

# 氦泡生长实验数据的反演模拟计算方法<sup>\*</sup>

郑 晖<sup>†</sup>

(北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

(2005 年 12 月 28 日收到, 2006 年 5 月 17 日收到修改稿)

介绍了基于“迁移-合并”机理的氦泡生长理论模型与蒙特卡罗模拟方法, 还研制了以上述算法为正算方式, 对实验数据进行反演的迭代方法. 最后应用这些方法对钚中氦泡生长实验数据进行了反演模拟计算, 得到了氦泡半径与迁移速率的关系, 并对计算结果作了分析.

关键词: 氦泡生长, 计算机模拟, 数据反演

PACC: 6170Q, 6630J, 6185

## 1. 引 言

材料在  $\alpha$  粒子辐射下, 内部会生成氦. 在大剂量中子辐射下, 诱发的  $(n, \alpha)$  反应也会在材料内部生成一定量的氦. 氦为惰性元素, 不与其他元素结合, 在材料中的溶解度极低<sup>[1]</sup>; 另外氦原子半径小, 容易在材料中迁移, 这使得材料中的氦倾向于以气泡形式析出<sup>[2]</sup>. 氦泡的存在对材料性质有相当大的影响<sup>[3]</sup>, 尤其是在氦泡半径较大、浓度较高时, 因此研究材料中氦泡生长规律有重要的意义<sup>[4]</sup>.

上世纪 60 年代以后出现了一些建立在“迁移-合并”机理上的简化理论模型<sup>[5]</sup>, 这些模型假设氦泡以整体形式作热运动迁移, 氦泡迁移速率与其大小有关, 两个氦泡相遇后会合并成一个更大的氦泡. 该理论在解释氦泡生长的标度律方面获得了很大的成功. 不过, 具体材料中的氦泡生长十分复杂, 很难用某个简单理论全部概括, 这也是 90 年代以后氦泡生长机理的研究发展缓慢的一个原因.

随着实验技术的发展, 各种材料中的氦泡生长数据也更丰富<sup>[4, 6, 7]</sup>, 对复杂的实验数据进行分析变得十分重要. 本文提出了一种建立在“迁移-合并”模型基础上的数据处理方法, 将未知因素归结到氦泡迁移速率与其半径的函数关系  $D(R)$  上. 通过计算机模拟及反演迭代技术, 得出与实验数据相符合的  $D(R)$  关系, 这样十分便于对氦泡生长机理的分析

与理解.

本文对“迁移-合并”模型作一简介, 介绍正算模拟方法, 包括时间步长的实时选取、空间尺度的转换技巧等; 重点介绍建立在正算模拟基础上, 对实验数据进行迭代模拟, 反演求解微观函数关系  $D(R)$  的方法, 介绍一个复杂的实例——金属钚中的氦泡生长, 包括由实验数据分析氦泡的力学状态, 介绍对钚中氦泡生长实验数据的反演模拟结果及分析、讨论.

## 2. 模型简介

氦泡生长现象十分复杂. 氦泡容易在材料中的空洞、位错、晶界等缺陷处聚集、生长. 不过, 即使没有这些缺陷, 氦泡仍能通过热运动而迁移、合并、长大, 这就是现在理解较完善的“迁移-合并”机理. 该机理可简述如下.

由于热运动, 氦原子和材料中其他原子会以很小的概率克服晶格势垒而在材料中迁移, 因此, 氦原子会不断地进出氦泡. 氦泡的中心, 即氦原子团簇中各原子的平均位置, 会以难以察觉的速率作随机运动, 如同作布朗运动的粒子一样. 一般来说, 氦泡越大, 这种随机运动就越弱、越慢. 不同大小的氦泡以不同的速率作无规运动, 而当两个氦泡相遇后, 会合并成一个更大的氦泡. 这样, 材料中的氦泡会越来越大.

单个原子的随机热迁移如何导致氦泡的整体迁

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号: 10135010)和中国工程物理研究院基金(批准号: 2002Z0104)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail: zheng\_hui@iapcm.ac.cn

移有不少理论上的研究,如有人提出了表面扩散<sup>[5,8]</sup>、体积扩散<sup>[9]</sup>、气体扩散<sup>[8]</sup>等假设.最终氦泡整体的扩散系数可写成幂函数形式<sup>[10]</sup>

$$D(R) = D_0 \left( \frac{R_0}{R} \right)^\alpha, \quad (1)$$

式中幂指数  $\alpha$  由氦泡迁移机理的类型决定.本文假设  $D_b(R)$  可以具有更一般的函数形式.

我们还需要对氦泡的状态进行描述.假设泡中的氦气与容器中的氦气满足相同的状态方程,本文使用文献[10]中的氦气状态方程形式.另外,我们需要对氦泡的力学状态作假设,最简单的情况是假设氦泡处于内、外力学平衡状态,即有

$$p = \frac{2\gamma}{R}, \quad (2)$$

式中  $\gamma$  为材料表面能.不过由于氦泡处于非平衡的生长过程,因此实际情况可能比上式复杂.实验表明,氦泡常处于超压状态,即有

$$p > \frac{2\gamma}{R}. \quad (3)$$

该认识源于新的、更丰富的实验数据<sup>[11]</sup>,因为现在实验可以同时知道氦泡半径、泡内气体密度,进而可以知道泡内气压.

本文通过对实验数据进行分析,直接得到泡内气压与半径的关系  $p(R)$ ,而不再假设力学平衡条件,取(2)式.

### 3. 模拟方法

由于氦泡作随机热运动,我们采用蒙特卡罗方法来直接模拟该过程<sup>[12-14]</sup>.

设半径为  $R$  的氦泡经过时间步长  $\Delta t$  后的位移为  $\Delta r$ ,则  $\Delta r$  的三个分量均满足高斯分布,且有

$$(\Delta r)^2 = 6D(R)\Delta t, \quad (4)$$

高斯分布变量  $\Delta x$ ,  $\Delta y$ ,  $\Delta z$  可按下列方式产生<sup>[15]</sup>:

$$c = \sqrt{-2D(R)\Delta t \ln u \cos 2\pi v}, \quad (5)$$

其中  $u, v$  为  $[0, 1]$  区间内均匀分布的随机数.

时间  $\Delta t$  后,我们察看任意两个氦泡是否相遇.在本文中,我们假设两个氦泡的间距等于其半径之和就会融合到一起.合并后氦泡的中心取在合并前两个氦泡的重心处,即按

$$\mathbf{r} = \frac{N_1 \mathbf{r}_1 + N_2 \mathbf{r}_2}{N_1 + N_2} \quad (6)$$

来确定.

模拟空间为边长等于  $L$  的立方空间,采用周期

性边界条件.由于合并,系统中氦泡总数不断减少.为使模拟的氦泡总数不会太少,不断增大模拟空间的尺寸.具体做法如下<sup>[12]</sup>:

设立方空间中氦泡的初始数量为  $N_0$ .当由于不断合并使氦泡总数减少至  $\frac{N_0}{8}$  时,将立方空间的边长增至  $2L$ .新的立方空间体积变为原空间的 8 倍,我们将原空间中的氦泡构形也复制 8 次到新的立方空间中.在这一步骤中,氦泡大小、分布等均没有变化,而数量恢复到了  $N_0$ .

在模拟过程中,氦泡大小、数量在变化,模拟空间的尺寸也在变化,因此模拟时间步长也需实时调整.

选取合适的模拟时间步长  $\Delta t$  十分重要. $\Delta t$  不能太大,否则按(5)式得到的氦泡位移量太大, $\Delta t$  时间内可能实际上已发生了与其他氦泡的相遇、合并,而没有被统计到; $\Delta t$  也不能太小,否则在  $\Delta t$  时间内发生氦泡合并事件的概率(简称为单步合并概率)就太小,大部分计算量就花在了模拟氦泡简单随机行走上.将单步合并概率控制在一个合适的范围十分必要.本文的计算中将单步合并概率控制在  $10^{-4}$  左右.

### 4. 反演方法

已知氦泡的力学状态  $p = p(R)$  以及迁移速率与半径的关系  $D(R)$ ,就可以按“迁移-合并”模型来模拟氦泡的生长过程,求出氦泡平均半径  $\bar{R}$ 、单位体积内氦泡数  $n_b$  随时间的演化关系等实验可以观测的物理量.这就是计算机模拟的正算过程.

假设氦泡状态可通过实验直接测得.在“迁移-合并”模型基础上,由实验数据  $\bar{R}(t)$  反演计算得到微观模型参量  $D(R)$ ,将十分便于对氦泡生长机理的分析.反演计算方法介绍如下.

任给正值函数  $D^{(0)}(R)$ ,由计算机模拟正算得到  $\bar{R}^{(0)}(t)$ ,与实验结果  $\bar{R}(t)$  比较后,给出新的函数  $D^{(1)}(R)$ ,再通过正算得到  $\bar{R}^{(1)}(t), \bar{R}^{(2)}(t), \dots$ ,依此类推.因此,参考实验结果提出合适的递推关系  $\bar{R}^{(n)}(t) \rightarrow D^{(n+1)}(R)$  使结果收敛是关键.

下面介绍我们使用的迭代递推形式.为说明方便,来看一个简单情况.

假设  $D(R)$  具有幂函数形式(1),且气泡内外平衡,则有

$$\bar{R} \sim t^{\frac{1}{a+1}}, \quad (7)$$

因此有

$$\frac{d \log t}{d \log \bar{R}} + \frac{d \log D(R)}{d \log R} = 1. \quad (8)$$

记  $\kappa(R)$  为  $\bar{R}(t)$  的逆函数, 则

$$\log [D(R)\kappa(R)] = \text{const}. \quad (9)$$

采用如下迭代形式:

$$D^{(n+1)}(R)\kappa(R) = D^{(n)}(R)t^{(n)}(R), \quad (10)$$

或

$$D^{(n+1)}(R) = D^{(n)}(R) \frac{t^{(n)}(R)}{\kappa(R)}, \quad (11)$$

在本文计算中, 该迭代形式能很好收敛.

### 5. 对钚中氦泡生长实验数据的分析

不断发展的实验技术提供了材料中有关氦泡的越来越多的信息. 由电子显微技术可测出氦泡的平均半径, 通过正电子湮没技术能测量氦泡中的气体密度, 进而推知泡内气体压强. 这样就可以从实验数据验证氦泡是否达到了力学平衡.

文献 [7] 对钚中氦泡的观测分别实现于  $T = 1073 \text{ K}$  和  $T = 1473 \text{ K}$  两个实验温度. 我们从该文献图中读取这两个温度的实验数据点. 结合氦气状态方程 [10], 计算了泡内气压.

对于一般金属材料, 表面能  $\gamma$  的量级为  $1 \text{ J/m}^2$ . 我们发现, 实验中氦泡明显处于超压状态. 考虑组合形式  $pn_{\text{He}}^\alpha$  与氦泡半径  $R$  的函数关系, 我们发现当  $\alpha = -\frac{1}{3}$  时,  $\log(pn_{\text{He}}^\alpha)$  与  $\log R$  之间有较好的线性关系, 且该关系与温度无关 (至少对  $T = 1073 \text{ K}$  和  $T = 1473 \text{ K}$  两个温度而言), 有

$$\log_{10}(pn_{\text{He}}^{-1/3} / \text{Pa} \cdot \text{m}) = -10.4 - 1.22 \log_{10}(R/m), \quad (12)$$

或写成如下形式:

$$pn_{\text{He}}^{-1/3} = 2\gamma_0 \left(\frac{R}{R_0}\right)^{-v}, \quad (13)$$

式中  $v = 1.22$ . 若令  $\gamma_0 = 1 \text{ J} \cdot \text{m}^{-2}$ , 则  $R_0 = 1.693 \text{ nm}$ . 式中  $p = p(n_{\text{He}}, T)$  为  $^4\text{He}$  气体状态方程, 采用 Trinkaus 的形式 [10]. 泡内原子数为

$$N = \frac{4}{3}\pi R^3 n_{\text{He}}. \quad (14)$$

联立 (13) (14) 式, 可得到关系式  $R(N, T)$ . 我们发现, 对于两个实验温度,  $\log_{10} N - \log_{10} R$  近似呈现分段线性关系, 拟合得到

$T = 1073 \text{ K}$  时,

$$\log_{10}(R/m) = \begin{cases} -10.12 + 0.412 \log_{10} N, & N < 10^{5.51}, \\ -12.43 + 0.831 \log_{10} N, & N > 10^{5.51}, \end{cases} \quad (15)$$

$T = 1473 \text{ K}$  时,

$$\log_{10}(R/m) = \begin{cases} -10.13 + 0.424 \log_{10} N, & N < 10^{5.32}, \\ -12.37 + 0.845 \log_{10} N, & N > 10^{5.32}. \end{cases} \quad (16)$$

### 6. 反演模拟计算结果与讨论

按模拟和反演方法对钚中氦泡生长实验数据作了反演模拟计算.

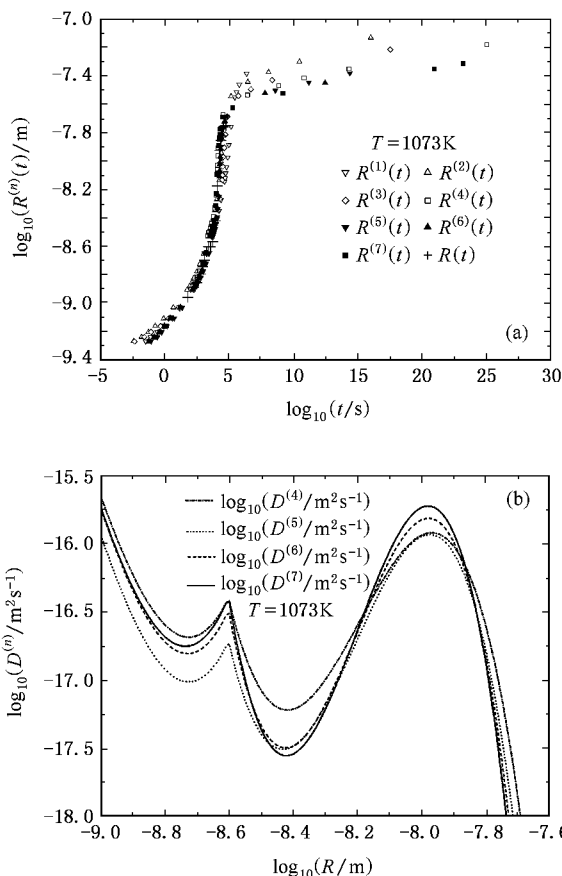


图 1 (a) 由温度  $T = 1073 \text{ K}$  的实验数据 [7] 反演计算的生存时间  $t$  与氦泡平均半径  $R^{(n)}$  间的关系 (b) 由温度  $T = 1073 \text{ K}$  的实验数据 [7] 反演得到的氦泡半径  $R$  与扩散系数  $D^{(n)}$  间的关系

模拟系统中的初始氦泡数目  $N_0 = 2000$ , 氦浓度按实验条件为  $100 \text{ appm}$ , 钚原子体积  $\Omega = 1.47 \times 10^{-29} \text{ m}^3$ . 在保证两两不相交的情况下, 氦泡初始位置随机给出. 每个初始氦泡含有 100 个原子. 经过长

时间模拟计算后,人为选取的影响将完全消失.

下面给出对 1073 K 和 1473 K 两个温度的实验数据的反演计算结果.

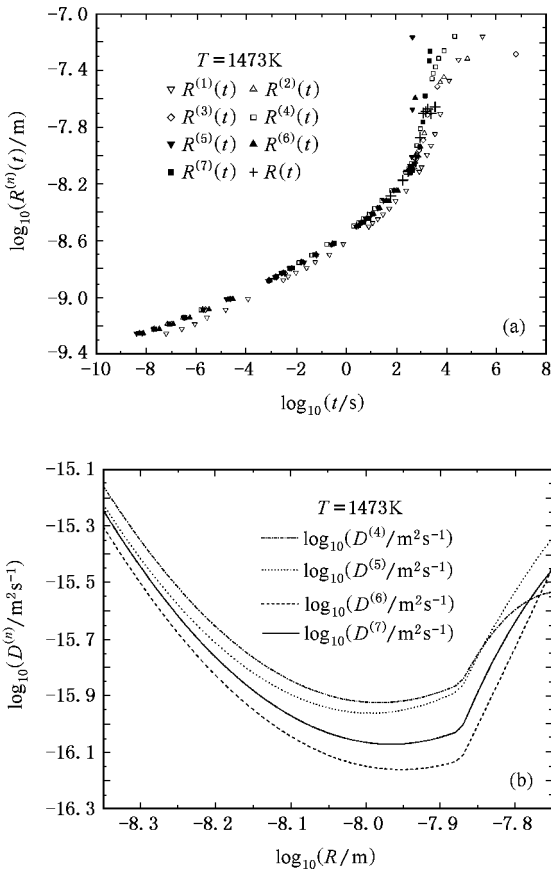


图 2 (a)由温度  $T = 1473\text{ K}$  的实验数据<sup>[7]</sup>反演计算的生长时间  $t$  与氦泡平均半径  $R^n$  间的关系 (b)由温度  $T = 1473\text{ K}$  的实验数据<sup>[7]</sup>反演得到的氦泡半径  $R$  与扩散系数  $D^{(n)}$  间的关系

在图 1(a)和图 2(a)中,符号“+”表示实验数据点.氦泡平均半径随时间变化的关系  $\bar{R}(t)$  明显偏离幂函数形式,而呈现分段函数形式,这样的反常生长现象非常复杂.从图 1(a)和图 2(a)可看出,迭代计算出的  $\bar{R}^{(n)}(t)$  很好地逼近了实验数据  $\bar{R}(t)$ ,相应地,可认为  $D^{(n)}(R)$  也将收敛到待求的  $D(R)$ .本文最终用  $D^{(7)}(R)$  作为数值反演的结果.

氦泡迁移速率-半径关系  $D(R)$  是“迁移-合并”模型最重要的一个微观函数,它的不同形式对应于不同的氦泡迁移机理.从图 1(b)和图 2(b)看出,反演得到的  $\log D^{1073\text{ K}}(R), \log D^{1473\text{ K}}(R)$  并不是负斜率的直线,所以  $D^{1073\text{ K}}(R), D^{1473\text{ K}}(R)$  不是简单的幂函数,甚至不是单调递减函数,而具有相当复杂的形式.

另外,  $D^{1073\text{ K}}(R)$  在  $R \approx 10^{-8.6}\text{ m}$  (约 2.5 nm) 左

右,  $D^{1473\text{ K}}(R)$  在  $R \approx 10^{-7.9}\text{ m}$  (约 13 nm) 左右显示出奇异性.从实验数据本身也能看出这样的转折点,不过反演计算能更敏感、准确地反映这种变化,即当氦泡长到一定大小时,其迁移、生长方式发生明显改变.

本文还考察了两个温度的反演结果  $D(R)$  的比值.

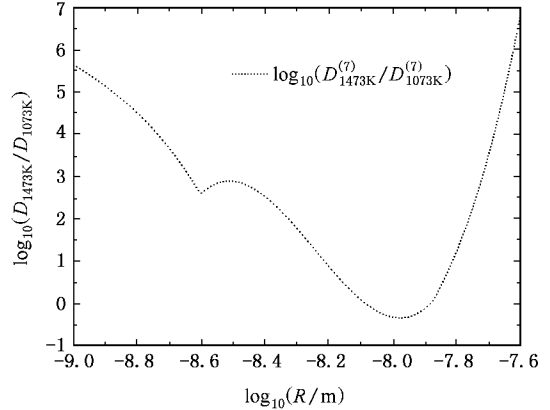


图 3 由实验数据<sup>[7]</sup>反演得到的氦泡半径  $R$  与两个温度下氦泡扩散系数之比  $D^{1473\text{ K}}(R)/D^{1073\text{ K}}(R)$  的关系

图 3 为  $\log(D^{1473\text{ K}}(R)/D^{1073\text{ K}}(R))$  关系,从中可看出  $D^{1473\text{ K}}(R)/D^{1073\text{ K}}(R)$  并不是常数.下面对此作一些解释和分析.

如果氦泡随机运动速率由某种最基本的过程(如氦原子在晶格中的扩散)决定,而原子扩散系数与温度的关系满足 Arrhenius 率

$$D_a = D_0 \exp(-E_d/k_B T), \quad (17)$$

式中  $E_d$  为氦原子在晶格中的迁移势垒.可见,氦泡演化对温度的依赖也将满足同样的关系,即有

$$D(R, T) = D_0(R) \exp(-E_0/k_B T), \quad (18)$$

则

$$\frac{D(R, T_2)}{D(R, T_1)} = \exp\left[\frac{E_0}{k_B} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)\right] \quad (19)$$

是与氦泡大小无关的常数.

反演计算结果  $D^{1473\text{ K}}(R)/D^{1073\text{ K}}(R)$  不是常数,说明在实验现象中起支配作用的基本热迁移过程不只一种,相应地,重要的迁移势垒值也不只一个.如果将  $D(R, T)$  简单地表示为

$$D(R, T) = \sum_i D_{0i}(R) \exp(-E_{0i}/k_B T), \quad (20)$$

则显然  $\frac{D(R, T_2)}{D(R, T_1)}$  不是常数,而与氦泡半径  $R$  有关.

相比于  $D^{1073\text{ K}}(R)$  和  $D^{1473\text{ K}}(R)$  的复杂形式,

$D^{1473\text{K}}(R)$  和  $D^{1073\text{K}}(R)$  的函数形式比较简单, 反映存在某种内在规律. 本文不作详细讨论.

“迁移-合并”模型抓住了氦泡生长过程的一些最本质的因素, 成为理解氦泡生长现象的一个重要基础. 不过, 由于材料及其微观结构的复杂性, 除共性外, 不同材料中的氦泡生长过程千差万别. 以本文处理的实验数据为例, 氦泡平均半径随时间变化的关系  $\bar{R}(t)$  明显偏离幂函数形式, 且呈现分段函数形式. 分析、研究这样的氦泡反常生长过程有很大的困难.

一方面, 要采用不同的实验方法, 以获取更多、更高精度的实验数据, 并作交叉检验; 另一方面, 要增加分析、处理实验数据的方法与技术手段. 本文给出了一种在“迁移-合并”模型的框架下, 结合正算模

拟、迭代反演求解模型的微观参数(包括函数形式)的方法, 这样得到“迁移-合并”模型的  $D(R)$  关系, 将非常有利于氦泡生长机理的分析.

## 7. 结 论

本文基于“迁移-合并”机理, 建立了氦泡生长的理论模型与蒙特卡罗模拟方法, 包括模拟时间步长的选取、空间尺度转化方法等, 还研制了以上述算法为正算方式, 对实验数据进行反演的迭代方法. 最后应用这些方法对钚中氦泡生长实验数据进行了反演模拟计算, 得到了氦泡半径与迁移速率的关系, 并对计算结果作了分析.

- 
- [ 1 ] von den Driesch H J, Jung P 1980 *High Temperatures-High Pressures* **12** 635
- [ 2 ] Thomas G J 1983 *Radiation Effects* **78** 37
- [ 3 ] Kaletta D 1983 *Radiation Effects* **78** 245  
Schroeder H 1983 *Radiation Effects* **78** 297
- [ 4 ] Zhang C H, Chen K Q, Wang Y S, Sun J G 1997 *Acta Phys. Sin.* **46** 1774 ( in Chinese ) [ 张崇宏、陈克勤、王引书、孙继光 1997 物理学报 **46** 1774 ]
- [ 5 ] Barnes R S, Mazey D J 1963 *Proc. R. Soc. Lond. A* **275** 47
- [ 6 ] van Sicle C D W, Wright R N 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3892
- [ 7 ] Rajaraman R, Viswanathan B, Valsakumar M C, Gopinathan K P 1994 *Phys. Rev. B* **50** 597
- [ 8 ] Barnes R S, Nelson R S 1965 *Proc. Conf. Radiation Effects* ( New York : Gordon and Breach ) p225
- [ 9 ] Nichols F A 1969 *J. Nucl. Mater.* **30** 143
- [ 10 ] Trinkaus H 1983 *Radiat. Eff.* **78** 189
- [ 11 ] Donnelly S E, Evans J H 1991 *NATO Advanced Study Institute Series B : Physics* **279** 1
- [ 12 ] Evans J H, Escobar Galindo R, van Veen A 2004 *Nucl. Instr. Meth. B* **217** 276
- [ 13 ] Wang X P, Xie F, Shi Q W, Zhao T X 2004 *Acta. Phys. Sin.* **53** 2699 ( in Chinese ) [ 王晓平、谢 峰、石勤伟、赵特秀 2004 物理学报 **53** 2699 ]
- [ 14 ] Tang J, Yang X Q, Qiu K 2005 *Acta. Phys. Sin.* **54** 3307 ( in Chinese ) [ 唐 军、杨先清、仇 康 2005 物理学报 **54** 3307 ]
- [ 15 ] Wang Z K 1991 *Collection of mathematical formulas in common use* ( Chongqing : Chongqing Press ) p867 [ 王梓坤 1991 常用数学公式大全( 重庆 : 重庆出版社 ) 第 867 页 ]

# A new inversion simulation method for analyzing experimental data of helium bubble growth in materials<sup>\*</sup>

Zheng Hui<sup>†</sup>

( *Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China* )

( Received 28 December 2005 ; revised manuscript received 17 May 2006 )

## Abstract

Using Monte Carlo method, the helium bubble growth model based on the “ migration-coalescence ” mechanism is studied in this paper. Based on the simulation, an inversion method of analyzing the experimental data is developed and finally applied to palladium.

**Keywords** : helium bubble growth, computer simulation, inverse analysis of data

**PACC** : 6170Q, 6630J, 6185

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10135010 ) and the CAEP Foundation ( Grant No. 2002Z0104 ).

<sup>†</sup> E-mail : zheng\_hui@iapcm.ac.cn