

金属镍、铁和钨初级辐照损伤演化的 分子动力学研究

应 红^{1,4} 温阿利² 周岁茹³ 海 雪² 章文峰³ 任翠兰² 施海宁^{1,4} 黄鹤飞²

1(苏州热工研究院有限公司 苏州 215004)

2(中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800)

3(西南石油大学 新能源与材料学院 成都 610500)

4(国家核电厂安全及可靠性工程技术研究中心 苏州 215004)

摘要 镍、铁和钨基合金常被用来作为反应堆的候选结构材料,在反应堆中面临中子辐照的严苛服役环境。本文采用分子动力学方法研究了金属镍、铁、钨三种金属材料的辐照级联过程,获得材料在不同温度(300~500 K)下、不同初级碰撞原子(Primary Knock-on Atom, PKA)能量(<20 keV)沿不同晶格方向(<135>、<122>和<100>)入射的辐照级联损伤过程。结果表明:金属镍和铁的稳态辐照缺陷数相当,当 PKA 能量较低(<5 keV)时,金属镍的稳态缺陷数比金属铁略少;而当 PKA 能量较高(>5 keV)时,金属镍的稳态缺陷数逐渐超过铁;在相同辐照条件下,金属钨的稳态辐照缺陷数最少,表现出更为良好的抗辐照性能。通过分析三种金属辐照级联过程中不同阶段的缺陷复合率及缺陷存活率,进一步理解其耐辐照损伤能力的差异。相关计算结果为理解不同金属的辐照性能提供数据支撑,作为金属初级辐照损伤数据集,为更大尺度的速率理论和团簇动力学等模拟材料辐照效应提供微观缺陷结构和参数。

关键词 镍, 铁, 钨, 中子辐照, 初级辐照损伤, 分子动力学

中图分类号 TL341

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2023.hjs.46.120301

Molecular dynamics analysis of primary radiation damage evolution in nickel, iron, and tungsten

YING Hong^{1,4} WEN Ali² ZHOU Suiru³ HAI Xue² ZHANG Wenfeng³
REN Cuilan² SHI Haining^{1,4} HUANG Hefei²

1(Suzhou Nuclear Power Research Institute Co., Ltd., Suzhou 215004, China)

2(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

3(School of New Energy and Materials, Southwest Petroleum University, Chengdu 610500, China)

4(National Engineering Research Center for Nuclear Power Plant Safety & Reliability, Suzhou 215004, China)

Abstract [Background] Nickel-, iron- and tungsten-based alloys are commonly used as structural materials of reactors. During their operational life, these alloys undergo intense neutron irradiation. [Purpose] This study aims to

国家自然科学基金(No.52001322)、上海市自然科学基金(No.23ZR1475700)和四川省科技计划项目(No.2022YFSY0040)资助

第一作者: 应红, 男, 1987年出生, 2011年于中国科学技术大学获硕士学位, 研究领域为辐射探测与防护

通信作者: 温阿利, E-mail: wenali@sinap.ac.cn; 任翠兰, E-mail: rencuilan@sinap.ac.cn

收稿日期: 2023-08-14, 修回日期: 2023-09-24

Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 52001322), Natural Science Foundation of Shanghai (No. 23ZR1475700), the Sichuan Science and Technology Program (No.2022YFSY0040)

First author: YING Hong, male, born in 1987, graduated from University of Science and Technology of China with a master's degree in 2011, focusing on radiation detective and protective

Corresponding author: WEN Ali, E-mail: wenali@sinap.ac.cn; REN Cuilan, E-mail: rencuilan@sinap.ac.cn

Received date: 2023-08-14, revised date: 2023-09-24

analyze the post-irradiation defect evolution and its mechanisms in these materials for comprehending the effects of irradiation on them. **[Methods]** The displacement cascades in nickel, iron, and tungsten were examined at various temperatures (300~500 K), primary knock-on atom (PKA) energies (<20 keV), and directions (<135>, <122> and <100>) by using molecular dynamics (MD) simulations. Firstly, the model was initially relaxed at each specified temperature under a canonical ensemble for 10 ps, applying periodic boundary conditions in every direction. Then, an atom was randomly chosen as a PKA and assigned kinetic energy to initiate the cascade collision simulation in the micro-canonical ensemble. Finally, the Open Visualization Tool package was employed for visualization and data analysis of the irradiation cascade processes. **[Results]** The simulation results reveal that nickel and iron exhibit similar steady-state defects. At lower PKA energies (<5 keV), nickel exhibits marginally fewer defects than iron. However, as the PKA energy surpasses 5 keV, the number of defects in nickel becomes slightly more than that in iron. Furthermore, under identical irradiation conditions, tungsten demonstrates superior radiation resistance, with fewer steady-state defects when compared with both nickel and iron. **[Conclusions]** The defect evolution during various cascade displacement phases in three metals and their defect recombination rates are crucial to understanding the disparities in radiation damage resilience. The derived results help to comprehend the radiation characteristics of these metals. Additionally, the primary radiation damage dataset compiled for these metals lays a foundation for further larger-scale simulations of their radiation attributes using rate theory or cluster dynamics methods.

Key words Nickel, Iron, Tungsten, Neutron irradiation, Primary radiation damage, Molecular dynamics

镍基合金、不锈钢、钨基合金常被用作先进核能反应堆的候选结构材料,例如镍基合金由于优异的高温机械性能和耐熔盐腐蚀性能,常被选作熔盐堆的首选结构材料^[1],铁基合金已经广泛应用于压水堆的结构材料,而金属钨因其高热导、高溅射阈值等优点,常用作聚变堆第一壁面向等离子体材料^[2-4]等。金属结构材料长期在反应堆环境下服役,不可避免地受到中子辐照,造成材料的微观结构损伤,进而导致其宏观机械性能的劣化,从而影响反应堆的安全^[5]。研究材料在辐照后的缺陷演化规律和机制对于理解材料的辐照效应,进而研发更耐辐照的结构材料具有重要意义。材料的辐照效应是跨时间和空间尺度的行为,中子辐照材料发生级联碰撞的时间和空间尺度分别在皮秒和纳米量级^[6-8],辐照级联后材料中的缺陷将继续扩散、聚集演化,造成材料的肿胀、硬化、脆化等明显的宏观性质的变化^[9-10]。由于实验条件和观测手段的限制,理论模拟,尤其是多尺度模拟,在理解材料辐照效应、预测材料的长期辐照性能方面发挥着越来越重要的作用^[11]。目前广泛采用的理论模拟方法有密度泛函理论(Density Functional Theory, DFT)、分子动力学(Molecular Dynamics, MD)、蒙特卡罗(Monte Carlo, MC)和速率理论(Rate Theory, RT)等;其中分子动力学模拟的时间和空间尺度和材料辐照初期的级联碰撞的尺度一致,成为模拟材料在原子尺度辐照损伤缺陷动态演化的首选方法之一^[12];而辐照后缺陷的长时演化过程则多采用蒙特卡罗或速率理论方法实现。同时,微观尺度模拟的第一性原理和分子动力学计算

可以为较大尺度的计算模拟提供基本缺陷构型、能量、缺陷分布等参数,这也是原子尺度的计算模拟独特的地方。

目前,对反应堆结构材料的初级辐照损伤的分子动力学模拟研究有很多,但不同材料的初级辐照损伤的差异及相关机制仍不明确。例如,Kwon等^[13]对镍和铁在温度分别为100 K和570 K、初级碰撞原子(Primary Knock-on Atom, PKA)能量分别为3.5 keV和4.1 keV情况下的初级辐照损伤进行了对比研究,发现金属铁和镍的缺陷损伤分布类似,但是铁的稳态(残余)缺陷数量比镍的略多。Bacon等^[14]则对钛、铁和铜等不同晶格结构金属的初级辐照损伤进行了对比分析,发现晶体结构对金属的稳态缺陷数量影响不大。Setyawan等^[15]采用分子动力学方法对钨中高能入射PKA在不同温度下(300~2 050 K)的级联碰撞进行模拟,结果表明,PKA能量对残余缺陷数量有明显影响。而Warrier等^[16]对钨和铜的级联碰撞的分子动力学模拟研究显示,在1~5 keV的低能PKA辐照损伤区域内,金属钨中缺陷达到平衡的时间较短。由此可见,级联碰撞损伤与PKA能量、辐照温度等参数密切相关。

本文采用分子动力学方法对金属镍、铁、钨在不同温度(300 K、400 K和500 K)、PKA能量(2 keV、5 keV、10 keV和20 keV)和晶格方向(<135>、<122>和<100>)下的级联碰撞损伤进行模拟,获得该阶段材料的点缺陷演化过程及初级辐照损伤数据,分析初级辐照缺陷损伤在不同条件下的异同,获得初级辐照损伤的参数及缺陷分布,为其长时辐照缺陷演

化的模拟和预测提供参数,进一步帮助理解不同材料的辐照损伤机制,为更耐辐照的结构材料的研发提供思路。

1 模拟方法及模型

本文中金属镍、铁和钨辐照级联损伤的分子动力学方法模拟采用 LAMMPS 软件包来实现^[17]。体系的原子间相互作用势函数如表 1 所示,对镍选取了 Béland 等^[18-19]的修正 Bony-2011 势,对铁选取 Byggmatar 等^[20]的 M07-B 势,对钨则选取 Chen 等^[21]发展的势函数;在辐照级联的模拟中,均采用 Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) 势函数修正了原子间近程相互作用。上述势函数已被成功应用于金属材料的初级辐照损伤模拟中^[18-21]。金属的辐照级联模拟在正方体的盒子里进行,模拟体系的大小则根据 PKA 能量的不同进行合理选择,以确保级联区域在靠近模拟盒子的中心附近。较低 PKA 能量 (2 keV、5 keV、10 keV) 时,模拟盒子大小为 $60a_0 \times 60a_0 \times 60a_0$ (a_0 为晶格常数),较高 PKA 能量 (20 keV) 时,模拟盒子大小为 $80a_0 \times 80a_0 \times 80a_0$ 。这里需要说明的是 PKA 的能量是扣除电子能损后的能量。

金属的辐照级联过程模拟过程如下:首先,将体系在等温等压 (Constant Pressure and Temperature, NPT) 系综下进行模拟,获得金属在既定温度下的晶格常数。采用上述势函数,获得金属镍、铁、钨在

300 K、400 K 和 500 K 温度下的晶格常数如表 1 所示,该结果和文献中理论计算和实验测量的晶格常数结果一致^[22-25];其次,将模拟盒子分为三个区域,最外面为固定层 (区域 I, 厚度为 $2a_0$); 中间层为控温层 (区域 II, 厚度为 $3a_0$); 中心区域为辐照区域 (区域 III)。在进行级联碰撞模拟之前,将区域 II 和区域 III 在等温等容 (Constant Volume and Temperature, NVT) 系综下弛豫 10 ps 使体系达到平衡。然后,随机选取一个原子作为 PKA 原子,根据 PKA 的能量和入射方向给予其一定的速度开启级联碰撞模拟。碰撞模拟过程在微正则 (Micro-canonical Ensemble, NVE) 系统下进行,其中区域 II 采用 Berendsen 恒温器进行控温,碰撞过程中保证辐照发生在模拟盒子的中心区域^[26-28]。在晶体辐照模拟中,为了避免沟道效应,对于面心立方 (Face Centered Cubic, FCC) 晶格的 Ni 和体心立方 (Body Centered Cubic, BCC) 结构的 Fe 和 W, 选取 $\langle 135 \rangle$ 、 $\langle 122 \rangle$ 等高晶向指数方向作为粒子的入射方向。此外,本文将 $\langle 100 \rangle$ 低指数晶向的入射结果用来作对比,并做多次计算,剔除发生沟道效应的结果。为了得到更加准确的模拟计算结果,每种情况都进行了约 10 次的独立计算,并对结果取平均值。最后,辐照级联过程的可视化和数据分析均通过 OVITO 软件包实现^[29],其中点缺陷的分析采用 Winger-Seitz (W-S) 原胞分析法实现^[30]。

表 1 金属镍、铁、钨的原子间相互作用势函数及其在不同温度下的晶格常数

Table 1 Atomic interactional potentials of nickel, iron, and tungsten metal and the calculated lattice parameters at various temperatures

材料 Materials	势函数 Potentials	晶格参数 Lattice parameters					
		300 K		400 K		500 K	
		本文 This work	参考 Reference	本文 This work	参考 Reference	本文 This work	参考 Reference
镍 Nickel	Modified Bony-2011 ^a	3.52	3.516 ^d	3.521	3.521 ^d	3.5229	3.526 ^d
铁 Iron	M07-B ^b	2.861	2.860 ^e	2.864	2.864 ^e	2.868	2.868 ^e
钨 Tungsten	Chen-2018 ^c	3.169	3.169 ^f	3.169	3.171 ^f	3.172	3.173 ^f

注:^{a, b, c} 金属镍、铁和钨的势函数,分别来自参考 Béland 等^[18]、Byggmatar 等^[20]和 Chen 等^[21];^{d, e, f} 金属镍、铁和钨晶格常数的实验值,分别来自参考 Owen 等^[23]、Goldschmidt 等^[24]和 Fu 等^[26]

Notes: ^{a, b, c} Atomic interactional potentials of nickel, iron and tungsten by Béland *et al.*^[18], Byggmatar *et al.*^[20] and Chen *et al.*^[21] respectively. ^{d, e, f} Experimental values for the lattice constants of nickel, iron and tungsten investigated by Owen *et al.*^[23], Goldschmidt *et al.*^[24] and Fu *et al.*^[26] respectively

金属初级辐照级联产生的缺陷可以通过分子动力学计算获得,此外,还可以用如下 NRT (Norgett, Robinson 和 Torrens) 公式^[9, 31]进行估计:

$$N_{\text{NRT}} = 0.8E_{\text{dam}}/2E_{\text{d}} \quad (1)$$

式中: N_{NRT} 是离位缺陷数; E_{dam} 是弹性碰撞损伤能,即 PKA 能量减去电离耗散的能量; E_{d} 是材料的离位阈能。该公式考虑了电离效应,对 Kinchin 和 Pease^[32]

提出的由离位级联动能得出级联产生的弗兰克尔缺陷对的理论估计改进而来。NRT 公式通过一个损伤能对稳态缺陷数进行简单估计,被广泛用于材料的辐照损伤计算,即用辐照条件下材料中原子的平均离位次数 (Displacements Per Atom, DPA) 来表示的材料的辐照损伤程度。分子动力学模拟则可以给出一定 PKA 能量入射粒子导致的碰撞级联原子的运

动轨迹,更真实地描述碰撞级联各个阶段的缺陷分布及演化过程,从而更直观地从微观模拟中获得与实验数据相对一致的结果^[33]。Nordlund等^[34]对NRT模型进行扩展,提出了新的估计离位产生缺陷数的Arc-dpa (Athermal recombination corrected dpa)模型:

$$N_{\text{Arc-dpa}}(E_{\text{dam}}) = \frac{0.8E_{\text{dam}}}{2E_{\text{d}}} \zeta_{\text{Arc-dpa}}(E_{\text{dam}}) \quad (2)$$

其中,新的离位缺陷产生效率为:

$$\zeta_{\text{Arc-dpa}}(E_{\text{dam}}) = \frac{1 - c_{\text{Arc-dpa}}}{(2E_{\text{d}}/0.8)^{b_{\text{Arc-dpa}}}} E_{\text{dam}}^{b_{\text{Arc-dpa}}} + c_{\text{Arc-dpa}} \quad (3)$$

式中: $b_{\text{Arc-dpa}}$ 和 $c_{\text{Arc-dpa}}$ 是材料常数,通过对分子动力学计算或实验结果拟合获得,因此,Arc-dpa计算获得的初级辐照损伤缺陷更接近分子动力学的计算结果。

本文中,同时采用了NRT公式和Arc-dpa模型对金属镍、铁和钨的辐照损伤进行了计算并和分子动力学计算结果进行了对比和分析。

2 结果和讨论

2.1 金属镍初级辐照损伤

金属的初级辐照损伤一般均经历缺陷产生、热峰、复合和退火冷却等过程,这个过程一般持续约10 ps。该过程中具体的缺陷产生率,复合率和缺陷结构等有所不同,造成它们不同的辐照损伤缺陷演化过程及机制。本文将以镍的初级辐照损伤为例详细介绍材料初级辐照缺陷的演化,然后分析它和铁、钨辐照损伤的异同,并探究相关的初级辐照损伤

机制。

在不同PKA入射方向和温度条件下,金属镍初级辐照损伤缺陷随时间演化及随PKA能量的计算结果如图1所示。首先,从图1中可以看出,金属镍在模拟的各个温度和能量下,材料中产生的弗兰克缺陷与数量随时间的变化趋势类似。由于初级离位原子碰撞,导致离位级联产生的弗兰克缺陷对数量首先随时间的增加而快速增加;当达到离位峰之后快速下降,这是由于体系中级联碰撞所导致的大部分缺陷发生复合,导致的缺陷数量减少;之后产生的缺陷会慢慢冷却,最终趋于平稳状态。这些过程分别对应了级联过程中的碰撞、热峰、复合以及退火冷却等各个阶段的状态。其次,随着PKA能量的增加,辐照过程中缺陷的数量急剧增加,且随着PKA能量的增加,各个模拟体系在缺陷数变化的细节方面存在诸多差异,比如离位峰出现的时间、离位峰的高低以及最终达到稳定状态的缺陷数量等。由图1(a)可以看出,随着PKA能量的升高,级联碰撞离位的原子数增加,离位峰出现的时间有所推迟,相应地达到稳态的时间也对应延迟。但PKA能量较低时它对缺陷数的影响较小,而当能量较高时它对缺陷的影响也增大。这也体现在PKA能量较低时,材料中的辐照缺陷对入射方向不敏感;随着PKA能量的增加区别增大,例如,当PKA能量为较高的20 keV时,可以明显地看出<122>方向500 K温度的缺陷数要高于相同条件其他两个方向的缺陷数量。因此,在考虑的辐照温度、入射方向、PKA能量等参数中,PKA能量对缺陷的数量影响最大。

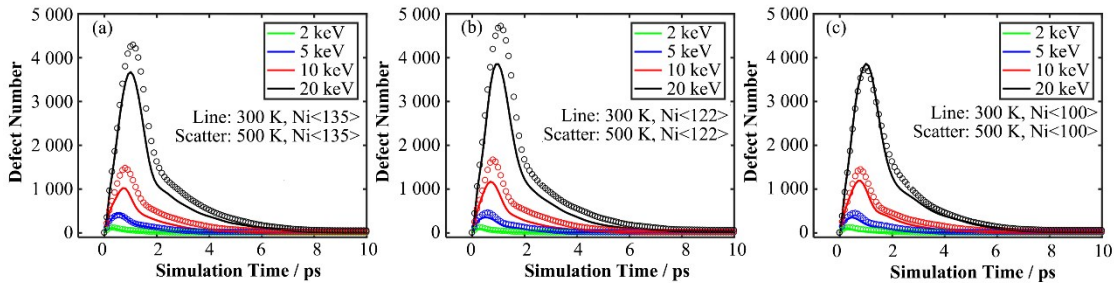


图1 金属镍在<135>(a)、<122>(b)和<100>(c)不同晶向、不同温度和PKA能量下的初级辐照损伤缺陷数随时间的变化
Fig.1 Changes in the number of primary knock-on defects in nickel: (a) <135>, (b) <122>, and (c) <100> distinct crystal orientations under different temperatures and various PKA energies as a function of time

我们以金属镍在温度为300 K、PKA能量为20 keV、<135>方向入射时的辐照级联过程为例分析辐照级联过程中微观缺陷演化过程。如图2(a)所示,金属镍弗兰克缺陷从级联产生到达到热峰,之后经过缺陷复合、退火,最后达到稳态阶段的不同时刻的缺陷的演化过程。其中,图2(a2)为碰撞阶段某个

时刻($t=0.092$ ps)空位和自间隙原子缺陷分布,由于入射粒子的冲击,体系中的次级离位原子呈现出杂乱无章的分布;在热峰阶段(约1.14 ps)缺陷数量达到最多;之后经缺陷复合阶段后达到稳定状态(约9 ps),此时辐照级联产生的大量的缺陷都退火恢复了,只剩下较少的稳态缺陷(残留缺陷)。对比热峰

和稳定退火阶段缺陷数量可以看出,纯镍中辐照缺陷的复合率还是较高的。这可能是由于镍中产生缺陷对需要的能量较高,且镍的内聚能也比较大(约4.4 eV^[19])等原因造成的。

此外,图2(b~d)和图2(b2~d2)对比了金属镍在300 K温度下、PKA能量分别为2 keV、5 keV和10 keV时,<135>入射方向时热峰和对应稳态阶段的缺陷分布。可以看出,随着PKA能量的增加,热峰产生的缺陷数和发生离位级联区域体积均增大;而相应的稳态阶段的缺陷数也随之增加,产生的缺陷的分布范围也更大。这是由于随着PKA能量的增加,碰撞过程中有更多的能量传给离位原子,从而使更多距离PKA更远的原子离位,导致离位原子数量增加、离位区域更为分散。结合图2(a)(PKA能

量为20 keV)时热峰和稳态缺陷的分布,可以明显看出,不同PKA能量导致的镍辐照缺陷演化的不同及PKA能量对镍初级辐照损伤的显著影响。图3给出金属镍在300 K和500 K时辐照级联热峰和稳态阶段的辐照缺陷分布的对比,采用的PKA能量为20 keV,入射方向为<122>和<100>。结合图2(a)和图3可以看出,对于模拟的三个方向,相对于500 K,300 K时的辐照级联可以更快地达到平衡状态,且300 K时的缺陷较为分散,这与300 K时缺陷的热峰比500 K温度下的下降更快的结果是一致的(图1(a))。这是由于不同温度下碰撞的能量传递与耗散效率不同导致的,温度越低,传递与耗散的效率较高,因此,温度为300 K时级联碰撞更快地达到稳态。

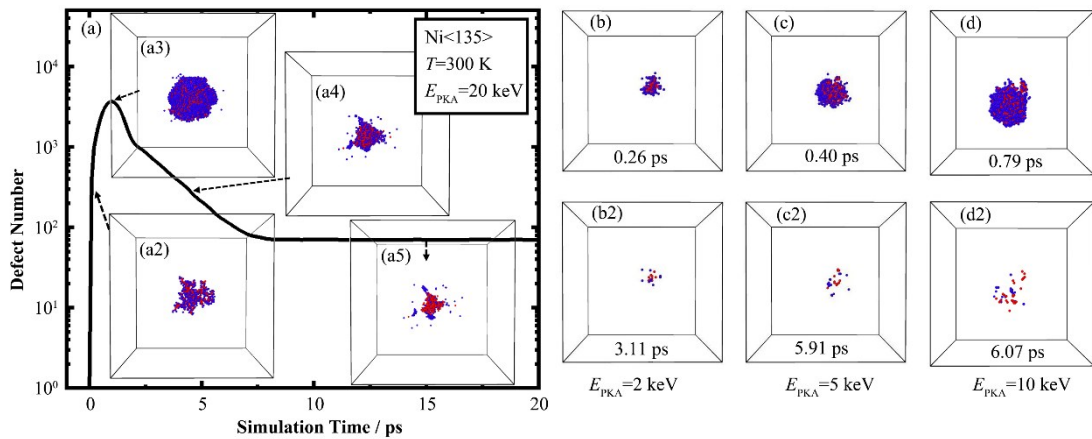


图2 金属镍在300 K、PKA入射方向为<135>时的缺陷演化和分布图

(a) 能量为20 keV时的级联碰撞缺陷随时间的演化图,其中(a2~a5)的缺陷分布分别为级联过程中碰撞、热峰、淬火、退火4个典型阶段的缺陷构型图。同一温度和入射方向下,PKA能量分别为2 keV、5 keV和10 keV时,热峰(b、c、d)和稳态(b2、c2、d2)的缺陷分布图(红球代表空位,蓝球代表间隙原子)(彩图见网络版)

Fig.2 Evolution of time-dependent defects in nickel at 300 K with PKA direction of <135>

(a) Defect evolution and arrangements in nickel with PKA energy of 20 keV; insets (a2~a5) are the typical defect arrangements during the four typical stages (collision, thermal peak, quenching, and annealing) of the displacement cascades. Defect distributions during the thermal peak stage (b, c, d) and annealing stage (b2, c2, d2) of nickel with PKA energies of 2 keV, 5 keV, and 10 keV (red sphere represents vacancy, and blue sphere represents interstitial atoms) (color online)

为了进一步研究辐照温度对级联损伤的影响,对金属镍在300 K、400 K和500 K温度下的级联效应进行了模拟和对比,选取的PKA能量为10 keV,入射方向为<135>(图4)。从图4(a)可以看出,随着温度的升高,辐照级联离位峰产生的缺陷数量增加,但稳态缺陷数量则降低。图4(b)为金属镍的稳态缺陷数量与PKA能量的关系,可以看出,稳态缺陷数量随着PKA能量而增加。在所计算的PKA能量范围,<135>和<100>晶向在500 K时的稳态缺陷数量略小于300 K时的缺陷数量,这主要是由于高温下缺陷回复率增加导致的。而对<122>晶向在PKA能量为20 keV时,则是温度较高的500 K温度下的稳态缺陷数量较高,这是由于温度增加使原子的振动加剧,促使原子离位和缺陷回复,而该辐照条件下

由于温度增加导致的缺陷的产生率的增加大于其缺陷回复率的增加导致的。因此,温度对不同方向缺陷演化的影响不同,PKA能量较低时,温度对不同方向辐照缺陷数量影响不大,随着PKA能量升高(>10 keV)温度对不同方向的辐照缺陷数量的影响显著增加。

2.2 金属铁、钨初级辐照损伤

本节采用相同的辐照条件(温度、PKA能量)对体心立方结构金属铁、钨的初级辐照损伤进行计算和分析。金属铁、钨辐照缺陷演化过程和金属镍相似,我们选取金属铁和钨在<135>晶向的辐照级联演化过程进行对比讨论。

图5(a)为金属铁在300 K和500 K时,入射方向

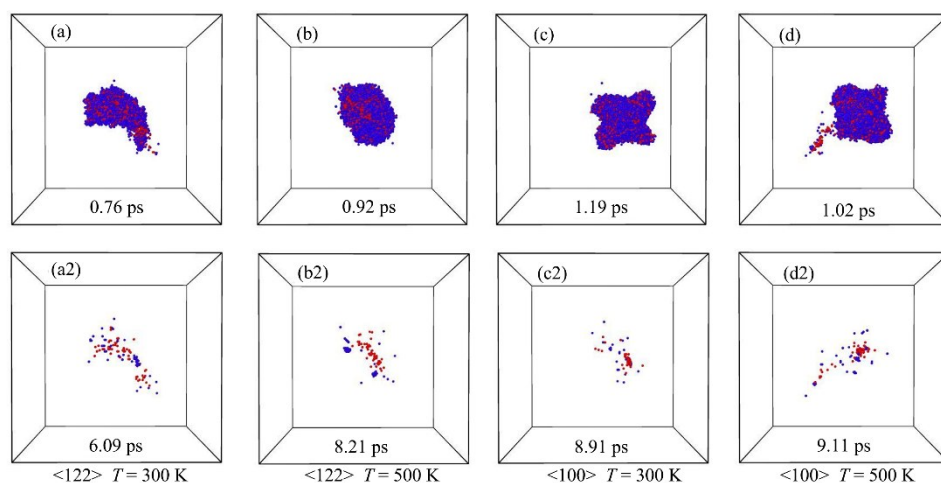


图3 PKA 能量为 20 keV、<122> (a, a2, b, b2)和<100> (c, c2, d, d2)方向时,金属镍在 300 K 和 500 K 温度下的级联碰撞导致的缺陷分布对比(红色球代表空位,蓝色球代表间隙原子)(彩图见网络版)

Fig.3 Comparison of the distribution of defects in nickel at 300 K and 500 K in <122> (a, a2, b, b2) and <100> (c, c2, d, d2) directions with PKA energy of 20 keV (red sphere represents vacancy, whereas the blue sphere represents interstitial atoms) (color online)

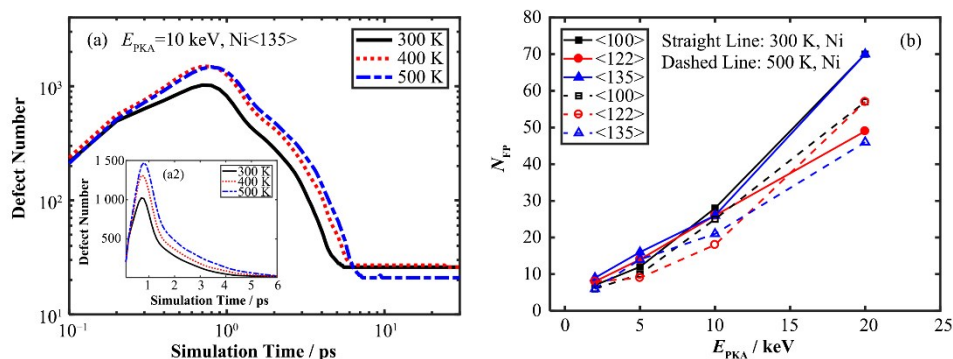


图4 (a) 不同温度下金属镍中辐照缺陷演化(PKA 能量为 10 keV,入射方向为<135>), (b) 金属镍在不同温度和晶向下的稳态缺陷数量随 PKA 能量的变化

Fig.4 (a) Defect number evolution of nickel in the <135> direction at various temperatures when the PKA energy is 10 keV, (b) Variation of steady-stage defect number of nickel at different temperatures and bombarding directions with PKA energies

<135>时的初级辐照损伤缺陷数随时间的演化曲线,可以看出,随着PKA能量的增加,热峰时辐照缺陷数量增加;当PKA能量较高时,热峰缺陷数量的增加显著;随着PKA能量的增加,到达热峰的时间也有所延迟。这和图1所示的金属镍在不同PKA能量下的初级辐照损伤随时间演化的变化趋势相似。然而,当PKA能量小于10 keV时,金属铁在500 K时的峰值辐照损伤较高;当PKA能量增加至20 keV时,其在300 K时的峰值缺陷数量则高于500 K时的缺陷数量。随着PKA能量的增加,材料中会不可避免产生次级联。如图5(a)温度为300 K、PKA能量为20 keV时,辐照2 ps时金属铁的辐照曲线有一个次峰出现,对应该时间的缺陷分布如图5(a2)所示,为典型的次级联缺陷簇。图5(b)为金属钨在300 K和500 K时,入射方向<135>时的初级辐照损伤缺陷数随时间的演化曲线,可以看出,金属钨在不同

PKA 能量下的辐照损伤缺陷演化过程与金属铁的变化趋势相似;相同辐照条件下,金属钨的离位峰值及稳态缺陷数量都小于金属铁。在所模拟的PKA能量范围内,金属钨的初级辐照损伤缺陷随时间的演化过程中没有出现明显的次级联过程。与金属铁类似,当PKA能量小于10 keV时,金属钨在500 K时的峰值辐照损伤较高;当PKA能量增加至20 keV时,其在300 K时的峰值缺陷数量则略高于500 K时的缺陷数量。

如图4(b)和图5(c)所示,我们进一步对比了金属铁、镍、钨的稳态缺陷数量随PKA能量的变化趋势。对于金属铁的辐照缺陷,当PKA能量较低时(≤ 10 keV),300 K温度下的稳态缺陷数量较高,而当PKA能量为20 keV时则是500 K温度下的稳态缺陷数较高。金属镍和金属钨中的稳态缺陷数随PKA能量的增加而增加,在所模拟的PKA能量范围

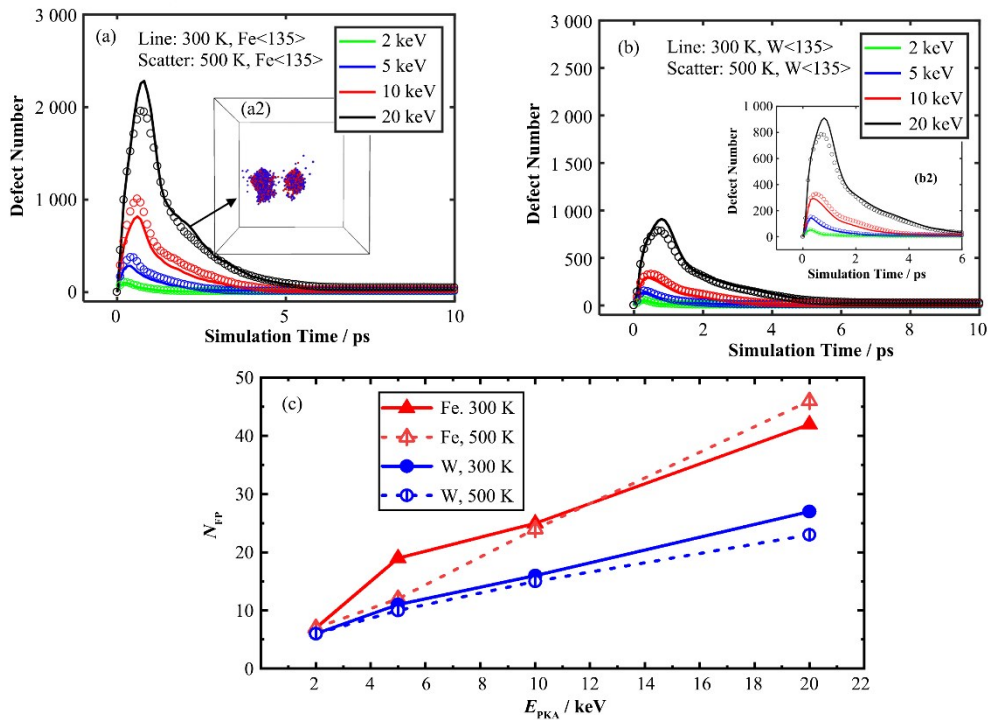


图5 金属铁(a)与钨(b)在不同PKA能量和温度下(c)的辐照缺陷变化曲线(<135>晶向), 其中(a2)为辐照产生的次级级联示意图,(b2)为图(b)的放大图

Fig.5 Variation curve of defect numbers of iron (a) and tungsten (b) with various PKA energies and bombarding in the <135> direction. (c) Steady-state defect numbers of iron and tungsten as a function of PKA energy and in the <135> direction. Inset (a2) is the secondary displacement cascade, whereas inset (b2) is the partially enlarged view of (b).

300 K时的稳态缺陷数要比500 K的略高。

根据§2.1的结果,金属镍的辐照损伤的分析在PKA能量较高时,不同温度和方向的缺陷将有明显差异,这里也给出了温度300 K,PKA能量为20 keV、入射方向为<135>时金属铁和钨的初级辐照损伤的热峰和稳态阶段的空位和间隙原子分布图(图6)。从图6可以明显看出,金属铁的辐照损伤缺陷数量较多,热峰出现的时间较晚,辐照级联的区域也更大。而金属钨中辐照损伤缺陷数量较少,缺陷分布也较为集中。这是由于钨的离位阈能较高,从而导致钨原子相对难以离位,从而金属钨中的缺陷数量较少。

金属材料辐照级联过程中,由于空位和自间隙原子复合导致热峰后缺陷数量逐渐减少至稳态阶段,对初级辐照损伤缺陷的复合率和存活率的分析可以对辐照损伤缺陷演化提供定量参考,并为介观尺度的团簇动力学模拟提供参数。如图7所示,我们计算了金属铁和钨在温度为300 K和500 K、入射方向为<135>时的缺陷复合率和存活率随PKA能量的变化,并和金属镍进行了对比。可以看出,三种金属的辐照缺陷复合率较高(>88%),相应的辐照缺陷存活率较低(<12%),因此,辐照后产生的点缺陷大部分都复合了,剩下少量的残留缺陷。缺陷复合率

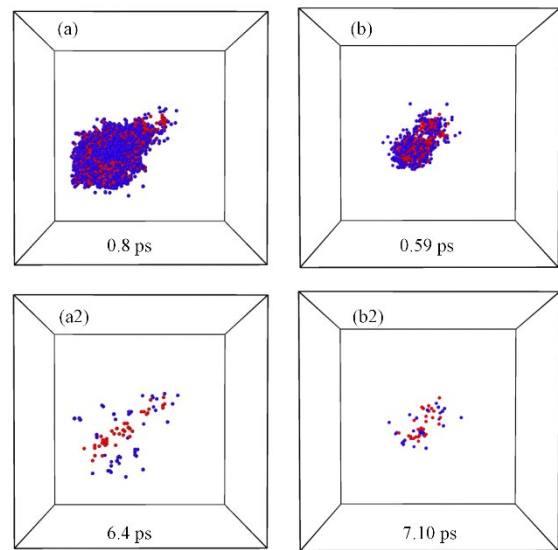


图6 PKA能量为20 keV时,温度为300 K、入射方向<135>时金属铁(a,a2)和钨(b,b2)中初级辐照损伤的热峰和稳态缺陷分布

Fig.6 Thermal peak and steady-state defect distribution in (a, a2) iron and (b, b2) tungsten at the thermal spike and annealing stages, respectively, in the <135> direction when the simulated temperature is 300 K and PKA energy is 20 keV

随着PKA能量而增大,且在PKA能量较低时的增速显著,当PKA能量为20 keV时金属铁的辐照缺陷复合率高达97%。相对应的缺陷存活率则随着PKA能量的增加而减少,其在PKA能量较低时减少较

快。在 PKA 能量较低时铁和钨两者的存活率和复合差异较大,而当 PKA 能量逐渐增加时,两者的初级辐照缺陷的复合率和存活率的差异大大减小。此外,从图 7 可以明显看出,金属钨随 PKA 能量增加的复合率最小,而相对应的存活率最大。造成三种金属中缺陷存活率差异的原因是三者中的原子经受辐照而发生离位的离位阈值不同,特别是钨的平均离位阈值(90 eV)远大于铁和镍的(约 40 eV)^[34],所以钨中原子在辐照情况下不仅较难以离位,从而产生离位缺陷的数量少,而且已经离位的原子也较难回复,相应的其中缺陷的存活率最高。

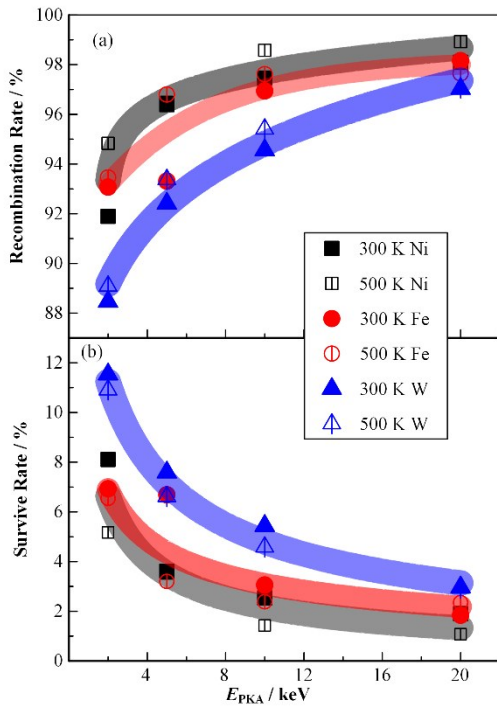


图 7 金属镍铁和钨<135>方向在 300 K 和 500 K 温度下模拟计算的复合率(a)和存活率(b)随 PKA 能量的变化
Fig.7 Variations of defect recombination (a) and survival (b) rates of nickel, iron, and tungsten with PKA energy at 300 K and 500 K and in the <135> direction

2.3 镍铁钨初级辐照损伤对比

基于§2.1 和 §2.2 面心立方结构金属镍、体心立方结构金属铁、钨的初级辐照损伤演化的结果,我们对三种金属的辐照损伤结果进行对比分析,进而理解其辐照损伤的微观机理。图 8 中汇总了分子动力学模拟得到的金属镍、铁、钨的稳态缺陷数随 PKA 能量的变化结果(不同温度、PKA 入射方向)。同时,我们采用 NRT 公式(式(1))和 Arc-dpa 模型(式(2))计算获得三种金属材料的辐照缺陷随 PKA 能量的变化,并与 MD 计算结果进行对比。这里需要说明的是,由于在 MD 模拟计算没有考虑电子损耗,采用 NRT 公式对相应的 PKA 能量的入射粒子导致

的离位缺陷数进行估计时,该入射粒子的损伤能即为 PKA 能量^[35]。

从图 8 可以看出,分子动力学模拟的不同温度、不同入射方向下金属铁和钨的稳态缺陷数随 PKA 能量的变化趋势与金属镍相似,都随着 PKA 能量而增加,且当 PKA 能量大于 10 keV 时,500 K 温度下的缺陷数大多小于 300 K 的缺陷数。与金属镍、铁相比,金属钨的辐照损伤缺陷数最少,表现出较好的抗辐照损伤能力;金属镍、铁的缺陷数量相当;在较高 PKA 能量(20 keV)下镍、铁的稳态缺陷数的差异略微明显,且金属镍的稳态缺陷数量比金属铁略高,对应铁的抗辐照损伤能力相对较好。此外,虽然金属铁和钨同为体心立方结构,但两者的稳态缺陷数差异较大,而且铁的稳态缺陷数则和镍的较接近,所以初级辐照损伤的稳态缺陷数和晶格结构的相关性不大,这和 Bacon 等^[14]计算的不同晶格结构的金属的初级辐照损伤模拟计算结果一致。

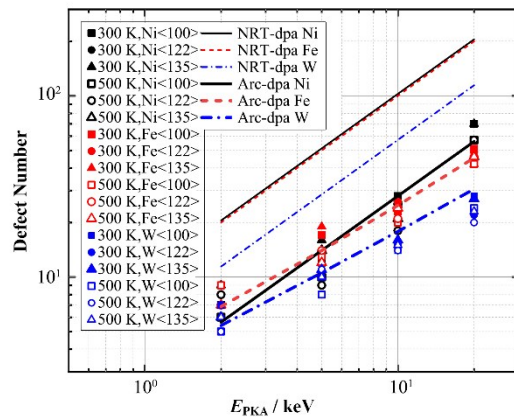


图 8 不同方法获得金属镍、铁、钨的辐照缺陷对比
Fig.8 Comparison of defect numbers of nickel, iron, and tungsten calculated by using various methods

从辐照损伤缺陷数量随 PKA 能量的变化趋势上看,通过 NRT 公式估算获得三种金属的缺陷随 PKA 能量的变化结果和 MD 结果趋势一致,金属镍和铁的辐照损伤缺陷非常接近,而钨的辐照损伤缺陷数要明显低于前两者。但 NRT 公式估算的缺陷数量要明显高于 MD 模拟计算的结果,这是由于 NRT 公式未考虑级联损伤过程的缺陷复合湮没和缺陷成团导致的。我们通过对材料 MD 的计算结果进行拟合,获得 Arc-dpa 模型中的材料参数如表 2 所示,这里计算的材料参数和 Nordlund 等^[34]给出的结果接近。从图 8 可以看出, Arc-dpa 模型的计算结果则给出了 MD 辐照级联缺陷结果的一个合理的平均描述,与分子动力学的计算结果接近。当 PKA 能量较高(>10 keV)时,金属镍中产生的稳态辐照损伤缺陷数要明显高于铁;而在较低 PKA 能量(<5 keV)

时,金属铁中辐照级联产生的稳态辐照损伤缺陷数则要比镍中的高一些。Xiao等^[36]采用改进的解析嵌入原子势(Modified Analytic Embedded Atom Method, MAEAM)计算的金属镍在100 K时的稳态缺陷数随PKA能量的变化与金属铁的对比结果有同样的变化趋势,其在100 K时金属镍、铁初级辐照产生稳态缺陷数量多少发生转变的能量约为10 keV,比本文计算的5 keV略高,这种不同可能是由于辐照温度不同导致的。此外,金属中的稳态缺陷数量是由于缺陷产生和复合过程共同决定的。结合图2、图6和图7可以看出,当PKA能量较低时,材

料中辐照产生的缺陷相对少,而镍和铁的复合率差异较大,镍的复合率较高,导致在PKA能量较低时金属镍中平均缺陷数要比铁的少。当PKA能量较高时,两者的缺陷复合率接近,而辐照产生的缺陷数则大幅增加,辐照产生的热峰的离位缺陷相应增加,此时镍辐照产生的热峰的缺陷数远大于铁,因此,PKA能量较高时,金属镍产生的平均离位缺陷数则明显大于金属铁。这为实验上不同金属材料的辐照损伤的不同提供了数据支撑,有利于帮助理解其耐辐照损伤性能异同。

表2 金属镍、铁和钨的Arc-dpa模型计算的材料参数
Table 2 Material parameters of nickel, iron, and tungsten used for the Arc-dpa model simulation

材料 Materials	离位阈能 E_d / eV	$b_{\text{Arc-dpa}}$		$C_{\text{Arc-dpa}}$	
		本文 This work	参考 Reference ^a	本文 This work	参考 Reference ^a
镍 Nickel	39	-1.962	-1.011	0.273	0.23
铁 Iron	40	-0.535	-0.568	0.179	0.286
钨 Tungsten	70	-0.374	-0.56	0.118	0.12

注: ^a Nordlund等计算的材料参数值^[34]

Note: ^a Material parameters calculated by Nordlund *et al.*^[34]

3 结语

本文采用分子动力学方法模拟了金属镍、铁和钨在300~500 K温度下、不同PKA能量(2~20 keV)、沿不同晶格方向(<135>、<122>和<100>)的辐照级联过程,获得材料缺陷演化及空位-间隙原子的数量、空间分布等。材料的辐照缺陷数量随着PKA能量、辐照温度而增大。辐照缺陷随PKA能量的变化可以采用Arc-dpa模型来描述。在模拟的温度和PKA能量范围内,金属钨的稳态缺陷数最少,空位和自间隙的分布也较为集中,表明金属钨具有较好的抗中子辐照性能。金属镍和铁的稳态辐照缺陷数量相当,其中当PKA能量较低(<5 keV)时,金属镍的稳态缺陷数量略少于铁;而当PKA能量较高(>5 keV)时,金属铁的稳态缺陷数量略少于镍;从缺陷分布对比可以看出,金属铁的稳态缺陷分布较为分散。金属中的稳态缺陷数量是由于缺陷产生和复合过程共同决定的。本文通过对三种金属辐照级联过程进行模拟,获得三种金属的初级辐照损伤数据集,相关结果帮助人们理解其耐辐照损伤性能异同,同时为更大尺度的速率理论和团簇动力学等模拟提供参数支持。

作者贡献声明 应红负责计算方案、数据分析、文章修改;温阿利负责计算实施、数据处理和分析、文章初稿撰写;周岁茹、海雪负责数据分析,程序验证;章文峰负责数据分析、研究经费、文章修改;任翠兰负

责计算方案、方法指导、研究经费、数据分析、文章修改;施海宁负责文章修改、方案指导;黄鹤飞负责文章修改、方案指导。

参考文献

- 1 Wang C X, Liu Z L, Chen W, *et al.* Effect of metallic ion products on the corrosion of GH3535 alloy in a eutectic (Li, Na, K) F melt[J]. Journal of Materials Research and Technology, 2023, 22: 1014 - 1025. DOI: 10.1016/j.jmrt.2022.11.174.
- 2 Vas J V, Pan J Q, Wang N L, *et al.* Plasma processed tungsten for fusion reactor first-wall material[J]. Journal of Materials Science, 2021, 56(17): 10494 - 10509. DOI: 10.1007/s10853-021-05917-y.
- 3 卢洪伟,倪志娇,查学军. 不锈钢和钨材料对东方超环(EAST)装置硬X射线诊断系统的影响[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2021, 39(4): 040701. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2021.rj.39.040701.
LU Hongwei, NI Zhijiao, ZHA Xuejun. Effects of stainless steel and tungsten on a hard X-ray diagnostics system in the Experimental Advanced Superconducting Tokamak (EAST)[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2021, 39(4): 040701. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2021.rj.39.040701.
- 4 刘泽,唐琳,张亚飞,等. W/316L不锈钢第一壁材料热

- 应力的模拟研究[J]. 核技术, 2022, **45**(7): 070601. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.070601](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.070601).
- LIU Ze, TANG Lin, ZHANG Yafei, *et al.* Simulation study on the thermal stress of W/316L stainless steel first wall material[J]. Nuclear Techniques, 2022, **45**(7): 070601. DOI: [10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.070601](https://doi.org/10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.070601).
- 5 Zinkle S J, Busby J T. Structural materials for fission & fusion energy[J]. Materials Today, 2009, **12**(11): 12 - 19. DOI: [10.1016/S1369-7021\(09\)70294-9](https://doi.org/10.1016/S1369-7021(09)70294-9).
- 6 Li Y G, Yang Y, Short M P, *et al.* IM3D: a parallel Monte Carlo code for efficient simulations of primary radiation displacements and damage in 3D geometry[J]. Scientific Reports, 2015, **5**: 18130. DOI: [10.1038/srep18130](https://doi.org/10.1038/srep18130).
- 7 Ziegler J F, Biersack J P, Ziegler M D. SRIM: the stopping and range of ions in matter[M]. Ion Implantation Press, 2008.
- 8 Stoller R E, Toloczko M B, Was G S, *et al.* On the use of SRIM for computing radiation damage exposure[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms, 2013, **310**: 75 - 80. DOI: [10.1016/j.nimb.2013.05.008](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2013.05.008).
- 9 Was G S. Fundamentals of radiation materials science [M]. New York, NY: Springer New York, 2017. DOI: [10.1007/978-1-4939-3438-6](https://doi.org/10.1007/978-1-4939-3438-6).
- 10 Chen X Y, Wen A L, Ren C L, *et al.* Theoretical prediction of radiation-enhanced diffusion behavior in nickel under self-ion irradiation[J]. Nuclear Science and Techniques, 2020, **31**(9): 95. DOI: [10.1007/s41365-020-00791-w](https://doi.org/10.1007/s41365-020-00791-w).
- 11 吕广宏. 聚变堆金属材料中子辐照多尺度计算模拟[J]. 原子能科学技术, 2021, **55**(1): 1 - 7. DOI: [10.7538/yzk.2020.youxian.0509](https://doi.org/10.7538/yzk.2020.youxian.0509).
- LYU Guanghong. Multiscale modeling and simulation of fusion metallic material under neutron irradiation[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2021, **55**(1): 1 - 7. DOI: [10.7538/yzk.2020.youxian.0509](https://doi.org/10.7538/yzk.2020.youxian.0509).
- 12 Stoller R E. Primary radiation damage formation[M]. Comprehensive Nuclear Materials. Amsterdam: Elsevier, 2012: 293 - 332. DOI: [10.1016/b978-0-08-056033-5.00027-6](https://doi.org/10.1016/b978-0-08-056033-5.00027-6).
- 13 Kwon J, Kim W, Hong J H. Comparison of the primary damage states in iron and nickel by molecular dynamics simulations[J]. Radiation Effects and Defects in Solids, 2006, **161**(4): 207 - 218. DOI: [10.1080/10420150600704013](https://doi.org/10.1080/10420150600704013).
- 14 Bacon D J, Gao F, Osetsy Y N. The primary damage state in fcc, BCC and HCP metals as seen in molecular dynamics simulations[J]. Journal of Nuclear Materials, 2000, **276**(1 - 3): 1 - 12. DOI: [10.1016/S0022-3115\(99\)00165-8](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(99)00165-8).
- 15 Setyawan W, Nandipati G, Roche K J, *et al.* Displacement cascades and defects annealing in tungsten, Part I: defect database from molecular dynamics simulations[J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, **462**: 329 - 337. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2014.12.056](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.12.056).
- 16 Warriar M, Bhardwaj U, Hemani H, *et al.* Statistical study of defects caused by primary knock-on atoms in FCC Cu and BCC W using molecular dynamics[J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, **467**: 457 - 464. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2015.09.025](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2015.09.025).
- 17 Plimpton S. Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics[J]. Journal of Computational Physics, 1995, **117**(1): 1 - 19. DOI: [10.1006/jcph.1995.1039](https://doi.org/10.1006/jcph.1995.1039).
- 18 Béland L K, Tamm A, Mu S, *et al.* Accurate classical short-range forces for the study of collision cascades in Fe-Ni-Cr[J]. Computer Physics Communications, 2017, **219**: 11 - 19. DOI: [10.1016/j.cpc.2017.05.001](https://doi.org/10.1016/j.cpc.2017.05.001).
- 19 Bonny G, Terentyev D, Pasianot R C, *et al.* Interatomic potential to study plasticity in stainless steels: the FeNiCr model alloy[J]. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2011, **19**(8): 085008. DOI: [10.1088/0965-0393/19/8/085008](https://doi.org/10.1088/0965-0393/19/8/085008).
- 20 Byggmästar J, Granberg F, Nordlund K. Effects of the short-range repulsive potential on cascade damage in iron [J]. Journal of Nuclear Materials, 2018, **508**: 530 - 539. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2018.06.005](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.06.005).
- 21 Chen Y C, Li Y H, Gao N, *et al.* New interatomic potentials of W, Re and W-Re alloy for radiation defects [J]. Journal of Nuclear Materials, 2018, **502**: 141 - 153. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2018.01.059](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.01.059).
- 22 Zhang W, Han H, Dai J X, *et al.* Simulation of migration and coalescence of helium bubbles in nickel[J]. Journal of Nuclear Materials, 2019, **518**: 48 - 53. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2019.02.023](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.02.023).
- 23 Owen E A, Yates E L. X-ray measurement of the thermal expansion of pure nickel[J]. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 1936, **21**(142): 809 - 819. DOI: [10.1080/14786443608561628](https://doi.org/10.1080/14786443608561628).
- 24 Goldschmidt H J. Advanced X-ray analysis[M]. NY: Plenum Press, 1962.

- 25 Dutta B N, Dayal B. Lattice constants and thermal expansion of palladium and tungsten up to 878 °C by X-ray method[J]. *Physica Status Solidi (B)*, 1963, **3**(12): 2253 - 2259. DOI: [10.1002/pssb.19630031207](https://doi.org/10.1002/pssb.19630031207).
- 26 Fu J, Chen Y C, Fang J Z, *et al.* Molecular dynamics simulations of high-energy radiation damage in W and W-Re alloys[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2019, **524**: 9 - 20. DOI: [10.1016/j.jnucmat.2019.06.027](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.06.027).
- 27 Stoller R E. The role of cascade energy and temperature in primary defect formation in iron[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2000, **276**(1 - 3): 22 - 32. DOI: [10.1016/S0022-3115\(99\)00204-4](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(99)00204-4).
- 28 Gao F, Chen D, Hu W Y, *et al.* Energy dissipation and defect generation in nanocrystalline silicon carbide[J]. *Physical Review B*, 2010, **81**(18): 184101. DOI: [10.1103/physrevb.81.184101](https://doi.org/10.1103/physrevb.81.184101).
- 29 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**(1): 015012. DOI: [10.1088/0965-0393/18/1/015012](https://doi.org/10.1088/0965-0393/18/1/015012).
- 30 Nordlund K, Averback R S. Point defect movement and annealing in collision cascades[J]. *Physical Review B*, 1997, **56**(5): 2421 - 2431. DOI: [10.1103/physrevb.56.2421](https://doi.org/10.1103/physrevb.56.2421).
- 31 Norgett M J, Robinson M T, Torrens I M. A proposed method of calculating displacement dose rates[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 1975, **33**(1): 50 - 54. DOI: [10.1016/0029-5493\(75\)90035-7](https://doi.org/10.1016/0029-5493(75)90035-7).
- 32 Kinchin G H, Pease R S. The displacement of atoms in solids by radiation[J]. *Reports on Progress in Physics*, 1955, **18**(1): 1 - 51. DOI: [10.1088/0034-4885/18/1/301](https://doi.org/10.1088/0034-4885/18/1/301).
- 33 Yang Q G, Olsson P. Full energy range primary radiation damage model[J]. *Physical Review Materials*, 2021, **5**(7): 073602. DOI: [10.1103/physrevmaterials.5.073602](https://doi.org/10.1103/physrevmaterials.5.073602).
- 34 Nordlund K, Zinkle S J, Sand A E, *et al.* Improving atomic displacement and replacement calculations with physically realistic damage models[J]. *Nature Communications*, 2018, **9**: 1084. DOI: [10.1038/s41467-018-03415-5](https://doi.org/10.1038/s41467-018-03415-5).
- 35 Bacon D J, Calder A F, Gao F, *et al.* Computer simulation of defect production by displacement cascades in metals [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms*, 1995, **102**(1 - 4): 37 - 46. DOI: [10.1016/0168-583X\(95\)80114-2](https://doi.org/10.1016/0168-583X(95)80114-2).
- 36 Xiao W J, Wu G Y, Li M H, *et al.* MD and OKMC simulations of the displacement cascades in nickel[J]. *Nuclear Science and Techniques*, 2016, **27**(3): 57. DOI: [10.1007/s41365-016-0057-y](https://doi.org/10.1007/s41365-016-0057-y).