

中子辐照诱导钨再结晶的模拟研究*

张国帅 尹超[†] 王兆繁 陈泽 毛世峰 叶民友[‡]

(中国科学技术大学核科学技术学院, 合肥 230026)

(2023年4月4日收到; 2023年5月31日收到修改稿)

钨作为未来聚变堆偏滤器靶板的候选材料, 需要长期服役在高温且受到高能中子辐照的严峻环境, 这将导致钨发生中子辐照诱导再结晶, 从而提高钨发生沿晶脆断的可能性, 威胁偏滤器的运行安全, 因此研究中子辐照诱导钨再结晶的物理机制具有重要意义. 然而, 与最近高通量同位素反应 (HFIR) 堆高温下中子辐照实验观察到的结果相比, 目前考虑辐照增强再结晶驱动力效应的模型低估了中子辐照对再结晶的影响, 结果表明仍有其他效应影响再结晶过程. 基于此, 本文在假设晶界迁移率与自体扩散系数成正比的前提下, 引入辐照增强晶界迁移因子 (R), 建立了新的辐照诱导再结晶动力学模型. 模拟结果显示, 在综合考虑辐照增强再结晶驱动力和晶界迁移效应后, 模型计算出的 850 °C 下达到一半再结晶分数所需要的时间 ($t_{X=0.5}$) 和 HFIR 堆中子辐照实验结果相符, 这表明辐照增强晶界迁移效应是影响辐照诱导再结晶现象的重要因素之一. 另外, 模型研究了不同辐照温度下钨的 $t_{X=0.5}$. 结果表明辐照与未辐照的 $t_{X=0.5}$ 差别随温度升高而逐渐下降. 这是因为随着温度的升高, 辐照缺陷复合加剧, 辐照缺陷对再结晶驱动力的贡献下降, 且热激活扩散系数增大的幅度大于辐照下扩散系数的增大程度, 所以热激活效应会逐渐主导再结晶过程.

关键词: 钨, 中子辐照, 团簇动力学, 辐照诱导再结晶**PACS:** 28.52.-s, 28.52.Fa, 28.52.Av**DOI:** 10.7498/aps.72.20230531

1 引言

钨由于具有高熔点、高热导、高溅射阈值、良好的抗热冲击性能及较低的氦气滞留等优点, 被确定为国际热核聚变实验堆 (ITER) 的偏滤器靶板材料, 并且是聚变示范堆 (DEMO) 面向等离子体部件 (plasma-facing component, PFC) 中铠甲和靶板的候选材料^[1-4]. 然而, 聚变堆严苛的服役环境, 会造成钨作为 PFC 服役性能的退化, 进而缩短部件寿命^[5]. 钨在聚变装置中的工作温度涵盖了 500—1200 °C 的范围^[6]. 研究表明塑性变形加工后

的钨在高温下会发生退火现象, 包括回复、再结晶和晶粒生长过程^[7-10]. 当钨发生再结晶时, 其转脆温度将从 200 °C 上升至 500 °C, 从而在较高的工作温度下可能发生脆性断裂^[11]. 因此, 分析并预测钨的再结晶过程对钨作为 PFC 的应用和评估具有重要意义. 根据未辐照等温退火实验外推预测, 钨在 1000 °C 下服役两年后其再结晶分数约为 50%^[8,12]. 然而, 最近高通量同位素反应 (high flux isotope reactor, HFIR) 堆裂变中子辐照钨的实验显示, 钨在 850 °C 下辐照 24 d 后的再结晶分数就已达到 50%^[13], 这表明中子辐照会诱导钨发生再结晶, 增加脆断风险.

* 国家自然科学基金联合基金 (批准号: U2267208)、中国博士后科学基金 (批准号: 2021M703113)、中国科学院台湾青年人才计划 (批准号: 2021TWGB0001)、安徽省高校协同创新项目 (批准号: GXXT-2021-026)、中国科学院合肥大科学中心协同创新培育基金项目 (批准号: 2022HSC-CIP010) 和中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: WK214000015) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: chaoyin@ustc.edu.cn

[‡] 通信作者. E-mail: yemy@ustc.edu.cn

中子辐照会对钨造成辐照损伤, 由于缺陷之间的相互反应, 这些初级损伤产生的缺陷会进一步演化成尺寸更大的缺陷, 包括位错环和空洞^[14–17]. 这些非热平衡的缺陷会增大钨内部储能^[18], 从而提高了再结晶驱动力. Mannheim 等^[19,20]通过耦合团簇动力学 (cluster dynamic, CD) 模型和包含辐照增强再结晶驱动力效应的平均场再结晶模型, 从物理的角度模拟了再结晶过程中晶粒的成核和生长. 该模型预测在 1000 °C 辐照温度下辐照近 700 h 后, 钨几乎不发生再结晶现象, 再结晶速率远低于 HFIR 堆实验结果, 这可能是该模型未考虑辐照增强晶界迁移效应所致.

基于此, 本文在 Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov (JMAK) 再结晶动力学模型的基础上, 同时考虑辐照增强再结晶驱动力效应和辐照增强晶界迁移效应, 建立了辐照诱导再结晶 (irradiation-induced recrystallization, IIR) 动力学模型.

2 方法

利用 CD 模型模拟钨在 HFIR 堆中子辐照下不同尺寸空位 (vacancy, V) 和自间隙原子 (self-interstitial atom, I) 团簇随时间的演化过程, 同时将模拟得到的缺陷尺寸与密度输入 IIR 模型以模拟高温中子辐照过程中钨再结晶分数的变化. 模拟的辐照温度区间为 750–1300 °C, 使用 Matlab 刚性求解器 ODE15s 进行数值求解, 相对容差设置为 1×10^{-3} , 并且设置每个解为非负值.

2.1 CD 模型

如 (1) 式所示, 平均场 CD 模型基于扩散捕获速率理论, 通过一组常微分控制方程 (ordinary differential equations, ODEs) 来描述不同尺寸缺陷的密度随时间的演化^[21]:

$$\frac{dC_\theta}{dt} = G_\theta + \sum_{\theta'} J_{\theta,\theta'}^+ - \sum_{\theta'} J_{\theta,\theta'}^- - L_\theta, \quad (1)$$

其中 C_θ 为缺陷密度, 下标 θ 表示 n 个 V 组成的团簇 (V_n) 或 n 个 I 组成的团簇 (I_n); θ' 为可移动缺陷, t 为时间, G_θ 为源项, $J_{\theta,\theta'}^+$ 为吸收反应通量, 用于描述缺陷团簇吸收可移动缺陷的反应; $J_{\theta,\theta'}^-$ 为发射反应通量, 用于描述缺陷团簇发射可移动缺陷的反应; L_θ 为汇项, 用于描述缺陷阱对可移动缺陷的

吸收. 除源项外, 吸收和发射反应项、汇项都是直接使用 Mannheim 等^[19]建立和整理的反应式, 相应的参数在见补充材料中给出.

为了获得源项, 首先通过 SPECTRA-PKA 程序计算特定中子能谱辐照钨所产生的初级反冲原子 (primary knock-on atom, PKA) 能谱^[22,23], 再将 PKA 能谱叠加到 PKA 级联模拟结果^[24]以确定级联存活损伤速率 (S_{dpa}), 最后将 S_{dpa} 转换成单位体积内的级联存活损伤速率 (G_{tot}):

$$G_{\text{tot}} = \frac{S_{\text{dpa}} \rho_W N_A}{M_W}, \quad (2)$$

其中 ρ_W 为钨的密度, N_A 为阿伏伽德罗常数, M_W 为钨的摩尔质量, 具体数值见补充材料. 另外, SPECTRA-PKA 也给出了按照 Norgett-Robinson-Torrens (NRT) 模型得到的平均每离位原子速率 (NRT_{dpa}).

表 1 为基于 HFIR 中子能谱^[25]得到的 NRT_{dpa} , S_{dpa} 和 G_{tot} . 这与文献^[16]中根据 NRT 模型计算得出的平均每离位原子速率 2.3×10^{-7} dpa/s 基本吻合. 同时计算得到的级联存活效率 (S_{dpa} 与 NRT_{dpa} 的比值) 为 0.30, 这与文献^[26, 27]中 MD 模拟级联效率的结果一致. 由于级联内缺陷的相互反应, 使得级联内缺陷密度与尺寸呈幂律分布. 按照 Vrielink 等^[28]的方法, 级联尺寸分布由下式给出:

$$G_{\theta_n} = \begin{cases} (1 - f_\theta^c) G_{\text{tot}}, & n = 1, \\ A_\theta \left(\frac{1}{n} - \frac{1}{N_c} \right)^{S_\theta}, & 2 \leq n \leq N_c, \\ 0, & \text{otherwise,} \end{cases} \quad (3)$$

其中 f_θ^c 和 S_θ 分别为温度相关的缺陷团聚分数和幂律指数^[19]. 钨低温自离子辐照实验结果表明级联产生的最大 I_n 尺寸约为 1000^[29], 并且 MD 级联模拟结果表明级联产生的最大 V_n 尺寸约为最大 I_n 尺寸的 2 倍^[30]. 因此本文级联产生的最大 V_n 尺寸 ($N_{c,V}$) 取 2000, 最大 I_n 尺寸 ($N_{c,I}$) 取 1000.

本文由于考虑的最大缺陷尺寸大于 10^5 , 为了提高计算效率, 在考虑大尺寸缺陷时, 采用 Ghoniem

表 1 CD 模型模拟 HFIR 堆中子辐照钨的源项相关参数

Table 1. Parameters related to source term of neutron irradiated tungsten in HFIR reactor simulated by CD model.

参数	NRT_{dpa} / $(10^{-7} \text{ dpa}\cdot\text{s}^{-1})$	S_{dpa} / $(10^{-8} \text{ dpa}\cdot\text{s}^{-1})$	G_{tot} / $(10^{21} \text{ m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1})$
数值	2.16	6.41	4.06

和 Sharafat^[31] 提出的 Fokker-Plank 近似方法. 此外, 测试的算例结果表明大尺寸缺陷 ($n > 100$) 的演化忽略 I_2 反应项对缺陷的平均尺寸与密度影响不大, 这与 Li 等^[32] 的 CD 模拟结果一致. 因此本文中, 当缺陷尺寸大于 100 时, 通过二阶泰勒展开将 (1) 式转化成尺寸空间连续的形式^[31]:

$$\frac{\partial C_{[x]}}{\partial t} = G_{[x]} - \frac{\partial}{\partial x} \left[F_{\theta} C_{[x]} - \frac{\partial}{\partial x} (D_{\theta} C_{[x]}) \right] - L_{[x]}, \quad (4)$$

其中, $C_{[x]}$ 表示取 x 整数部分对应尺寸的缺陷密度, F_{θ} 表示缺陷的净通量, D_{θ} 表示缺陷的平均扩散通量, F_{θ} 和 D_{θ} 分别可以写成^[31]:

$$F_{\theta} = k_{\theta} - \lambda_{\theta}, \quad D_{\theta} = \frac{1}{2} (k_{\theta} + \lambda_{\theta}), \quad (5)$$

其中 k_{θ} 和 λ_{θ} 分别为相应缺陷团簇的生长速率和衰减速率^[31].

在尺寸空间 x 内按照 Li 等^[32] 的方法, 采取非均匀化的网格, 表达式如下:

$$\begin{aligned} x_1 &= 1, \quad x_i = x_{i-1} + \Delta x_i, \quad 2 \leq i \leq N_m, \\ \Delta x_i &= \begin{cases} 1, & 2 \leq i \leq 100, \\ \Delta x_{i-1} \exp(\varepsilon), & 100 \leq i \leq N_m. \end{cases} \end{aligned} \quad (6)$$

其中 ε 是远小于 1 的常数, N_m 为考虑的最大缺陷尺寸, 且 N_m 需要满足边界条件 $C_{N_m} \approx 0$ 或小于本研究考虑的缺陷的最大尺寸. 通过 Fokker-Plank 近似, 本文建立的 CD 模型可以考虑更大尺寸缺陷的演化, 其中最大的 V_n 尺寸约为 3×10^5 , 对应的空洞直径约 20 nm, 最大的 I_n 尺寸约为 6×10^3 , 对应的位错环直径约 20 nm.

为了简化分析, 做出如下假设.

1) 认为整个空间缺陷密度分布是均匀的, 且缺陷密度足够低, 不影响基体钨的性质.

2) 认为只有 V, I 和 I_2 是可移动的, 其他固定缺陷通过捕获可移动缺陷演化.

3) 所有 V_n 都是球体: 对于 I_n , 小于 7 的是球体; 大于 7 的是位错环.

4) 无论是吸收反应还是反射反应, 只考虑吸收或发射一个可移动性缺陷, 即反应逐次进行.

5) 汇项只考虑位错对缺陷的吸收, 且位错不会因吸收缺陷而消失或改变密度.

2.2 IIR 模型

IIR 模型通过未辐照下 JMAK 模型^[9,33-35], 建立了中子辐照诱导再结晶模型, 假设中子辐照将会

影响钨未发生再结晶的初始晶粒内再结晶驱动力 P 和晶界迁移率 M . 温轧中等变形量钨的等温退火实验表明其再结晶过程符合位点饱和情况下的再结晶^[7], 同时中子辐照产生的缺陷会提高钨自体扩散系数及内部储能, 应会加速新晶粒的成核过程, 因此本研究假设辐照下钨再结晶过程均为位点饱和情况. 对于位点饱和成核的 JMAK 模型, 再结晶分数 (X) 随时间的变化可以写成下列形式^[33]:

$$X = 1 - \exp[-U(PMt)^{n_a}], \quad (7)$$

其中 U 为成核数相关的材料常数; n_a 为 Avrami 指数, 反映了晶粒的生长维度; 而中子辐照时的 P 可以写为

$$P = E_d^{\text{Vol}} + E_v^{\text{Vol}} + E_l^{\text{Vol}}, \quad (8)$$

其中 E_d^{Vol} 表示位错造成的储能^[33]:

$$E_d^{\text{Vol}} = \rho G b^2, \quad (9)$$

其中 α 为常数, 取 0.5; ρ 表示位错线密度, G 表示剪切模量, b 是位错的伯格斯矢量; 具体数值见补充材料. 由于本研究假定初始晶粒的位错密度 ($7 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ ^[13]) 在再结晶过程中不变, 因此 E_d^{Vol} 为常数; E_v^{Vol} 表示空洞造成的储能; E_l^{Vol} 表示 I 位错环造成的储能. 钨的自离子辐照实验表明 $1/2\langle 111 \rangle$ 型 I 位错环占主导^[36,37], 且 $1/2\langle 111 \rangle$ 型 I 位错环占比还会随温度的升高而增大^[38]. 因此本研究中, 假设 I 位错环全部都是 $1/2\langle 111 \rangle$ 型. 根据 Ma 等^[18] 的模拟结果, 尺寸为 n 的空洞形成能 ($E_v(n)$) 和尺寸为 n 的 $1/2\langle 111 \rangle$ 型 I 位错环形成能 ($E_{l-1/2\langle 111 \rangle}(n)$) 可以写成下列形式:

$$E_v(n) = 4\pi r^2 \bar{\gamma} = 4\pi \left(\frac{3n\Omega}{4\pi} \right)^{2/3} \bar{\gamma}, \quad (10)$$

$$E_{l-1/2\langle 111 \rangle}(n) = \sqrt{2} a E_{111} \sqrt{n} \ln n + \varepsilon_1 \sqrt{n}, \quad (11)$$

其中, a 为晶格常数, r 为空洞半径, n 表示缺陷团簇包含的单体数, $\bar{\gamma}$ 表示空洞平均表面能密度, E_{111} 表示位错环平均线能量前对数因子, ε_1 取 9.08 eV/\AA ^[18] ($1 \text{ \AA} = 10^{-10} \text{ m}$), 具体数值见补充材料. 再将 CD 模型得到的缺陷密度信息结合 (10) 式和 (11) 式及小缺陷的形成能, 就可以求得任意时刻空位缺陷、自间隙缺陷的体积储能:

$$E_V^{\text{Vol}} = C_V E_V^f + C_{V_2} E_{V_2}^f + \sum_{n=3}^{N_m} C_{V_n} E_v(n) - T S_v, \quad (12)$$

$$E_1^{\text{Vol}} = \sum_{n=1}^6 C_{1n} E_{1n}^f + \sum_7^{N_m^i} C_{1n} E_{l-1/2(111)}(n) - TS_i, \quad (13)$$

其中 T 为温度, S_V 和 S_i 分别是 V 缺陷和 I 缺陷的构型熵, 可利用 Mannheim 等^[19] 的方法得到.

由于晶界迁移本质上是晶粒间原子的迁移, 因此假设晶界迁移率和自体扩散系数成正比. 在此定义辐照增强晶界迁移因子 (R) 为

$$R = D_{\text{rad}} / D_{\text{the}}, \quad (14)$$

式中, R 反映中子辐照增强晶界迁移效应, 其中 D_{the} 和 D_{rad} 分别是未辐照下热激活的自体扩散系数和中子辐照下的自体扩散系数. D_{the} 和 D_{rad} 的表达式为^[13,39]

$$D_{\text{the}} = D_1 C_1^{\text{eq}} + D_V C_V^{\text{eq}}, \quad (15)$$

$$D_{\text{rad}} = D_1 C_1 + D_{I_2} C_{I_2} + D_V C_V, \quad (16)$$

其中 D_1 , D_{I_2} , D_V 分别是 I, I_2 , V 的扩散系数, 由 (17) 式给出. C_1^{eq} 和 C_V^{eq} 分别是 I 和 V 的热平衡密度, 由 (18) 式给出. C_1 , C_{I_2} 和 C_V 分别是辐照下 I, I_2 和 V 的密度. $D_{\theta'}^0$, $E_{\theta'}^0$ 和 $E_{\theta'}^f$ 分别为材料相关的扩散系数前置因子、可移动缺陷迁移能和可移动缺陷形成能, 具体数值见补充材料. $\Omega = a^3/2$ 为体心立方-钨的原子体积:

$$D_{\theta'} = D_{\theta'}^0 \exp\left(-\frac{E_{\theta'}^m}{kT}\right), \quad (17)$$

$$C_{\theta'}^{\text{eq}} = \exp\left(-\frac{E_{\theta'}^f}{kT}\right) / \Omega. \quad (18)$$

未辐照钨等温退火实验数据拟合结果表明钨的晶界迁移率 M 满足阿伦尼乌斯的形式^[7]. 通过引入辐照增强扩散因子, 中子辐照下晶界迁移率可以写成下列形式^[40,41]:

$$M = R \frac{M_0}{T} \exp\left(-\frac{Q_m}{kT}\right), \quad (19)$$

其中 M_0 为材料常数, Q_m 为再结晶激活能, T 为温度, k 为玻尔兹曼常数. 对 (7) 式进行微分得到辐照下再结晶分数随时间演化的微分表达式:

$$\frac{dX}{dt} = \sqrt[n_a]{U} \frac{RM_0}{T} \exp[-Q_m/(kT)] n_a P (1-X) \times [-\ln(1-X)]^{(1-1/n_a)}. \quad (20)$$

为得到钨再结晶过程中的材料常数并与 HFIR 堆中子辐照钨 (80% 热轧变形量, 记为 W80) 实验结果进行比较, 通过对比文献^[7, 8, 13] 中 W67 (67% 温轧变形量, 记为 W67) 和 W80 的显微组织和维氏硬度, 发现二者初始微观结构和力学性质相近, 因此这里可认为二者具有相似的再结晶动力学过程. 图 1 为使用 JMAK 模型拟合未辐照 W67 等温退火实验数据得到的结果^[7]. 从图 1 可以看出, 除了再结晶的初始阶段, 拟合结果和实验结果基本符合. 拟合得到的材料常数如下:

$$\sqrt[n_a]{U} M_0 = 5.02 \times 10^{15} \text{ K} \cdot \text{m}^3/\text{J},$$

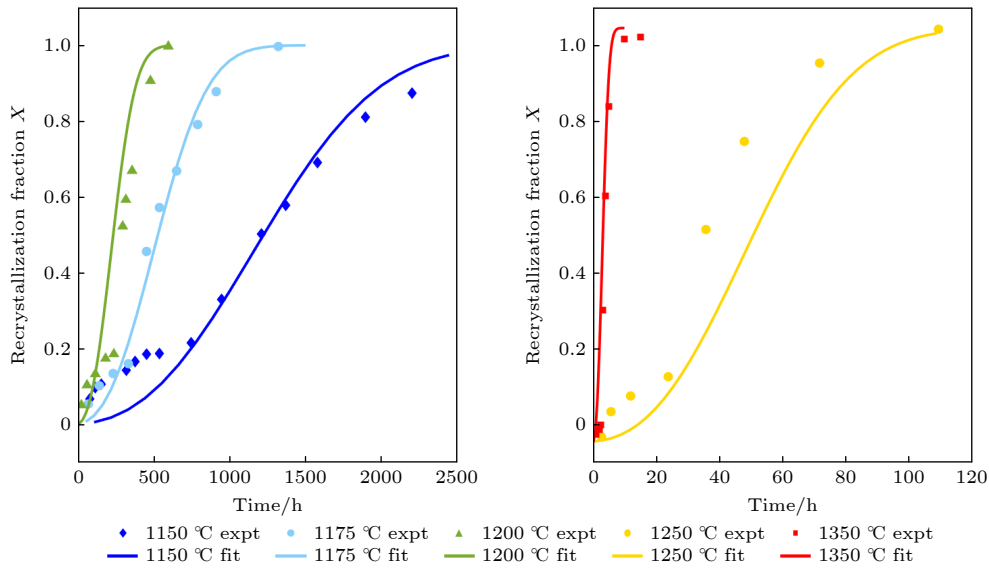


图 1 使用 JMAK 模型拟合钨等温退火实验再结晶分数的演变, 拟合用实验数据取自 Lopez^[7]

Fig. 1. Using the JMAK model to fit the evolution of the recrystallization fraction in the isothermal annealing experiment of pure tungsten, the experimental data used for the fitting were taken from Lopez^[7].

$$E_d^{\text{Vol}} = 6.04 \times 10^5 \text{ J/m}^3, Q_m = 6.08 \text{ eV}, n_a \approx 2.55.$$

3 结果与讨论

3.1 缺陷演化

CD 模型以 HFIR 堆中子辐照为例, 模拟了纯钨内部缺陷的演化. 图 2 为不同温度下缺陷演化的结果, 表明 V_n 和 I_n 的尺寸和密度对温度和时间存在不同的依赖关系. 从图 2(a), (c), (e), (g), (i), (k) 可以看出随着温度的上升, V_n 的最大尺寸起初也随之增大, 在 1100 °C 左右达到峰值, 之后最大尺寸急剧下降, 但其整体密度一直是呈降低的趋势. V_n 随时间的演变与温度密切相关, 在低于 1100 °C 时, V_n 随时间一直生长; 高于 1100 °C, V_n 很难生长起来. 这主要是由于 V 的迁移能 (1.66 eV) 较大的缘故. 根据扩散捕获速率理论, V_n 与 V 发生吸收和发射反应的速率系数如下 [32]:

$$\gamma_n^+ = 4\pi r_{V_n} D_V, \quad (21)$$

$$\gamma_{n+1}^- = \frac{\gamma_n^+}{\Omega} \exp\left(-\frac{E_{V_n-V}^b}{kT}\right), \quad (22)$$

其中 r_{V_n} 为 V_n 的捕获半径; $E_{V_n-V}^b$ 为 V_n 与 V 反应的结合能, 具体数值见补充材料.

图 3 为由 (21) 式和 (22) 式得到的不同温度下 V_n 与 V 反应的速率系数, 而反应通量 $J_{V_n, V}^+$ 正比于相应的速率系数. 从图 3 可知, 温度高于 800 °C, 吸收反应的速率系数 $\gamma_{V_n}^+$ 就已经很大. 在 750—1100 °C 之间, 随着温度的升高, V_n 与 V 反应的吸收通量增大, 且吸收通量大于相应的发射反应通量, 导致 V_n 的生长速率与温度呈正相关. 由 (22) 式可知, 随着温度的升高, 发射反应的速率系数 $\gamma_{V_n}^-$ 较 $\gamma_{V_n}^+$ 增大得更快, 当温度超过 1100 °C 后, V_n 的发射反应通量占主导, 导致其平均尺寸和密度随温度的升高而急剧下降.

有别于 V_n , 图 2(b), (d), (f), (h), (j) 表明 I_n 的平均尺寸与整体密度都是随温度的上升而下降, 且在整个温度区间内其尺寸分布很快达到平衡且尺寸较小. 这主要是由于 I 的迁移能 (0.013 eV) 远低于 V 的迁移能. 在所考虑的温度区间内, I 的扩散系数足够大, 导致 I_n 的分布很快达到平衡. 相较于 I_n 与 I 反应的吸收反应通量, 相应的发射反应通量随温度增大得更快, 导致其平均尺寸和密度

随温度的升高而降低.

上述结果与 Klimenkov 等 [42] 在裂变中子辐照钨实验上观察到的结果相比, 实验观察到空洞与析出物在 1100 °C 时达到最大尺寸, 且空洞密度也基本随温度上升而下降, 这与本模拟结果一致; 但当辐照温度为 1200 °C 时, 空洞密度不降反升, 另外 1100 °C 时的位错环尺寸大于 1000 °C 和 1200 °C, 这有别于本研究的模拟结果. 这可能是因为本研究没有考虑嬗变元素对缺陷演化的影响, 已有的实验和模拟研究表明不同密度的 Re 和 Os 会改变空洞与位错环的密度 [17,43,44]. 此外, V_n 并非只形成三维空洞, 部分 V_n 也会形成 V 位错环 [18,45]. 因此, 模拟结果和实验有所出入.

3.2 辐照诱导再结晶

图 4 为基于 3.1 节 CD 模拟结果所得到的辐照增强 P 和辐照增强 M , 其中考虑的最长时间为完全再结晶或辐照两年的时间. 图 4(a) 为不同温度下 P 随时间的演变, 可看出 P 与辐照温度呈负相关. 这是由于随着温度的上升, I 和 V 扩散系数增大, 一方面使缺陷间复合增加, 另一方面使大尺寸 V_n 越容易生长, 进而吸收更多的点缺陷使得缺陷团簇密度下降, 而 P 与缺陷团簇密度成正相关, 因此当温度上升, 缺陷密度下降, P 也跟着降低. 此外, 1100 °C 下 P 随着辐照时间成指数增大, 这与图 2(g) 中 V_n 的演变有直接关系. 为了说明这一点, 图 4(b) 展示了在所截取的时间点处, 不同缺陷类型对 P 的贡献占比. 可以明显看出低于 1100 °C 下 P 主要由空洞贡献, 高于 1100 °C 下 P 主要由位错线贡献. 这是由于当辐照温度在 1100 °C 以下, V_n 一直生长, 所形成的空洞对 P 的贡献占比随时间增大; 而当辐照温度升高至 1200 °C 及以上, V_n 的平均尺寸和密度开始急剧下降, 且 I_n 的平均尺寸和密度也会降低, 因此 P 变成几乎全部都由位错线贡献. 值得一提的是, V_n 在 1100 °C 下生长得最快, 尤其是在演化后期出现更大尺寸的缺陷团簇, 虽然密度有所下降, 但尺寸相对于 I_n 高出 2 个数量级, 因此 P 在 1100 °C 下的演化后期急剧上升.

如图 4(c) 所示, 与 P 随辐照温度变化的趋势相同, 中子辐照下的 R 与温度一直成负相关. 这是因为低温时点缺陷热平衡密度远低于辐照产生的点缺陷密度, 使得 D_{the} 远低于 D_{rad} ; 进而温度越低 R 越大. 因此可认为辐照温度越低, M 越容易受到

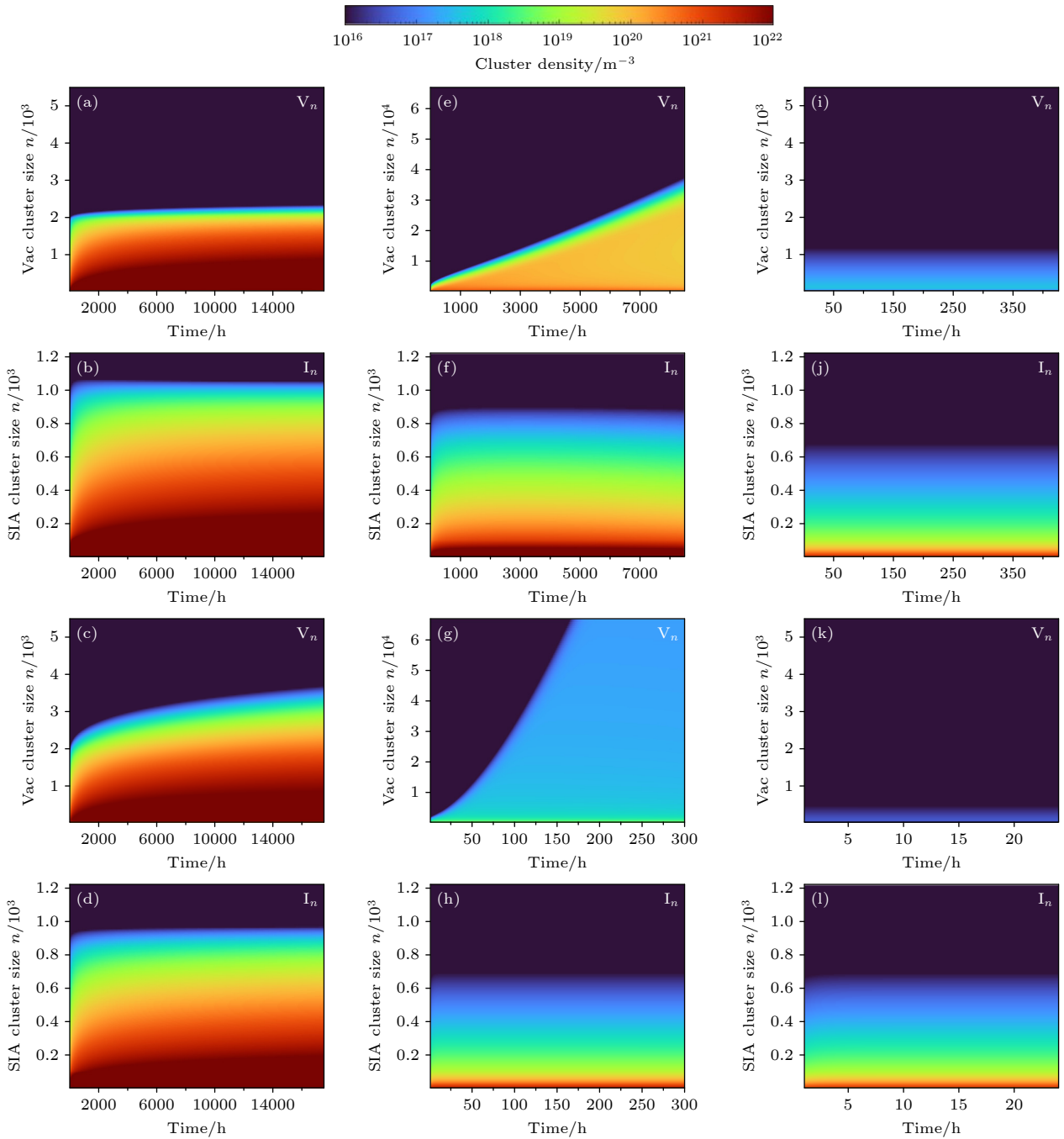


图 2 不同中子辐照温度下的缺陷团簇尺寸与密度随辐照时间的演变 (a), (c), (e), (g), (i), (k) 分别为 V 团簇在 750, 850, 950, 1100, 1200, 1300 °C 下的演变; (b), (d), (f), (h), (j), (l) 分别为 I 团簇在 750, 850, 950, 1100, 1200, 1300 °C 下的演变

Fig. 2. Evolution of defect cluster size and density with irradiation time at different neutron irradiation temperatures: (a), (c), (e), (g), (i), (k) Evolution of V cluster at 750, 850, 950, 1100, 1200, 1300 °C; (b), (d), (f), (h), (j), (l) I clusters evolution of cluster at 750, 850, 950, 1100, 1200, 1300 °C.

辐照增强自体扩散效应的影响^[13]. 但随着温度逐渐升高, 点缺陷热平衡密度上升, 导致 D_{the} 快速增大. 模拟结果表明辐照下 D_{rad} 也会随温度的上升而上升, 但其上升的幅度比 D_{the} 上升的幅度小, 造成 R 逐渐降低. 且在辐照温度升至 1300 °C 时, R 更是接近于 1, 因此 1300 °C 下辐照的 M 接近于未辐照的 M .

图 4(d) 为不同辐照温度下 $P \times M$ 的演变, 反映了二者对中子辐照诱导再结晶过程的综合影响. 钨的晶界迁移由于是热激活过程 ((19) 式), 其随温度的上升而指数上升, 因此 $P \times M$ 基本上随温度的上升而增大. 但在 1100 °C 下, 由于 P 在演化后期急剧上升, 因此出现 $P \times M > 1200$ °C 的现象.

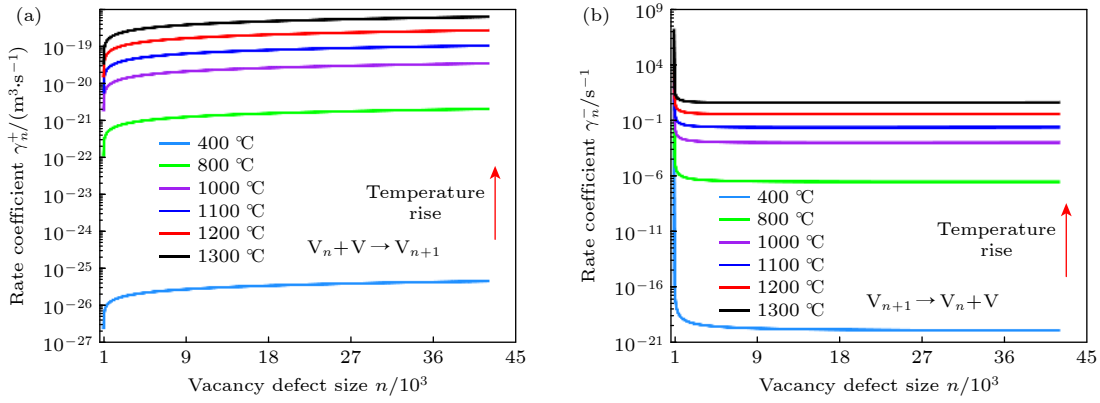


图 3 不同温度下 V_n 与 V 发生反应的速率系数 (a) 不同温度下 V_n 吸收 V 反应的速率系数; (b) 不同温度下 V_{n+1} 发射 V 反应的速率系数

Fig. 3. Rate coefficients of the reaction between V_n and V at different temperatures: (a) Rate coefficients of V_n absorption V reactions at different temperatures; (b) rate coefficients of V_{n+1} emission V reactions at different temperatures.

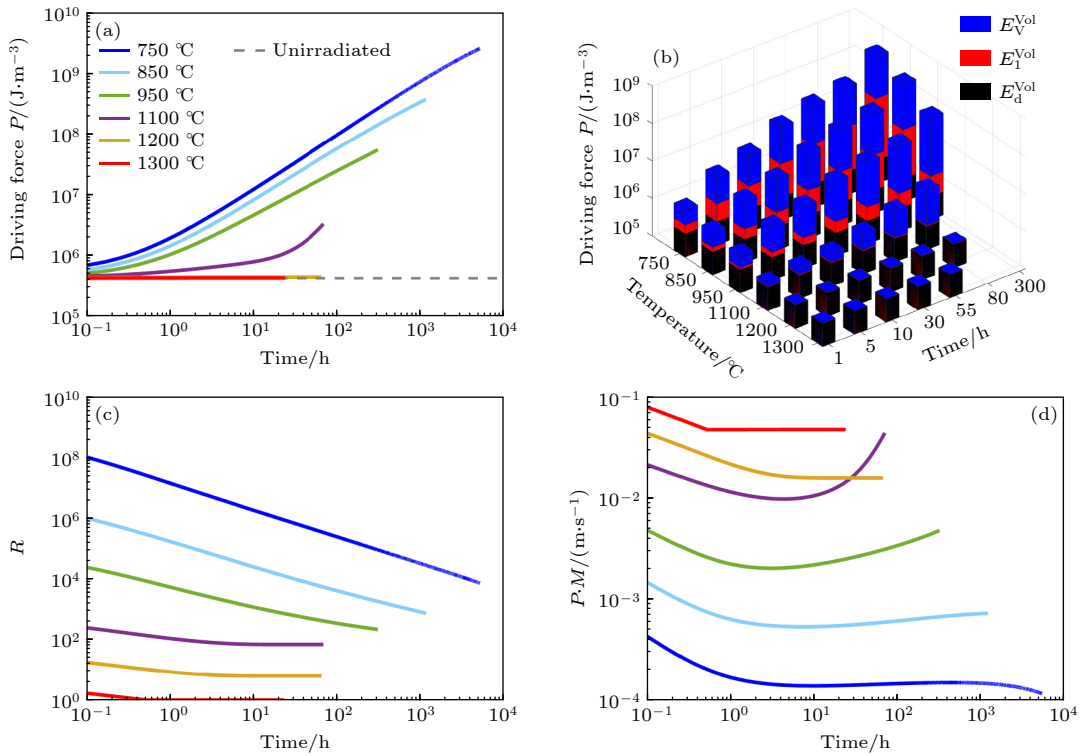


图 4 (a) 不同辐照温度下 P 的演变; (b) 在截取的时间点处不同辐照温度下 P 的占比; (c) 不同辐照温度下 R 的演变; (d) 不同辐照温度下 $P \times M$ 的演变

Fig. 4. (a) Evolution of driving force P at different irradiation temperatures; (b) proportion of defects contribution to driving force at different irradiation temperatures and time; (c) evolution of R at different irradiation temperatures; (d) evolution of product of driving force and grain boundary mobility ($P \times M$) at different irradiation temperatures.

图 5 为只考虑辐照增强 P 效应以及辐照增强 P 效应和 M 效应都考虑时再结晶分数随时间的演变曲线. 可以看出, 若只考虑辐照增强 P , 当辐照温度低于 850 °C 时, 两年内都不会发生明显的再结晶现象, 且 1200 °C 下需要约 171 h 达到一半再结晶分数. 相比之下, 若中子辐照增强 P 和 M 效应都考虑下, 850 °C 时纯钨的 $t_{X=0.5}$ 只有约 503 h,

而 1200 °C 下只需约 27 h 就能达到一半再结晶分数, 这比只考虑辐照增强 P 条件下快了 144 h. 根据 Lopez^[7] 的未辐照下等温退火实验结果, 1200 °C 纯钨的 $t_{X=0.5}$ 约为 300 h, 因此, 可以认为中子辐照缺陷导致 P 和 M 增大将使钨在 1200 °C 下的 $t_{X=0.5}$ 缩短约 273 h.

当将辐照增强 P 和 M 都考虑下 850 °C 的模

拟结果与 HFIR 堆 850 °C 下中子辐照钨 24 d (576 h) 达到一半再结晶分数的结果^[13]进行对比可以发现, 模拟得到的 $t_{X=0.5}$ (503 h) 与实验基本符合但略小些. 实验的 $t_{X=0.5}$ 略长的原因初步推测是 HFIR 堆高热中子通量辐照下产生的嬗变元素 (Re 和 Os 含量分别达到 3.3% 和 1.9% 原子分数^[13]). 这些嬗变元素会形成纳米析出颗粒, 从会钉扎住晶界, 产生 Zener 阻力, 降低晶界迁移速率^[33,46]. 因此, HFIR 堆 850 °C 下的实验结果相较于模拟结果而言有较长的 $t_{X=0.5}$.

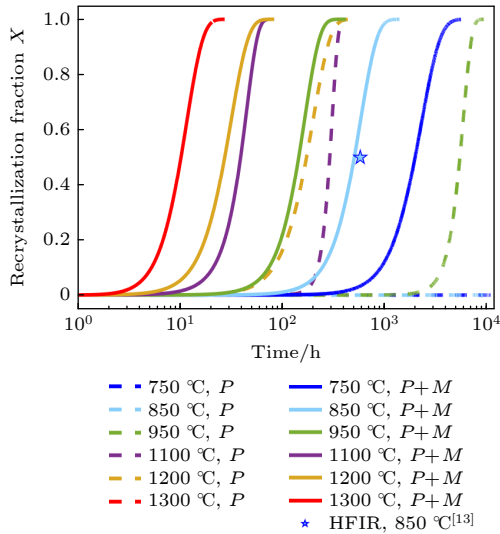


图 5 只考虑辐照增强 P 及同时考虑辐照增强 P 和 M ($P+M$) 的再结晶分数演变曲线

Fig. 5. Recrystallization fraction (X) evolution curve considering only irradiation enhancement on driving force (P) and both irradiation enhancement driving force and grain boundary mobility ($P+M$).

同时辐照增强 P 和 M 时, 虽然 M 随着温度指数增长, 但 1100 °C 和 1200 °C 的完全再结晶时间却几乎相同. 这是由于在 1100 °C 辐照温度下的演化后期, P 与 M 的乘积大幅增大 (图 4(d)), 导致后期再结晶速率加快. 另一个值得关注的现象是在 1300 °C 的辐照温度下, 只考虑辐照增强 P 和辐照增强 P 和 M 都考虑下的再结晶曲线几乎重合. 这是由于高温下热激活扩散效应占主导, 使 R 趋近为 1, 因此二者的再结晶速率差别不大.

图 6 为不同温度下基于热激活 JMAK 模型得到的 $t_{X=0.5}$ 和 IIR 模型得到的 $t_{X=0.5}$, 可以明显看出温度越高辐照与未辐照的 $t_{X=0.5}$ 量级相差越小. 相较于未辐照下的热激活再结晶过程, 750 °C 中子辐照下的 $t_{X=0.5}$ 缩短了 8 个量级, 1000 °C 下的缩

短了 5 个量级, 而 1300 °C 下的则相差无几. 这是由于随着温度的升高, 热激活主导了晶界迁移, 且温度高于 1100 °C 后辐照缺陷密度和尺寸大幅下降, 使得辐照诱导再结晶现象基本消失.

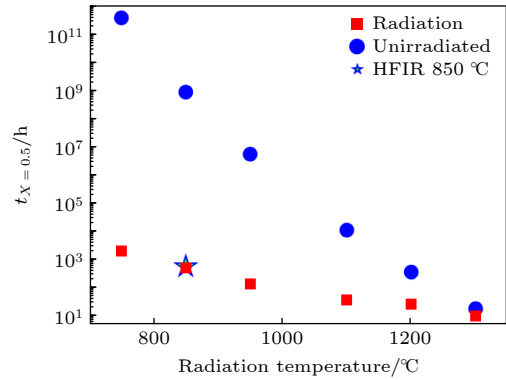


图 6 中子辐照下与未辐照下钨的半再结晶时间 ($t_{X=0.5}$) 随温度的演变

Fig. 6. Evolution of semi-recrystallization time ($t_{X=0.5}$) of tungsten under neutron irradiation and non-irradiation with temperature.

4 总结

本研究通过建立 CD 模型和 IIR 模型模拟了不同温度下中子辐照钨缺陷团簇和再结晶分数的演化, 其中模拟的辐照缺陷尺寸和时间尺度分别达到十几纳米和年的量级, 结果包括以下 3 点.

1) CD 模拟结果表明不同温度下 I 团簇和 V 团簇随时间演变的趋势不同, 这主要是由于二者的迁移性质不同所导致的. 其中最突出的特征表现为 V 团簇尺寸在辐照温度为 1100 °C 左右时达到极值, 这与中子辐照实验观察到的结果一致. 综合辐照增强 P 与 M 的效应, 导致 1100 °C 下完全再结晶时间和 1200 °C 下的几乎相同.

2) 本文在辐照诱导驱动力的基础上, 通过引入辐照增强晶界迁移因子 R 建立了新的 IIR 模型. 模拟结果与最近 HFIR 堆 850 °C 中子辐照实验相符, 表明辐照增强晶界迁移是影响辐照诱导再结晶过程的重要因素. 模拟计算的 850 °C 下中子辐照的半再结晶时间 ($t_{X=0.5}$) 虽然与实验结果几乎相同, 但模拟预测的 $t_{X=0.5}$ 稍短于实验结果, 这可能是由于模型忽略了嬗变析出物对缺陷演化和晶界迁移影响的缘故. 由于是首次实验上观察到钨的辐照诱导再结晶现象, 模型需要进一步的实验数据进行完善.

3) 通过 IIR 模型计算了不同辐照温度下钨再

结晶分数曲线, 给出了偏滤器可能运行温度区间内辐照诱导再结晶动力学的完整图像. 同时, 模型比较了辐照和未辐照下半再结晶时间. 结果表明辐照增强效应和热激活效应对温度不同的依赖关系, 低温下辐照增强效应占主导, 高温下则是由热激活效应占主导.

另外, 由于目前的 IIR 模型还并不完备, 在未来将会纳入以下因素以进一步的完善模型.

1) 纳入钨微观结构的变化和嬗变元素对缺陷演化及晶界迁移的影响, 包括位错和晶界的演变以及晶界迁移过程中, 晶界与缺陷的相互作用.

2) 将再结晶开始前的回复阶段纳入模型. 未辐照纯钨等温退火实验 1200 °C 下都观察到了明显的再结晶成核孕育阶段.

3) 本研究假设发生的再结晶过程是位点饱和成核, 即在短时间内再结晶晶核就已经饱和, 这在高温或辐照情况下可能是如此, 但还需要进一步探究成核过程以更确切的评估中子辐照下钨再结晶动力学过程.

4) 改进 CD 模型, 考虑大尺寸位错环也具有一定的移动性以及位错环与位错线的相互作用.

参考文献

- [1] Philipps V 2011 *J. Nucl. Mater.* **415** S2
- [2] Rieth M, Dudarev S L, Gonzalez de Vicente S M, et al. 2013 *J. Nucl. Mater.* **432** 482
- [3] Norajitra P, Abdel-Khalik S I, Giancarli L M, Ihli T, Janeschitz G, Malang S, Mazul I V, Sardain P 2008 *Fusion Eng. Des.* **83** 893
- [4] Abernethy R G 2017 *J. Mater. Sci. Technol.* **33** 388
- [5] Coenen J W, Antusch S, Aumann M, et al. 2016 *Phys. Scr. T* **2016** 014002
- [6] Hu X, Koyanagi T, Fukuda M, Katoh Y, Snead L L, Wirth B D 2016 *J. Nucl. Mater.* **480** 235
- [7] Lopez A A 2015 *Ph. D. Dissertation* (Copenhagen: Technical University of Denmark)
- [8] Alfonso A, Jensen D J, Luo G N, Pantleon W 2014 *J. Nucl. Mater.* **455** 591
- [9] Kang W A, Dr A, Xiang Z, Lla B, Xz B, Ywab C 2021 *Mater. Sci. Eng. A* **806** 140828
- [10] Budaev V P, Martynenko Y V, Karpov A V, Belova N E, Zhitlukhin A M 2015 *J. Nucl. Mater.* **463** 237
- [11] Bonnekoh C, Reiser J, Hartmaier A, Bonk S, Hoffmann A, Rieth M 2020 *J. Mater. Sci.* **55** 12314
- [12] Ciucani U M, Thum A, Devos C, Pantleon W 2019 *Nucl. Mater. Energy* **20** 100701
- [13] Gietl H, Koyanagi T, Hu X, Fukuda M, Hasegawa A, Katoh Y 2022 *J. Alloys Compd.* **901** 163419
- [14] Duerrschabel M, Klimenkov M, Jaentsch U, Rieth M, Schneider H C, Terentyev D 2021 *Sci. Rep.* **11** 7572
- [15] Klimenkov M, Jaentsch U, Rieth M, Schneider H C, Armstrong D E J, Gibson J, Roberts S G 2016 *Nucl. Mater. Energy* **9** 480
- [16] Fukuda M, Kumar N A P K, Koyanagi T, Garrison L M, Snead L L, Katoh Y, Hasegawa A 2016 *J. Nucl. Mater.* **479** 249
- [17] Fukuda M, Tanno T, Nogami S, Hasegawa A 2012 *Mater. Trans.* **53** 2145
- [18] Ma P W, Mason D R, Dudarev S L 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 103609
- [19] Mannheim A, van Dommelen J A W, Geers M G D 2018 *Mech. Mater.* **123** 43
- [20] Mannheim A, van Dommelen J A W, Geers M G D 2019 *Comput. Mater. Sci.* **170** 109146
- [21] Barbu A, Clouet E 2007 *Solid State Phenom.* **129** 51
- [22] Gilbert M R, Marian J, Sublet J C 2015 *J. Nucl. Mater.* **467** 121
- [23] Gilbert M R, Sublet J C 2018 *J. Nucl. Mater.* **504** 101
- [24] Setyawan W, Nandipati G, Roche K J, Heinisch H L, Wirth B D, Kurtz R J 2015 *J. Nucl. Mater.* **462** 329
- [25] Huang C H, Gilbert M R, Marian J 2018 *J. Nucl. Mater.* **499** 204
- [26] Troev T, Nankov N, Yoshiie T 2011 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **269** 566
- [27] Caturla M J, Rubia T, Victoria M, Corzine R K, Greene G A 2001 *J. Nucl. Mater.* **296** 90
- [28] Vrielink M A O, Shah V, van Dommelen J A W, Geers M G D 2021 *J. Nucl. Mater.* **554** 153068
- [29] Yi X, Sand A E, Mason D R, Kirk M A, Roberts S G, Nordlund K, Dudarev S L 2015 *Epl* **110** 36001
- [30] Sand A E, Mason D R, De Backer A, Yi X, Dudarev S L, Nordlund K 2017 *Mater. Res. Lett.* **5** 357
- [31] Ghoniem N M, Sharafat S 1980 *J. Nucl. Mater.* **92** 121
- [32] Li Y G, Zhou W H, Ning R H, Huang L F, Zeng Z, Ju X 2012 *Commun. Comput. Phys.* **11** 1547
- [33] Humphreys F J, Hatherly M 2004 *Recrystallization and Related Annealing Phenomena* (Oxford: Elsevier) pp232–242
- [34] Fanfoni M, Tomellini M 1998 *Il Nuovo Cimento D* **20** 1171
- [35] Hallberg H 2011 *Metals* **1** 16
- [36] Yi X, Jenkins M L, Hattar K, Edmondson P D, Roberts S G 2015 *Acta Mater.* **92** 163
- [37] Yi X, Jenkins M L, Kirk M A, Zhou Z, Roberts S G 2016 *Acta Mater.* **112** 105
- [38] Yi X 2014 *Ph. D. Dissertation* (Oxford: University of Oxford) pp207–234
- [39] Was G S 2017 *Fundamentals of Radiation Materials Science* (Berlin: Springer) pp191–203
- [40] Rollett A D, Gottstein G, Shvindlerman L S, Molodov D A 2004 *Zeitschrift Fur. Metallkunde* **95** 226
- [41] Favre J, Fabregue D, Piot D, Tang N, Koizumi Y, Maire E, Chiba A 2013 *Metall. Mater. Trans. A* **44** 5861
- [42] Klimenkov M, Duerrschabel M, Jaentsch U, Lied P, Rieth M, Schneider H C, Terentyev D, Van Renterghem W 2022 *J. Nucl. Mater.* **572** 154018
- [43] Li Y H, Zhou H B, Jin S, Zhang Y, Deng H, Lu G H 2017 *Nucl. Fusion* **57** 046006
- [44] You Y W, Kong X S, Wu X, Liu C S, Fang Q F, Chen J L, Luo G N 2017 *Nucl. Fusion* **57** 086006
- [45] Setyawan W, Selby A P, Juslin N, Stoller R E, Wirth B D, Kurtz R J 2015 *J. Phys. Condens. Matter* **27** 225402
- [46] Nes E, Ryum N, Hunderi O 1985 *Acta Metall.* **33** 11

Simulation of neutron irradiation-induced recrystallization of tungsten*

Zhang Guo-Shuai Yin Chao[†] Wang Zhao-Fan
Chen Ze Mao Shi-Feng Ye Min-You[‡]

(School of Nuclear Sciences and Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(Received 4 April 2023; revised manuscript received 31 May 2023)

Abstract

Tungsten is the candidate for divertor target material in future fusion reactors. The tungsten divertor target is expected to long serve in a harsh environment of high temperature and high-energy neutron irradiation. This can lead to neutron irradiation-induced recrystallization of tungsten, thereby increasing the possibility of intergranular brittle failure and compromising the safe operation of the divertor. Thus, clarifying the mechanism of neutron irradiation-induced tungsten recrystallization is important. However, the current model, which only considers the irradiation-enhanced effect on recrystallization driving force, underestimates the irradiation effect on recrystallization compared with the results observed in recent high-temperature neutron irradiation experiments in the HFIR reactor. It indicates that other irradiation effects can also influence the recrystallization process.

In this study, we introduce the irradiation-enhanced grain boundary migration factor (R) into the established irradiation-induced recrystallization kinetic model, on the assumption that the grain boundary migration velocity is proportional to the self-diffusion coefficient. The simulation results show that after considering both irradiation-enhanced recrystallization driving force and grain boundary migration effect, the calculated half-recrystallization time ($t_{X=0.5}$) at 850 °C from the model matches the one obtained in the neutron irradiation experiment in the HFIR reactor. This result indicates that the irradiation-enhanced grain boundary migration effect is one of the important factors affecting irradiation-induced recrystallization. In addition, the difference between irradiated and unirradiated $t_{X=0.5}$ decreases with temperature increasing. This phenomenon is due to the fact that as the temperature increases, the contribution of irradiation defects to the driving force for recrystallization decreases owing to the irradiation defect recombination. Moreover, the increase of thermal activation diffusion coefficient is more significant than the increase of the irradiation-enhanced diffusion coefficient. These findings suggest that the thermal activation effect eventually dominates the recrystallization process over the irradiation effect as temperature increases.

Keywords: tungsten, neutron irradiation, cluster dynamics, irradiation-induced recrystallization

PACS: 28.52.-s, 28.52.Fa, 28.52.Av

DOI: 10.7498/aps.72.20230531

* Project supported by the Joint Funds of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. U2267208), the China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. 2021M703113), the Chinese Academy of Sciences Taiwan Young Talent Program, China (Grant No. 2021TWGB0001), the University Synergy Innovation Program of Anhui Province, China (Grant No. GXXT-2021-026), the Collaborative Innovation Program of Hefei Science Center, Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. 2022HSC-CIP010), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (Grant No. WK2140000015).

[†] Corresponding author. E-mail: chaoyin@ustc.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: yemy@ustc.edu.cn



中子辐照诱导钨再结晶的模拟研究

张国帅 尹超 王兆繁 陈泽 毛世峰 叶民友

Simulation of neutron irradiation-induced recrystallization of tungsten

Zhang Guo-Shuai Yin Chao Wang Zhao-Fan Chen Ze Mao Shi-Feng Ye Min-You

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 162801 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230531

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230531>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

中子对碲锌辐照损伤模拟研究

Simulation study of neutron radiation damage to cadmium zinc telluride

物理学报. 2022, 71(22): 226102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221195>

氦泡在bcc钨中晶界处成核长大的分子动力学模拟

The nucleation and growth of Helium bubbles at grain boundaries of bcc tungsten: a molecular dynamics simulation

物理学报. 2020, 69(4): 046103 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191069>

AlGaIn/GaN高电子迁移率晶体管器件中子位移损伤效应及机理

Neutron-induced displacement damage effect and mechanism of AlGaIn/GaN high electron mobility transistor

物理学报. 2020, 69(20): 207301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200714>

氦离子显微镜对钨中氦行为的实验研究

Helium behavior of tungsten investigated by helium ion microscope

物理学报. 2019, 68(4): 040702 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181864>

含钨难熔高熵合金的制备、结构与性能

Preparation, structures and properties of tungsten-containing refractory high entropy alloys

物理学报. 2021, 70(10): 106201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201986>

基于蒙特卡罗模拟研究铅钨酸钪材料的中子辐照损伤

Simulation of neutron irradiation damage in lead lanthanum zirconate titanate by Monte Carlo method

物理学报. 2022, 71(7): 076101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212041>