

分子动力学方法研究钛中预存缺陷 对氦融合的影响^{*}

陈 敏^{1)2)†} 侯 氢¹⁾

1) (四川大学原子核科学技术研究所, 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610064)

2) (西南科技大学国防科技学院, 绵阳 621010)

(2009 年 5 月 7 日收到; 2009 年 5 月 27 日收到修改稿)

采用分子动力学方法模拟了在有预存氦空位复合物的体系中氦的迁移和融合, 研究了氦融合的各向异性以及氦空位比和氦空位簇大小对氦融合的影响. 研究发现: 氦迁移的各向异性与体系中是否有氦空位簇无关; 氦与氦空位簇的融合主要沿 $[001]$ 方向; 氦二聚物与氦空位簇的融合远快于单个氦原子与氦空位簇的融合.

关键词: 氦融合, 氦-空位簇, 钛, 分子动力学

PACC: 6610C, 6170, 6630J, 6185

1. 引 言

核材料中常常由于氦的产生和积累导致材料宏观性能的改变. 氦是满壳层惰性气体, 不溶于所有金属, 这些性质决定了氦原子易于在金属中扩散、融合, 在晶界、位错等缺陷处聚集、沉淀, 形成氦-空位复合物, 继而长大成为氦泡, 引起材料肿胀, 降低材料的机械性能, 缩短材料使用寿命^[1-7]. Wilson 等^[8]研究发现注入的氦将以间隙方式快速扩散, 直至被晶格缺陷俘获. 我们的研究^[9]发现氦在完美晶格中的扩散具有明显的各向异性, 在 $[001]$ 方向比 (001) 面上的扩散快得多, 并且在室温下氦二聚物的迁移比单个氦原子快得多. 谢朝等^[10]采用在两个氦生长核附近逐个添加氦原子的方法模拟了较大氦团簇的融合过程, 发现当两个氦泡长大到一定尺寸时很不稳定, 如果再加入氦原子会导致两个氦泡在皮秒级时间内快速融合. 本文模拟氦原子和氦二聚物与体系中预存氦空位簇的相互作用, 研究氦空位比和氦空位簇大小对氦融合的影响, 以便进一步理解氦在钛中的基本行为, 从而为核材料的设计及预测材料使用寿命提供一定的理论依据.

2. 研究方法

2.1. 模拟方法

本文采用自编的分子动力学程序模拟了氦在钛中的迁移和融合. 为了模拟真实的过程, 使基底的温度保持恒定, 本文采用声-电耦合模型^[11,12], 在该模型下原子系统和电子系统通过能量交换来保持系统恒温状态. 为了模拟基底在无限大时的情形, 分别沿 $[100]$, $[120]$ 和 $[001]$ 三个方向加上周期性边界条件^[13], 积分步长为 1 fs.

本文构建的基底为密排六方 (hexagonal close packed, 简称 hcp) 钛金属晶体结构, 共有 24 层, 每层有 20×20 个原子排列在 (001) 面上. 晶格中的预存缺陷的构建方法如下: 用一个氦原子替换一个钛原子, 形成一个 HeV 簇; 用两个氦原子替换两个钛原子, 形成一个 He_2V_2 簇; 用四个氦原子替换四个钛原子, 形成一个 He_4V_4 簇. 对于 He_4V 簇和 He_4V_2 簇则分别在 HeV 簇和 He_2V_2 簇周围一个晶格长度的范围内逐个随机添加氦原子, 使系统弛豫到稳定

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 10775101) 和高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20070610054) 资助的课题.

[†] E-mail: qhou@scu.edu.cn; cm907@126.com

状态而形成 He_4V 簇和 He_4V_2 簇^[14].

2.2. 势函数的选择与构造

势函数的选择是分子动力学的关键问题,本文采用 Lennard-Jones^[15,16] 作用势描述 He 与 He 之间的作用;采用 Tight-Binding 作用势描述 Ti 与 Ti 之间的作用^[17];对于 Ti 和 He 的相互作用势,采用 Melius 等^[18] 的拟合势函数的方法,利用 Gaussian03 软件包采用 Hatree-Fock 方法,在 6-31G * * 基组^[19] 水平下计算了不同距离下 He-Ti 之间的相互作用势,然后运用遗传算法将势函数拟合成 Lennard-Jones 形式.这些势函数已成功应用于我们先前的有关氦在钛中行为的研究^[9,20].

3. 结果与讨论

3.1. 氦与预存氦空位簇的相互作用

在 $[100]$, $[120]$ 和 $[001]$ 方向相距氦空位簇不同距离处放入一个氦原子,然后在 300 K 下弛豫 40 ps 使系统达到平衡状态,再在 300 K 下演化 300 ps—1 ns. 研究发现,当氦原子在 $[100]$ 和 $[120]$ 方向距氦空位簇大于一个晶格长度时,在模拟的时间范围内两者将很难发生聚集.而当氦原子与氦空位簇的连线与 $[001]$ 轴基本平行时,在 $[001]$ 方向 HeV 簇与氦原子相距 13 Å 左右时已对氦原子产生作用.图 1 为氦原子初始位置在 $[100]$, $[120]$ 和 $[001]$ 方向距 HeV 簇 1.3, 1.0 和 12.7 Å 时氦原子与 HeV 簇融合的三维轨迹图,图中单个氦原子向 HeV 簇迁移,并与 HeV 簇发生融合,而 HeV 簇在整个过程中几乎未发生迁移.图 2 为单个氦原子在 $[100]$, $[120]$ 和 $[001]$ 方向与 HeV 簇距离随时间的变化,图中零点处虚线代表 HeV 簇的初始位置.由图 4 可见,经过 224 ps 单个氦原子和 HeV 簇发生聚集,直至 300 ps 两者在一起运动,未发生分离.单个氦原子在 $[001]$ 方向的迁移速度远快于另外两个方向,说明在有预存缺陷的钛晶格中氦原子的迁移依然具有明显的各向异性.研究还发现在有预存缺陷的晶格中氦二聚物的迁移也具有各向异性,说明氦迁移的各向异性与体系中是否有氦空位簇无关.

由图 2 还可以看出,单个氦原子在三个方向上的运动均呈阶梯状,这是由于氦原子在完美晶格中低温下的扩散具有层间结构^[9].通过模拟氦原子和

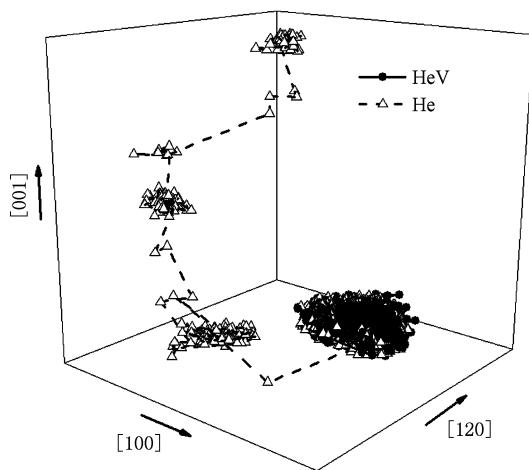


图1 氦原子初始位置在 $[100]$, $[120]$ 和 $[001]$ 方向距 HeV 簇 1.3, 1.0 和 12.7 Å 时的三维轨迹图

氦二聚物在不同大小的氦空位簇中的迁移,发现单个氦原子在含有氦空位簇的基底中的迁移路线均呈阶梯状.而氦二聚物与氦空位簇的融合则均没有阶梯状.图 3 为氦原子和氦二聚物与 HeV 簇融合过程中氦原子-HeV 和氦二聚物-HeV 间距离与时间的关系.由图 4 可知 He_2 与 HeV 融合远快于 He 与 HeV 融合.

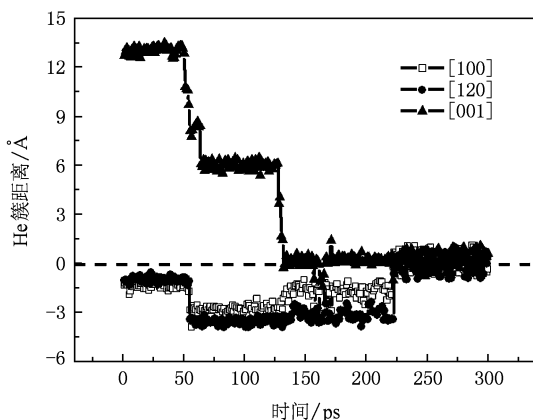


图2 单个氦原子在 $[100]$, $[120]$ 和 $[001]$ 方向与 HeV 簇的距离随时间的变化

3.2. 氦空位簇大小对氦融合的影响

本节研究体系中包含氦空位比相同而大小不同的氦空位簇时对氦融合的影响.选取氦空位比为 1 的 HeV 簇、 He_2V_2 簇和 He_4V_4 簇,按照 2.1 节介绍的方法在体系中构建预存缺陷,然后在 300 K 下弛豫 40 ps 达到平衡状态,再在 300 K 下演化 300 ps—

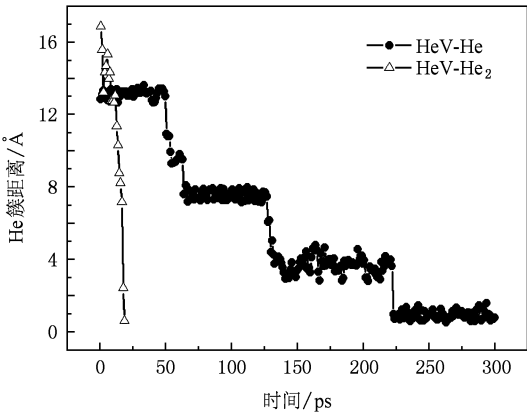


图3 氦原子-HeV 和氦二聚物-HeV 间距离随时间的变化

1 ns,得到氦原子或氦二聚物与氦空位簇间距离与时间的关系. 选取不同的随机数初始值,重复上述步骤四至五次,在相同时刻对 He 与氦空位簇、He₂ 与氦空位簇间距离取平均值. 图 4 给出了氦原子与 HeV 簇、He₂V₂ 簇和 He₄V₄ 簇之间距离与时间的关系. 最初单个氦原子与 HeV 簇相距 13.1 Å, 经过 224 ps 发生融合; He₂V₂ 簇与氦原子相距 14.7 Å, 经过 259 ps 发生融合; He₄V₄ 簇与氦原子相距 14.9 Å, 经过 274 ps 发生融合. 由图 4 可见:在簇中氦空位比相同时,氦泡尺寸越小与氦空位簇融合所需的时间越短,氦空位簇可以通过融合不断长大.

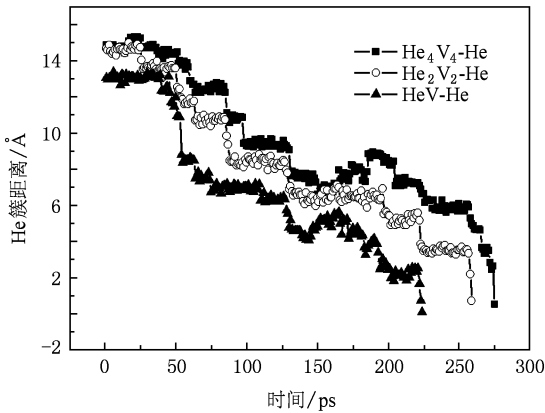


图4 氦原子与 HeV 簇、He₂V₂ 簇和 He₄V₄ 簇的融合

图 5 给出了氦二聚物与 HeV 簇、He₂V₂ 簇和 He₄V₄ 簇融合所需的时间. 比较图 4 和图 5 发现,氦二聚物与 HeV 簇、He₂V₂ 簇和 He₄V₄ 簇融合所需的时间比单个氦原子短约一个数量级. 氦二聚物与 HeV 簇最初相距 16.9 Å, 经过 19 ps 发生融合; He₂V₂ 簇与氦原子相距 16.1 Å, 经过 24 ps 发生融

合; He₄V₄ 簇与氦原子相距 17.1 Å, 经过 30 ps 发生融合.

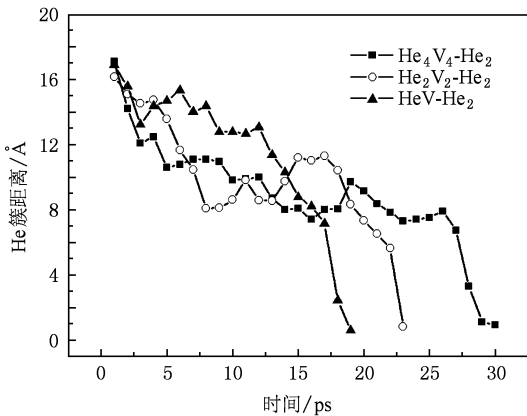


图5 氦二聚物与 HeV 簇、He₂V₂ 簇和 He₄V₄ 簇的融合 氦空位簇的氦空位比为 1

3.3. 氦空位比对氦融合的影响

为了研究氦空位比对氦融合的影响,选取氦原子数相同而氦空位比不同的 He₄V 簇、He₄V₂ 簇和 He₄V₄ 簇,按 2.1 节介绍的方法在体系中做出预存缺陷. 图 6 给出了氦原子与 He₄V 簇、He₄V₂ 簇和 He₄V₄ 簇融合所需的时间. 最初单个氦原子与 He₄V 簇相距 17.4 Å, 经过 432 ps 发生融合; He₄V₂ 簇与氦原子相距 15.9 Å, 经过 330 ps 发生融合; He₄V₄ 簇与氦原子相距 14.9 Å, 经过 274 ps 发生融合. 由图 6 可见,当簇中氦原子个数相同时,随着氦空位比的减小单个氦原子与氦空位簇融合所需的时间缩短,说明空位可以增强氦团簇对氦原子的吸引.

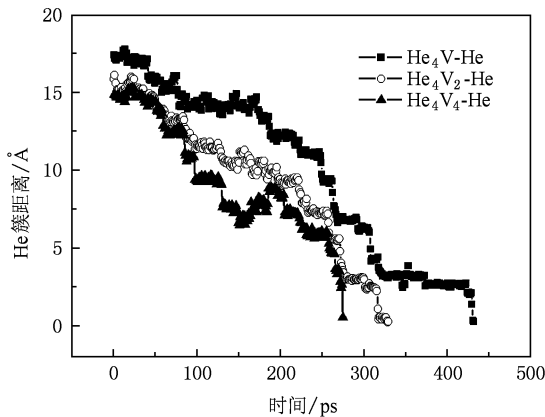


图6 氦原子与 He₄V 簇、He₄V₂ 簇和 He₄V₄ 簇的融合

通过模拟氦二聚物与 He₄V 簇、He₄V₂ 簇和

He_4V_4 簇的融合发现, 氦二聚物与 He_4V 簇、 He_4V_2 簇和 He_4V_4 簇融合所需的时间也比单个氦原子短约一个数量级. 氦二聚物与 He_4V 簇最初相距 18.2 Å, 经过 43 ps 发生融合; He_4V_2 簇与氦二聚物相距 16.1 Å, 经过 35 ps 发生融合; He_4V_4 簇与氦二聚物相距 17.1 Å, 经过 30 ps 发生融合(见图 7).

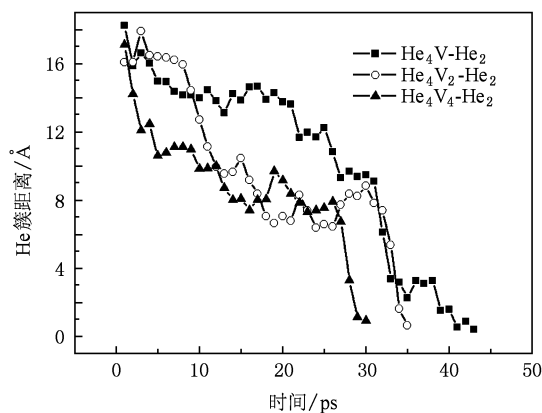


图 7 氦二聚物与 He_4V 簇、 He_4V_2 簇和 He_4V_4 簇的融合

4. 结 论

用经典分子动力学方法模拟了体系中有预存氦空位簇时单个氦原子和氦二聚物的迁移, 研究了氦空位比和氦空位簇大小对单个氦原子和氦二聚物与小的氦空位簇融合的影响. 研究发现: 1) 氦迁移的各向异性与体系中是否有氦空位簇无关. 2) 氦原子与氦空位簇、氦二聚物与氦空位簇主要沿 [001] 方向融合. 3) 氦二聚物与氦空位簇的融合远快于单个氦原子. 4) 单个氦原子在含有氦空位簇的基底中的迁移路线均呈阶梯状, 这与氦原子在完美晶格中低温时的扩散具有层间结构有关. 而氦二聚物与氦空位簇的融合则均没有阶梯状. 5) 在簇中氦空位比相同时, 氦泡尺寸越小与氦空位簇融合所需的时间越短. 6) 当簇中氦原子个数相同时, 随着氦空位比的减小单个氦原子与氦空位簇融合所需的时间缩短, 说明空位可以增强氦团簇对氦原子的吸引.

[1] Wilson W D, Bisson C L, Baskes M I 1981 *Phys. Rev. B* **24** 5616
 [2] Wilson W D 1982 *Radiation Effects* **78** 11
 [3] Wang P X, Song J S 2002 *Helium in Materials and the Permeation of Tritium* (Beijing: National Defence Industry Press) p6 (in Chinese) [王佩璇、宋家树 2002 材料中的氦及氚渗透(北京: 国防工业出版社) 第 6 页]
 [4] Pu J, Yang L, Zu X T, Gao F 2007 *Physica B* **398** 65
 [5] Ao B, Wang X, Hu W, Yang J 2008 *Phys. Status Solidi B* **245** 1493
 [6] 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]
 [7] Adams J B, Wolfer W G 1988 *J. Nucl. Mater.* **158** 25
 [8] Wilson W D, Bisson C L 1974 *Radiation Effects* **22** 63
 [9] Chen M, Hou Q, Wang J, Sun T, Long X, Luo S 2008 *Solid State Commun.* **148** 178
 [10] Xie Z, Hou Q, Wang J, Sun T Y, Long X G, Luo S Z 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 514 (in Chinese) [谢朝、侯氢、汪俊、孙铁英、龙兴贵、罗顺忠 2008 物理学报 **57** 514]

[11] Finnis M W, Agnew P, Foreman A J E 1991 *Phys. Rev. B* **44** 567
 [12] Hou Q, Hou M, Bardotti L, Prével B, Mélinon P, Perez A 2000 *Phys. Rev. B* **62** 2825
 [13] Allen M P, Tildesley D J 1987 *Computer Simulation of Liquids* (New York: Oxford University)
 [14] Wang J, Hou Q, Sun T Y, Long X G, Wu X C, Luo S Z 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 093510
 [15] Baskes M I, Stan M 2003 *Metallurgical and Materials Transactions A* **34** 435
 [16] Horstemeyer M F, Baskes M I 2000 *Strain Tensors at the Atomic Scale* (Boston: Materials Research Society) p15
 [17] Cleri F, Rosato V 1993 *Phys. Rev. B* **48** 22
 [18] Melius C F, Bisson C L, Wilson W D 1978 *Phys. Rev. B* **18** 1647
 [19] Petersson G A, Bennett A, Tensfeldt T G, Al-Laham M A, Shirley W A, Mantzaris J 1988 *J. Chem. Phys.* **89** 2193
 [20] 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]

Influence of defects on the coalescence of helium in titanium: An atomistic simulation^{*}

Chen Min^{1)2)†} Hou Qing¹⁾

1) (*Key Laboratory for Radiation Physics and Technology of Ministry of Education, Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China*)

2) (*School of National Defense Science and Technology, Southwest University of Science and Technology, Mianyan 621010, China*)

(Received 7 May 2009; revised manuscript received 27 May 2009)

Abstract

Molecular dynamics was employed to study the migration and coalescence of He atom and He dimer in Ti lattice which contains He-vacancy cluster. The influence of the ratio of helium to vacancy (He density) of the cluster and the He number of the cluster on coalescence of He and He-vacancy cluster in Ti lattice is studied. It is found that anisotropic diffusion is independent of the He-vacancy cluster in Ti lattice. The coalescence of helium and He-vacancy cluster is mainly along the $[001]$ direction. The coalescence of He dimer and He-vacancy cluster is faster than the coalescence of He atom and He-vacancy cluster.

Keywords: helium coalescence, He-vacancy cluster, titanium, molecular dynamics

PACC: 6610C, 6170, 6630J, 6185

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10775101) and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20070610054).

[†] E-mail: qhou@scu.edu.cn; cm907@126.com