

文章编号: 1007-4627(2019)02-0261-05

单轴应力场下钨中氦扩散行为的分子动力学模拟研究

张婧¹, 周良付¹, 陈双强¹, 何文豪¹, 苏雪^{1,2}, 杨冬燕¹, 李玉红^{1,†}

(1. 兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000;

2. 华北水利水电大学, 郑州 450045)

摘要: 本文采用分子动力学方法研究了沿 $\langle 100 \rangle$ 及 $\langle 111 \rangle$ 晶向的单轴应变对钨中单个氦原子扩散的影响。结果表明, 应变会使得金属钨材料发生相变, 且引起相变的临界应变随温度升高而减小。相变起始的应变在达到抗拉强度的应变附近。计算结果表明, 拉应变使得单个氦原子在钨中的扩散系数发生骤降, 在不同应变下扩散系数变化平缓。沿 $\langle 100 \rangle$ 晶向氦扩散系数随应变的增大而线性减小, 而 $\langle 111 \rangle$ 晶向则出现了震荡变化趋势。研究结果表明, 沿 $\langle 100 \rangle$ 晶向应变达到 +0.15% 时阿纽列斯方程不再适用, 而沿 $\langle 111 \rangle$ 晶向应变大 +5% 阿纽列斯方程仍然适用; 沿 $\langle 111 \rangle$ 晶向随应变增加氦扩散激活能减小, 说明应变使得单个氦原子在钨中迁移性增强。

关键词: 钨; 氦扩散; 分子动力学模拟

中图分类号: TL341; O561

文献标志码: A

DOI: 10.11804/NuclPhysRev.36.02.261

1 引言

能源是人类社会生存与发展的根基, 自人类进入工业社会以来化石燃料的使用带来了如酸雨、臭氧层破坏以及温室效应等环境问题。同时化石燃料在自然界的储量是有限的, 并非取之不尽用之不竭的能源, 这将威胁到人类社会的可持续发展。因此寻找环保并且可持续发展的能源是人类社会可持续发展战略中不可缺少的重要组成部分。核能的发展与利用为人类寻找化石能源替代能源带来了可能。重核裂变已经用于核电发电, 但重核裂变产生的高放核废物一旦处置不当便会对环境乃至生物圈带来不可估量的影响, 高放核废物的产生是重核裂变核能利用的一大隐患。较之重核裂变, 轻核聚变释放核能则具有不产生放射性核废料、温室气体零排放以及具有成为无限能源的潜力(轻核聚变的燃料氘在海水中的含量是非常丰富的)等优点。因此, 轻核聚变是人类实现可取之不尽清洁能源的希望和理想途径^[1]。目前主要采用磁约束热核聚变的方法来实现热核聚变, 其中“托克马克”装置是最具有希望的磁约束热核聚变装置。在磁约束核聚变堆实验装置中, 面向等离子体材料问题是制约聚变堆发展的一个关键问题。面向等离子体材料处在聚变中子、氦(He)、逃逸出等离子体的氢同位素(氘、氚)以及电磁辐射条件下。除上述强辐照环境

外, 面向等离子体材料在服役过程中, 由于其表面承受了较大的热负荷, 同时由于热量分布不均匀而产生了较大的温度梯度, 这使得第一壁材料中存在复杂的热应力^[24-25]。此外, 研究发现等离子体接近器壁时容易发生破裂。等离子体破裂后将会在其附近的金属导体(第一壁和偏滤器)中生成感应电流, 从而使第一壁材料和偏滤器材料内部产生复杂的电磁应力^[26-30]。也就是说第一壁材料其内部存在着复杂的应力作用。钨(W)由于具有高热导率、高熔点、低溅射、不与氢发生反应以及低氦滞留等优点, 成为最有潜力的面对等离子体候选材料^[2]。He 是不溶解于金属的惰性气体, 容易在金属 W 中迁移并在缺陷处聚集形成 He 泡^[3-6], 从而使材料发生肿胀和脆化, 影响材料的服役性能。因此有必要研究 He 泡在金属材料 W 中的形成机制, 为实现 He 泡生长的人工调控奠定理论基础。

目前已有大量的实验工作对 He-W 体系进行了研究^[7-13], He 泡的形成过程分为 He 泡的形核过程^[14-18]和 He 泡的生长过程^[19-23]两个阶段。金属 W 中初级 He 泡核的尺寸很小(直径小于 10 nm^[12-13]), 通过电镜原位实验很难直接观测 He 泡的微观形成机理。因此, 作为实验的补充, 采用计算机模拟的手段来研究 He 泡的微观形成机理是非常重要的。而目前对金属 W 中 He 泡的生长机理研究均是在没有考虑应力的情况下进行

收稿日期: 2018-11-12; 修改日期: 2019-02-12

基金项目: 国家自然科学基金项目(11775102, 11475076)

作者简介: 张婧(1993-), 女, 甘肃山丹人, 硕士研究生, 从事粒子物理及原子核物理研究; E-mail: zhangjing16@lzu.edu.cn

† 通信作者: 李玉红, E-mail: liyuhong@lzu.edu.cn.

的。而实际环境中复杂的应力势会对 He 泡的迁移以及成核长大机制产生影响,因此有必要在前人研究的基础上,进一步研究应力状态对 W 中 He 泡生长机制的影响。He 原子在 W 中的扩散行为影响着 He 泡的形成以及生长过程,因此研究 He 原子在 W 中的扩散行为具有重要价值。本文将对简单的单轴应力场对 W 中单个 He 原子扩散行为的影响进行分子动力学模拟研究。

2 研究方法

本文采用分子动力学(MD)方法,计算了应变场对 W 中单个 He 原子扩散系数及扩散激活能的影响。计算过程中采用了美国桑迪亚国家实验室开发的开源分子动力学模拟软件包 LAMMPS(Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator)^[31]。采用由 Ackland & Thetford^[32], Beck^[33] 以及 Juslin & With^[34] 开发的势函数分别描述 W 和 W, He 和 He 以及 W 和 He 的相互作用。

本工作中采用大小为 $20a_0 \times 20a_0 \times 20a_0$ (其中 a_0 是 W 的晶格常数) 含 16 000 个原子的模拟体系。分别研究温度为 300~1 200 K (每 100 K 为一个步长) 并施加沿 $\langle 100 \rangle$ 及 $\langle 111 \rangle$ 晶向的单轴应变条件下 He 在 W 中的扩散行为。模拟过程中,首先将体系在零压的 NPT 系综下平衡 10 ps (时间步长为 1 fs), 然后以 0.01 ps^{-1} 的拉伸速率将模拟盒子沿 $\langle 100 \rangle$ 或 $\langle 111 \rangle$ 方向拉伸一定应变, 应变范围为 $0.005 \sim 0.05$, 应变步长为 0.005。当应变达到指定值后, 在模拟盒子中添加一个 He 原子, 改用 NVT 系综先将体系平衡 10 ps, 然后弛豫 500 ps 并跟踪 He 原子坐标, 研究在该应变条件下的 He 扩散行为。

通过拟合如下的爱因斯坦方程来计算 He 原子在一定温度下的扩散系数:

$$D = \frac{MSD}{6t}, \quad (1)$$

其中: $MSD = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [r_i(t) - r_0(0)]$, 这里 t 是 He 原子扩散的时间, r 是 He 原子的位置。计算出一定应变不同温度下的 He 扩散系数后, 拟合阿纽列斯方程, 以得到 He 扩散激活能。阿纽列斯方程表达式如下:

$$D = D_0 \times \exp \left[-\frac{E_a}{k_B T} \right], \quad (2)$$

其中: D_0 是扩散前因子; E_a 是扩散激活能。

从阿纽列斯公式可以看出, He 扩散系数的自然对数 ($\ln D$) 和温度的倒数 ($1/T$) 成线性关系。因此通过阿纽列斯方程取对数拟合后, 斜率就是 He 原子的扩散激活能 E_a , 截距则是扩散前因子的自然对数。

3 结果与讨论

我们沿 $\langle 100 \rangle$ 晶向及 $\langle 111 \rangle$ 晶向拟合得到的应力应变曲线如图 1 所示, 沿不同晶向材料原子排布的不同导致了沿不同晶向材料呈现出不同的抗拉伸性质, 这体现了晶体材料的各向异性。在对 W 施加单轴应变的过程中, 我们通过 OVITO 软件观察 W 的结构变化, 发现单轴应力应变会引起金属 W 发生相变。应变使得 W 发生相变过程如图 2 所示。沿 $\langle 100 \rangle$ 晶向施加应变使得晶体中部分 bcc 结构转变为 fcc 结构, 图 2 中 (a)、(c) 分别为拉伸前与拉伸后的模拟盒子中 W 原子的分布状态, (b) 为起始相变示意图。当应变达到 +20% 时, 除了 bcc 相到 fcc 相的转变, 还出现了未知结构相^[35]。同时起始相变应变随温度升高而减小。起始相变应变随温度变化趋势如图 3 所示。如图所示, 沿 $\langle 111 \rangle$ 晶向起始相变应变随温度基本呈线性减小, 而 $\langle 100 \rangle$ 方向则呈现出震荡趋势, 在相同温度下 $\langle 111 \rangle$ 晶向起始相变应变大于 $\langle 100 \rangle$ 方向起始相变应变, 这是因为在同一温度下 $\langle 111 \rangle$ 方向弹性极限对应的应变大于 $\langle 100 \rangle$ 方向的弹性极限对应的应变。当应变值达到弹性极限应变后就可发生塑性变形进而发生相变。如图 1 所示在 300 K 时 $\langle 111 \rangle$ 方向和 $\langle 100 \rangle$ 方向弹性极限对应的应变分别为 0.16 和 0.04。

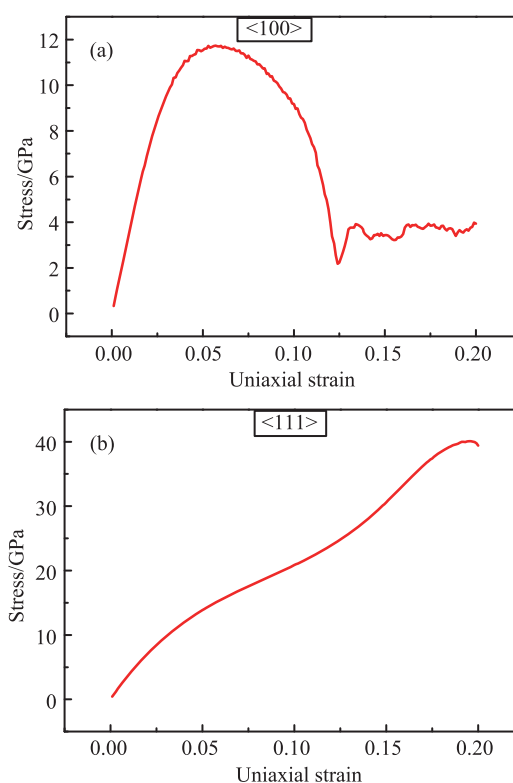


图 1 (在线彩图) 单轴应力应变曲线 (a)、(b) 分别表示沿 $\langle 100 \rangle$ 晶向及 $\langle 111 \rangle$ 晶向的应力应变曲线

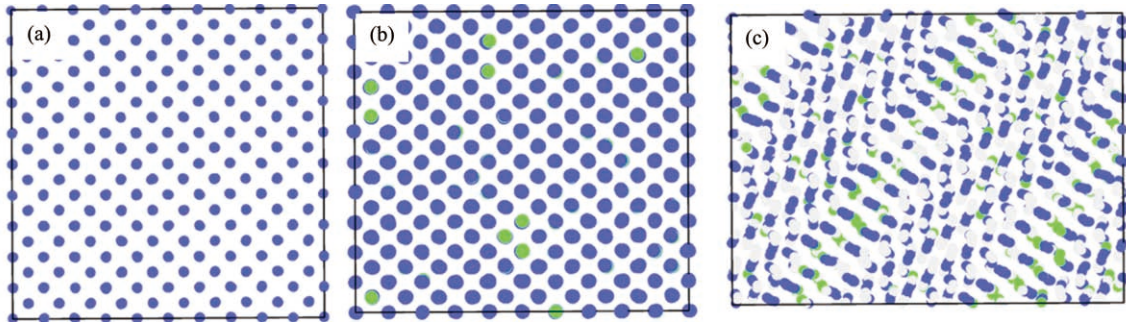


图 2 (在线彩图) 沿<100>晶向施加应变后, 金属W发生相变示意图

(a) 拉伸前模拟盒子的状态; (b) 拉伸过程中开始相变模拟盒子的状态; (c) 拉伸结束后模拟盒子的状态; 图中蓝色原子代表 bccW, 绿色原子代表 fccW, 白色原子代表未知。

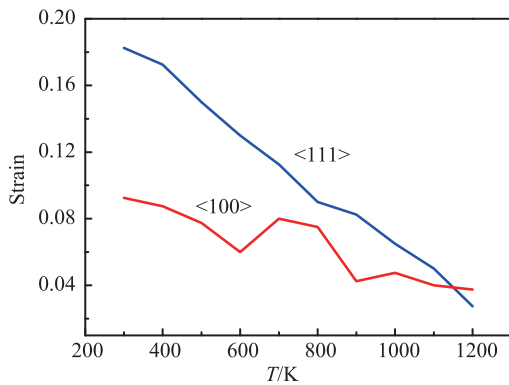


图 3 (在线彩图) 起始相变应变随温度的变化

和<100>晶向起始相变应变分别为0.18和0.90; 在图4中, 300 K时<111>晶向和<100>晶向应力应变达到抗拉最大强度时应变分别为0.19和0.75。由此可以推断相变是在应力应变曲线达到材料的最大抗拉伸强度附近时开始发生, 而且随着温度的升高, <111>晶向的应力应变曲线向左平移, 这也就是沿<111>晶向材料起始相变应变随温度升高而减小的原因。随温度升高沿<100>晶向应力应变曲线随温度变化如图4(b)所示, 与参考实验^[36]研究所得 bcc W 应力应变曲线随温度变化趋势符合较好。沿<100>晶向, 抗拉强度随温度升高而降低, 这使得达到抗拉强度的应变值随温度变化呈震荡变化趋势, 这解释了图3沿<100>晶向起始相变应变震荡变化这一现象。

同时, 我们研究了不同温度下的应力应变曲线, 如图4所示。从图3我们知道300 K时沿<111>晶向

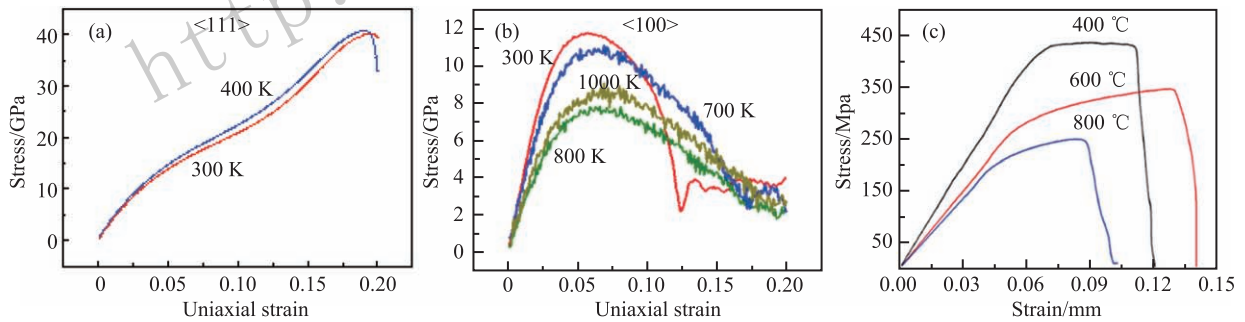


图 4 (在线彩图) 应力应变曲线随温度变化趋势

(a) 计算所得沿<111>晶向应力应变曲线随温度变化; (b) 沿<100>晶向应力应变曲线随温度变化; (c) 参考文献中<100>晶向应力应变曲线随温度变化。

我们拟合了沿<100>晶向及<111>晶向单个He原子在一定温度下的扩散系数, 并进一步拟合阿纽列斯方程以得到扩散激活能。拟合所得He原子在温度为300 K下的扩散系数如图5所示, 施加应变使得单个He原子在W中的扩散系数发生骤降。沿<100>晶向He原子的扩散系数随应变增加基本保持变; 沿<111>晶向He原子扩散系数随应变增加呈震荡变化趋势。我们拟合阿纽列斯方程, 研究结果表明, 沿<100>晶向当应变

达到+1.5%时阿纽列斯方程不再适用, 见图6(a); 而沿<111>晶向则应变达到+5%时阿纽列斯方程仍旧适用, 见图6(b)。拟合<111>晶向阿纽列斯方程所得单个He原子在W中的扩散激活能随应变变化如图6(c)所示。应变使得单个He原子在W中的扩散激活能发生骤降, 随后He扩散激活能随应变变化趋势较为缓和, 总体呈下降趋势。He扩散激活能越小He原子越容易扩散, 表明应变使得He原子在W中更易发生迁移。

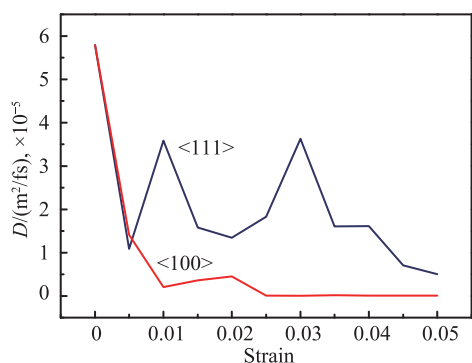


图 5 (在线彩图) 温度为 300 K 时单个 He 原子在 W 中扩散系数随应变的变化趋势

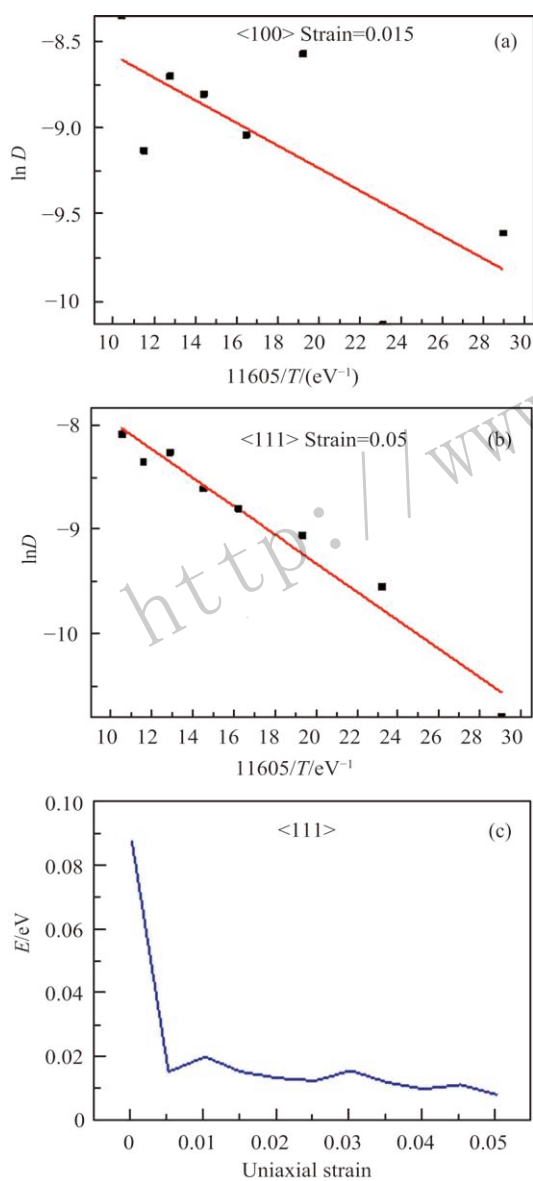


图 6 (在线彩图) 阿纽列斯方程拟合 (a) 沿<100>晶向在应变达到+1.5%时阿纽列斯方程不再适用; (b) 沿<111>晶向应变达+5%时阿纽列斯方程仍旧适用; (c) 沿<111>晶向, He 扩散激活能随应变变化趋势。

4 总结

我们采用分子动力学模拟的方法研究了<100>及<111>晶向单轴应变场对 W 中 He 扩散行为的影响。首先我们拟合得到了应力应变曲线, 发现应变使得材料发生相变, 且起始相变应变随温度升高而减小。这是因为起始相变应变在材料达到抗拉强度的应变附近, 而应力应变曲线随温度变化会发生变化。沿<100>晶向应力应变曲线随温度升高向左平移, 这使得沿该方向起始相变应变随温度升高几乎线性下降; 而<111>晶向材料的应力应变曲线随温度升高其抗拉强度随之降低, 因此其起始相变应变呈现出震荡变化趋势。单个 He 原子在 W 中的扩散激活能随应变的增加而减小, 应变使得 He 原子在 W 中更易迁移。

致谢 感谢中国科学院近代物理研究所先进核能材料研究室高宁研究员给出的意见和帮助。

参考文献:

- [1] DUFFY D. *Phil Trans R Soc A*, 2010, **368**: 3315.
- [2] PINTSUK G, KONINGS R J. *Comprehensive Nuclear Materials*, 2012, **415**: S2.
- [3] WEI Q, LI N, SUN K, *et al. Scripta Materialia*, 2010, **63**: 430.
- [4] HETHERLY J, MARTINEZ E, DI Z F, *et al. Scripta Materialia*, 2012, **66**: 17.
- [5] WANG J, GAO X, GAO N, *et al. Journal of Nuclear Materials*, 2015, **457**: 182.
- [6] DING M, DU J, WAN L, *et al. Nano Lett*, 2016, **16**: 4118.
- [7] PARISH C M, HIJAZI H, MEYER H M, *et al. Acta Materialia*, 2014, **62**: 173.
- [8] KAJITA S, YOSHIDA N, OHNO N, *et al. New J Phys*, 2015, **17**: 043038.
- [9] NOIRI Y, KAJITA S, OHNO N. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, **463**: 285.
- [10] YANG Q, YOU Y, LIU L, *et al. Sci Rep*, 2015, **5**: 10959.
- [11] TAN X, LUO L, CHEN H, *et al. Sci Rep*, 2015, **5**: 12755.
- [12] ATWANI E, GONDERMAN S, SUSLOV S, *et al. Fusion Engineering and Design*, 2015, **93**: 9.
- [13] MIYAMOTO M, MIKAMI S, NAGASHIMA H, *et al. Journal of Nuclear Materials*, 2015, **463**: 333.
- [14] PEREZ D, VOGEL T. *Phys Rev B*, 2014, **90**: 014102.
- [15] LI X, SHU X, TAO P. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, **455**: 544.
- [16] LI X, LIU Y, YI Y. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, **451**: 356.
- [17] WANG J, ZHANG Y, ZHOU H, *et al. Journal of Nuclear Materials*, 2015, **461**: 230.
- [18] HU L, KARL D, HAMMOND K, *et al. Surface Science*, 2014, **626**: 21.
- [19] KOBAYASHI R, HATTORI T, TADMURA T, *et al. Journal of Nuclear Materials*, 2011, **463**: 1071.

- [20] WANG J, NIU L, SHU X, *et al.* *Nucl Fusion*, 2015, **55**: 092003.
- [21] SANDOVAL L, PEREZ D, BLAS P, *et al.* *Phys Rev Lett*, 2015, **114**: 105502.
- [22] YANG L, DENG H, GAO F, *et al.* *Nucl Instr and Meth B*, 2013, **303**: 68.
- [23] YANG L, GAO F, KURTZ R, *et al.* *Acta Materialia*, 2015, **97**: 86.
- [24] GUAN W, FUKUDA M, NOGAMI S, *et al.* *Plasma and Fusion Research*, 2014, **9**: 1405143.
- [25] LIU Q, LI M, WANG S, *et al.* *Annals of Nuclear Energy*, 2015, **85**: 12.
- [26] PAK S, JHANG H, KEUN O, *et al.* *Fusion Engineering and Design*, 2013, **88**: 3224.
- [27] LEE Y, KU D. *Fusion Engineering and Design*, 2015, **98–99**: 1825.
- [28] ZHU C, SONG Y, PENG X, *et al.* *Journal of Nuclear Materials*, 2016, **469**: 120.
- [29] PAK S, CHEON M, SEON C, *et al.* *Fusion Engineering and Design*, 2017, **124**: 591.
- [30] WANG J, HOU Q, SUN T, *et al.* *Journal of Applied Physics*, 2007, **102**: 093510.
- [31] PLIMPTON S. *J Comput Phys*, 1995, **117**: 1.
- [32] ACKLAND G, THETFORD R. *Philos Mag A*, 1987, **56**: 15.
- [33] BECK D. *Molecular Physics*, 1968, **14**: 311.
- [34] JUSLIN N, WIRTH B. *Journal of Nuclear Materials*, 2013, **432**: 61.
- [35] LONG X, WANG D, SETYAWAN W, *et al.* *Physica Status Solidi*, 2017, **215**(1): 1700494.
- [36] TAN X, LUO L, CHEN H, *et al.* *Scientific Reports*, 2015, **5**: 12755.

Study on Helium Diffusion in bcc Tungsten Under Uniaxial Stress Field by Molecular Dynamics Simulation

ZHANG Jing¹, ZHOU Liangfu¹, CHEN Shuangqiang¹, HE Wenhao¹, SU Xue^{1,2}, YANG Dongyan¹, LI Yuhong^{1,†}

(1. School of nuclear science and technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China;

2. North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450045, China)

Abstract: The effect of uniaxial stress field along $\langle 100 \rangle$ and $\langle 111 \rangle$ crystal direction on the diffusion of a single helium atom in bcc tungsten was studied by molecular dynamics simulation. Our calculation shows that the stress strain caused the phase transition of tungsten metal and the initial phase transition strain decreases with the increase of temperature. The initial strain of phase transition is near the strain where stress reaches the maximum value. The diffusion coefficient of a single helium atom in tungsten metal decreases with the increase of strain. The helium diffusion coefficient decreases linearly along the $\langle 100 \rangle$ crystal direction, while the $\langle 111 \rangle$ crystal direction shows a fluctuating trend. Fitting the Arrhenius equation, the results show that when the crystal strain along $\langle 100 \rangle$ reaches +1.5% and the Arrhenius equation is no longer applicable; however, the Arrhenius equation still applies when the crystal strain along $\langle 111 \rangle$ increases by +5%. The helium diffusion activation energy along the crystal direction $\langle 111 \rangle$ was obtained, the results showed that the helium diffusion activation energy decreases with the increase of strain, indicating that the strain enhances the mobility of a single helium atom in tungsten.

Key words: tungsten; helium diffusion; molecular dynamics simulation

Received date: 12 Nov. 2018; Revised date: 12 Feb. 2019

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (11775102, 11475076)

† Corresponding author: LI Yuhong, E-mail: liyuhong@lzu.edu.cn.