



氦对钨传热性能影响的分子动力学研究*

时永兴, 张宝玲, 闫鹏辉

(华北水利水电大学 能源与动力工程学院, 郑州 450045)

摘 要: 采用分子动力学方法研究了氦辐照对金属钨传热性能的影响, 从原子尺度分析了单晶钨与多晶钨的热导率随氦含量的变化及其微观机理。结果表明: 随着氦原子从 0 增加至 500, 钨中的缺陷对数目呈先增加后减少的趋势, 单晶钨中氦原子为 230 个时缺陷对数目达到峰值 123, 多晶钨中氦原子为 480 个时缺陷对数目达到峰值 124; 钨金属的晶体结构从 bcc 转变为 bcc、fcc 和 hcp 等多种结构共存。钨的热导率随氦含量增加波动明显, 总体呈非线性减小趋势, 在氦含量为 0.75% 时, 单晶钨和多晶钨的热导率分别下降 1.44% 和 1.3%。氦辐照下钨金属内缺陷的产生、聚集及晶体结构的变化是其热导率下降的主要原因。

关键词: 氦辐照; 多晶钨; 分子动力学模拟; 传热性能

中图分类号: TL7

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202436.230291

Molecular dynamics study of the effect of helium on the heat transfer performance of tungsten

Shi Yongxing, Zhang Baoling, Yan Penghui

(College of Energy and Power Engineering, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450045, China)

Abstract: The effect of helium radiation on the heat transfer performance of tungsten was studied using molecular dynamics method. The changes of thermal conductivity of single crystal tungsten and polycrystalline tungsten with helium content as well as the microscopic mechanism were analyzed at the atomic scale. The results show that, as the number of helium atom increases from 0 to 500, the number of defect pairs in tungsten increases first and then decreases. When the number of helium atom in single crystal tungsten is 230, the defect pair reaches a peak of 123. In polycrystalline tungsten, the number of defect pairs reaches a peak of 124 at 480 helium atoms. The lattice structure of tungsten changes from bcc to coexistence of bcc, fcc and hcp. The thermal conductivity of tungsten fluctuates significantly with the increasing helium content, which shows a trend of nonlinear decrease in general. When the helium content is 0.75%, the thermal conductivities of single crystal tungsten and polycrystalline tungsten decrease by 1.44% and 1.3%, respectively. The creation and aggregation of point defects as well as the change of crystal structure induced by helium radiation are responsible for the decrease of thermal conductivity of tungsten.

Key words: helium irradiation, polycrystalline tungsten, molecular dynamics simulation, heat transfer performance

偏滤器是磁约束聚变装置中面向等离子体的主要部件, 具有排出氦灰和杂质的作用, 其工作环境极其恶劣, 所以, 对材料的性能要求很高^[1]。偏滤器材料不仅要能承受高热负荷、等离子冲刷、强辐照和高热流密度等条件, 还要确保部件的完整性和稳定性^[2-3]。钨具有高熔点、高热导率、较低溅射率、较低氢及其同位素滞留率等优点, 成为最具潜力的偏滤器候选材料之一^[4]。

在高通量氦离子流的作用下, 偏滤器材料内会形成纳米量级的氦泡, 氦泡内压强高达 GPa 量级^[5-6], 这会严重破坏材料的微观结构, 进而导致材料的宏观热学和力学性能下降, 这对聚变装置的正常运行、安全性和经济性等都有严重影响。近年来, 研究人员针对钨的氦损伤进行了部分理论和实验研究^[7-10]。Allen 等^[8]将氦原子注入单晶

* 收稿日期: 2023-09-01; 修订日期: 2023-12-12

基金项目: 河南省科技攻关专项(232102320215); 河南省高等学校重点科研项目(20A490001)

联系方式: 时永兴, syx1398040930@163.com。

通信作者: 张宝玲, zbaoling1234@163.com。

钨, 观察其在室温下的辐照损伤, 发现氦原子首先会在氦损伤的峰值处汇聚, 在钨材料表面形成平行于表面的裂缝状结构, 随着氦原子的不断注入, 裂缝状结构会逐渐吸收原子并成长为空洞, 最终使表面形成肿胀。Kajita 等^[9]对钨的表面绒毛结构进行了研究, 并测量了其在 1500 K 高温下的热导率, 发现其热导率比未辐照的纯钨下降了约 2%。

在前期研究中, 人们已经发现氦辐照会影响钨的传热性能, 但是, 对于氦含量与钨热导率变化的定量关系和微观机理依然不够清楚。另外, 晶粒细化是提升材料性能常用的方法之一^[11-13], 晶界对金属中的氦行为有很大影响, 多晶钨内部含有丰富的晶粒间界, 而有关氦对单晶钨和多晶钨性能影响的研究和对比尚不多见。大规模原子分子并行模拟程序(LAMMPS)^[14]具有计算速度快、模拟效果好、源代码开源、能进行并行模拟等优点, 在金属材料变形机理研究等方面得到了广泛应用, 但在模型搭建和模拟结束后的分析处理方面尚有不足^[15], 往往需要和其他软件联合使用。因此, 本文使用 LAMMPS 程序从原子尺度上模拟了氦辐照对金属钨传热性能的影响, 联合使用可视化分析软件 OVITO^[16]对模拟结果进行分析, 探究单晶钨与多晶钨的热导率随氦含量变化的微观机理, 为偏滤器的材料研究提供一定的理论支持。

1 模拟条件及方法

本模拟建立了尺寸为 $29a \times 29a \times 29a$ 的单晶钨和多晶钨基底, 如图 1 所示, 基底为体心立方晶体结构, 晶格常数 $a=0.3165$ nm, 单晶钨含有 48778 个钨原子, 多晶钨含有 46226 个钨原子。基底在三维方向使用周期性边界条件, 从而将有限体积的代表单元扩展为无限大体系, 使其更接近真实材料。

对于原子间的相互作用, 嵌入原子势可以很好地描述金属及其合金的原子间相互作用, 被广泛应用于金属和合金中的缺陷研究^[17]。本模拟选取 Bonny 等^[18]建立的嵌入原子势描述钨氦体系原子间的相互作用, 函数形式为

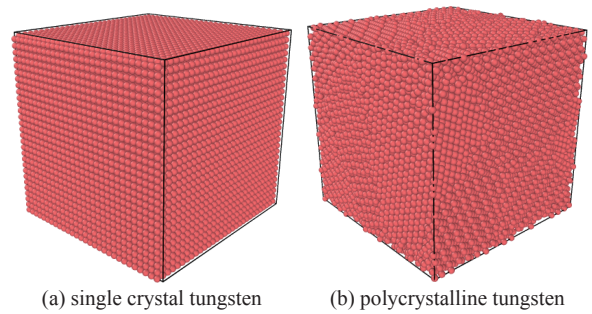


Fig. 1 Tungsten metal substrates

图 1 钨金属基底

$$E = \frac{1}{2} \sum_{\substack{i,j=1 \\ j \neq i}}^N V_{it_j}(r_{ij}) + \sum_{i=1}^N F_i(\rho_i) \quad (1)$$

式中: N 为系统中原子的总数; r_{ij} 为原子 i 和原子 j 之间的距离; t_i 表示原子类别; $F_i(\rho_i)$ 为原子 i 嵌入到密度为 ρ_i 的电子云的嵌入能。

对式(1)第一项的对势进行了参数化, 可描述为

$$V(r) = \sum_{k=1}^M a_k (r_k - r)^3 H(r_k - r) \quad (2)$$

式中: M 表示为总阶数; r_k 表示阶数; a_k 表示拟合参数, H 为 Heaviside 单元阶跃函数。

对式(1)第二项的 $F_i(\rho_i)$ 进行了参数化, 可描述为

$$F(\rho) = A \sqrt{\rho} + B\rho^2 \quad (3)$$

式中: $A = -26.100\ 664\ 41$; $B = 0.468\ 896\ 386\ 9$ 。该势函数重现了氦与钨之间点缺陷的关键相互作用, 得到了与密度泛函理论计算或实验一致的弹性常数、位错属性和晶界能。

模拟时, 首先对钨金属进行氦辐照, 该模拟在正则系综(NVT)下进行, 钨基底温度为 300 K, 时间步长为 0.001 ps, 氦原子被一个接一个地随机引入到钨基底中, 每引入一个氦原子, 体系弛豫至热力学平衡。为使氦原子在模拟时间内尽快相遇, 新引入的氦原子与距离最近的氦原子通常在 2 个晶格内^[19]。氦辐照完成后, 利用 OVITO 软件对辐照后的钨基底进行微结构的变化分析。

接下来, 采用非平衡方法对辐照后的钨金属进行传热性能模拟, 如图 2 所示, 在金属两端分别设置热源和冷源, 热源处输入热量, 冷源处抽出热量, 从而在金属钨内部产生温度梯度, 利用温差进行速度交换, 形成热量的传递。本模拟中, 热源温度为 400 K, 冷源温度为 200 K。由于 NVT 是保证系



Fig. 2 Heat transfer simulation by non-equilibrium method

图 2 非平衡方法传热模拟

统原子数 N 、模拟体积和温度 T 不变、而传热模拟需要施加温差来形成稳定热流, 因此, 在传热模拟中采用了微正则系综(NVE), 即保证系统原子数 N 、模拟体积和能量 E 不变、时间步长为 0.001 ps、共运行 50000 步。最后, 基于模拟结果和傅里叶定律计算钨的热导率, 分析氦辐照对钨金属热导率的影响, 结合金属微结构的变化, 部分阐明引起热导率变化的微观机理。

2 结果与分析

2.1 氦辐照对钨金属中点缺陷的影响

本文采用 OVITO 软件提供的 Wigner-Seitz 原胞法来统计氦辐照后钨金属中点缺陷的数量。在金属中, 原子的排列是一个完整的空间点阵, 所有的原子均位于格点位置, 而空位和间隙原子是晶体中最小的缺陷。Wigner-Seitz 原胞法是在相邻格点间作中垂线, 建立晶体中最小的多面体单元, 以此作为原胞, 一种点阵对应一种形式的原胞, 与基矢的选择无关, 若选取的原胞中同时含有一个空位和一个间隙原子, 则称其为缺陷对, 并统计下来。图 3 给出了钨金属中缺陷对数目随氦原子数增加的变化关系。由图 3(a)可以看出, 在单晶钨内, 随着氦原子数的逐渐增加, 弗伦克尔缺陷对数目呈先增加再减少的趋势, 在氦原子数为 230 个时, 缺陷对达到峰值 123, 之后, 随着氦原子数的进一步增多, 单晶钨内的缺陷对数目逐渐减少。由图 3(b)可以看出, 在多晶钨中, 随着氦原子数从 0 增加至 480, 金属中的缺陷对数目总体呈现非线性增加的趋势, 在氦原子数为 480 个时缺陷对达到峰值 124, 与单晶钨相比, 峰值出现较晚, 这是由于多晶钨内有晶粒间界, 在氦原子的影响下, 晶界附近的金属原子会回到正常格点位置^[20]。此外, 无论是单晶钨还是多晶钨, 随着氦原子数的增加, 晶体内缺陷对的数目均有振荡现象, 这是因为每引入一个氦原子都可能把钨原子推出格点位置, 从而在钨金属内产生新的空位-间隙原子对, 但随着体系的演化, 部分空位-间隙原子对会发生复合, 正是这种不断地产生和复合, 导致了晶体内缺陷对数目的波动。

图 4 为不同氦原子数时钨金属内的缺陷分布, 对单晶钨与多晶钨进行对比可以看出, 多晶钨的弗伦克尔缺陷对数目比单晶钨多, 并且分布范围更广, 这可能是由于多晶钨晶粒细化后, 其内部结构没有单晶钨稳定; 另外, 随

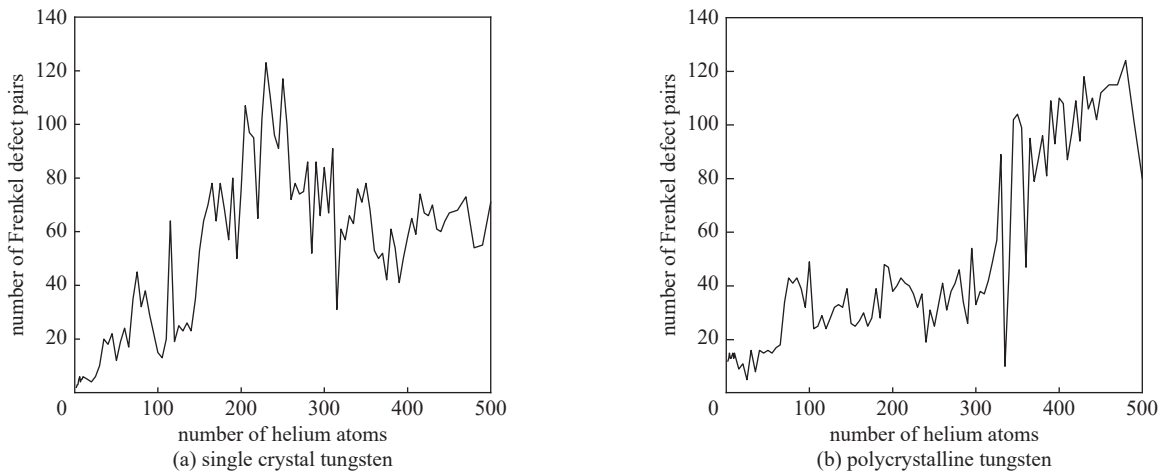


Fig. 3 The number of defect pairs in tungsten varies with the increasing helium atoms

图 3 钨中的缺陷对数目随氦原子增加的变化

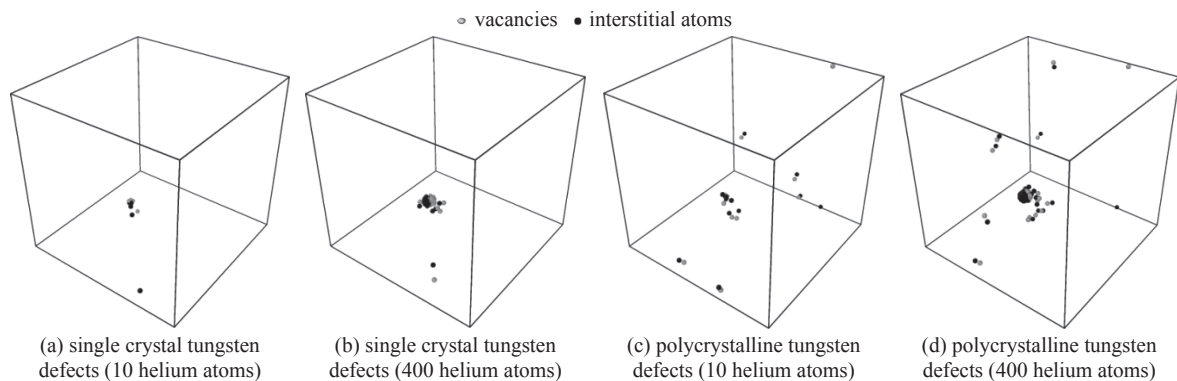


Fig. 4 Defects in tungsten with different helium atom numbers

图 4 不同氦原子数时钨金属内的缺陷

着氦原子数的逐渐增多,不论是单晶钨还是多晶钨,其内部的缺陷对数目均相应增加,并且都有团簇出现。这是由于间隙氦的迁移能很低,易于被空位捕获形成氦-空位复合物,氦-空位复合物是氦原子的不饱和缺陷,它可以不断捕获氦原子,形成氦-空位簇,随着氦原子密度的增大,氦-空位簇还会发射间隙原子从而在氦-空位簇内产生更多空位,使氦-空位簇捕获能力增强^[21]。

2.2 氦辐照对钨传热性能的影响

基于传热模拟结果可得到单晶钨和多晶钨的温度剖面,氦原子数为 300 个时,钨金属的温度剖面如图 5 所示。由该图可以看出,其温度随着 x 轴呈近似线性相关的关系,本模拟采用的是利用温差来获取能量交换,左侧为热源,右侧为冷源,从而近似得到一条斜率为负的温度剖面图,由其斜率可以近似得到其温度梯度,温度梯度计算公式为

$$\nabla T = \frac{\partial T}{\partial x} \quad (4)$$

式中: T 为温度,单位为 K; x 为传热方向位移,单位为 nm,求得二者的温度梯度分别为 -0.158 K/nm , -0.219 K/nm 。由于氦泡的位置在基底内 $0.4 \sim 0.5 \text{ nm}$ 之间,故此温度处有一个向下的明显波动,这说明即使不考虑由氦导致的金属微结构的变化,氦泡自身也会对金属的传热造成影响。

最后,基于傅里叶定律计算热导率

$$k = -\frac{J}{A \times \nabla T} \quad (5)$$

式中: k 为热导率,单位为 $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$; J 为热流,单位为 W; A 为传热面积,单位为 m^2 ; ∇T 为温度梯度,单位为 K/m。

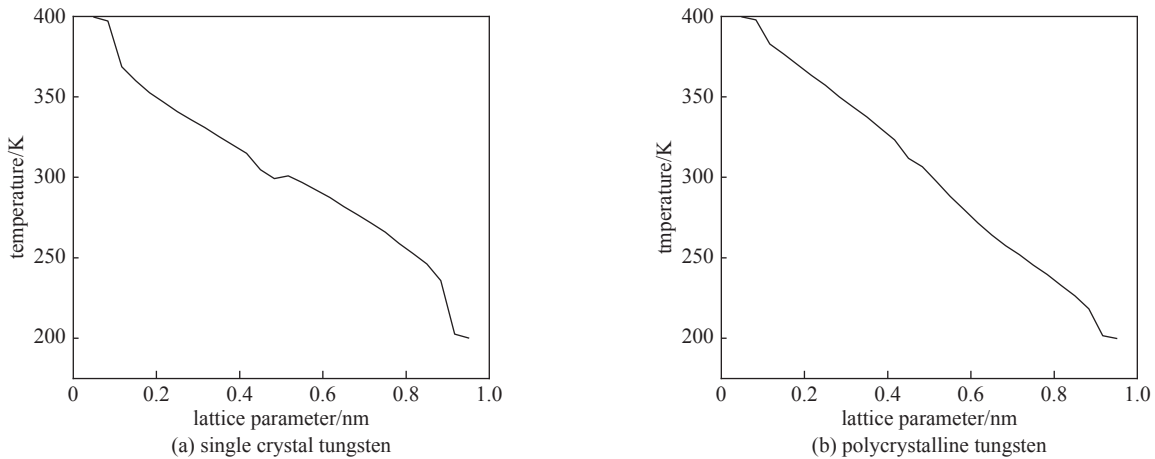


Fig. 5 Temperature profiles of tungsten when the number of helium atoms is 300

图 5 300 个氦原子时钨的温度剖面

由于所建立的同样尺寸的单晶钨和多晶钨所含钨原子数并不相等,所以,即使引入相同数量的氦原子,单晶钨和多晶钨的氦原子百分比也不相同,为便于对比,在接下来的分析中用相同的氦含量来分析对比单晶钨和多晶钨的热导率变化。图 6 给出了钨金属的热导率随氦含量的变化,由该图可以看出,辐照前(氦含量为 0),单晶钨的热导率为 $18.871 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,这与 Fu Baoqin^[22]所计算的纯钨在 300 K 温度下的晶格热导率相近。未被辐照的多晶钨的热导率为 $8.456 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,很明显,多晶钨的热导率小于单晶钨,这是因为金属的导热能力强烈依赖于晶格的振动,与单晶钨相比,多晶钨内有丰富的晶粒间界,这改变了金属内部晶格的完整性和晶格波的传播。在氦辐照下,单晶钨和多晶钨的热导率均有明显波动,但总体均呈下降趋势。在氦含量为 0.75% 时,单晶钨和多晶钨的热导率分别为 $18.599 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 和 $8.346 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,与辐照前相比,热导率分别下降了 1.44% 和 1.3%,单晶钨热导率比多晶钨下降略快。为获得可靠的研究结果,本模拟改变了氦的注入位置,并计算钨的热导率随氦含量的变化,其结果与上述研究结果一致。在实验中,人们已经发现氦辐照会引起钨金属热导率的下降,Qu 等^[23]将能量约为 40 eV 的氦离子注入钨,发现在相同的温度下,注量为 $1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ 时热导率为 $1.01 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,注量增加至 $1 \times 10^{26} \text{ m}^{-2}$ 时热导率降低至 $0.94 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,大约减少了 7%。这和本模拟中钨金属随着氦含量的增加其导热能力下降的结果相一致。

为探明由氦辐照引起的钨金属热导率降低的微观机理,本文分析了钨金属的微结构随氦辐照的变化。辐照

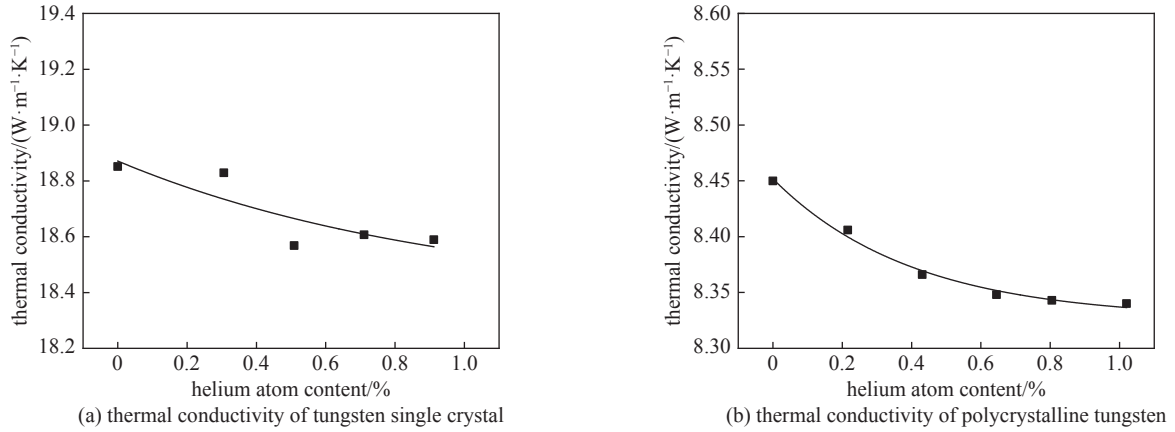


Fig. 6 Change of tungsten thermal conductivity with helium content

图 6 钨金属的热导率随氦含量的变化

前, 钨金属为完美的 bcc 结构, 随着氦原子的不断注入, 钨晶格内出现点缺陷和氦泡, 晶格发生异变, 晶体结构发生变化, 出现了 fcc 和 hcp 结构并逐渐增多, 如表 1 所示。在氦含量为 0.2%、0.4% 和 0.6% 时, 发生异变的晶格数分别为 119、161 和 171 个。因此, 氦辐照下钨金属内缺陷的产生、聚集及晶体结构的变化是导致其热导率下降的主要原因。

表 1 钨晶格异变数随氦含量的变化

Table 1 Number of tungsten lattice anomaly with helium content

helium content/%	number of structural variation of W lattice
0.2	119
0.4	161
0.6	171

3 结论

本文采用分子动力学的方法对单晶钨和多晶钨进行了氦辐照损伤模拟和对比, 分析了钨的热导率随氦含量的变化及其微观机理, 主要结论如下。

(1) 随着氦原子从 0 增加至 500, 单晶钨内的弗伦克尔缺陷对数目呈先增加后减少的趋势, 在氦原子为 230 的时候, 缺陷对数目达到峰值 123; 多晶钨内的缺陷对数目呈现非线性增加的趋势, 峰值出现较晚, 在氦原子为 480 时缺陷对数目才达到峰值 124。在相同氦原子数时, 多晶钨的弗伦克尔缺陷对数目比单晶钨多, 并且分布范围更广。不论是单晶钨还是多晶钨, 其晶体结构均随氦原子数的增加发生变化, 从单一的 bcc 结构转变为 bcc、fcc 和 hcp 等多种结构共存。

(2) 单晶钨的热导率大于多晶钨的热导率; 随着氦含量的逐渐增加, 二者热导率均呈非线性下降, 当氦含量为 0.75% 时, 单晶钨和多晶钨的热导率分别下降了 1.44% 和 1.3%。氦辐照下钨金属内缺陷的产生、聚集及晶体结构的变化是其热导率下降的主要原因。

参考文献:

- [1] 桑超峰, 周庆瑞, 王真厚, 等. 托卡马克钨偏滤器基本物理问题[J]. 南昌大学学报(理科版), 2022, 46(3): 277-294. (Sang Chaofeng, Zhou Qingrui, Wang Zhenhou, et al. The main physical issues of the tungsten divertor in Tokamak [J]. Journal of Nanchang University (Natural Science), 2022, 46(3): 277-294)
- [2] 张一鸣, 曾丽萍, 沈欣媛, 等. ITER 计划与聚变能发展战略[J]. 核聚变与等离子体物理, 2013, 33(4): 359-365. (Zhang Yiming, Zeng Liping, Shen Xinyuan, et al. ITER project and fusion energy development strategy [J]. Nuclear Fusion and Plasma Physics, 2013, 33(4): 359-365)
- [3] Neu R, Riesch J, Coenen J W, et al. Advanced tungsten materials for plasma-facing components of DEMO and fusion power plants [J]. Fusion Engineering and Design, 2016, 109/111: 1046-1052.
- [4] 吴玉程, 姚刚, 罗来马, 等. 核聚变堆用钨及钨基材料热负荷损伤行为的研究进展[J]. 中国有色金属学报, 2018, 28(4): 719-731. (Wu Yucheng, Yao Gang, Luo Laima, et al. Research progress in heat load damage behavior of tungsten and tungsten base materials for nuclear fusion reactor [J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2018, 28(4): 719-731)
- [5] Thompson M, Kluth P, Doerner R P, et al. Probing helium nano-bubble formation in tungsten with grazing incidence small angle x-ray scattering [J]. Nuclear Fusion, 2015, 55(4): 042001.
- [6] Ueda Y, Peng H Y, Lee H T, et al. Helium effects on tungsten surface morphology and deuterium retention [J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, 442(1/3 Suppl 1): S267-S272.
- [7] 汪俊, 张宝玲, 周宇璐, 等. 金属钨中氦行为的分子动力学模拟[J]. 物理学报, 2011, 60: 106601. (Wang Jun, Zhang Baoling, Zhou Yulu, et al. Molecular dynamics simulation of helium behavior in tungsten matrix [J]. Acta Physica Sinica, 2011, 60: 106601)

- [8] Allen F I, Hosemann P, Balooch M. Key mechanistic features of swelling and blistering of helium-ion-irradiated tungsten[J]. *Scripta Materialia*, 2020, 178: 256-260.
- [9] Kajita S, Yagi T, Kobayashi K, et al. Measurement of thermophysical property of plasma forming tungsten nanofiber layer[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2016, 55: 056203.
- [10] Hu Lin, Wirth B D, Maroudas D. Thermal conductivity of tungsten: Effects of plasma-related structural defects from molecular-dynamics simulations[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111: 081902.
- [11] Wu Xuebang, Kong Xiangshan, You Yuwei, et al. Effects of alloying and transmutation impurities on stability and mobility of helium in tungsten under a fusion environment[J]. *Nuclear Fusion*, 2013, 53: 073049.
- [12] Zhou Zhangjian, Pintsuk G, Linke J, et al. Transient high heat load tests on pure ultra-fine grained tungsten fabricated by resistance sintering under ultra-high pressure[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2010, 85(1): 115-121.
- [13] 刘凤, 李强, 王万景, 等. 超细晶/纳米晶钨—未来聚变堆面向等离子体材料[J]. 材料导报, 2011, 25(19): 43-48,71. (Liu Feng, Li Qiang, Wang Wanjing, et al. Ultra-fine grained/nano-crystalline tungsten—Plasma facing material for future fusion reactors[J]. *Materials Reports*, 2011, 25(19): 43-48,71)
- [14] Plimpton S. Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics[J]. *Journal of Computational Physics*, 1995, 117(1): 1-19.
- [15] Thompson A P, Aktulga H M, Berger R, et al. LAMMPS - a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales[J]. *Computer Physics Communications*, 2022, 271: 108171.
- [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] Daw M S, Baskes M I. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals[J]. *Physical Review B*, 1984, 29(12): 6443-6453.
- [18] Bonny G, Grigorev P, Terentyev D. On the binding of nanometric hydrogen-helium clusters in tungsten[J]. *Journal of Physics:Condensed Matter*, 2014, 26: 485001.
- [19] 周良付, 张婧, 何文豪, 等. 氦泡在 bcc 钨中晶界处成核长大的分子动力学模拟[J]. 物理学报, 2020, 69: 046103. (Zhou Liangfu, Zhang Jing, He Wenhao, et al. The nucleation and growth of Helium hubbles at grain boundaries of bcc tungsten: a molecular dynamics simulation[J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69: 046103)
- [20] Zhang B L, Fang S Y, Wang J, et al. Study on helium bubble coalescence in the slip plane of titanium[J]. *Fusion Science and Technology*, 2021, 77(6): 437-445.
- [21] 张宝玲. 钛金属氦损伤的分子动力学研究[M]. 北京: 中国水利水电出版社, 2016: 3-10. (Zhang Baoling. Molecular dynamics study of helium damage in titanium metal[M]. Beijing: China Water Power Press, 2016: 3-10)
- [22] Fu Baqin, Lai Wensheng, Yuan Yue, et al. Calculation and analysis of lattice thermal conductivity in tungsten by molecular dynamics[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2012, 427(1/3): 268-273.
- [23] Qu Shilian, Sun Hao, Kreter A, et al. Degradation of thermal conductivity of the damaged layer of tungsten irradiated by helium-plasma[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2018, 137: 97-103.