

bcc-Fe 空位浓度对辐照损伤影响的分子动力学模拟

Molecular Dynamics Simulation of Vacancy
Concentration on Irradiation Cascades
Damage Effects in bcc-Fe

王建伟¹, 尚新春^{1,2}, 吕国才¹

(1 北京科技大学 数理学院, 北京 100083; 2 国家材料服役安全科学中心, 北京 100083)

WANG Jian-wei¹, SHANG Xin-chun^{2,3}, LU Guo-cai¹

(1 School of Mathematics and Physics, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China; 2 National Center for Materials Service Safety, Beijing 100083, China)

摘要: 中子辐照引起的位移级联能在金属中产生各种缺陷。通过三维分子动力学方法模拟了 bcc-Fe 在不同空位浓度下中子辐照的位移级联过程。模拟结果表明, 在空位浓度 0% 和初始碰撞原子能量 5keV 的情形下, 位移级联过程会出现大量空位、间隙原子团等缺陷。经过 0.5ps 后点缺陷数量 N_F 达到最大值 1632, 之后其逐渐减少, 10ps 后稳定在 60。预置空位的存在加速了级联过程中点缺陷的湮灭。进一步的模拟指出, 预置空位浓度越高, 则点缺陷复合也就越快。这些结果有助于描述核反应堆结构钢的某些微观失效机理。

关键词: 中子辐照; 分子动力学; 空位浓度; 位移级联; 间隙原子团

中图分类号: O346.3; TG111.91 文献标识码: A 文章编号: 1001-4381(2011)10-0015-04

Abstract: The neutron irradiation on metal materials could generate various defects which are caused by displacement cascades. The displacement cascades of neutron irradiation with various vacancy concentrations in bcc-Fe are simulated by three-dimensional molecular dynamics method. The simulation results show that a large number of vacancies and self interstitial atoms (SIAs) clusters would appear for the case of 0% vacancy concentration and 5keV primary knock-on atom energy. The number of point defect N_F reached to peak value 1632 after 0.5ps. It will decrease sequently and the number of point defect will go stable value 60 after 10 ps. The existence of pre-vacancy defects would accelerate the defect annihilation in the cascade process. The further simulation indicated that the defect annihilation is the faster in the case of the higher pre-vacancy concentration. These results could be useful for describing some mechanism of microcosmic failure for structural steels components in nuclear reactors.

Key words: neutron irradiation; molecular dynamics; vacancy concentration; displacement cascade; self interstitial atoms cluster

反应堆压力容器(RPV)是在高温、高压等强烈的辐照等恶劣条件下运行的, A508-III 钢是国产反应堆压力容器用钢, 具有较高的抗中子辐照脆化性, 设计寿命预计在 40 年以上^[1]。辐照脆化是制约 RPV 寿命的重要的性能劣化机理。中子辐照使 RPV 钢的力学性能劣化, 其劣化的程度由多种因素决定, 如中子剂量、温度、中子的通量和钢材料中有害杂质(Cu, P, S 等)的含量。为了确保核反应堆的安全运行, 需要监测反应堆压力容器(RPV)材料中子辐照引起的脆化程度,

并对整个寿期内 RPV 的辐照稳定性进行评估^[2-4]。辐照损伤会在反应堆压力容器钢中产生大量空位、间隙原子、Frank 缺陷对、层错四面体等缺陷, 影响压力容器钢的使用寿命。近年来, 随着国家核电事业的发展, 核电关键材料的损伤机理也得到了广泛的研究。如三维原子探针分析结果表明, 富铜原子团簇的数密度为 10^{23} m^{-3} 数量级, 富铜原子团簇的直径在 $1 \sim 3 \text{ nm}$ ^[5], 初步建立了适用于国产 RPV 辐照脆化预测模型^[6]; Calder 等用分子动力学模拟了 bcc-Fe 辐照级联

的过程^[7];Marian 等用分子动力学模拟了 Cu 在 α -Fe 的扩散和析出过程^[8]。

本工作利用分子动力学(MD)模拟了 0.0%~0.9%空位浓度下中子辐照级联过程,深入讨论分析了不同空位浓度对级联过程的影响。

1 模拟方法

采用改进的 F-S 势(Finis-Sinclair Functions)^[7],对 bcc-Fe 晶体分别在 $X(100),Y(010),Z(001)$ 方向上进行堆垛。图 1 为初始模型堆垛图,模型体积为 $(50a_0 \times 50a_0 \times 50a_0) \text{ nm}^3$,约 250000 个原子。晶格常数 $a_0=0.287\text{nm}$ 。PKA 原子入射角度为 $[135]$ 方向,体系初始温度为 300K,时间步长选取 1fs(1×10^{-16} s),PKA 能量为 5keV。对模型分别随机去掉 0%,0.1%,0.2%,0.9%的原子形成空位。形成空位浓度分别为 0%,0.1%,0.2%,0.9%的初始模型,分别对四个模型进行模拟。

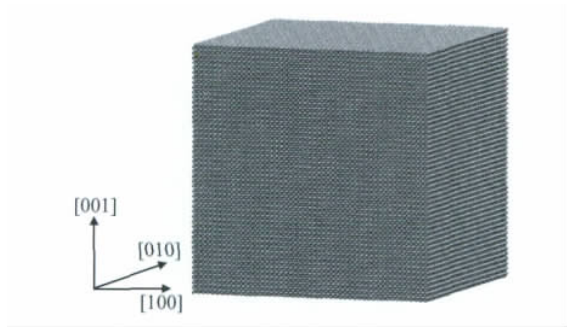


图 1 bcc-Fe 单晶模型
Fig.1 The model structure of the bcc-Fe lattice

图 2 为识别空位和间隙原子的示意图。在辐照级联的模拟过程中,产生大量的空位和间隙原子等点缺陷。为了观察方便,需要将晶格上的原子略去,只保留间隙原子和空位。实现方法是,以晶格位置为圆心,以 $0.3 a_0$ 为半径,做一个球体,如果在这个球内没有原子,这个晶格点即为一个空位(见图 2(b));同样,以每个晶格点为圆心做一个球,如果某个原子位置均不在所有的球内,则这个原子是一个间隙原子(见图 2(c))。将计算得到的数据进行以上处理,即可得到任意时刻的空位和间隙原子的图像。

2 模拟结果与讨论

当空位浓度为 0%时,即纯铁的模拟中,辐照级联过程首先由初始碰撞原子(Primary Knocked-on At-

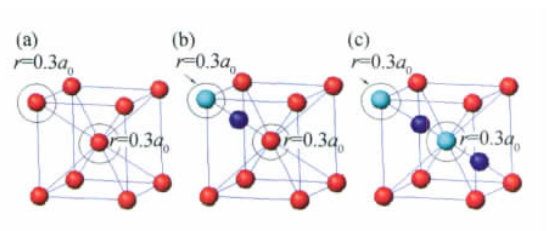


图 2 空位及间隙原子的筛选方法示意图
(蓝色为间隙原子,浅蓝色为空位红色为晶格上原子)
(a)完整晶格;(b)空位;(c)间隙原子
Fig.2 The photo of how to select vacancy and SIAs from the whole atoms(blue atoms are SIAs; light ones are vacancies and red atoms are lattice position)
(a)schematic diagram of ideal lattice;
(b)vacancy;(c)self interstitial atoms

oms,PKA)碰撞基体内 Fe 原子,被碰撞的原子获得能量后继续碰撞下一个原子,从而产生位移级联过程。图 3 为纯 Fe 的辐照级联过程,PKA 能量为 5keV,入射方向为 $[135]$,温度为 300K。在位移级联过程中随着模拟时间的增加,点缺陷数量 N_F 不断增加,当经过约 0.5ps 时,达到最大值 $N_F=1632$,然后部分点缺陷被空位湮灭,数量随之减少。经过 3~4ps 后逐渐稳定下来,10ps 以后基本不再有太大变化,此时 $N_F=60$ 。从图 3 (e),(f)观察到,在级联过程中产生的离位峰效应^[9]使间隙原子向区域的外部扩展,空位向级联区域的中心不断聚集。公式(1)是诺盖特·罗宾逊和特伦茨(Norgett Robinson and Torrents,NRT)用来估计辐照金属中辐照剂量(Displacements Per Atom,DPA)的标准。

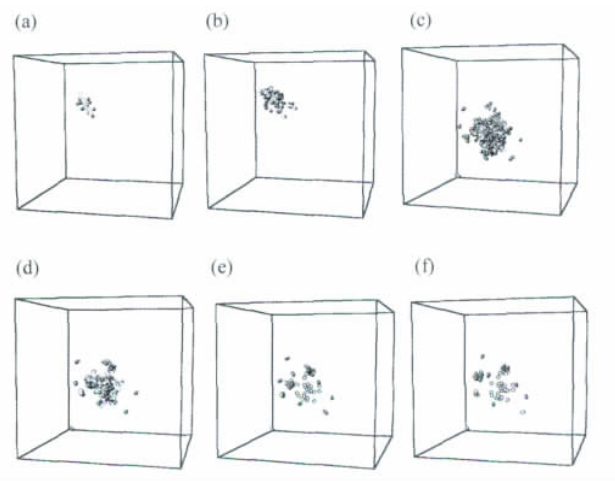


图 3 纯铁的辐照级联过程(浅色为空位,深色为间隙原子)
(a)0.1ps;(b)0.2ps;(c)0.5ps;(d)1.0ps;(e)4ps;(f)10ps
Fig.3 Cascade process of α -Fe in irradiated (light ones are vacancies and the dark ones are SIAs)
(a)0.1ps;(b)0.2ps;(c)0.5ps;(d)1.0ps;(e)4ps;(f)10ps

$$N_{NRT} = kE/2E_d \tag{1}$$

式中： N_{NRT} 表示 N_F 的值， k 是近似等于 0.8 的常数。 E_d 是所有可能的晶向上的平均离位阈能（ E_d 值为 35eV，是在所有可能的晶向上的平均值^[7,9-11]）， E 为弹性碰撞产生位移级联的 PKA 能量，取 $E=5\text{keV}$ ，由公式(1)算出 N_{NRT} 的值为 57。 N_F 为最终由辐照产生的 Frank 缺陷数量即 N_F 最终稳定下来的值，模拟中 10ps 后的 N_F 值为 60，可见与理论估计值相当接近。

在辐照级联的 MD 模拟中发现，中子辐照主要产生大量的空位和间隙原子等点缺陷，点缺陷的构成主要有哑铃型结构，哑铃型结构能量最低，因此在辐照过程中产生大量哑铃型结构，并且在模拟结束后，点缺陷基本以哑铃型结构存在。图 4 为间隙原子团和空位团的形成状态，某些空位会形成空位团，间隙原子会形成间隙原子团，如图 4(a)，(b)所示。在模拟过程中偶尔会产生间隙原子形成的八面体间隙原子团结构，见图 4(c)。对于 bcc 晶体，四面体间隙大于八面体间隙，因而，自间隙原子只可能存在于四面体间隙位置^[12]，八面体间隙原子团由四个正六边形面和四个正三角形面组成，每个六边形面和三角形面的方向均为 $\langle 111 \rangle$ 方向，八面体间隙原子团共由 12 个原子堆垛产生。在对纯铁及空位浓度为 0.1% 的 Fe 的模拟中均出现了间隙八面体原子团结构。而在对空位浓度为 0.2%，0.9% 的 Fe 的模拟中没有发现间隙八面体原子团结构。可见，在低浓度空位下容易产生八面体间隙原子团，高空位浓度下，间隙原子团较难形成。这是因为空位浓度的增加使点缺陷中间隙原子与空位复合的几率增加，使间隙原子更容易因复合而湮灭，很难形成团簇结构。当八面体间隙原子团产生后一直到模拟过程结束，其结构均没有太大变化，可见八面体间隙原子团是以一个较稳定的结构存在。

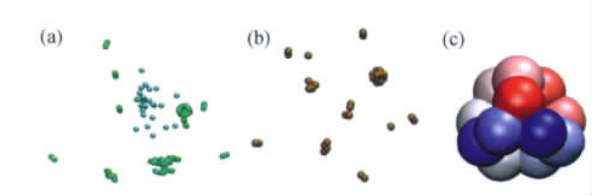


图 4 位移级联中产生的间隙原子八面体结构
(a)纯 Fe 中 10ps 模拟结果；(b)0.1%10ps 模拟结果；
(c)八面体间隙原子团的局部放大图

Fig. 4 Interstitial octahedral produced in displacement cascade
(a)snapshot of 10ps of pure α -Fe;(b)snapshot of vacancy concentration is 0.1% after 10ps;(c)zoom photo of octahedral SIAs cluster

图 5 为在不同空位浓度下辐照级联过程中 N_F 随时间变化的关系。随着模拟时间的增加， N_F 逐渐升

高，到 0.5ps 左右时达到峰值 $N_F(\text{max})$ ，随后逐渐减少，经过约 4ps 后逐渐稳定下来，10ps 以后基本不再有太大变化。可见在相同能量的 PKA 级联下，空位浓度对级联过程表现出积极的影响。

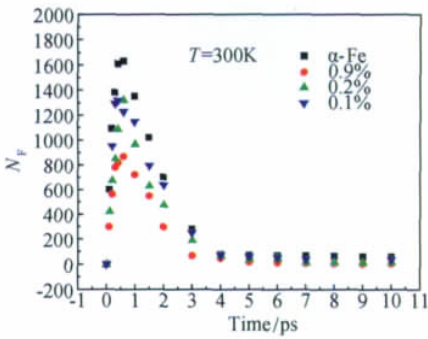


图 5 位移级联中不同空位浓度下点缺陷数量与时间的关系

Fig. 5 The relationship between the number of point defects and time under different vacancy concentration

图 6 为不同空位浓度下经过 10ps 后的状态。在相同能量的 PKA 级联下，空位浓度对级联过程表现出积极的影响。当空位浓度为 0.1% 时，经过 10ps，Frank 缺陷对为 $N_F=38$ ；当空位浓度为 0.2% 时，经过 10ps，Frank 缺陷对为 $N_F=13$ ；当空位浓度为 0.9% 时，经过 10ps，Frank 缺陷对为 $N_F=6$ 。由于增

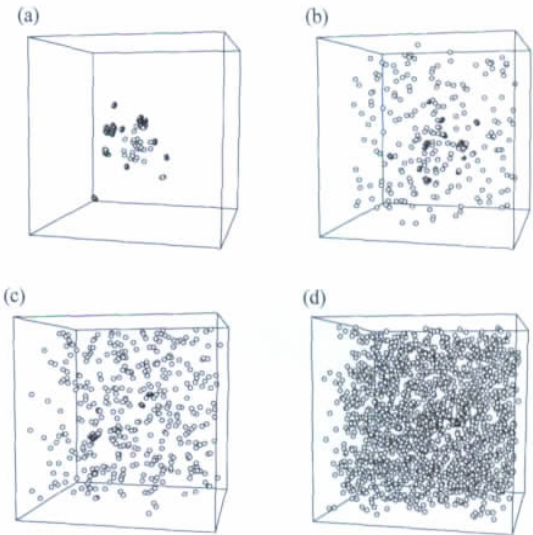


图 6 10ps 时不同空位浓度最终产生的 Frank 缺陷对比，
(深色为间隙原子浅色为空位)

(a)0.0%；(b)0.1%；(c)0.2%；(d)0.9% 10ps

Fig. 6 The contrast of point defect N_F in different vacancy concentration at 10ps (the dark ones are SIAs and light ones are vacancies)
(a)0.0%；(b)0.1%；(c)0.2%；(d)0.9% 10ps

加缺陷的密度可加速金属原子和置换原子的扩散^[13],所以空位浓度增加后,使最终剩余因辐照产生的点缺陷数量 N_F 明显降低,从模拟过程中我们也观察到预置空位加快了级联过程中点缺陷的湮灭。随着空位浓度的增加,级联过程中产生的点缺陷湮灭的速度也加快并导致最终产生点缺陷数量 N_F 值降低。

3 结论

(1) 纯 Fe 在中子辐照级联过程中产生大量空位、间隙原子及空位团、间隙原子团。四面体间隙原子团是一种比较稳定的结构状态。辐照级联模拟过程中产生的离位峰作用使间隙原子向外部扩展而使空位向中间聚集。辐照级联中产生的点缺陷浓度随 PKA 原子能量升高而升高。

(2) 空位浓度对辐照级联有较大影响,随着空位浓度的增加,在相同 E_{PKA} 级联过程中产生的点缺陷浓度呈下降趋势。即高浓度的空位会加快速度中间隙原子的湮灭。在不同空位浓度下,Fe 辐照级联均有可能产生哑铃型结构及类四面体间隙原子团,四面体间隙原子团的产生与入射角度等因素有关,并且是随机产生的,并且这种结构一旦出现即表现出相当稳定的状态,当模拟经过 10ps 时依然稳定存在。

参考文献

- [1] 李承亮,张明乾. 压水堆核电站反应堆压力容器材料概述 [J]. 材料导报,2008,22 (9): 65—68.
- [2] KULESHOVA E A, GUROVICH B A, SHTROMBAKH YA I, et al. Comparison of micro-structural features of radiation embrittlement of VVER-440 and VVER-1000 reactor pressure vessel steels [J]. Journal of Nuclear Materials, 2002, 300 (2): 127—140.

- [3] ACOSTA B, DEBARBERIS L, SEVINI F, et al. Cu effects on radiation embrittlement of Ni-containing complex model alloys and the related potentials of the thermoelectric method [J]. NDT&E International, 2004, 37 (4): 321—324.
- [4] NIKOLAEV YU A, NIKOLAEVA A V, SHTROMBAKH Y I. Radiation embrittlement of low-alloy steels [J]. International Journal of Pressure Vessels and Piping, 2002, 79 (8): 619—636.
- [5] 张瑞谦,洪晓峰,彭倩. 反应堆压力容器模拟钢中富 Cu 原子团簇对材料力学性能的影响 [J]. 核动力工程, 2010, 31 (1): 4—7.
- [6] 佟振峰,林虎,宁广胜,等. 低铜合金反应堆压力容器钢辐照脆化预测评估模型 [J]. 原子能科学技术, 2009, 43 (12): 103—108.
- [7] CALDER F, BACON D J. A molecular dynamics study of displacement cascades in α -Fe [J]. Journal of Nuclear Materials, 1993, 207 (12): 25—45.
- [8] MARIAN J, WIRTH B D, ODETTE G R, et al. Cu diffusion in α -Fe; determination of solute diffusivities using atomic-scale simulations [J]. Computational Materials Science, 2004, 31(11): 347—367.
- [9] 杨文斗. 反应堆材料学 [M]. 北京: 原子能出版社, 2006.
- [10] BACON D J, CALDER A F, HARDER J M, et al. Computer simulation of low-energy displacement events in pure bcc and hcp metals [J]. Journal of Nuclear Materials, 1993, 205 (10): 52—58.
- [11] BACON D J, CALDER A F, GAO F. Defect production due to displacement cascade in metals as revealed by computer simulation [J]. Journal of Nuclear Materials, 1997, 251 (11): 1—12.
- [12] 潘金生,仝健民,田民波. 材料科学基础 [M]. 北京: 清华大学出版社, 1998.
- [13] 贺新福, 杨文, 樊胜. 论 FeCr 合金辐照损伤的多尺度模拟 [J]. 物理学报, 2009, 58 (12): 8657—8669.

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (10772024, 50632010)

收稿日期: 2011-01-12; 修订日期: 2011-05-15

作者简介: 王建伟 (1977—), 男, 博士研究生, 主要从事辐照损伤分子动力学模拟方面的研究工作, 联系地址: 北京科技大学数理学院应用力学系 (100083), E-mail: jlu982309@126.com

欢迎订阅《材料工程》

《材料工程》于 1956 年创刊, 主要刊登有关材料科学与工程方面的学术论文, 同时刊登综合性评述, 报道新材料、新工艺、新产品信息, 及时准确反映国内材料领域的新成就和新进展。

《材料工程》为美国《工程索引》(EI Compendex)、剑桥科学文摘(CSA)、美国化学文摘(CA)和日本科学技术数据库(JST)等多家国外权威检索系统收录期刊。同时入选《中文核心期刊要目总览》、中国科学引文数据库(CSCD)、中国学术期刊综合评价数据库、中国学术期刊(光盘版)及万方数据网和中国期刊网。

《材料工程》为月刊, 大 16 开本, 铜版纸印刷。

定价: 25 元/期, 国内 300 元/年, 国外 180 美元/年。

需订阅者可向编辑部索取订单或直接汇款至编辑部。