) $4.32 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; (d) $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$; 辐照期间, He^+ 束流密度 $\Gamma_{\text{He}^+} = 2.3 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, 样品温度 $1023 \pm 30 \text{ K}$

Fig. 3. SEM images of tungsten surfaces morphologies after He+3%Ar mixed plasma irradiation at different He fluences: (a) 1.44×10^{25} , (b) 2.16×10^{25} , (c) 4.32×10^{25} , and (d) $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$.

He⁺ flux was $2.3 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, and the sample temperature was maintained at $1023 \pm 30 \text{ K}$ during irradiation.

在明确纯He等离子体辐照下的微观结构演化规律后，引入3% Ar进行混合预辐照，以研究少量Ar对He诱导结构形成过程的影响。该条件下，Ar⁺束流密度为 $1.0 \times 10^{21} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ，He⁺束流密度为 $2.3 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 。为排除He剂量差异的影响，通过延长辐照时间使各组样品的He辐照剂量与纯He组保持一致。图3为He+3% Ar混合等离子体预辐照后钨表面SEM形貌。可见在3% Ar混合辐照条件下，钨表面仅出现稀疏分布的纳米级孔洞（图3（a）、（b））与微小凸起（图3（c）、（d））。与纯He辐照结果（图（2））对比可知，混合辐照下钨表面形貌演化程度降低，纳米孔洞尺寸更小，且在最高剂量下仍未形成连续的纳米“绒毛”结构（图3（d））。该结果表明，混合少量Ar可显著抑制He诱导的钨近表层微观结构演化。

为进一步阐明抑制效应与Ar混合比例之间的关系，在固定He辐照剂量为 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 的条件下，将Ar混合比例逐步提高至5%和8%，对应Ar⁺束流密度分别增至 $2.0 \times 10^{21} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 与 $3.1 \times 10^{21} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ，He⁺束流密度分别为 $2.1 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 与 $1.9 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 。辐照后钨表面形貌如图4所示。结果表明，随着Ar比例升高，钨表面损伤程度持续减弱。Ar比例提升至5%时，连续的“绒毛”结构已完全消失，表面生成不连续的条纹状或浅起伏形貌；当Ar比例进一步提高至8%时，样品表面几乎趋于平整，仅观察到少量小孔洞。这说明Ar对He诱导纳米结构生长的抑制作用随其混合比例增加而增强。

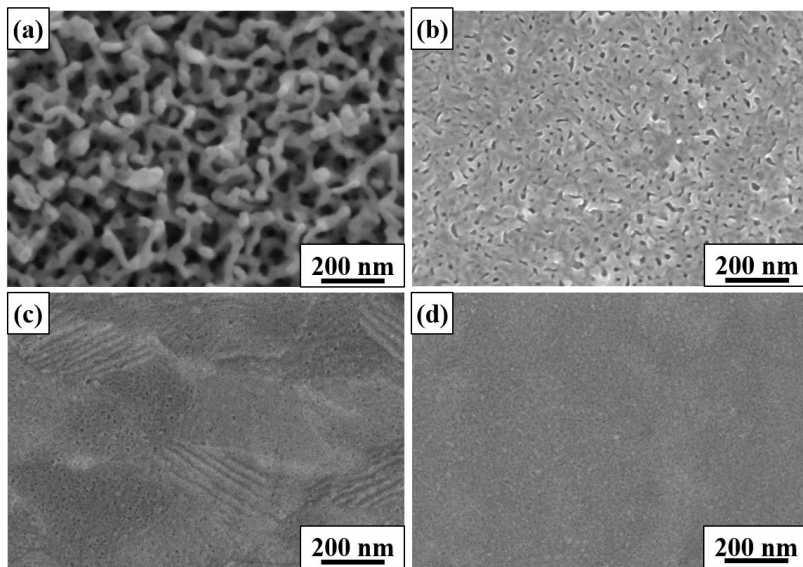


图 4. 恒定 He 剂量 ($8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$) 下, 不同 Ar 混合比例预辐照钨样品表面 SEM 形貌图:

(a) 纯 He; (b) He + 3% Ar; (c) He + 5% Ar; (d) He + 8% Ar

Fig. 4. SEM images of tungsten surface morphologies under constant He fluence ($8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$) with different Ar fractions: (a) pure He; (b) He + 3%Ar; (c) He + 5%Ar; (d) He + 8%Ar.

为深入理解Ar杂质对He诱导钨表面微观结构演化的抑制作用, 对纯He和He+3%Ar预辐照样品进行了截面TEM表征, 结果如图5所示。从图5 (a) 可以看出, 在 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 剂量的纯He等离子体辐照下, 钨近表层形成厚度约176.0 nm的连续致密纳米“绒毛”层, 该层由卷曲的纳米纤维交织构成^[43], 内部存在大量尺寸约为19.4–35.5 nm的He泡。该结果说明, 高剂量He辐照使He在钨近表层持续富集并成核, 形成高密度He泡。He泡生长与聚集引发局部应力积累, 驱动表面原子迁移, 从而使早期形成的纳米孔洞进一步演化为连续的“绒毛”结构, 与Bi等人的研究结果一致^[44]。

对比发现, 混合3% Ar后, 如图5 (b) 所示, 钨表面未形成连续“绒毛”层, 损伤层厚度由176.0 nm显著降至约56.8 nm。同时, He泡尺寸减小至12.0–24.0 nm, 气泡数量明显减少且分布更加离散, 这说明Ar对He诱导微观结构演化的抑制作用。绒毛结构生长受到Ar抑制, 主要源于He泡生长与Ar诱导表面溅射之间的竞争。

由于Ar离子质量远大于He，在相同入射能量下对W原子的动量传递更强，可显著增强近表层原子重排和物理溅射。本实验中Ar离子入射能量为30 eV，已超过钨的溅射阈值（26.5 eV）^[45]，因此能够持续去除表层He富集区域及抑制早期缺陷结构的形成，降低He在近表层的累积，并破坏He泡稳定生长所需的应力场与物质运输条件。因此，当Ar存在时He泡难以进一步长大、聚集并演化为多孔网络，最终抑制了纳米“绒毛”结构的形成^[46]。

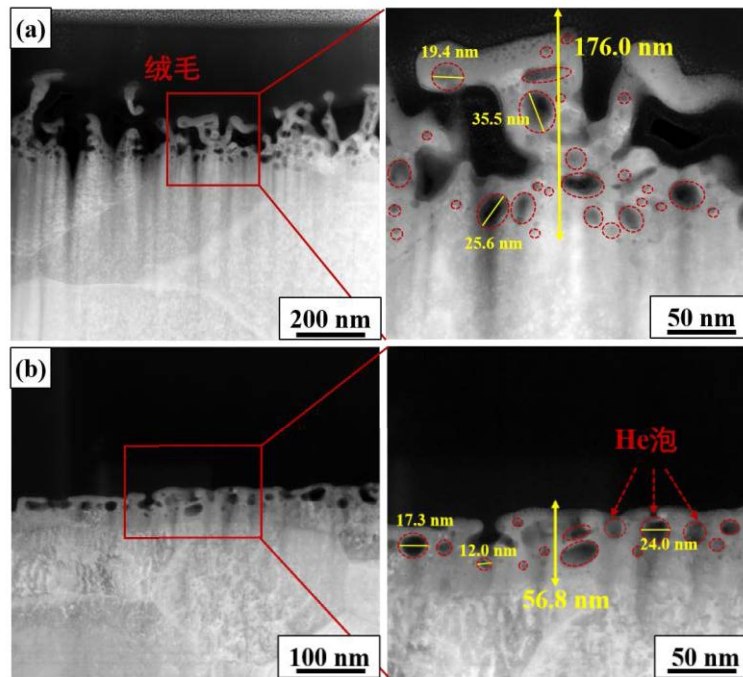


图 5.钨样品截面 TEM 图：(a) 纯 He 预辐照；(b) He+3%Ar 混合预辐照。右侧图为左侧图中红色方框区域的放大图

Fig. 5. Cross-section TEM images of tungsten samples after pre-irradiation at a fluence of $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$: (a) pure He; (b) He + 3% Ar. The image on the right is an enlargement of the image on the left in the red box.

3.2. 氦在钨中的滞留和热脱附行为分析

为研究He-Ar预辐照诱导的微观结构对氦滞留行为的影响，对各组预辐照样品进行1小时D等离子体辐照后开展TDS测试，以获得不同预辐照条件下的氦脱附与滞留量。

图6 (a) 为He预辐照和未预辐照样品 (D-only) 经 $1.8 \times 10^{25} \text{ D m}^{-2}$ 的氦等离子体辐照后的D₂热脱附谱图。实验结果表明, 纯He预辐照显著增加了钨中的D滞留量。未预辐照样品在约600 K处出现单一脱附峰, 对应钨中固有缺陷, 如位错、晶界等对D的低捕获能陷阱, 其捕获能约为1.0–1.4 eV, 与Hoen等人报道的位于500–650 K低捕获能陷阱脱附峰基本一致^[47]。随着He预辐照剂量增加, 样品的脱附曲线呈现明显的多峰特征, 峰强度增强且脱附温度持续升高。当He辐照剂量达到 $4.32 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 时, 约730K处出现高温脱附峰, 并在650 K附近伴随一个较弱峰; 剂量进一步提高至 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 时, 形成650 K (Peak 1) 与 750 K (Peak 2) 的双峰结构。其中, 650 K附近的脱附峰对应中等捕获能陷阱, 约1.4-1.7 eV, 包括小尺寸He泡、空位团簇及He-空位复合体等; 750 K附近的高温特征峰对应高捕获能陷阱, 约1.7–2.2 eV, 主要来源于大尺寸He泡及其进一步演化形成的“绒毛”层结构内部缺陷^[48]。He预辐照不仅增加了D的捕获点数量, 也改变了D捕获陷阱的能级分布。随着He剂量增加, D的主要滞留位置由固有的低捕获能陷阱 (1.0–1.4 eV) 逐渐转向He泡、空位团簇和绒毛等中高捕获能陷阱 (1.4–2.2 eV), TDS峰强度增强、峰位向高温侧移动, 总D滞留量升高。此外, “绒毛”结构具有较大比表面积, 可进一步增加D吸附和滞留位点, 使总氘滞留量较未辐照样品显著提升^[49]。

为了明确混合Ar对钨中D滞留的影响, 图6(b)展示了3%Ar混合条件下, 相同He剂量预辐照样品的TDS结果。与纯He辐照相比, 氘脱附峰整体向低温区移动, 约590-710 K, 且峰值降低。当He辐照剂量为 $1.44 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 和 $2.16 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 时, 脱附峰位于590-610 K之间, 主要对应钨表面稀疏纳米孔洞和离散小尺寸He泡, 高捕获能陷阱尚未充分形成, D主要滞留于固有缺陷和低捕获能缺陷中。然而, 当He剂量进一步提高至 $4.32 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 和 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 时, 脱附峰重新向

高温区移动至约680-710 K，并出现更宽的峰形。这主要是因为，虽然Ar的物理溅射作用在一定程度上抑制了钨表面微观缺陷演化，例如抑制空位团簇的形成和小尺寸He泡的聚集，但在高束流He的持续注入下，He原子不断聚集，形成更多He泡，中高捕获能陷阱数量增加，有效束缚氘原子，从而提高D的滞留量。同时，He泡进一步演化形成的绒毛层内部缺陷，提供了大量D滞留位点，使脱附过程中D释放所需能量升高，TDS峰向高温移动。综上，Ar虽然部分抑制微观缺陷演化，但高束流He的累积效应占主导，最终导致氘滞留总量增加，并使脱附温度升高。

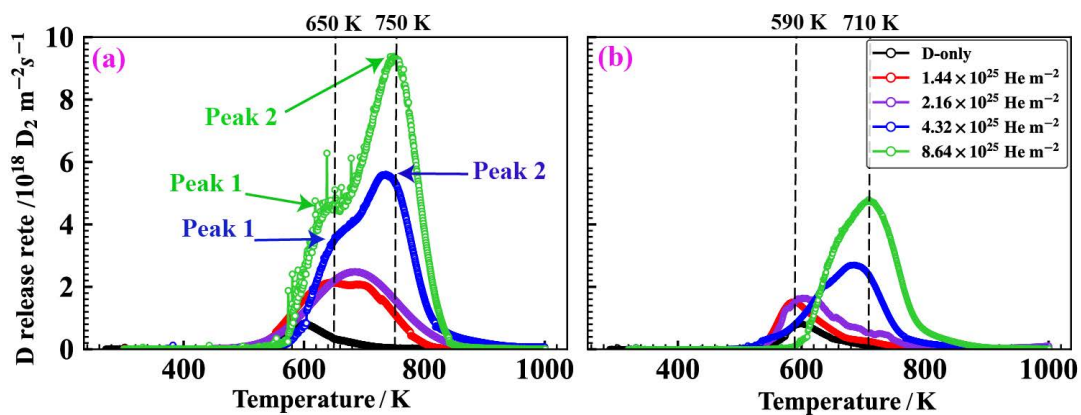


图 6. 不同预辐照条件下钨样品的氘热脱附谱:(a)纯 He 预辐照;(b)相同 He 剂量下 He+3%Ar 混合预辐照; 图中峰值 Peak 1 (约 650 K) 对应低捕获能陷阱; Peak 2 (约 750 K) 对应中高捕获能陷阱, 主要来源于氦泡、空位团簇及“绒毛”内部缺陷

Fig. 6. Thermal desorption spectra (TDS) of deuterium in W under different pre-irradiation conditions:(a) pure He irradiation at different fluences; (b) He+3%Ar irradiation at the same He fluences. Peak 1 (~650 K) corresponds to low-energy trapping sites. Peak 2 (~750 K) is associated with medium-to-high energy traps, mainly originating from He bubbles, vacancy clusters, and fuzz-related defects.

为进一步探究Ar混合比例对氘滞留的影响，在恒定He辐照剂量 $8.64 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ 下，对比了不同Ar含量（0%、3%、5%、8%）预辐照样品的TDS结果，如图7所示。随着Ar比例由0%提升至8%，样品高温脱附峰逐渐减弱并向低温区移动，氘总滞留量呈下降趋势。这一变化表明，在固定He剂量下，D滞留行为的主导因素

由纯He条件下的He泡和绒毛捕获，逐渐转变为He诱导缺陷生长与Ar诱导表面溅射之间的竞争。在纯He条件下，钨表面形成致密“绒毛”层和大量He泡，TDS曲线出现明显的高温双峰结构（~650 K、750 K），表明材料中存在大量中高结合能D捕获陷阱（1.7–2.2 eV）。混合Ar后，尤其在3% Ar条件下，尽管仍存在一定数量的He泡结构，但其尺寸和密度显著降低（图5），对应的高温峰峰值减小、峰位降至约710 K），中高捕获能陷阱数量减少。随着Ar比例进一步提高至5%和8%，钨表面“绒毛”结构基本消失，He泡难以持续长大，脱附温度分别降至约640 K、590 K。Ar杂质通过改变He诱导缺陷的形成与演化过程，影响氘捕获陷阱的类型、数量和能级分布。随着Ar比例增加，He诱导钨表面微观结构形成与Ar的表面溅射作用之间的竞争关系增强。Ar的溅射作用持续抑制He在近表层的富集、He泡稳定长大及“绒毛”结构的形成，从而使中高捕获能陷阱（1.4 - 2.2 eV）逐步减少，而低捕获能陷阱（1.0 - 1.4 eV）逐渐占主导。这就解释了D₂释放速率降低、脱附温度从750K降低到590K，同时D总滞留量持续下降的原因。

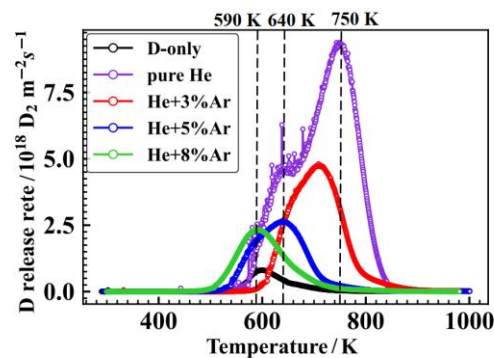


图7. 恒定He辐照剂量 ($8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$) 条件下，不同Ar混合比例 (0%, 3%, 5%, 8%) 预辐照钨样品的氘热脱附谱

Fig. 7. TDS of deuterium in W samples pre-irradiated with different Ar fraction (0%, 3%, 5%, and 8%) at a constant He fluence of $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$.

图8给出了不同预辐照条件下钨中D滞留总量的对比结果，可以看出，氘滞留

总量的变化趋势与TDS脱附峰特征及表面微观结构演化规律高度一致，表明预辐照诱导缺陷的类型、数量及分布是决定钨中D滞留行为的关键因素。未预辐照样品的D滞留量为 $5.1 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 。纯He预辐照条件下，随着He剂量增加，氘滞留量快速上升，并在 $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ 条件下达到 $7.78 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ ，较未预辐照样品提升约15倍。混合3% Ar后，相同He剂量下的D滞留量明显低于纯He预辐照样品。结合SEM和TEM结果可知，Ar的引入抑制了He泡的生长和绒毛结构形成，使中高结合能陷阱数量减少，因此D滞留量降低。在恒定He辐照剂量（ $8.64 \times 10^{25} \text{ He m}^{-2}$ ）下进一步提高Ar比例，氘滞留量随Ar含量增加持续下降。当Ar比例达到8%时，氘滞留量降至 $1.58 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ ，相比纯He条件降低约80%。这一变化与图7中高温脱附峰逐渐减弱并向低温区移动的趋势一致。该结果进一步证实，钨中氘滞留总量的变化本质上是He诱导缺陷生成与Ar溅射抑制效应之间竞争作用的结果。

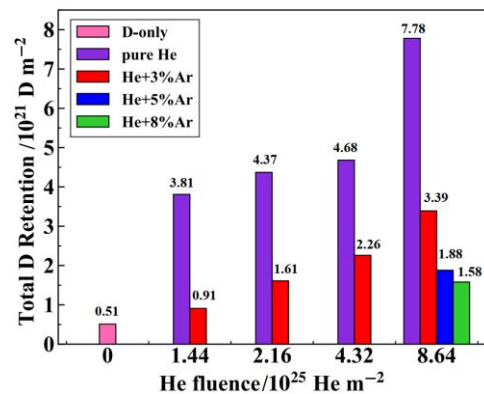


图8 不同预辐照条件下钨中氘滞留总量：纯He与He+3%Ar随剂量变化；恒定He剂量下不同Ar比例对比

Fig. 8. Total deuterium retention in tungsten under different pre-irradiation conditions: comparison between pure He and He+3%Ar as a function of fluence; comparison at constant He fluence with different Ar fractions.

4 结 论

本工作通过在 MPS-LD 直线等离子体装置上开展实验，系统研究了不同 Ar 混合比例（0%、3%、5%、8%）的 He-Ar 混合等离子体预辐照对钨表面微观结构演化及氦滞留行为的影响。

研究发现，在入射离子能量 30 eV、样品温度约 1023 K 的纯 He 等离子体辐照条件下，随着辐照剂量增加，钨表面依次形成纳米孔洞、条纹状结构，当辐照剂量增至 8.64×10^{25} He m^{-2} 时，最终演化为典型的“绒毛”结构，其内部及近表层区域存在大量 He 泡，显著增加了材料中氦的高捕获能缺陷的密度，为氦提供了强束缚陷阱，使氦总滞留量较未预辐照样品提高约一个数量级。相应地，在热脱附谱（TDS）中呈现高温脱附峰显著增强，出现双峰特征，且峰位向高温区明显移动的特征。这一峰位移动反映出氦由低捕获能缺陷（如空位或位错）向高捕获能缺陷（气泡及“绒毛”）转移，捕获能级整体向高能侧演化。当混合 Ar 并提高其比例后，Ar 的表面物理溅射效应显著增强，抑制了 He 在近表层的富集与 He 泡的持续长大，进而阻碍“绒毛”结构的生成，削弱了由 He 泡驱动的多孔结构演化过程。在此作用下，氦的滞留量明显降低，其分布更倾向于低结合能缺陷。对应的 TDS 结果显示，高温脱附峰强度持续减弱，整体峰位向低温区移动，表明高捕获能缺陷密度减小、缺陷能级分布向低能侧转变。

综上，He 通过诱导氦泡长大并驱动“绒毛”结构形成，构建高密度高捕获能缺陷体系，增强氦滞留并使脱附峰向高温区移动；而 Ar 则通过表面溅射作用，抑制氦泡及多孔结构的形成，降低氦滞留并使脱附峰向低温区回移。He 与 Ar 辐照效应之间的竞争关系决定了钨材料的表面微观结构演化与钨中氦滞留行为。

参考文献

- [1] Bachmann C, Arbeiter F, Boccaccini L V, Coleman M, Federici G, Fischer U, Kemp R,

- Maviglia F, Mazzone G, Pereslavitsev P, Roccella R, Taylor N, Villari R, Villone F, Wenninger R, You J H 2016 *Fusion Eng. Des.* **112** 527
- [2] De Temmerman G, Hirai T, Pitts R A 2018 *Plasma Phys. Control. Fusion* **60** 044018
- [3] Roth J, Tsitrone E, Loarte A, Loarer Th, Counsell G, Neu R, Philipps V, Brezinsek S, Lehnen M, Coad P, Grisolia Ch, Schmid K, Krieger K, Kallenbach A, Lipschultz B, Doerner R, Causey R, Alimov V, Shu W, Ogorodnikova O, Kirschner A, Federici G, Kukushkin A 2009 *J. Nucl. Mater.* **390–391** 1
- [4] Loarte A, Lipschultz B, Kukushkin A S, Matthews G F, Stangeby P C, Asakura N, Counsell G F, Federici G, Kallenbach A, Krieger K, Mahdavi A, Philipps V, Reiter D, Roth J, Strachan J, Whyte D, Doerner R, Eich T, Fundamenski W, Herrmann A, Fenstermacher M, Ghendrih P, Groth M, Kirschner A, Konoshima S, LaBombard B, Lang P, Leonard A W, Monier-Garbet P, Neu R, Pacher H, Pegourie B, Pitts R A, Takamura S, Terry J, Tsitrone E, Group T I S off L A D 2007 *Nucl. Fusion* **47** S203
- [5] Petrie T W, Wade M R, Brooks N H, Fenstermacher M E, Groth M, Hyatt A W, Isler R C, Lasnier C J, Leonard A W, Mahdavi M A, Porter G D, Schaffer M J, Watkins J G, West W P 2007 *J. Nucl. Mater.* **363–365** 416
- [6] Zhao X L, Sang C F, Zhou Q R, Zhang C, Zhang Y J, Ding R, Ding F, Wang D Z 2020 *Plasma Phys. Control. Fusion* **62** 055015
- [7] Chen J B, Duan Y M, Yang Z S, Wang L, Wu K, Li K, Ding F, Mao H, Xu J, Gao W, Zhang L, Wu J, Luo G N, EAST Team 2017 *Chinese Phys. B* **26** 095205
- [8] Sang C F, Zhou Q R, Xu G S, Wang L, Wang Y L, Zhao X L, Zhang C, Ding R, Jia G Z, Yao D M, Liu X J, Si H, Wang D Z, The East Team 2021 *Nucl. Fusion* **61** 066004
- [9] Zhang Y J, Sang C F, Li J X, Zheng G Y, Senichenkov I Y, Rozhansky V A, Zhang C, Wang

- Y L, Zhao X L, Wang D Z 2022 *Nucl. Fusion* **62** 106006
- [10] Wang Y L, Sang C F, Zhang C, Zhao X L, Zhang Y J, Jia G, Senichenkov I Y, Wang L, Zhou Q, Wang D Z 2021 *Plasma Phys. Control. Fusion* **63** 085002
- [11] Rasinski M, Kreter A, Torikai Y, Linsmeier Ch 2017 *Nucl. Mater. Energy* **12** 302
- [12] Kreter A, Nishijima D, Doerner R P, Freisinger M, Linsmeier Ch, Martynova Y, Möller S, Rasinski M, Reinhart M, Terra A, Torikai Y, Unterberg B 2019 *Nucl. Fusion* **59** 086029
- [13] Markelj S, Schwarz-Selinger T, Šestan A, Zavašnik J, Kelemen M 2025 *Nucl. Mater. Energy* **45** 101981
- [14] Zhang H, Zhang X X, Li Y H, Wang P, Qiao L 2023 *J. Nucl. Mater.* **583** 154519
- [15] Alimov V K, Shu W M, Roth J, Sugiyama K, Lindig S, Balden M, Isobe K, Yamanishi T 2009 *Phys. Scr.* **T138** 014048
- [16] Hayashi T, Takimoto T, Tonegawa A, Matsumura Y, Sato K, Kawamura K 2018 *Fusion Eng. Des.* **136** 545
- [17] Zhang M Q, Yin H, Sun Y W, Zhu X L, Cheng L, Yuan Y, Lu G H 2026 *J. Nucl. Mater.* **618** 156229
- [18] Iwakiri H, Morishita K, Yoshida N 2002 *J. Nucl. Mater.* **307–311** 135
- [19] Wang W M, Roth J, Lindig S, Wu C H 2001 *J. Nucl. Mater.* **299** 124
- [20] Sakamoto R, Bernard E, Kreter A, Yoshida N 2017 *Nucl. Fusion* **57** 016040
- [21] Wright G M, Brunner D, Baldwin M J, Doerner R P, Labombard B, Lipschultz B, Terry J L, Whyte D G 2012 *Nucl. Fusion* **52** 042003
- [22] Liu L, Liu D, Hong Y, Fan H, Ni W, Yang Q, Bi Z, Benstetter G, Li S 2016 *J. Nucl. Mater.* **471** 1
- [23] Meyer F W 2019 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52** 012001

- [24] Liu L, Zhang Y, Fan H Y, Liu D P, Niu C J, Cheng L, Ni W Y 2020 *J. Nucl. Mater.* **539** 152327
- [25] Li X C, Sun F, Liu C B, Tao Z H, Liu H D, Liu S L, Luo G N, Zhou H S 2026 *Nucl. Fusion* **66** 016014
- [26] Shanahan J A, Finlay T J, Davis J W, Haasz A A 2019 *Nucl. Mater. Energy* **18** 212
- [27] Baldwin M J, Doerner R P, Wampler W R, Nishijima D, Lynch T, Miyamoto M 2011 *Nucl. Fusion* **51** 129501
- [28] Zhang H, Zhang H W, Qiao L, Zhang X X, He R, Wang P 2021 *Tungsten* **3** 448
- [29] Reinhart M, Kreter A, Unterberg B, Rasinski M, Linsmeier Ch 2019 *Nucl. Fusion* **59** 046004
- [30] Tiron V, Ciolan M A, Bulai G, Burducea I, Iancu D, Julin J, Kivekäs M, Costin C 2024 *Nuclear Materials and Energy* **39** 101656
- [31] Ishida M, Lee H T, Ueda Y 2015 *Journal of Nuclear Materials* **463** 1062
- [32] Zhu X L, Zhang Y, Cheng L, Yuan Y, De Temmerman G, Wang B Y, Cao X Z, Lu G H 2016 *Nucl. Fusion* **56** 036010
- [33] Sun C J, Sang C F, Ye H, Wang Q, Liu H, Wang Z H, Wang H J, Ke R, Wang Y, Zhang Y J, Wang D Z 2021 *Fusion Eng. Des.* **162** 112074
- [34] Nishijima D, Doerner R P, Baldwin M J, Hollmann E M, Seraydarian R P, Ueda Y 2007 *Phys. Plasmas* **14** 103509
- [35] Chen F F 2015 *Plasma Sources Sci. Technol.* **24** 014001
- [36] Baalrud S D, Scheiner B, Yee B, Hopkins M, Barnat E 2015 *Plasma Phys. Control. Fusion* **57** 044003
- [37] Wu J T, Sang C F, Sun C J, Sun B, Gao S S, Bian Y, Peng Y, Wang Q, Wang D Z 2024 *Plasma Sources Sci. Technol.* **33** 085007

- [38] Hershkovitz N 2005 *Phys. Plasmas* **12** 055502
- [39] Nishijima D, Ye M Y, Ohno N, Takamura S 2003 *Journal of Nuclear Materials* **313–316** 97
- [40] Alimov V Kh, Tyburska-Püschel B, Lindig S, Hatano Y, Balden M, Roth J, Isobe K, Matsuyama M, Yamanishi T 2012 *J. Nucl. Mater.* **420** 519
- [41] Kajita S, Sakaguchi W, Ohno N, Yoshida N, Saeki T 2009 *Nucl. Fusion* **49** 095005
- [42] Ohno N, Hirahata Y, Yamagiwa M, Kajita S, Takagi M, Yoshida N, Yoshihara R, Tokunaga T, Tokitani M 2013 *J. Nucl. Mater.* **438** S879
- [43] Ogorodnikova O V, Klimov K S, Poskagalov A G, Kaziev A V, Kharkov M M, Efimov V S, Gasparyan Yu M, Volkov N V, Alimov V K, Tokitani M 2019 *J. Nucl. Mater.* **515** 150
- [44] Bi Z H, Liu D P, Zhang Y, Liu L, Xia Y, Hong Y, Fan H Y, Benstetter G, Lei G J, Yan L W 2019 *Nucl. Fusion* **59** 086025
- [45] Eckstein W 2011 IPP Report **17/29**, Garching, Germany, December 6, 2011 p58
- [46] Nishijima D, Baldwin M J, Doerner R P, Yu J H 2011 *Journal of Nuclear Materials* **415** S96
- [47] Hoen M H J, Balden M, Manhard A, Mayer M, Elgeti S, Kleyn A W, Zeijlmans Van Emmichoven P A 2014 *Nucl. Fusion* **54** 083014
- [48] Hou J, Kong X S, Wu X, Song J, Liu C S 2019 *Nat. Mater.* **18** 833
- [49] Yajima M, Hatano Y, Kajita S, Shi J, Hara M, Ohno N 2013 *J. Nucl. Mater.* **438** S1142

Effects of He–Ar mixed plasma irradiation on surface microstructure evolution and deuterium retention in tungsten*

JIN Chongyang¹⁾ WANG Zhenhou¹⁾ † ZHANG Xuexi²⁾ WANG Hao¹⁾ WU Jintao¹⁾ PENG Yao¹⁾ WANG Yue¹⁾ TIAN Yue¹⁾ SUN Changjiang¹⁾ SANG Chaofeng¹⁾ †

1) (Key Laboratory of Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams (Ministry of Education), School of Physics, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

2) (State Key Laboratory of Solid Lubrication, Lanzhou Institute of Chemical Physics, Chinese

Academy of Sciences, 730000 Lanzhou, PR China)

Abstract

Hydrogen isotope (HI) retention in plasma-facing materials (PFMs) is a critical challenge for fuel self-sufficiency and operational safety in future fusion reactors. Tungsten (W), the primary candidate PFM for ITER and DEMO, will be simultaneously exposed to helium (He) ash produced by D–T fusion reactions and externally seeded impurity species such as argon (Ar), which is widely used for divertor radiative cooling and heat-load mitigation. However, the synergistic effects of He–Ar irradiation on W surface microstructures evolution and deuterium (D) retention remain insufficiently understood, particularly with regard to the role of Ar in modulating He-induced nanostructures and trap sites. In this study, the effects of He–Ar mixed plasma pre-irradiation on the surface morphology, near-surface damage structure, and D retention behavior of W were systematically investigated using the Multiple Plasma Simulation Linear Device (MPS-LD). High-purity W samples were pre-irradiated with pure He and He–Ar mixed plasmas (Ar mixing ratios of 0%, 3%, 5%, and 8%) at an incident ion energy of 30 eV and a sample temperature of 1023 K. The maximum He fluence reached 8.64×10^{25} He m⁻². After pre-irradiation, all samples were exposed to low-energy D plasma at 500 K with a fluence of 1.8×10^{25} D m⁻². The surface morphology and cross-sectional microstructure were characterized by scanning electron microscopy (SEM) and transmission electron microscopy (TEM), respectively, while the D desorption behavior and total D retention were analyzed by thermal desorption spectroscopy (TDS).

The results indicate that, under pure He plasma irradiation, the W surface undergoes a fluence-dependent structural evolution from nanopores to ripple-like structures and finally to a dense fuzz layer. At a He fluence of 8.64×10^{25} He m⁻², a continuous fuzz layer with a thickness of approximately 176.0 nm is formed, accompanied by a large number of He bubbles in the near-surface region. These He-induced bubbles and fuzz structures provide abundant high-energy trapping sites for D, leading to a significant increase in D retention from 5.1×10^{20} D m⁻² in the non-pre-irradiated sample to 7.78×10^{21} D m⁻², corresponding to an enhancement of approximately 15 times. Meanwhile, the TDS spectra exhibit pronounced high-temperature desorption peaks, indicating that D is mainly trapped by medium- and high-binding-energy defects associated with He bubbles, vacancy clusters, and fuzz-related porous structures.

Crucially, the introduction of Ar significantly suppresses He-induced microstructure evolution. With 3% Ar addition, the thickness of the damaged layer decreases from 176.0 nm to 56.8 nm at the same He fluence, and the He bubbles become smaller, less dense, and more discretely distributed. Correspondingly, the high-temperature D desorption peak is weakened and shifts toward lower temperatures, while the total D retention decreases to 3.39×10^{21} D m⁻². When the Ar content is

further increased to 5% and 8%, fuzz formation is almost completely inhibited, and the W surface becomes much smoother, with only sparse nanopores or shallow surface features remaining. At an Ar content of 8%, the total D retention decreases to $1.58 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$, which is approximately 80% lower than that under pure He pre-irradiation. These results demonstrate that increasing the Ar content effectively reduces the density of high-energy D trapping sites by suppressing He bubble growth and fuzz formation.

The underlying mechanism is attributed to the competition between He-induced defect generation and Ar-induced surface sputtering. Under pure He irradiation, continuous He accumulation in the near-surface region promotes He bubble nucleation, growth, and coalescence, which drives the formation of porous fuzz structures and produces a high density of strong D trapping sites. In contrast, Ar ions induce physical sputtering of the W surface and disturb the stress field and material transport processes required for stable He bubble growth. As a result, the development of He bubbles and fuzz structures is suppressed, the trap energy distribution shifts from high-energy traps toward lower-energy defects, and D retention is significantly reduced. This study clarifies the regulatory role of Ar in He-induced W surface damage and D retention under mixed impurity plasma irradiation. The results reveal that moderate Ar addition can effectively suppress He-induced fuzz formation and reduce D retention in W, providing new experimental evidence for understanding impurity-controlled plasma–wall interactions and tritium retention behavior in future fusion devices.

Keywords: tungsten, He–Ar plasma, fuzz, He bubbles, deuterium retention

* Project supported by National MCF energy R&D Program No. 2024YFE03160001, National Natural Science Foundation of China under Grant No. U2441223, Liaoning Province Science and Technology Project 2024JH2/102600021, and Fundamental Research Funds for the Central Universities No. DUTZD25210.

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: zhenhou@dlut.edu.cn

† Corresponding author. E-mail: sang@dlut.edu.cn