



核科学与工程

铜金属氦损伤的分子动力学模拟*

闫鹏辉¹, 张宝玲¹, 时永兴¹, 马一怡^{1,2}

(1. 华北水利水电大学 能源与动力工程学院, 郑州 450011; 2. 中国科学技术大学 核科学技术学院, 合肥 230026)

摘 要: 采用分子动力学方法模拟了金属铜的氦辐照损伤, 在原子尺度上观察氦辐照下铜金属微结构的变化过程, 分析并对比了单晶铜与多晶铜的微结构和力学性能随氦原子数增加的变化情况。结果表明, 随原子数增加, 单晶铜的缺陷对数目呈规律性地先增加后减少, 且峰值不断增高; 多晶铜的缺陷对数目呈上升趋势, 但波动规律不明显。拉伸性能测试显示, 氦辐照会导致铜的屈服强度降低, 当氦原子分数达 0.54% 时, 单晶铜和多晶铜的屈服强度分别下降 46.94% 和 49.2%。

关键词: 氦; 辐照损伤; 分子动力学模拟; 铜

中图分类号: TL62⁷

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202335.220302

Molecular dynamics simulation of helium damage in copper

Yan Penghui¹, Zhang Baoling¹, Shi Yongxing¹, Ma Yiyi^{1,2}

(1. College of Energy and Power Engineering, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450011, China;

2. School of Nuclear Science and Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: The helium radiation damage of copper was simulated by using the molecular dynamics method, and the change process of copper microstructure under helium irradiation was observed on the atomic scale. The changes of the microstructure and mechanical properties of copper induced by helium radiation were analyzed, and the single crystal copper and the polycrystalline copper were compared. It is found that, the number of defect pairs in single crystal copper increases first and then decreases with the increasing number of helium atoms, and the peak value increases continuously. The number of defect pairs of polycrystalline copper continues to increase, but the fluctuation rule is not obvious. The tensile property test shows that the yield strength of copper is reduced because of the helium radiation. When the helium atom content reaches 0.54%, the yield strength of single crystal copper and polycrystalline copper is reduced by 46.94% and 49.2% respectively.

Key words: helium, radiation damage, molecular dynamics simulation, copper

在磁约束聚变装置托卡马克中, 偏滤器直接面向等离子体, 起着屏蔽杂质和排出氦灰的作用^[1]。偏滤器位于高温等离子体与固体材料的过渡区域, 其工作环境极其恶劣, 除了要承受高温和强辐射之外, 还要承受高热流密度, 因为当等离子体破裂时, 能量会瞬间倾注在该区域^[2]。因此, 偏滤器必须采用能承受高热流密度的材料, 常用的有铜合金、钨合金、钨合金、钨、铍和石墨等^[3]。

铜具有优异的导热性能, 被认为是偏滤器的候选材料之一。近些年, 研究人员对铜的辐照损伤进行了部分实验和理论研究^[4-8]。Yang Yun 等^[6]将氦离子束植入铜中, 并用原子力显微镜和扫描电镜对辐照后的样品进行了观察和分析, 结果发现, 铜中形成了纳米级空洞, 机械性能下降。李博^[7]在金属铜中预加应变, 发现预加应变导致了级联区体积(级联碰撞 1 ps 内的无序区域最大体积)的增加, 且程度随预应变量的增加而增加, 在预应变场中, 辐照不仅导致点缺陷的形成, 还引起位错、孔洞等缺陷的形成。王建国^[8]计算了不同温度下铜的辐照损伤情况, 随着温度的升高, 碰撞级联的损伤积累情况加深, 但在基底温度为 250 K 附近时, 损伤情况出现小幅度涨落, 他认为这是

* 收稿日期: 2022-12-28; 修订日期: 2023-03-28

基金项目: 2023 年河南省科技攻关专项 (232102320215) 与河南省高等学校重点科研项目 (20A490001); 河南省大学生创新创业训练计划项目 (202210078051)

联系方式: 闫鹏辉, 15893704441@163.com。

通信作者: 张宝玲, zbaoling1234@163.com。

由于在此温度附近,铜的最小离位阈能相对于临近温度点的值大导致的。

有关铜的辐照损伤尽管已经取得了不少进展,但依然有很多问题需要解决。聚变反应产物氦的辐照和中子诱发的 (n, α) 反应均会在偏滤器材料中引入氦^[9-10],氦在金属中会聚集成氦泡,氦泡内压强高达 GPa 量级,这会破坏金属的内部结构,进而导致材料力学性能下降^[11-12],比如使材料出现裂纹、变形、脆化等。聚变装置关键部件力学性能的下降低直接影响聚变堆的稳定工作,甚至影响核装置的安全性。晶粒细化是改变材料抗辐照性能的方法之一,晶界在捕获氦泡上扮演着重要的角色,多晶铜中含有丰富的晶粒间界,但是,有关氦辐照对单晶铜和多晶铜性能影响的研究和对比却依然不够清楚。因此,本文采用大规模原子分子并行模拟程序(LAMMPS)研究氦辐照对单晶铜和多晶铜力学性能的影响,在原子尺度上观察氦辐照下铜金属微结构的变化过程,分析铜金属中的氦含量与铜力学性能改变的定量关系,并通过缺陷和晶体结构的变化探究引起力学性能改变和差异的微观机理,为偏滤器的材料研究提供理论支持。

1 模拟方法

本模拟建立了尺寸为 $24a \times 24a \times 24a$ ($a=0.361$ nm,为铜的晶格常数)的面心立方单晶铜和多晶铜基底,如图1所示。为更接近真实情况,体系在三维方向使用了周期性边界条件。分别采用 Lennard-Jones 势^[13]和嵌入原子势(EAM 势)^[14]描述 He-He、Cu-Cu 原子间的相互作用。对于铜原子和氦原子间的相互作用,采用由 Chizimeshya 和 Zaremba 建立的势函数描述^[15]。

模拟中,首先对铜金属进行氦辐照,该模拟在 NVT 系综下进行,铜基底温度为 300 K,时间步长为 0.001 ps。氦原子被一个接一个地随机引入铜基底,每引入一个氦原子,体系弛豫至热力学平衡。为使氦原子尽快相遇,新引入的氦原子距离最近的氦原子通常在一个晶格以内。完成氦辐照之后,对辐照过的铜金属进行力学拉伸模拟,该模拟在 NVE 系综下进行,应变速率为 0.005 ps^{-1} ,共运行 50000 步。最后,采用可视化软件 OVITO^[16]对铜金属中的缺陷变化及拉伸性能进行分析。

2 氦辐照对铜金属中点缺陷的影响

随着金属中氦原子的增加,单晶铜中缺陷对数目的变化如图2所示。可以看出,随着氦原子数增加,单晶铜中的弗伦克尔缺陷对数目呈现出规律性的先增加再减少,且峰值不断增高。在氦原子数目为 68、107、141、186、217 和 249 的时候,缺陷对数目达到峰值,相应的缺陷对数目分别为 9、19、34、58、79 和 107。这可能是由于每引入一个氦原子,就有新的空位-间隙原子对产生,导致缺陷对数目不断增加。但是,部分空位与间隙原子对会在体系演化过程中发生复合,随着氦原子不断被引入,体系内不断产生新的空位,同时也不断地发生复合,这种产生-复合-产生-复合最终形成缺陷对波动性的变化规律。

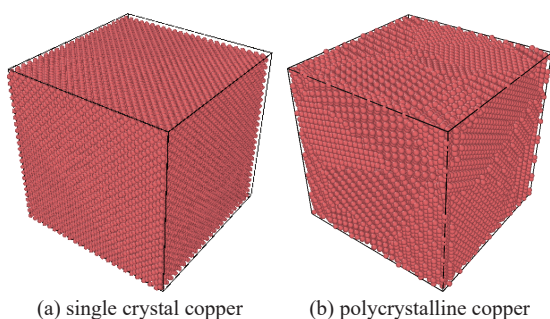


Fig. 1 Single crystal copper and polycrystalline copper substrates

图1 单晶铜和多晶铜基底

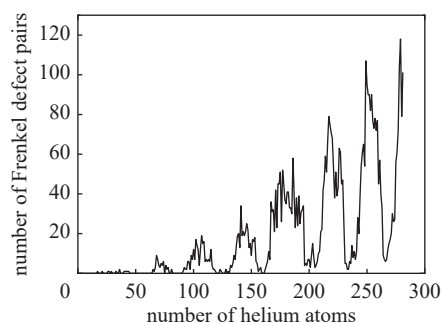


Fig. 2 Dependence of the defect pairs number in single crystal copper on the number of helium atoms

图2 单晶铜中缺陷对数目与氦原子数的关系

OVITO 软件可对多粒子体系的模拟数据进行可视化分析,该软件中的 Wigner-Seitz 原胞法是以其中的某一个格点为中心,建立与之相邻的格点中垂线,形成最小的多面体单元,被称为 Wigner-Seitz 原胞。若原胞内没有一个原子,即为空位;若含有的原子多于一个,则为间隙原子;若包含一个空位和一个原子,即为缺陷对。因此,该功能可用来分析晶体中缺陷的数量和位置。为进一步观察单晶铜中空位和间隙原子随体系演化的变化,本文利用 Wigner-Seitz 缺陷分析法对模拟结果进行了统计分析。图3为单晶铜中氦原子为 150 个时缺陷的演化情况。可以看出,第 150 个氦原子引入铜金属后,体系变得很不稳定,具有一定的能量的原子碰撞其他原子,产生弗伦克尔缺

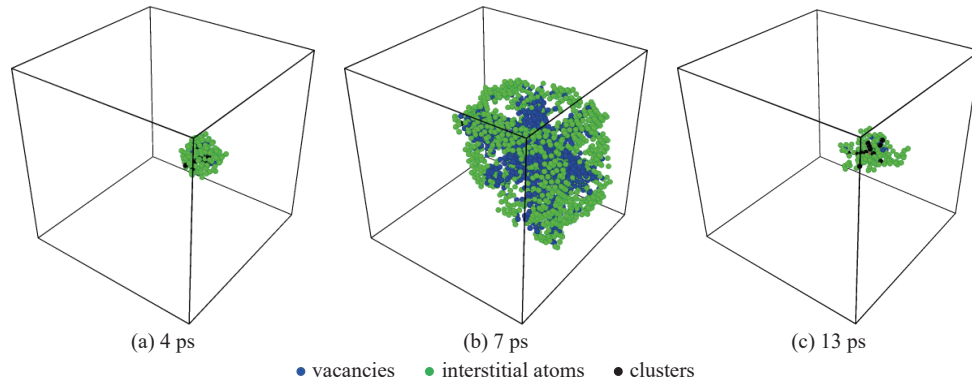


Fig. 3 Defects evolution in single crystal copper with 150 helium atoms

图3 单晶铜中氦原子数为 150 时缺陷的演化

陷对, 缺陷对在演化时间为 7 ps 时达到峰值。之后, 在原子迁移过程中, 部分间隙原子与空位复合, 缺陷对数目减少, 直至趋于稳定。

在多晶铜的氦辐照模拟中发现了类似的现象, 基底中每引入一个新的氦原子, 体系就会变得很不稳定, 缺陷对数目会在短时间内达到峰值, 然后再下降, 直至趋于稳定。但是, 随着氦原子数的持续增加, 多晶铜中的点缺陷变化与单晶铜有明显不同。图 4 为多晶铜中的弗伦克尔缺陷对数目随氦原子数增加的变化情况, 可以看出, 随着氦原子数的不断增多, 多晶铜中的弗伦克尔缺陷对数目呈上升趋势, 但有波动, 在模拟时间内, 这种波动没有呈现出明显的规律性, 这可能是由于多晶铜中预存有大量的晶粒间界所致。在 Zhang Baoling 等^[7]的研究中发现在有预存晶界的金属中, 滑移面上氦的引入和聚集会把预存的滑移金属原子推回到正常格点位置。

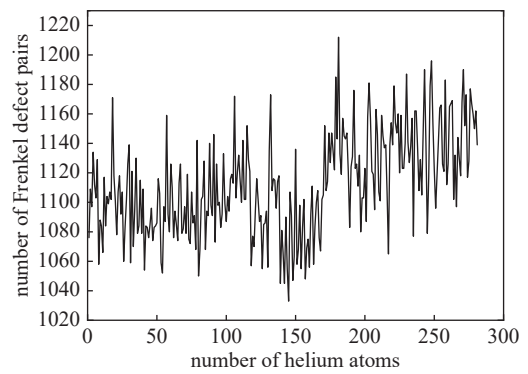


Fig. 4 Dependence of the defect pairs number in polycrystalline copper on the number of helium atoms

图4 多晶铜中缺陷对数目与氦原子数的关系

3 氦辐照对铜拉伸性能的影响

接下来, 对辐照前后的铜进行拉伸测试。测试结果显示, 不管是单晶铜还是多晶铜, 分别沿 x 、 y 、 z 三个坐标轴方向进行拉伸, 得到的曲线趋势相同, 因此, 这里只对一个拉伸方向的结果进行分析。图 5 为氦辐照前后铜的拉伸曲线, 可以看出, 单晶铜和多晶铜拉伸的应力应变曲线趋势大致相同, 开始为弹性形变阶段, 应力不断升高, 直至到达屈服点; 然后应力急速下降, 此阶段为塑性形变阶段; 之后小幅度升高再下降, 最后平缓降低。在到达屈服点之前, 铜的应力应变曲线几乎是重叠的。此外, 不论是单晶铜还是多晶铜, 随着金属中氦原子数目的增加, 屈服强

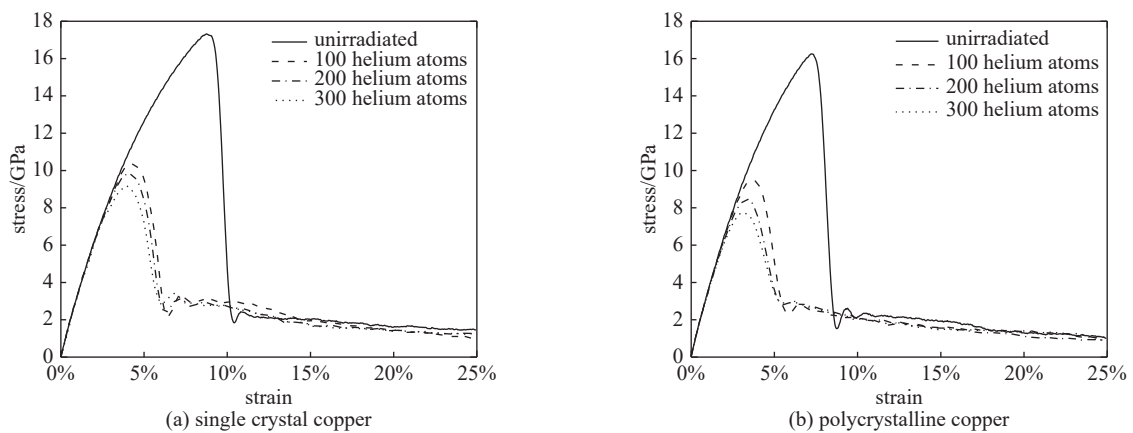


Fig. 5 Effect of helium atoms on the tensile mechanical properties of copper

图5 氦数目对铜的拉伸力学性能影响

度均逐渐降低,屈服强度对应的应变也减小。当氦原子数目分别为 0、100、200、300 时,单晶铜的屈服强度分别为 17.32、10.39、9.84、9.19 GPa,多晶铜的屈服强度分别为 16.25、9.51、8.47、7.76 GPa。当氦原子质量分数均为 0.54% 时,单晶铜与多晶铜的屈服强度分别下降 46.94% 和 49.2%。

氦辐照导致了铜的拉伸力学性能变差,这种改变与金属内部缺陷和晶体结构的变化密不可分。图 6 展示了单晶铜拉伸性能测试过程中位错的变化,氦原子数为 275,应变量为 1.6%、3.6% 和 4.1%。为便于观察,图中隐去了所有金属原子。从图中可以看出,随着应变的增加,由辐照诱发的点缺陷发生移动,导致位错线位置和范围发生变化,金属中的位错线和缺陷面急剧增多。

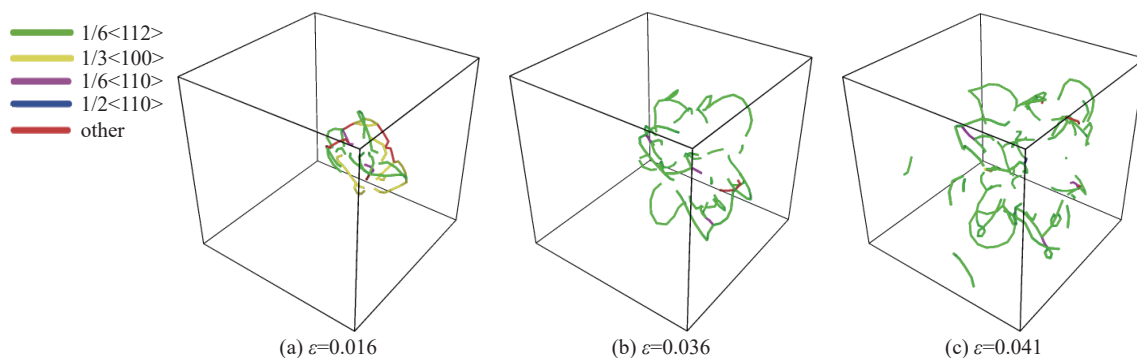


Fig. 6 Dislocation variation of single crystal copper during tensile property test (275 helium atoms)

图 6 单晶铜拉伸性能测试过程中位错的变化(氦原子数为 275)

图 7 给出了不同氦原子数时铜中位错线长度随应变的变化。在应变下,与辐照前相比,辐照后铜中位错线总长度明显增加。对于单晶铜,在应变量为 0%~25% 之间,随着应变增加,辐照后铜中位错线长度呈现先增加后下降最后趋于稳定的变化趋势,最终的位错线总长度随氦原子数的增加而增大,在氦原子数为 300 时,位错线长度在 450 nm 附近波动。为探明单晶铜中位错线总长度改变的原因,本文对比了辐照前后单晶铜中的晶体结构,发现辐照后单晶铜中有 hcp 结构生成,在屈服强度之后 hcp 结构大量增加,而后数量趋于平缓,这与位错线长度的变化趋势一致。因此,由氦导致的金属内部晶体结构的改变可能是引起位错线长度发生变化的原因之一。对于多晶铜,位错线总长度则呈现先降低后升高的趋势,未接受辐照的铜在应变初期位错线总长度下降更明显。对于多晶铜中位错线总长随着应变增加出现先降低后增加的现象,可能也是由于多晶铜中有丰富的晶粒间界,应变初期,部分预存的位错原子被推回正常格点位置,从而使金属的晶体结构有所恢复所致。

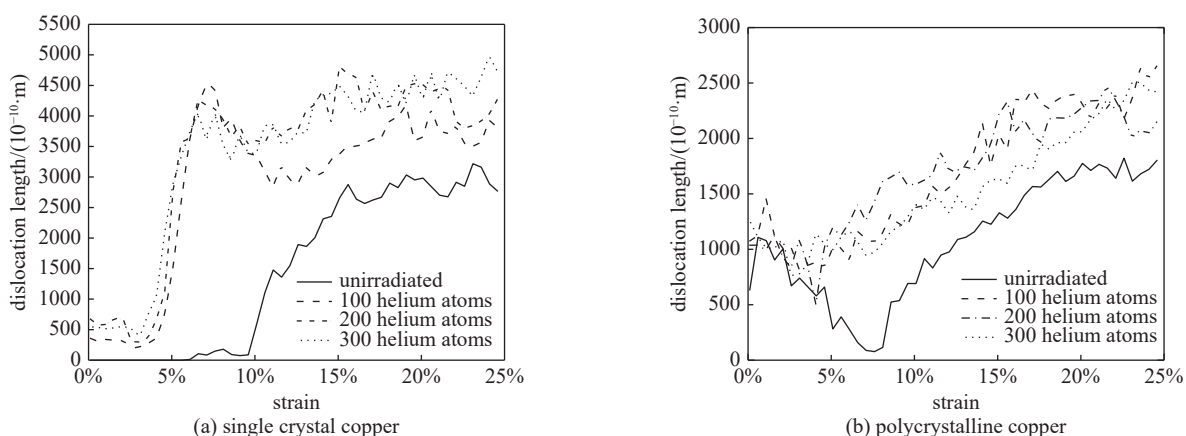


Fig. 7 Dependence of the total dislocation length on the strain in copper at different helium atoms

图 7 不同氦原子数时铜中位错线总长度随应变的变化

4 结 论

本文采用分子动力学方法对单晶铜和多晶铜进行了氦辐照模拟和拉伸模拟,主要得到以下结论:(1)随着氦原子数增加,单晶铜中的弗伦克尔缺陷对数目呈现出规律性的先增加再减少,且峰值不断增高;多晶铜中的弗伦克尔缺陷对数目呈上升趋势,但有波动,在模拟时间内,这种波动没有呈现出明显的规律性;(2)与辐照前相比,辐照后铜中位错线总长度明显增加。对于经过辐照的单晶铜,随着应变增加,铜中位错线长度呈现先增加后下降最后趋

于稳定的变化趋势,并且,位错线最终的总长度随氦原子数的增多而增大。对于经过辐照的多晶铜,位错线总长度呈现先降低后升高的趋势,应变初期位错线总长度的降低可能是由于多晶铜中有丰富的晶粒间界,部分预存的滑移原子回到了正常格点位置,晶体结构有所恢复所致;(3)不论是单晶铜还是多晶铜,随着氦原子数的增加,屈服强度均逐渐降低,屈服强度对应的应变也减小;当氦原子分数为0.54%时,单晶铜屈服强度下降46.94%,多晶铜屈服强度下降49.2%。

参考文献:

- [1] Pitcher C S, Stangeby P C. Experimental divertor physics[J]. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 1997, 39(6): 779-930.
- [2] 陶余强. EAST辐射偏滤器与高约束的兼容性研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2022. (Tao Yuqiang. Study on the compatibility of radiative divertor with high confinement in EAST tokamak[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2022)
- [3] 郝嘉琨. 聚变堆材料[M]. 北京: 化学工业出版社, 2007. (Hao Jiakun. Fusion reactor materials[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2007)
- [4] Khiara N, Onimus F, Jublot-Leclerc S, et al. *In-situ* TEM irradiation creep experiment revealing radiation induced dislocation glide in pure copper[J]. *Acta Materialia*, 2021, 216: 117096.
- [5] Li Min, Hou Qing, Cui Jiechao, et al. Comparative studies of helium behavior in copper and tungsten using molecular dynamics simulations[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2020, 463: 30-39.
- [6] Yang Yun, Frazer D, Balooch M, et al. Irradiation damage investigation of helium implanted polycrystalline copper[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2018, 512: 137-143.
- [7] 李博. 金属铜中辐照损伤的分子动力学模拟[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2016. (Li Bo. Molecular dynamics simulation of irradiation damage in Cu[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2016)
- [8] 王建国. 铜辐照碰撞级联过程的分子动力学仿真[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2003. (Wang Jianguo. Molecular dynamics modeling of radiation collision cascades course in copper[D]. Hefei: Hefei University of Technology, 2003)
- [9] Rowcliffe A F, Garrison L M, Yamamoto Y, et al. Materials challenges for the fusion nuclear science facility[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2018, 135: 290-301.
- [10] Cottrell G A. A survey of plasma facing materials for fusion power plants[J]. *Materials Science and Technology*, 2006, 22(8): 869-880.
- [11] 张崇宏. 聚变堆候选金属材料的惰性气体离子辐照损伤的研究[J]. *原子核物理评论*, 2006, 23(2): 167-169. (Zhang Chonghong. Damage production by inert-gas-ion irradiation in some candidate materials to fusion reactors[J]. *Nuclear Physics Review*, 2006, 23(2): 167-169)
- [12] Harrison R W, Greaves G, Hinks J A, et al. A study of the effect of helium concentration and displacement damage on the microstructure of helium ion irradiated tungsten[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2017, 495: 492-503.
- [13] Kittel C. Introduction to solid state physics[M]. 8th ed. New York: John Wiley & Sons, 2004.
- [14] Zhou X W, Johnson R A, Wadley H N G. Misfit-energy-increasing dislocations in vapor-deposited CoFe/NiFe multilayers[J]. *Physical Review B*, 2004, 69: 144113.
- [15] Chizmeshya A, Zaremba E. The interaction of rare gas atoms with metal surfaces: a scattering theory approach[J]. *Surface Science*, 1992, 268(1/3): 432-456.
- [16] Stukowski A. Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO-the open visualization tool[J]. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 2010, 18: 015012.
- [17] Zhang Baoling, Fang Shuoyang, Wang Jun, et al. Study on helium bubble coalescence in the slip plane of titanium[J]. *Fusion Science and Technology*, 2021, 77(6): 437-445.