

嵌入原子法计算金属钷中点缺陷的能量*

敖冰云^{1)†} 汪小琳¹⁾ 陈丕恒¹⁾ 史 鹏¹⁾ 胡望宇²⁾ 杨剑瑜²⁾

1) (表面物理与化学国家重点实验室, 绵阳 621907)

2) (湖南大学应用物理系, 长沙 410082)

(2009 年 6 月 23 日收到; 2009 年 10 月 9 日收到修改稿)

钷因放射性衰变而出现老化效应. 钷中点缺陷的性质和行为是理解钷老化效应的一个基础和前提. 运用分子动力学模拟技术, 计算了金属钷中点缺陷和点缺陷团簇的形成能和结合能. 其中钷-钷、钷-氦和氦-氦相互作用势分别采用嵌入原子多体势、Morse 对势和 Lennard-Jones 对势. 计算结果表明, 单个自间隙原子易以 $\langle 100 \rangle$ 哑铃状形态存在; 间隙氦原子在理想晶格的八面体间隙位置相对较为稳定; 氦原子与空位的结合能较大, 在钷的自辐照过程中两者易于结合并形成氦-空位团簇; 氦-空位团簇的形成能随氦原子数的增加而增大, 当氦与空位的数目相等时, 组态较为稳定; 晶界核心对氦原子和自间隙原子具有较强的俘获能力, 对空位的俘获能力则相对要弱.

关键词: 钷, 点缺陷, 嵌入原子法, 辐照损伤

PACC: 6172Q, 6630J, 6185

1. 引 言

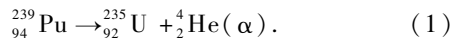
钷为元素周期表中的 94 号元素, 因其优异的核性质而得到广泛应用. 钷处在元素周期表锕系元素中间位置. 金属的固态特性由其电子特性决定. 锕系元素 5f 电子未填满, 从铀到镅, 价电子由离域向局域变化, 而钷恰恰位于离域与局域的界面, 其性质易受温度、压力和成键等的影响. 因此, 钷呈现出异乎寻常的特性, 被认为是周期表中最复杂的元素^[1, 2]. 自 1941 年被发现以来, 科学家在钷领域开展了大量的应用研究和基础研究工作, 然而, 其很多性质仍然使人迷惑. 当今钷领域研究的焦点集中在如何理解和预测钷长期贮存的安全性和有效性, 这是因为钷在不同的贮存状态下会发生不同程度的化学腐蚀和自辐照老化. 然而, 由于钷的放射性、毒性和较强的化学活性, 很难广泛而深入地开展有关钷的实验工作. 因此, 建立钷老化的计算模型一直是钷领域研究中的重要方向^[1]. 各国研究人员运用先进的量子力学第一性原理计算以及原子尺度的模拟技术较为广泛地开展了钷固态、表面和缺陷等方面的性质研究, 目前在钷及其合金的氧化物结构和反应特性、5f 电子特性、晶格动力学、超导性质

和自辐照级联碰撞中缺陷的演化等方面取得了一定的认识.

但是, 钷低对称性的基态晶体结构、超重核的相对论效应、自旋-轨道耦合效应和不寻常的电子间的交换-关联作用使得传统的电子结构计算方法面临着严峻的挑战^[3-7]. 目前报道的一些“漂亮”的计算结果只是非常小的一部分, 大多数研究人员的计算结果仍在等待强有力的实验来验证. 另一方面, 原子尺度的模拟技术因程序简单、计算量小以及可以处理复杂体系等优点而越来越多地运用于钷的一些实际问题的研究, 最为典型的的就是钷自辐照过程的分子动力学和蒙特卡罗模拟. 本文采用了以嵌入原子法为主的分子动力学方法, 计算了金属钷中氦原子、空位和自间隙原子等点缺陷及其复合体的形成能和结合能, 为进一步研究钷的自辐照老化效应提供了一定的基础数据.

2. 钷的自辐照特征

钷衰变产生 α 粒子与反冲铀核, 对 ²³⁹Pu 这一过程如下:



α 粒子带走大部分能量(约 5 MeV), 通过钷晶

* 国家自然科学基金(批准号:20801007)资助的课题.

† E-mail: aobingyun24@yahoo.com.cn

体中的射程约为 $10\ \mu\text{m}$, 其动能的 99.9% 都转移给电子并俘获两个电子成为 ^4He 原子, 仅在路径的末端引起核碰撞的离位损伤. 平均一个 α 粒子大约可产生 265 个 Frenkel 对缺陷-空位和钷的自间隙原子. 钷核携带的能量相当小 ($\sim 86\ \text{keV}$), 射程只有 $12\ \text{nm}$, 但是钷核与钷核的质量相差很小, 可以忽略不计. 它立即经历一个高能、近乎弹性碰撞的分支级联过程, 依次发生二次碰撞, 核能量损失占 65%, 可产生 2290 个 Frenkel 对缺陷^[1].

钷也可发生 β 衰变. 另外 α 衰变的子体 ^{235}U 核由激发态回到基态释放出几十种不同能量的 γ 射线, 对钷也造成自辐照. 钷晶体中的 Frenkel 对缺陷和杂质缺陷形成初始缺陷. 初始缺陷经过连续的演化, 产生高密度分布的点缺陷和缺陷团簇. 虽然 ^{239}Pu 的半衰期长达 24000 年, α 衰变引起的离位损伤率约为 $0.1\ \text{dpa/a}$ (即每年每个原子平均离位的概率), 其衰变速率仍然足以使钷在几十年的时间内积累相当多的氦和辐照损伤. 自辐照过程中, 大部分离位原子很快就回到晶格点, 余下的空位、自间隙和杂质缺陷 (特别是其中的氦原子) 促使钷的显微结构发生变化. 包括空洞和氦泡等扩展缺陷的成核和长大、位错结构的变化以及合金正常相分解过程的加速和转变. 而相应的机械性能改变一般包括变硬、延展性和断裂强度降低、蠕变速率变大、蠕变断裂时间变短以及不同环境下产生裂纹的灵敏度增大. 这些结构上的变化可能会改变钷材料和力学性质的完整性, 甚至会影响其在实际情况下的使用^[8-11].

3. 计算方法

完整地理解金属中缺陷的行为需要采用原子尺度的计算机模拟方法, 其中分子动力学是研究材料缺陷问题的重要方法. 应用分子动力学技术, 可以较为直接地研究固体材料中的缺陷行为^[12-16]. 成功应用分子动力学的一个关键因素就是金属钷的原子间相互作用势. 我们已经自主开发了能重现面心立方金属钷性质的嵌入原子多体 (EAM) 势, 并对所建立的 EAM 势进行了相应的检验, 包括晶格性质、空位形成能、弹性模量、声子谱和熔点等的计算. 结果表明, 金属钷 EAM 势基本上能重现这些性质, 适合于金属钷的原子尺度模拟研究. 钷-氦和氦-氦原子间相互作用势分别采用 Morse 对势和

Lennard-Jones 对势^[17].

本文采用的分子动力学程序为 MOLDY 开源程序^[18]. 该程序采用预测-校正方法、周期性边界条件. 模拟主要采用 NPT 系综 (等温等压系综). 研究体系大小的选择主要是根据点缺陷和氦原子数目的多少、体系的复杂程度、感兴趣的量以及计算机硬件能力而定. 其中较小的体系为 $10a_0 \times 10a_0 \times 10a_0$ (a_0 为面心立方金属钷的晶格参数) 超晶胞结构, 包含 4000 个钷晶格点, 主要是研究少数点缺陷和氦-空位团簇的行为. 较大的体系是上万个钷原子, 主要研究扩展缺陷 (如晶界、位错和空洞) 与氦的相互作用以及氦泡的一些宏观行为, 比如氦泡压力和基体的膨胀等. 各类计算模型是经过充分的分子动力学高温退火弛豫后得到的平衡构型. 本文首先介绍金属钷中点缺陷的能量计算结果.

4. 计算结果和讨论

4.1. 空位和自间隙原子

空位 (vacancy, 简写成 V) 和自间隙原子 (self-interstitial atom, 简写成 SIA) 是金属中最基本的点缺陷. 它们分别相应于空缺一个原子的点阵位置和占据间隙位置原子. 构建钷 EAM 势时拟合了钷的单空位形成能. 显而易见, 用这套 EAM 势计算钷的单空位形成能为 $0.90\ \text{eV}$, 即 $E_f(\text{V}) = 0.90\ \text{eV}$. 自间隙原子的情形比较复杂, 这主要是因为晶格畸变比较大. 面心立方晶体中最大的间隙位置是八面体间隙位置, 然而自间隙原子的引入仍然使周围的原子产生较大的形变, 不利于自间隙原子的稳定存在. 因而, 自间隙原子会以另外的结构形式出现, 其中常见的形式就是沿图 1(a) 所示的三个晶向呈哑铃 (dumb-bell) 状态或挤列 (crowdion) 状态分布. 图 1(b) 和 (c) 分别为 $\langle 100 \rangle$ 方向的哑铃组态和 $\langle 110 \rangle$ 方向的挤列组态. 图 1(b) 中的哑铃组态相当于一个体心八面体间隙位置的自间隙原子将晶格点阵上的一个近邻原子 (虚线圈) 挤离了平衡位置, 图 1(c) 中的挤列组态相当于沿密排方向, 有 $(n+1)$ 个原子挤占了 n 个晶格原子位.

应用分子动力学模拟方法, 建立 4000 个钷原子的计算体系用于点缺陷形成能的计算. 首先经 $300\ \text{K}$ 等温退火后得到 4000 个钷原子理想晶格的构型总能 $E_c(4000\text{Pu})$, 然后再设置不同的自间隙原子组

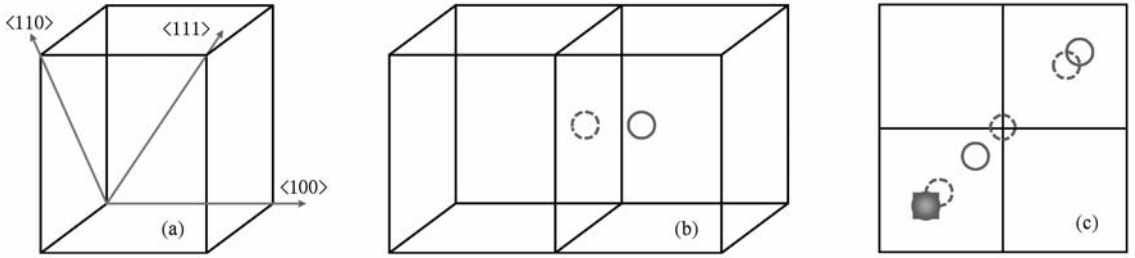


图 1 面心立方晶体中的自间隙原子 (a) 面心立方晶体的三个晶向, (b) $\langle 100 \rangle$ 哑铃组态, (c) $\langle 110 \rangle$ 挤列组态

态,经同样的退火过程后得到 4001 个钚原子体系的构型总能 $E_c(4001\text{Pu})$. 自间隙原子的形成能按下式计算^[19, 20]:

$$E_f(\text{SIA}) = E_c(4001\text{Pu}) - E_c(4000\text{Pu}) - E_c(\text{Pu}), \quad (2)$$

式中 $E_c(\text{Pu})$ 为单个钚原子在自由表面的构型能,该值近似取 4.2 eV,即为拟合钚 EAM 势使用的单个钚原子的内聚能. 不同的自间隙原子组态的形成能计算结果如表 1 所示. 从能量的角度来分析, $\langle 100 \rangle$ 哑铃状间隙原子对是相对稳定的自间隙原子组态,其次是八面体间隙位. 然而这两种组态的形成能差别并不大. 所有的组态中,四面体间隙位是最不稳定的组态,这是因为面心立方晶体中四面体间隙空间体积太小所致.

表 1 钚中自间隙原子的形成能

构型	四面体间隙	八面体间隙	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$	$\langle 111 \rangle$
E_f/eV	3.04	2.36	2.27	2.83	2.74

4.2. 氦原子

单个氦原子的各种能量是研究氦原子在基体中行为的基础数据. 这些能量通常包括单个氦原子在不同位置的形成能和结合能,比如氦在晶格间隙、空位、表面、晶界、位错和杂质原子等位置.

氦原子作为杂质间隙原子,因其原子半径约为钚原子半径的一半,所以间隙氦原子引起的晶格畸变相对要小. 有关单个氦原子的间隙形成能的计算通常只考虑四面体间隙位和八面体间隙位两种情况. 计算体系仍选择为 4000 个钚原子的理想晶格体系. 氦原子的间隙形成能由下式计算:

$$E_f^{\text{int}}(\text{He}) = E_c(4000\text{Pu} + 1\text{He}) - E_c(4000\text{Pu}) - E_c(\text{He}), \quad (3)$$

式中上标 int 表示间隙原子, $E_c(\text{He})$ 为 fcc 晶体结构时的单个氦原子的内聚能, $E_c(\text{He}) = 0.0071$ eV.

计算得到氦原子在四面体间隙位和八面体间隙位的形成能分别为 2.46 和 2.30 eV. 由此可见,氦原子在八面体间隙位置相对稳定. 实际上,在模拟过程中,如果不固定四面体间隙位的氦原子,它很容易迁移至相邻的八面体间隙位.

替位氦原子是指氦原子结合一个空位形成的组态,相应的形成能即为替位氦原子形成能,其计算表达式为

$$E_f^{\text{sub}}(\text{He}) = E_c(3999\text{Pu} + 1\text{He} + 1\text{V}) - E_c(3999\text{Pu} + 1\text{V}) - E_c(\text{He}), \quad (4)$$

式中上标 sub 表示替位原子. 计算得到替位氦原子的形成能为 1.53 eV. 替位氦原子的结合能表示氦原子与空位的结合能,其计算表达式为

$$E_b^{\text{sub}}(\text{He}) = E_f(\text{V}) + E_f^{\text{int}}(\text{He}) - E_f^{\text{sub}}(\text{He}). \quad (5)$$

计算得到替位氦原子的结合能为 1.67 eV. 由此可见,单空位结合单个氦原子的能力非常强,基体中的氦原子很容易以氦-空位结合体的形式存在. 对于经受辐照或者自辐照的金属而言,基体中空位浓度较高,氦-空位团簇的结合状态尤为普遍.

4.3. 氦-空位团簇

He_nV_m 团簇形成能的计算表达式为

$$E_f(\text{He}_n\text{V}_m) = E_{\text{tot}}(\text{He}_n\text{V}_m) - nE_c(\text{He}) - (N - m)E_c(\text{Pu}), \quad (6)$$

其中 $E_f(\text{He}_n\text{V}_m)$ 为 He_nV_m 团簇的形成能; $E_{\text{tot}}(\text{He}_n\text{V}_m)$ 为计算体系的构型总能,即包括金属原子的能量; n 和 m 分别表示氦原子数和空位数; N 表示计算体系的理想晶格点数目,因而 $(N - m)$ 表示钚原子数目. 当 $n = 0$,即没有氦原子时,该式可计算空位团簇的形成能.

本例中的计算体系为 4000 个钚原子. 计算 He_nV_m 团簇形成能之前,首先需确定空位团簇的大小和结构. 空位团簇的形成首先由单空位开始,然后将计算体系中能量最高的钚原子移去,形成双空

位, 这样就可计算双空位的形成能. 不断重复这一过程, 空位数逐渐增加, 得到不同结构和大小的空位团簇. 在此基础上, 首先向空位团簇中引入一个氦原子, 计算出 He_1V_m 的形成能, 然后再逐一引入氦原子, 依次计算出 He_nV_m 的形成能. 本文中最大的空位团簇包含 25 个空位, 而 He_nV_m 团簇中氦的原子密度最高达 7, 即 $n/m \leq 7$.

图 2 为 He_nV_m 团簇形成能的部分计算结果, 氦原子数或空位数较大时的计算结果没有在图中显示. 图 2(a) 中每条曲线表示空位数固定的情况下,

He_nV_m 团簇的形成能随氦原子数的变化关系. 由图 2(a) 可见, 随着氦原子的不断引入, He_nV_m 团簇的形成能缓慢增加. 当 n/m 的值达到 1 时, He_nV_m 团簇的形成能增加较为迅速, 这表明 He_nV_m 团簇中最稳定的构型为一个氦原子占据一个空位, 即 $n/m = 1$. 从图 2(b) 也可以得出这一结论. 不同的是在图 2(b) 中, 每条曲线表示氦原子数固定, He_nV_m 团簇的形成能随空位数的增加首先降低, 当 n/m 的值达到 1 时, 形成能开始缓慢增加.

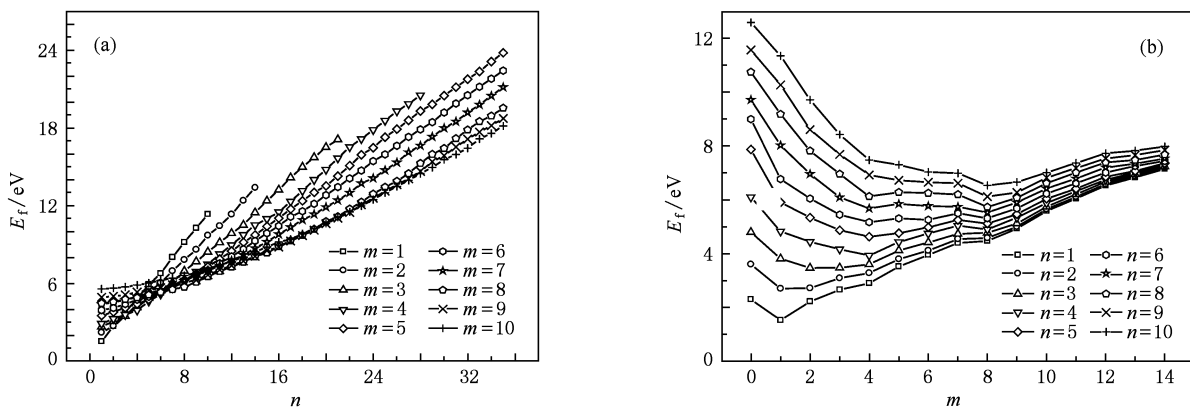


图 2 He_nV_m 团簇形成能 (a) 与氦原子数的关系, (b) 与空位数的关系

氦为惰性气体元素, 核外电子为满壳层电子结构, 因而氦与金属的结合能力非常弱. 关于这一点, 从金属和氦之间的原子间相互作用势就可以得知. 初始引入金属中的氦原子处于一种不稳定的状态. 氦原子具有在金属内部电子密度相对较低的区域聚集成团的趋势, 形成相对较为稳定或亚稳定的状态. 金属中的空位、空位团簇、晶界、位错以及微细裂纹等都是氦原子聚集的主要区域. 对于金属钷而言, 因其自辐照效应, 基体中的空位或空位团簇的浓度较大, 氦原子易于与这些空位或空位团簇结合, 形成 He_nV_m 团簇. 但是, He_nV_m 团簇的大小受氦原子数和空位数的限制, 不可能无限制地长大. 以氦原子进入 1 个空位为例, 当第 1 个氦原子进入这个空位后, 空位被氦原子占据, 此时的 He_1V_1 团簇处于一种较稳定的结合状态. 当第 2 个氦原子进入 He_1V_1 团簇后, 由于单个空位的体积不足以同时容纳 2 个氦原子, 因此 2 个氦原子以空位为中心呈对称分布. 此时形成的 He_2V_1 团簇不如 He_1V_1 团簇稳定, 具体表现在图 2(a) 中形成能迅速增加. 当然, 从图 2(b) 同样可以解释这一现象. 以 $n=1$ 为例, 当氦原子周围不存在空位时, 氦原子处于晶格间隙

位, 能量较高; 当氦原子周围有 1 个空位时, 氦原子与空位结合形成相对稳定的 He_1V_1 团簇, 能量较低; 当氦原子周围存在更多的空位时, 氦原子几乎处于一种相对自由的状态, He_1V_m 团簇形成能缓慢增加, 其增加量主要来源于空位团簇形成能的增加. 实际上, He_nV_m 团簇形成能的变化反映了团簇中氦原子、空位和自间隙原子的结合状态以及团簇中的压力大小, 这正是需要我们深入研究和探讨的一个重要问题.

4.4. 晶界处点缺陷的能量

对于没有经过特殊加工工艺制备出的金属样品而言, 基体内不可避免地存在一些其他缺陷. 其中最典型的就晶界 (GB) 和位错两种扩展缺陷, 这些扩展缺陷对于氦泡的形成和长大同样起到重要的作用. 对于金属钷, 其内部一直经受自辐照过程. 根据金属的辐照效应理论可知, 这一过程总是伴随着位错和晶界的不断形成, 因此金属钷中总是含有较高密度的位错和晶界. 已有的实验研究表明^[1], 钷合金样品中氦泡的分布基本上有两种形式, 室温贮存的样品中以微小的氦泡均匀分布在晶格内部

为主,高温退火样品中有一些较大的氦泡缀饰在位错和晶界处.由此说明,虽然在室温条件下并没有在位错和晶界处观察到较大的氦泡,但毋庸置疑的是,位错和晶界是氦泡热力学相对稳定的聚集地.可以预言,金属钷样品经足够长时间的室温贮存后,氦原子会在位错和晶界处聚集成氦泡.因此,准确理解氦原子在位错和晶界处的原子行为对于研究金属钷中氦泡的行为具有一定的指导意义.本文首先给出点缺陷在晶界的形成能和结合能计算结果.

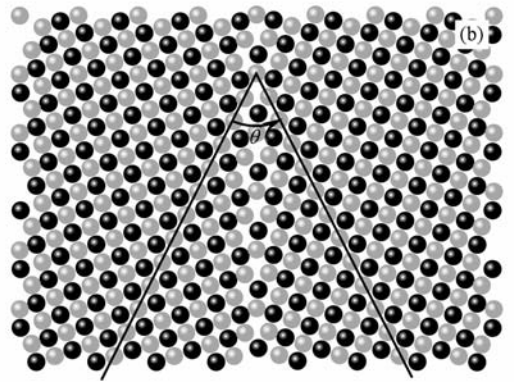
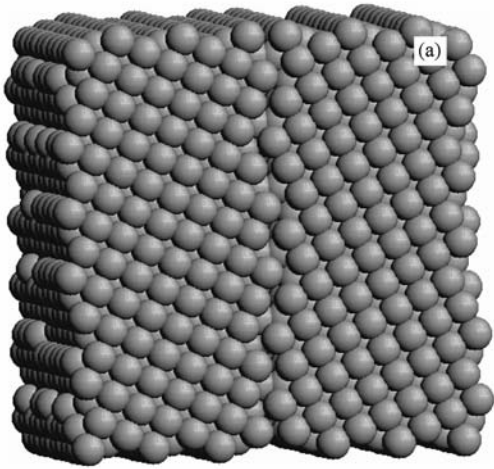


图3 $\Sigma 5(310)[100]-36.87^\circ$ 双晶晶界初始原子构型 (a) 三维结构, (b) 二维平面投影结构 (θ 为晶界的最小旋转角度, $\theta = 36.87^\circ$)

4.4.1. 晶界处氦原子的形成能和结合能

氦原子在晶界处的形成能和结合能的计算公式分别如下:

$$E_f^{\text{He-GB}}(\text{He}) = E_c(\text{He-GB}) - E_c(\text{GB}) - E_c(\text{He}), \quad (7)$$

$$E_b^{\text{He-GB}}(\text{He}) = E_f^{\text{He-GB}}(\text{He}) - E_f(\text{He}), \quad (8)$$

式中 $E^{\text{He-GB}}(\text{He})$ 和 $E_b^{\text{He-GB}}(\text{He})$ 分别为氦原子在 GB 处的形成能和结合能, $E_c(\text{GB})$ 和 $E_c(\text{He-GB})$ 分别为无氦原子和加入氦原子时经弛豫后的晶界平衡构型能. 单个氦原子主要以间隙氦原子和替位氦原子(HeV 复合物)的形式存在, 因此计算的是这两种氦原子的形成能和结合能. 应用(8)式时, $E_f(\text{He})$ 则相应为间隙氦原子或替位氦原子的形成能^[22].

图4为单个氦原子在 $\Sigma 5(310)[100]-36.87^\circ$ 晶界的形成能和结合能. 图中横坐标为氦原子的距离, 其中晶界中心定为“0”. 由于晶界中心两侧呈对称分布, 氦原子在两侧对称位置的行为相同, 所以图中只给出了氦原子在一侧的能量计算值. 由图4

分子动力学的计算体系为根据重合点阵模型(CSL-coincidence site lattice)构建的 $\Sigma 5(310)[100]-36.87^\circ$ 双晶晶界, 图3为晶界的初始原子构型. 开展晶界的分子动力学模拟, 首先需得到晶界的平衡构型, 这需要通过分子动力学弛豫来实现. 相对于理想晶格而言, 晶界结构更为疏松, 易于滑移. 为了尽量消除晶界滑移对计算结果的影响, 平行于晶界的边界固定, 晶界只能做单方向的运动, 这种模型易于保持晶界结构^[21].

可见, 氦原子在晶界处的形成能和结合能变化趋势相同, 只是能量大小有些细微的差别. 间隙氦原子在晶界中心的形成能最低(约为 1.19 eV), 随着距离的增大, 形成能开始缓慢增大. 当氦原子距离晶界中心的距离约为 9 Å (1 Å = 0.1 nm) 时, 形成能急剧增大, 达到其在理想晶格中的间隙形成能(约为 2.3 eV). 这表明氦原子的距离超过 9 Å 时, 晶界对氦原子几乎没有任何影响, 氦原子的状态与在体相中相同. 氦原子的形成能越大, 表示氦原子越不稳定, 结合能也就越小; 与此相反, 氦原子的形成能越小, 表示氦原子越稳定, 结合能也就越大. 从图中形成能和结合能的变化趋势可以清楚地得出这一结论. 计算结果表明, 晶界对间隙氦原子存在一俘获半径(trapping radius), 在该半径范围内, 氦原子距离晶界中心越近, 俘获能力越强. 替位氦原子的情形与之相似, 不同的是, 晶界对替位氦原子的俘获能力明显低于对间隙氦原子的俘获能力.

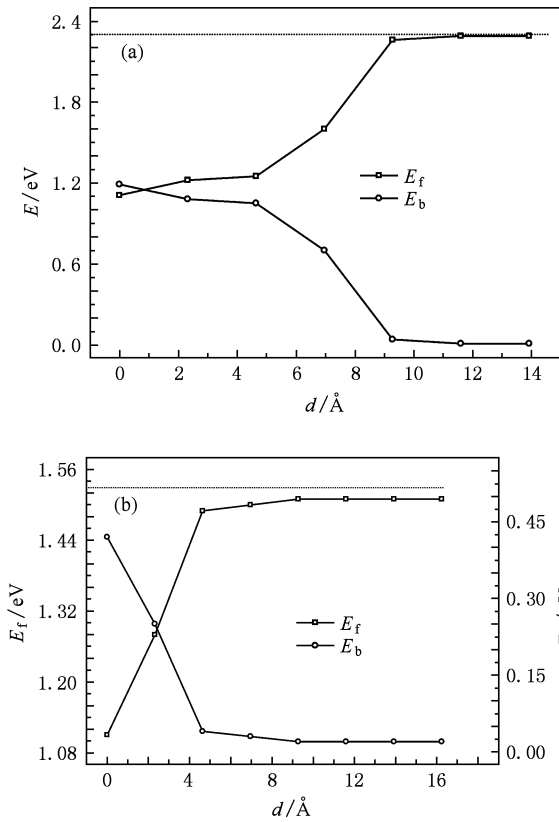


图4 $\Sigma 5(310)[100]-36.87^\circ$ 晶界处氦原子形成能和结合能与距离晶界距离的关系 (a)间隙氦原子,(b)替位氦原子

4.4.2. 晶界处空位和自间隙原子的形成能和结合能

按照单个间隙氦原子在晶界处形成能的计算方法,计算了单个空位和单个自间隙原子在晶界处的形成能和结合能,计算结果如图5所示.由图5可见,空位和自间隙原子形成能和结合能的变化趋势与氦原子的变化趋势基本类似,最显著的特征就是都存在俘获半径,只是半径的大小依晶界结构和点缺陷类型而有所不同.晶界核心对空位具有一定的俘获能力,这就是晶界核心对替位氦原子仍具有较弱的俘获能力的内在原因.从点缺陷结合能曲线可以看出,晶界核心对自间隙原子的俘获能力和俘获半径明显大于对空位和间隙氦原子的俘获能力和俘获半径. $\Sigma 5(310)[100]-36.87^\circ$ 晶界中自间隙原子距离晶界中心为14 Å时,晶界核心对自间隙原子的结合能仍高达1.81 eV.计算结果表明,晶界周围的自间隙原子处于一种非常不稳定的状态,更易于流向晶界核心,晶界核心可以作为自间隙原子的吸

收尾间^[23].

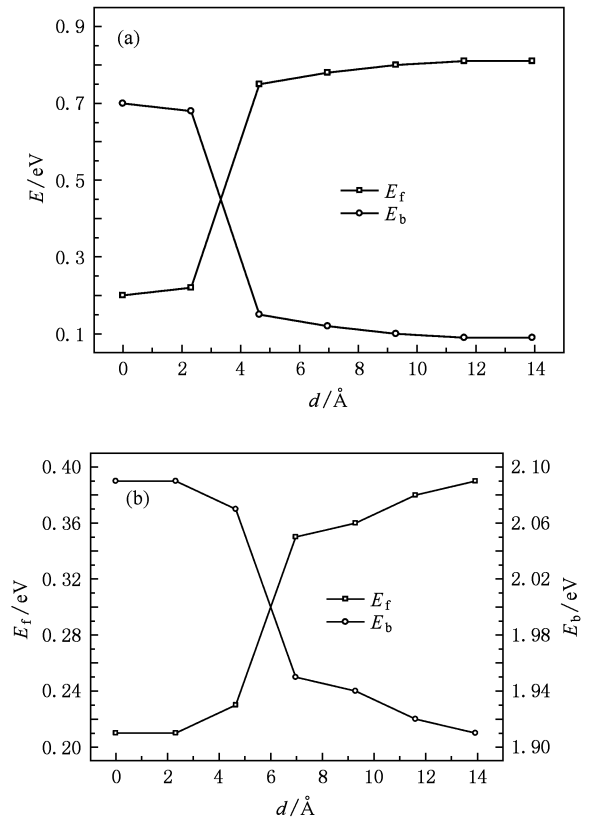


图5 $\Sigma 5(310)[100]-36.87^\circ$ 晶界处空位和自间隙原子形成能和结合能与距离晶界距离的关系 (a)空位,(b)间隙原子

5. 结 论

应用自主开发的金属钷的EAM势并结合分子动力学技术,计算了金属钷中点缺陷和缺陷团簇的形成能和结合能.计算结果表明,单个自间隙原子易以 $\langle 100 \rangle$ 哑铃状形态存在;间隙氦原子在理想晶格的八面体间隙位置相对较为稳定;氦原子与空位的结合能较大,在钷的自辐照过程中两者易结合成氦-空位团簇;氦-空位团簇的形成能随氦原子数的增加而增大,当氦与空位的数目相等时,组态较为稳定.虽然这些计算结果都是来自原子尺度的模拟,但是却有助于理解钷中氦泡初始形核和长大的微观机理.可以推断,钷自辐照过程中产生的氦原子和空位很容易复合成为 He_nV_m 团簇,即氦泡形成和长大的核心.晶界核心对氦原子和自间隙原子具有较强的俘获能力,对空位的俘获能力则相对要弱.

- [1] Cooper N G 2000 *Challenges in Plutonium Science, Los Alamos Science* 26, Los Alamos National Laboratory
- [2] Albers R C 2001 *Nature* **410** 759
- [3] Savrasov S Y, Kotliar G, Abrahams E 2001 *Nature* **410** 793
- [4] Dai X, Savrasov S Y, Kotliar G, Migliori A, Ledbetter H, Abrahams E 2003 *Science* **300** 953
- [5] Moore K T, Söderlind P, Schwartz A J, Laughlin D E 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 206402
- [6] Petit L, Svane A, Szotek Z, Temmerman W M 2003 *Science* **301** 498
- [7] Luo W H, Meng D Q, Li G, Chen H C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 160 (in Chinese) [罗文华、蒙大桥、李 赣、陈虎翅 2008 物理学报 **57** 160]
- [8] Valone S M, Baskes M I, Martin R L 2006 *Phys. Rev. B* **73** 214209
- [9] Valone S M, Baskes M I 2007 *J. Comput. Aided Mater. Des.* **14** 357
- [10] Chung B W, Thompson S R, Woods C H, Hopkins D J, Gourdin W H, Ebbinghaus B B 2006 *J. Nucl. Mater.* **355** 142
- [11] Trinkaus H, Singh B N 2003 *J. Nucl. Mater.* **323** 229
- [12] Yang L, Zu X T, Xiao H Y, Yang S Z, Liu K Z, Gao F 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4857 (in Chinese) [杨 莉、祖小涛、肖海燕、杨树政、刘柯钊、Fei Gao 2005 物理学报 **54** 4857]
- [13] Xie Z, Hou Q, Wang J, Sun T Y, Long X G, Luo S Z 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5159 (in Chinese) [谢 朝、侯 氢、汪俊、孙铁英、龙兴贵、罗顺忠 2008 物理学报 **57** 5159]
- [14] Wang H Y, Zhu W J, Song Z F, Liu S J, Chen X R, He H L 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3703 (in Chinese) [王海燕、祝文军、宋振飞、刘绍军、陈向荣、贺红亮 2008 物理学报 **57** 3703]
- [15] Chen M, Wang J, Hou Q 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1149 (in Chinese) [陈 敏、汪 俊、侯 氢 2009 物理学报 **58** 1149]
- [16] Chen P H, Shen L, Ao B Y, Li R, Li J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 2605 (in Chinese) [陈丕恒、申 亮、敖冰云、李 嵘、李炬 2009 物理学报 **58** 2605]
- [17] Ao B Y, Wang X L, Hu W Y, Yang J Y, Xia J X 2007 *J. Alloys Comp.* **444-445** 300
- [18] Refson K 2000 *Comput. Phys. Commun.* **126** 310
- [19] Morishita K, Sugano R, Wirth B D 2003 *J. Nucl. Mater.* **323** 243
- [20] Ao B Y, Yang J Y, Wang X L, Hu W Y 2006 *J. Nucl. Mater.* **350** 83
- [21] Baskes M I, Vitek V 1985 *Metall. Trans. A* **16** 1625
- [22] Suzuki A, Mishin Y 2003 *Interface Sci.* **11** 425
- [23] Robinson M T 1994 *J. Nucl. Mater.* **216** 1

Energy calculation of point defects in plutonium by embedded atom method*

Ao Bing-Yun^{1)†} Wang Xiao-Lin¹⁾ Chen Pi-Heng¹⁾ Shi Peng¹⁾ Hu Wang-Yu²⁾ Yang Jian-Yu²⁾

1) (*National Key Laboratory for Surface Physics and Chemistry, Mianyang 621907, China*)

2) (*Department of Applied Physics, Hunan University, Changsha 410082, China*)

(Received 23 June 2009; revised manuscript received 9 October 2009)

Abstract

Plutonium is vulnerable to aging due to α radioactive decay. The properties and behaviors of point defects in plutonium are the basis for understanding plutonium aging. We have employed a molecular dynamics technique to calculate the formation energy and binding energy of point defects and small helium-vacancy clusters in plutonium, using embedded atom method, Morse pair potential and the Lennard-Jones pair potential for describing the interactions of Pu-Pu, Pu-He and He-He, respectively. A single self-interstitial atom's steady configuration is $\langle 100 \rangle$ dumb-bell. An interstitial helium atom at octahedral site is more stable than that at tetrahedral site. As a result of high binding energy of an interstitial helium atom to a vacancy, helium atoms can combine with vacancies to form helium-vacancy cluster during the process of self-radiation. The formation energy of helium-vacancy cluster increases with the increasing number of helium atoms. When the number of helium atoms equals to the number of vacancy, the helium-vacancy cluster is rather stable. Both substitutional and interstitial helium atoms are trapped at the grain boundary (GB). The binding energy of the self-interstitial atom at GB core is higher than that of helium atom and vacancy.

Keywords: plutonium, point defects, embedded atom method, radiation damage

PACC: 6172Q, 6630J, 6185

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 20801007).

† E-mail: aobingyun24@yahoo.com.cn