

Ti-V-Ta 多主元合金辐照位错环形成的级联重叠模拟*

赵永鹏 豆艳坤[†] 贺新福 杨文

(中国原子能科学研究院, 反应堆工程技术研究所, 北京 102413)

(2024 年 7 月 27 日收到; 2024 年 9 月 27 日收到修改稿)

针对 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照位错环的形成行为, 采用分子动力学方法开展了级联重叠模拟, 分析讨论了辐照位错环形成的级联重叠机制. 研究发现, 在 Ti-V-Ta 多主元合金中, 与缺陷团簇的级联重叠可以直接产生不同类型的位错结构, 级联重叠后的缺陷构型由 PKA 能量和预置缺陷团簇的类型和尺寸决定. 相比于单次级联碰撞, 级联重叠可以提高 $\langle 100 \rangle$ 取向位错环的形成概率. 与空位团簇的级联重叠是形成 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环的重要机制, 而空位团簇的尺寸是形成 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环的决定因素, 当 PKA 能量足以溶解缺陷团簇时, 更容易形成 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环. 与间隙团簇的级联重叠是形成 $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环的一种可能机制, 但发生概率较小. 本研究有助于理解 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照缺陷的形成和演化行为, 促进材料抗辐照性能的评价, 并为难熔高熵合金的成分设计和优化提供理论支持.

关键词: Ti-V-Ta 多主元合金, 辐照位错环, 级联重叠, 分子动力学

PACS: 61.72.J-, 02.70.Ns, 61.82.Bg

DOI: 10.7498/aps.73.20241074

CSTR: 32037.14.aps.73.20241074

1 引言

包壳材料目前已经成为制约特种动力反应堆发展的核心瓶颈之一, 面对更高的服役温度和辐照剂量, 现有材料难以完全满足服役环境的要求, 迫切需要研发新型特种动力反应堆用包壳材料^[1,2]. 多主元合金 (即广义高熵合金) 作为一种具有颠覆性设计理念的新型材料, 突破了传统合金以一种或两种元素为主的设计理念, 初步表现出优异的高温力学性能、耐腐蚀性能和抗辐照性能^[3-8]. 在目前研发的合金体系中, Ti-V-Ta 多主元合金的高温强度高、室温塑性好、组织结构稳定、中子活化低, 其作为新一代反应堆包壳的重要候选材料, 有望突破目

前特种动力反应堆发展的瓶颈问题^[9-13].

Ti-V-Ta 多主元合金的抗辐照性能是目前的研究重点, Mei 等^[13] 针对 Ti-V-Ta 多主元合金开展的离子辐照实验表明辐照位错环是该材料主要的辐照缺陷, 其采用 6 MeV 的 Ti 离子在室温下将纯 V 和 Ti-V-Ta 多主元合金的样品辐照至 0.4 dpa, 微观表征发现 Ti-V-Ta 多主元合金辐照位错环的尺寸和数密度均远低于纯 V. 同时, 在纯 V 和 Ti-V-Ta 多主元合金中主导的辐照位错环类型有很大差异, 纯 V 经离子辐照产生的大部分为 $1/2 \langle 111 \rangle$ 辐照位错环, 而在 Ti-V-Ta 多主元合金以 $\langle 100 \rangle$ 辐照位错环为主. 目前, 尚未有理论解释 Ti-V-Ta 多主元合金中观察到大量 $\langle 100 \rangle$ 辐照位错环的现象, 其归因于多主元合金中化学无序和晶格畸变导致

* 国家青年自然科学基金 (批准号: 12405324)、中国原子能科学研究院院长基金 (批准号: 219256) 和中国原子能科学研究所所长基金 (批准号: 218296) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: douyankun3@163.com

的能量扰动,进而产生独特的缺陷动力学导致不同的位错反应路径,这有待进一步研究.

Ti-V-Ta 多主元合金中辐照位错环的形成是一个长时间、跨空间尺度的复杂物理问题,由于微观表征手段的限制,缺乏对位错环形成物理机制的深入研究.此前,作者对 Ti-V-Ta 多主元合金的辐照损伤行为开展了较为系统的模拟研究,分析了辐照点缺陷的形成和扩散行为^[14,15],发现 Ti-V-Ta 多主元合金具有较慢的能量耗散能力,可以增强缺陷的复合导致相对较少的存活缺陷,并且间隙扩散缓慢,缺陷成团率较低.此外,作者研究了级联碰撞过程中的初级辐照损伤行为^[16],发现单次级联碰撞产生的辐照缺陷主要为空位团簇和 $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环,也有少量 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环.目前,对于 Ti-V-Ta 多主元合金 $\langle 100 \rangle$ 辐照位错环的形成还没有相关解释,而针对 α -Fe 中 $\langle 100 \rangle$ 位错环的形成,相关研究很早以前就已开展.研究者提出了多种位错环的形成机制,如级联冲击波机制^[17]、级联重叠机制^[18-20]、C15 团簇转变机制^[21-23]、位错环转变机制^[24-26]和位错环反应机制^[27,28]等,这些机制在一定程度上解释了 α -Fe 中 $\langle 100 \rangle$ 位错环的存在,但都未彻底解释 $\langle 100 \rangle$ 位错环的形成机理.

在高剂量的离子辐照过程中, Ti-V-Ta 多主元合金位错环形成的级联重叠机制也可能存在,并且在高熵合金中还没有相关研究见于报道,多主元效应的影响有待探究.当辐照剂量比较高时,已经发生过级联碰撞的区域,有可能再次被高能粒子碰撞,从而产生初级撞出原子(primary knock-on atom, PKA),并再次发生级联碰撞,这个新的级联会和旧的级联产生的辐照损伤重叠. Granberg 等^[18]提出了 α -Fe 中形成 $\langle 100 \rangle$ 取向位错环的级联重叠机制,当级联碰撞与预先存在的辐照损伤重叠时,可以使 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环转变成 $\langle 100 \rangle$ 位错环,并且对 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环的大小和形状没有任何限制. Wang 等^[20]分析了不同因素对于 α -Fe 中级联重叠的影响,发现位错环的形成和转变与 PKA 的能量、方向和距离、温度、初始辐照损伤等均有关系.

综上所述,本文从级联重叠形成位错环的角度出发,采用分子动力学方法模拟 Ti-V-Ta 多主元合金和纯 V 中辐照位错环的形成过程,开展与空位团簇和间隙团簇的级联重叠模拟,分析其物理机制和影响因素,明晰 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照位错环的形成机理,这有助于理解评价材

料的抗辐照性能,同时也可指导材料的成分设计和优化.

2 模型与方法

本研究采用分子动力学程序 LAMMPS^[29] 针对 Ti-V-Ta 多主元合金位错环形成行为开展模拟研究,所采用的原子间作用势为 Qiu 等^[30]开发的 EAM 类型势函数,可用于描述 Ti-V-Ta 多主元合金中缺陷相互作用和级联碰撞模拟.对于 Ti-V-Ta 多主元合金和纯 V 中辐照位错环形成的级联重叠模拟,温度为 300 K,采用三维周期性边界条件.在模拟盒子中心预置缺陷,包括不同尺寸的空位团簇和间隙团簇,然后在距离预置缺陷中心距离 20 Å 的位置处引入 PKA,方向为 $\langle 135 \rangle$,指向缺陷团簇中心.根据引入 PKA 的能量构建模拟盒子,对于 PKA 能量为 5 keV, 10 keV 和 20 keV 的算例,盒子尺寸为 $120a_0 \times 120a_0 \times 120a_0$,其中 a_0 为晶格常数, Ti-V-Ta 多主元合金取 3.205 Å,纯 V 取 3.030 Å; PKA 能量为 40 keV 时,盒子尺寸为 $150a_0 \times 150a_0 \times 150a_0$.预置空位团簇尺寸 N_{VAC} 由移除原子的数目定义,包括含 12, 65, 253 和 537 个空位的空位团簇;预置间隙团簇尺寸由添加原子的数目 N_{SIA} 定义,包括含 35, 97 和 183 个原子的间隙团簇.在引入 PKA 前,首先对系统进行静态弛豫,然后在等温等压系综下动态弛豫 25 ps,时间步长为 0.001 ps.充分弛豫后,引入 PKA,采用微正则系综的变时间步长进行级联重叠模拟,首先采用 0.0001 ps 的时间步长模拟 5000 步,然后是 0.0005 ps 的时间步长模拟 10000 步,继而采用 0.001 ps 的时间步长模拟 9500 步,最后采用 0.01 ps 的时间步长模拟 8500 步,为保证级联碰撞充分退火,模拟时间共计 100 ps.此外,为分析级联碰撞过程中缺陷的演化过程,每模拟 100 步输出一次所有原子的位置信息和能量信息.对于不同情况均开展 50 次模拟,若有原子在模拟过程中冲出边界,则舍去该算例.

采用开源可视化工具(open visualization tool, OVITO)^[31]分析级联重叠过程中的缺陷演化行为,其中 Frenkel 缺陷对数目通过 Wigner-Seitz 分析方法获得;采用位错分析方法分析缺陷构型.基于模拟结果,分析新产生 Frenkel 缺陷对数目与 PKA 能量、预置缺陷尺寸的关系;分析级联重叠过程新

产生缺陷与预置缺陷的相互作用; 分析形成的位错结构以及位错环形成的影响因素.

3 结果与讨论

3.1 与空位团簇的级联重叠模拟

图 1 给出了 Ti-V-Ta 多主元合金与空位团簇级联重叠模拟中缺陷的演化过程, 该模拟算例的 PKA 能量为 40 keV. 在初始盒子中心预置了一个含有 253 个空位的空位团簇, 随着 PKA 的引入, 级联碰撞导致盒子中形成了许多 Frenkel 缺陷对; 在 0.25 ps 时, 新形成的辐照缺陷逐渐把初始的空位团簇覆盖; 在 5 ps 左右时达到缺陷数目峰值, 大量的缺陷已将空位团簇完全覆盖; 在 10 ps 时, 缺陷数目逐步减少; 退火至 100 ps 时, 缺陷数目保持稳定, 至此, 已新形成了 189 个 Frenkel 缺陷对, 同时预置的空位团簇在级联重叠后被完全溶解, 盒子中心处产生了稳定的 (100) 空位位错环.

预先存在的空位团簇对于级联过程中产生的位错以及位错环类型具有显著影响. 在 PKA 能量为 40 keV, 中心团簇含 253 个空位的条件下开展了共 50 次级联重叠模拟, 有 50% 的算例最终形成了完整的 (100) 空位位错环. 此外, 也出现了很多由混合位错构成的位错结构, 如图 2 所示. 与空位团簇级联重叠形成的位错结构可以分为 6 类, 分别是

(100) 空位位错环, 预置空位团簇完全溶解后形成的 (100) 位错线占主导的单个混合位错, 预置空位团簇完全溶解后形成的 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线占主导的单个混合位错, 预置空位团簇完全溶解后分解为两个混合位错, 预置空位团簇部分溶解的 (100) 位错线占主导的单个混合位错, 预置空位团簇部分溶解的 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线占主导的单个混合位错. 以上几种位错结构的出现概率与预置缺陷尺寸和 PKA 能量均有关系.

如图 3 所示, 统计了新产生的 Frenkel 缺陷对数目与预置空位团簇尺寸和 PKA 能量的关系. 可以发现, 对于 PKA 能量为 5 keV 和 10 keV 时, 预置空位团簇尺寸对新产生的 Frenkel 缺陷对数目影响不大, 而 PKA 为 20 keV 时, 随着预置空位团簇尺寸增大, 新产生的 Frenkel 缺陷对数目有一定的升高. PKA 能量越高, 产生的稳定缺陷数目越多.

在 Ti-V-Ta 多主元合金与空位团簇的级联重叠中, 分析发现 PKA 能量不是级联重叠机制产生 (100) 辐照位错环的必要因素, 在 PKA 能量为 5 keV 时, 团簇含有 253 个空位时即在模拟中发现了 (100) 位错环的形成, 这在没有预置缺陷时单次级联碰撞模拟是很难形成的. 如图 4(a) 所示, 对于预置团簇含 12 个空位的算例, 在开展的模拟中未发现 (100) 位错环的形成, 5 keV 的级联重叠模拟后新形成的 Frenkel 缺陷对不到 20 个, 此时与已存在的空位数

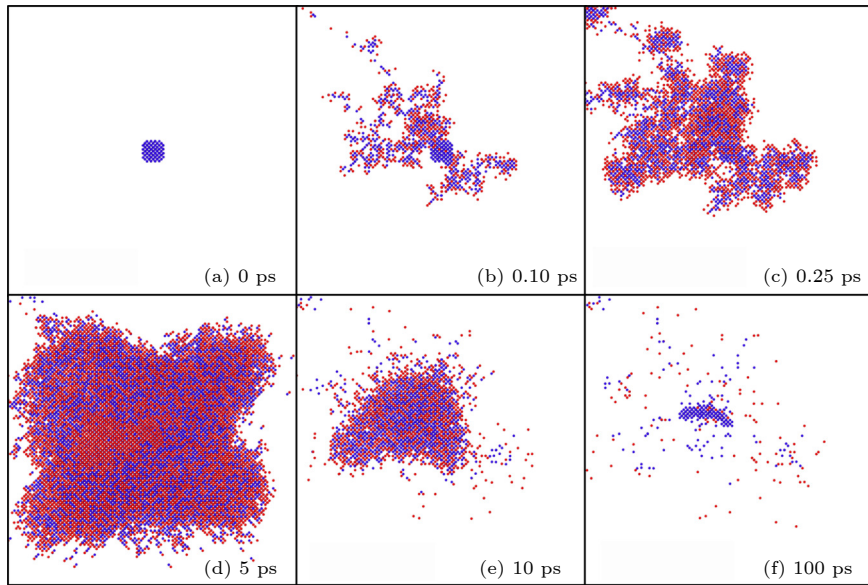


图 1 Ti-V-Ta 多主元合金与空位团簇级联重叠模拟的缺陷演化过程 (40 keV, $N_{\text{VAC}} = 253$), 红色和蓝色为间隙原子和空位
Fig. 1. Defect evolution process during the cascade overlap simulation with vacancy cluster (40 keV, $N_{\text{VAC}} = 253$) in Ti-V-Ta multi-principal element alloy, red and blue are interstitials and vacancies.

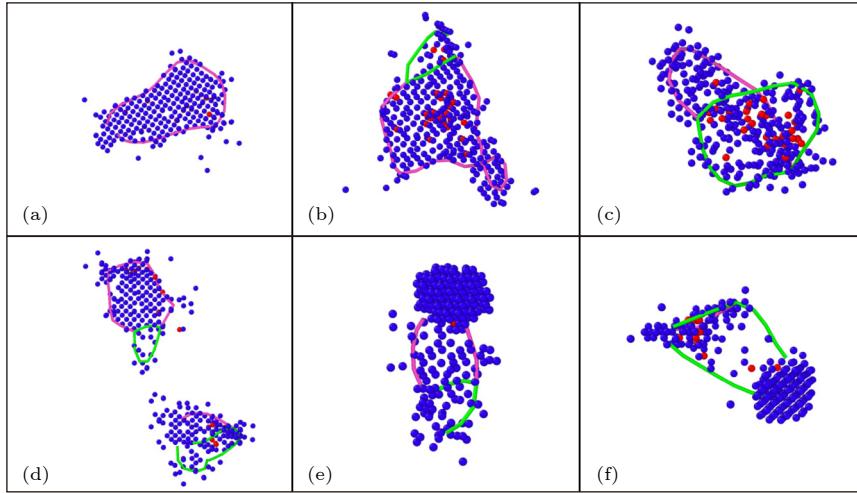


图 2 Ti-V-Ta 多主元合金与空位团簇级联重叠形成的典型缺陷构型 (40 keV, $N_{\text{VAC}} = 253$), 红色和蓝色为间隙原子和空位, 粉线和绿线为 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线

Fig. 2. Typical defect configuration during the cascade overlap simulation with vacancy cluster (40 keV, $N_{\text{VAC}} = 253$) in Ti-V-Ta multi-principal element alloy, red and blue are interstitials and vacancies, pink and green lines are $\langle 100 \rangle$ and $1/2 \langle 111 \rangle$ dislocation lines.

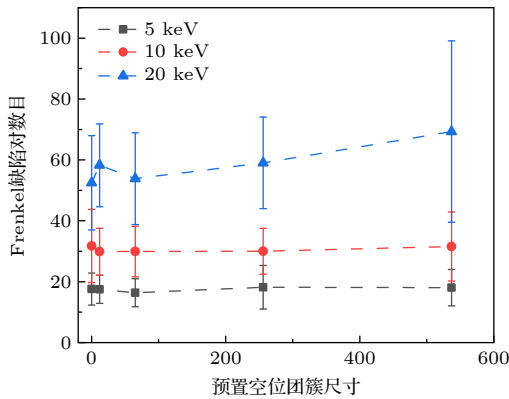


图 3 新产生的 Frenkel 缺陷对数目与预置空位团簇尺寸和 PKA 能量的关系

Fig. 3. Relationship between the number of newly generated Frenkel defect pairs and the size of preset vacancy cluster and PKA energy.

目相加也不过三十几个, 很难形成较大尺寸的位错结构, $\langle 100 \rangle$ 位错环更难形成. 如图 4(b) 所示, 对于预置团簇含 65 个空位的算例, 中心预置的空位团簇基本都溶解了, 形成了新的缺陷结构, 形成的位错结构多为不封闭的 $1/2 \langle 111 \rangle$ 空位位错线, 并且位错线长度较短. 如图 4(c) 所示, 对于预置团簇含 253 个空位的算例, 出现了一些完整的 $\langle 100 \rangle$ 位错环, 但数目较少, 远低于 40 keV 的级联重叠模拟的比例. 如图 4(d) 所示, 对于预置团簇含 537 个空位的算例, $\langle 100 \rangle$ 位错环并没有更容易形成, 由于 PKA 能量较低, 中心预置的空位团簇基本没有完全溶解, 而是部分溶解, 与新形成的缺陷形成混合

位错, 既有 $\langle 100 \rangle$ 位错线占主导的, 也有 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线占主导的. 大部分形成的 $\langle 100 \rangle$ 位错环都是在初始团簇完全溶解后新形成的. Fellman 等^[32,33] 基于级联重叠的分子动力学模拟发现, 在钨中与空位团簇进行级联重叠, 可形成 $\langle 100 \rangle$ 位错环, 并且 $\langle 100 \rangle$ 位错环的形成与预置空位团簇的尺寸有明显的依赖关系, 团簇尺寸比较大时才会形成 $\langle 100 \rangle$ 位错环. 此外, PKA 能量越高, 更容易形成位错环, 无论是 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环, 还是 $\langle 100 \rangle$ 位错环. 综上, 预置空位团簇的尺寸是 Ti-V-Ta 多主元合金级联重叠能否形成 $\langle 100 \rangle$ 位错环的主导因素, 当 PKA 能量足以使空位团簇溶解, 即有较大概率形成位错环, 在此条件下 PKA 能量越高, 形成 $\langle 100 \rangle$ 位错环的概率越高, 形成其他类型的混合位错的概率也会提高.

如图 5 所示, 统计了形成的不同类型缺陷构型的数目. 在相同 PKA 能量下, 预置空位团簇尺寸越大, 形成的位错结构越多, 以 PKA 能量为 10 keV 为例, 随着 N_{vac} 的提高, 形成的位错环和混合位错的数目都有明显提升, 这主要是新形成的缺陷和初始缺陷间的相互作用导致的. 而 PKA 能量的提高意味着更多的存活缺陷, 更容易形成位错结构; 当预置空位团簇尺寸较小时, 这种影响并不是很明显, 如 $N_{\text{VAC}} = 12$ 时, PKA 能量升至 20 keV 时, 在模拟中发现 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环的形成, 在不含初始构型的单次级联碰撞中只发现了 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环的形成, 可见尽管初始空位团簇尺寸很小,

但也有助于 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环的形成. 在 PKA 能量为 5 keV 时, $N_{\text{vac}} = 253$ 的算例中出现 $\langle 100 \rangle$ 位错环或位错线的次数最多, 而在 PKA 能量为 10 keV 时, $N_{\text{vac}} = 537$ 的算例中出现的次数最多, PKA 能量为 20 keV 时, $N_{\text{vac}} = 253$ 的算例中出现的次数最多, 可见并不是空位团簇尺寸越大, 越容易形成 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环. 当 PKA 能量足以使空位团簇溶解, 才有较大概率形成位错环.

图 6 给出了纯 V 与不同尺寸空位团簇级联重叠形成的典型缺陷构型, PKA 能量为 5 keV. 在空位团簇只含 12 个空位时, 级联重叠模拟之后未形成位错环等位错结构, 如图 6(a) 所示. 而当空位团簇包含 65 个空位时, 如图 6(b) 所示, 在模拟的 50 个算例中, 26% 的算例产生了 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环, 36% 的算例产生了 $1/2 \langle 111 \rangle$ 空位位错环, 产生混合位错的算例占比 4%, 其余未产生位错结构. 当空

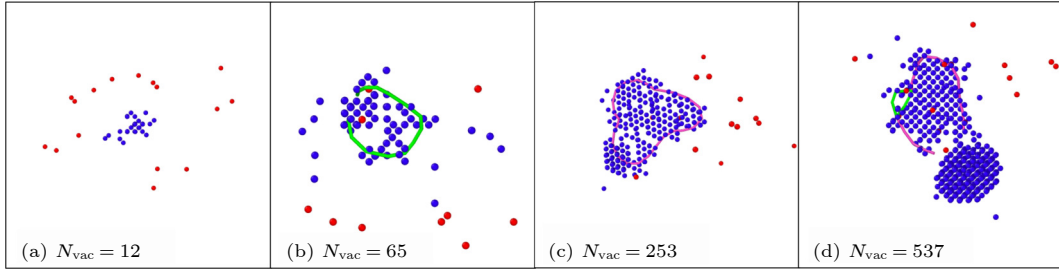


图 4 Ti-V-Ta 多主元合金与不同尺寸空位团簇级联重叠形成的典型缺陷构型 (5 keV), 红色和蓝色为间隙原子和空位, 粉线和绿线为 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线

Fig. 4. Typical defect configuration formed during the cascade overlap simulations with different size vacancy clusters in Ti-V-Ta multi-principal element alloy (5 keV), red and blue interstitials and vacancies, and pink and green lines are $\langle 100 \rangle$ and $1/2 \langle 111 \rangle$ dislocation lines.

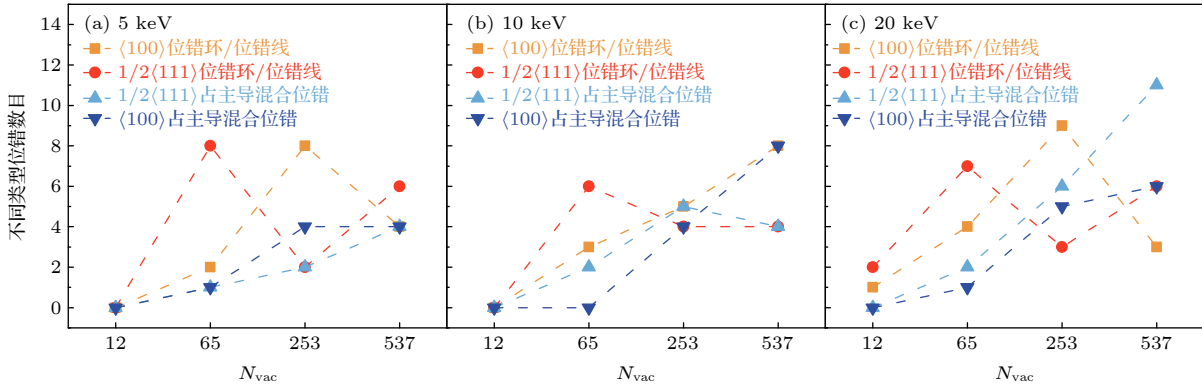


图 5 Ti-V-Ta 多主元合金中与空位团簇在不同条件下级联重叠后形成的缺陷构型数目

Fig. 5. Number of defect configurations formed in Ti-V-Ta multi-principal element alloy after cascade overlap simulations with vacancy clusters under different conditions.

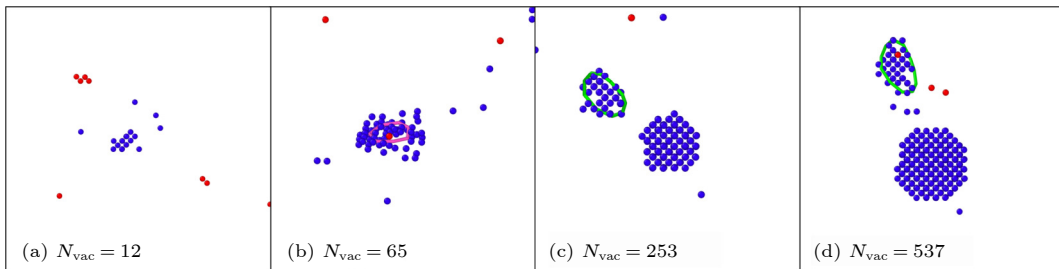


图 6 纯 V 与不同尺寸空位团簇级联重叠形成的典型缺陷构型 (5 keV), 红色和蓝色为间隙原子和空位, 粉线和绿线为 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线

Fig. 6. Typical defect configuration formed during the cascade overlap simulations with different size vacancy clusters in pure V (5 keV), red and blue interstitials and vacancies, and pink and green lines are $\langle 100 \rangle$ and $1/2 \langle 111 \rangle$ dislocation lines.

位团簇尺寸进一步升高后, 不再出现 $\langle 100 \rangle$ 取向的位错环, 只有 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环或未产生位错结构.

对于纯 V 而言, 其相比于 Ti-V-Ta 多主元合金单次级联碰撞产生的 Frenkel 缺陷对数目更低, 更难形成复杂的位错结构. 在纯 V 中, 与空位团簇的级联重叠也可提高 $\langle 100 \rangle$ 取向空位位错环的形成概率, 但与 Ti-V-Ta 多主元合金不同的是, 纯 V 在 5 keV 的 PKA 能量下, 空位团簇尺寸为 65 空位时, 形成 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环的概率更高. 这可能主要与相同 PKA 能量下所产生的不同数目 Frenkel 缺陷对以及空位团簇转变为位错环形成所需的不同临界能量有关. 纯 V 中的空位团簇形成能与 $1/2 \langle 111 \rangle$ 空位型位错环形成能非常接近^[34], 这也就意味着纯 V 中的空位缺陷可以以几乎相等的概率形成空位团簇或空位型位错环. 此外, Ti-V-Ta 多主元合金中位错环的结合能远远低于纯 V^[16], 这可能是级联重叠模拟中需要更大尺寸缺陷团簇才能转变为位错环的原因.

3.2 与间隙团簇的级联重叠模拟

在 Ti-V-Ta 多主元合金与 $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环的级联重叠模拟中, 对于 PKA 能量为 5, 10 和 20 keV 的模拟算例, 产生的最终构型基本都是小尺寸的 $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环, 也有部分算例未产生位错构型, 预置的位错构型也被破坏. 这主要是

由于新产生的级联损伤会迅速破坏预置的位错环构型, 冲击间隙原子逸散, 而由于 PKA 能量较低, 新产生的缺陷数目较少, 难以在初次缺陷构型基础上形核产生新的位错, 导致级联重叠产生的稳定构型很少. 而在 PKA 为 40 keV 的算例中, 除 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环外, 还有少数算例产生了 $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环, 因此本节着重针对这部分算例进行分析.

如图 7(a) 所示, 在初始构型中心预置一个 $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环, 其包含 183 个间隙原子, 随后引入能量为 40 keV 的 PKA, 入射方向指向间隙位错环中心; 在引入级联碰撞后, 会在短时间形成大量辐照损伤, 形成的缺陷将与预置的间隙团簇发生重叠, 原始的间隙位错环由于新形成的 Frenkel 缺陷对而发生溶解, 如图 7(b) 所示; 进一步演化间隙位错环完全被新产生的辐照损伤覆盖, 导致原 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环完全溶解, 如图 7(c), (d) 所示; 在弛豫后又逐渐重新形成 $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环, 此时新形成的间隙位错环尺寸与初始构型中位错环尺寸相当, 如图 7(e), (f) 所示.

在 Ti-V-Ta 多主元合金中, 与间隙团簇的级联重叠后 $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环也是有较低概率形成的, 如图 8 所示. 在引入级联碰撞后, 预置缺陷团簇附近仍会在短时间形成大量辐照损伤, 形成的缺陷与预置的间隙团簇发生重叠, 原始的间隙位错环由于新形成的 Frenkel 缺陷对而发生转变, 形成

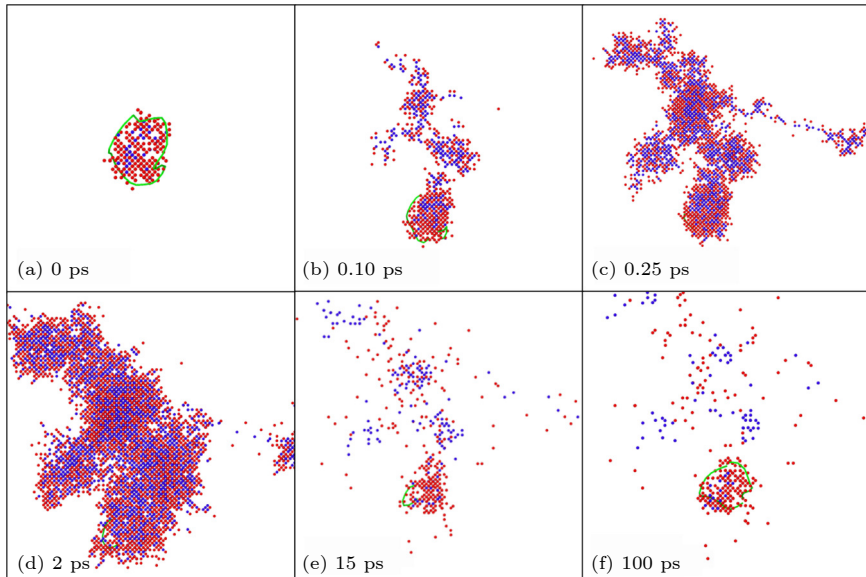


图 7 Ti-V-Ta 多主元合金与间隙团簇级联重叠形成 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错环的缺陷演化过程 (40 keV, $N_{\text{SIA}} = 183$), 红色和蓝色为间隙原子和空位, 绿线为 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线

Fig. 7. Defect evolution process during the cascade overlap simulation with interstitial cluster (40 keV, $N_{\text{SIA}} = 183$) in Ti-V-Ta multi-principal element alloy, red and blue are interstitials and vacancies, green lines are $1/2 \langle 111 \rangle$ dislocation lines.

$\langle 100 \rangle$ 间隙辐照位错环. 这种级联诱导的位错环的转变不同于此前提出的位错环转变机制, 级联诱导的位错环转变是 PKA 将大量的能量传给一个缺陷团簇, 使缺陷团簇溶解然后形成辐照位错环, 而之前提出的辐照位错环转变是由于电子辐照或者加热引起的^[24]. 图 9 给出了 Ti-V-Ta 多主元合金与间隙团簇级联重叠形成的典型缺陷构型, 包括 $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环、 $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环和混合位错线. 其中, $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环在模拟算例中占主导, $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环和 $\langle 100 \rangle$ 位错线占主导的混合位错线有一定概率产生, 在模拟的 50 个算例中, $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环出现 2 次, $\langle 100 \rangle$ 位错线占主导的混合位错出现 3 次, 出现概率较低.

图 10 给出了纯 V 与间隙团簇级联重叠形成的典型缺陷构型, 分别是 $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环、 $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环和 $\langle 100 \rangle$ 空位位错环. 其中, $1/2 \langle 111 \rangle$ 间隙位错环在模拟算例中占主导, $\langle 100 \rangle$ 取向位错环有一定概率产生. 在模拟的 50 个算例中, $\langle 100 \rangle$ 间隙和空位位错环各出现 1 次, 出现概率很低, 并且都是远离预置缺陷中心的地方形成的, 这表明形成 $\langle 100 \rangle$ 取向位错环主要是级联碰撞导致的, 而与缺陷的级联重叠关系不大. 在与团簇的级联重叠模拟中, Ti-V-Ta 多主元合金中 $\langle 100 \rangle$ 取向位错环的形成方式与纯 V 不同, 其主要是级联诱导初次缺陷构型重构从而导致位错环的转变, 预置间隙团簇作为形核点对于形成 $\langle 100 \rangle$ 位错环具有重要作用.

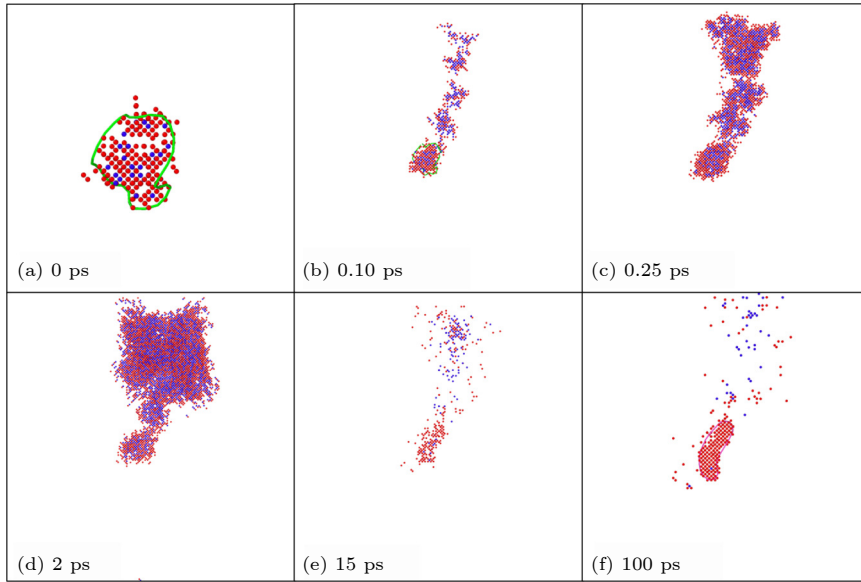


图 8 Ti-V-Ta 多主元合金与间隙团簇级联重叠形成 $\langle 100 \rangle$ 间隙位错环的缺陷演化过程 (40 keV, $N_{\text{SIA}} = 183$), 红色和蓝色为间隙原子和空位, 粉线为 $\langle 100 \rangle$ 位错线

Fig. 8. Defect evolution process during the cascade overlap simulation with interstitial cluster (40 keV, $N_{\text{SIA}} = 183$) in Ti-V-Ta multi-principal element alloy, red and blue are interstitials and vacancies, pink lines are $\langle 100 \rangle$ dislocation lines.

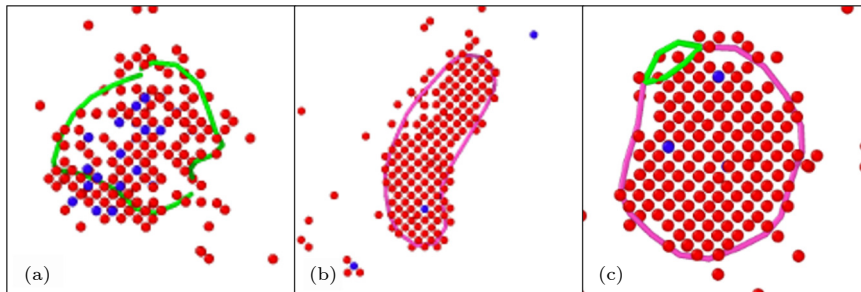


图 9 Ti-V-Ta 多主元合金与间隙团簇级联重叠形成的典型缺陷构型 (40 keV, $N_{\text{SIA}} = 183$), 红色和蓝色为间隙原子和空位, 粉线和绿线为 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线

Fig. 9. Typical defect configuration during the cascade overlap simulation with interstitial cluster (40 keV, $N_{\text{SIA}} = 183$) in Ti-V-Ta multi-principal element alloy, red and blue are interstitials and vacancies, pink and green lines are $\langle 100 \rangle$ and $1/2 \langle 111 \rangle$ dislocation lines.

3.3 辐照位错环形成的级联重叠机制

多主元成分导致的复杂化学环境和晶格畸变是影响 Ti-V-Ta 多主元合金辐照缺陷形成和演化的关键因素, 这将导致多主元合金中辐照微结构乃至宏观性能与其他传统材料表现出很大的差异. 综合作者此前的研究^[14-16], 包括对 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照点缺陷形成和扩散行为以及初级辐照损伤行为的模拟计算结果, 可将 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照位错环形成的级联重叠机制归纳如图 11 所示. 辐照位错环可通过单次级联碰撞直接产生, 载能粒子与材料晶格原子相互作用, 在级联碰撞的

弹道阶段形成大量点缺陷; 然后在弛豫阶段间隙原子和空位复合湮灭, 点缺陷成团形成缺陷团簇. 随着辐照点缺陷及缺陷团簇的扩散, 位错环会在缺陷团簇处形核长大, 形成不同类型位错环. 区别于纯 V 等传统材料, 由于 Ti-V-Ta 多主元合金多主元成分导致的较大晶格畸变和特殊的电子结构, 辐照点缺陷的形成存在偏好, [111] VV 和 VTi 哑铃间隙子更容易形成, 且偏好在富 V 处形成, 而空位偏好在富 Ti 贫 V 的环境处形成^[14,15]. 同时 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照点缺陷的扩散受到抑制, 由此影响了缺陷成团以及缺陷团簇与溶质原子的结合作用. 同时, 在初级辐照损伤的形成和演化过程中,

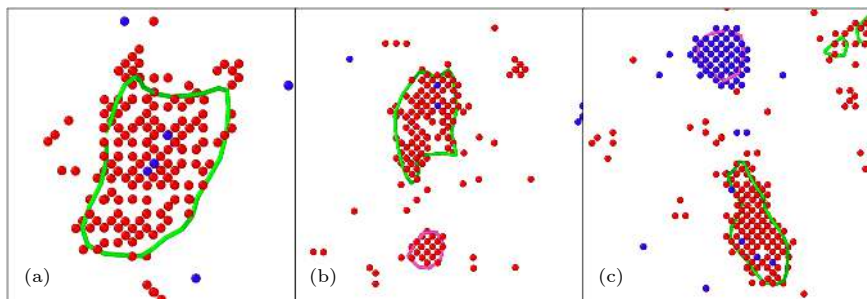


图 10 纯 V 与间隙团簇级联重叠形成的典型缺陷构型 (40 keV, $N_{SIA} = 183$), 红色和蓝色为间隙原子和空位, 粉线和绿线为 $\langle 100 \rangle$ 和 $1/2 \langle 111 \rangle$ 位错线

Fig. 10. Typical defect configuration during the cascade overlap simulation with interstitial cluster (40 keV, $N_{SIA} = 183$) in pure V, red and blue are interstitials and vacancies, pink and green lines are $\langle 100 \rangle$ and $1/2 \langle 111 \rangle$ dislocation lines.

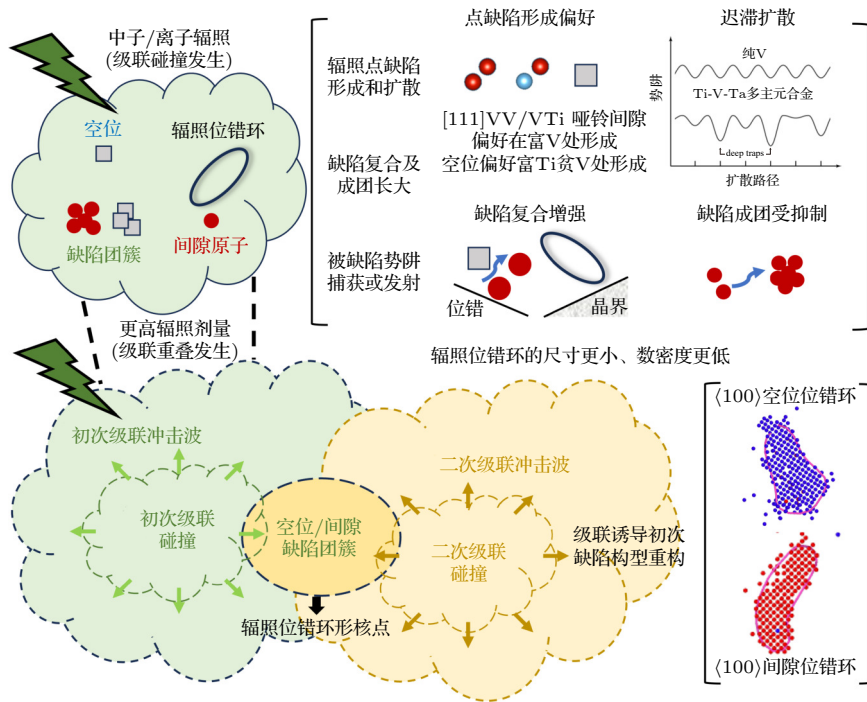


图 11 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照位错环形成的级联重叠机制示意图

Fig. 11. Schematic diagram of the cascade overlap mechanism of dislocation loops formation in Ti-V-Ta multi-principal element alloy.

Ti-V-Ta 多主元合金中的缺陷成团率也远低于纯 V, 根据此前单次级联碰撞的模拟结果^[16], 空位和间隙原子成团率约为 30%, 而纯 V 的空位成团率为 80%, 间隙原子成团率为 50%, 这就导致了级联碰撞过程产生的位错环尺寸和数密度都要更低, 形成的位错环也以 1/2 (111) 间隙位错环为主, 同时有少量的 (100) 空位位错环形成。

而在较高的辐照剂量下, 已经发生过级联碰撞的区域, 有可能再次被高能粒子碰撞. 基于本论文的研究结果, 发现级联重叠是 Ti-V-Ta 多主元合金中形成 (100) 位错环的一种重要机制. 在 PKA 能量不高于 40 keV 时, 单次级联产生的稳定缺陷绝大多数为空位团簇和 1/2 (111) 间隙位错环, (100) 空位位错环的形成概率很低. 而与空位团簇的级联重叠过程中, (100) 空位位错环的形成概率会大幅提高. 初次级联碰撞形成的空位团簇可作为 (100) 空位位错环的形核点, 二次级联碰撞产生的新的辐照缺陷将在空位团簇附近聚集, 诱导初始空位团簇长大形成 (100) 空位位错环. 同时级联重叠也可导致其他类型位错的形成, 包括 1/2 (111) 间隙位错环和混合位错结构. 初始空位团簇的尺寸是级联重叠能否形成 (100) 空位位错环的主导因素, 当 PKA 能量足以使缺陷团簇溶解, 则有较大概率形成 (100) 空位位错环; 同时二次级联碰撞的 PKA 能量也决定了级联重叠后产生的缺陷构型. 当然, 一定尺寸的空位团簇不是形成 (100) 空位型位错环的必要条件, 随着 PKA 能量的升高, 也会有一定概率在单次级联碰撞中直接产生 (100) 位错环, 一定尺寸的空位团簇提高了 (100) 位错环的形成概率. 与纯 V 相比, Ti-V-Ta 多主元合金中级联重叠模拟需要更大尺寸缺陷团簇才能转变为 (100) 位错环, 这可能与位错环的结合能远远低于纯 V^[16] 有关. 此外, Ti-V-Ta 多主元合金中与间隙团簇的级联重叠是形成 (100) 间隙位错环的一种可能机制, 但发生概率较小, 并且间隙团簇到 (100) 间隙位错环的转变是级联诱导的. 在高剂量的离子辐照下, 级联重叠的发生概率会大幅提高, Ti-V-Ta 多主元合金中 (100) 位错环的出现概率会提高. 推测在更长的时间尺度下, 可能有相当一部分 1/2 (111) 位错环迁移到晶界和表面处并被吸收, 而可动性差的 (100) 位错环更容易在长时演化过程中保持稳定, 这可能是离子辐照后微观表征观测到更高比例 (100) 位错

环的重要原因. 未来可采用更高尺度模拟方法研究 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照缺陷的长时演化, 如动力学蒙特卡罗、团簇动力学等方法.

4 结 论

本研究针对 Ti-V-Ta 多主元合金中辐照位错环的形成行为, 采用分子动力学方法开展了与空位团簇和间隙团簇的级联重叠模拟, 考虑了缺陷团簇尺寸和 PKA 能量的影响, 分析和讨论了辐照位错环形成的级联重叠机制, 得到以下结论:

1) 级联重叠可以提高 Ti-V-Ta 多主元合金中 (100) 取向位错环的形成概率, 与空位团簇的级联重叠是形成 (100) 空位位错环的重要机制, 发生概率很高; 而与间隙团簇的级联重叠是形成 (100) 间隙位错环的可能机制, 但发生概率较小.

2) 级联重叠后的稳定缺陷构型由 PKA 能量和预置缺陷团簇的类型和尺寸决定, 空位团簇的尺寸是能否形成 (100) 空位位错环的决定因素, 当 PKA 能量足以溶解缺陷团簇时, 更容易形成 (100) 取向的位错环.

参考文献

- [1] El-Genk M S, Tournier J M 2005 *J. Nucl. Mater.* **340** 93
- [2] Busby J T, Leonard K J 2007 *JOM* **59** 20
- [3] Yeh J W, Chen S K, Lin S J, Gan J Y, Chin T S, Shun T T, Tsau C H, Chang S Y 2004 *Adv. Eng. Mater.* **6** 299
- [4] Tsai M H, Yeh J W 2014 *Mater. Res. Lett.* **2** 107
- [5] Ye Y F, Wang Q, Lu J, Liu C T, Yang Y 2016 *Mater. Today* **19** 349
- [6] Miracle D B, Senkov O N 2017 *Acta Mater.* **122** 448
- [7] George E P, Raabe D, Ritchie R O 2019 *Nat. Rev. Mater.* **4** 515
- [8] Pickering E J, Carruthers A W, Barron P J, Middleburgh S C, Armstrong D E J, Gandy A S 2021 *Entropy* **23** 98
- [9] Jia N N, Li Y K, Liu X, Zheng Y, Wang B P, Wang J S, Xue Y F, Jin K 2019 *JOM*. **71** 3490
- [10] Hu B, Yao B, Wang J, Liu Y, Wang C J, Du Y, Yin H Q 2020 *Intermetallics* **118** 106701
- [11] Yin X, Dou Y K, He X F, Jin K, Wang C L, Dong Y G, Wang H R, Zhong W H, Xue Y F, Yang W 2022 *JOM* **74** 4326
- [12] Jia N N, Li Y, Huang H F, Chen S, Li D, Dou Y K, He X F, Yang W, Yin X, Jin K 2021 *J. Nucl. Mater.* **550** 152937
- [13] Mei L, Zhang Q H, Dou Y K, Fu E G, Li L, Chen S, Dong Y G, Guo X, He X F, Yang W, Yin X, Jin K 2023 *Scr. Mater.* **223** 115070
- [14] Dou Y K, Zhao Y P, He X F, Gao J, Cao J L, Yang W 2023 *J. Nucl. Mater.* **573** 154096
- [15] Zhao Y P, Dou Y K, He X F, Deng H Q, Wang L F, Yang W 2023 *Comput. Mater. Sci.* **218** 111943

- [16] Zhao Y P, Dou Y K, He X F, Cao H, Wang L F, Deng H Q, Yang W 2024 *Chin. Phys. B* **33** 036104
- [17] Peng Q, Meng F J, Yang Y Z, Lu C Y, Deng H Q, Wang L M, De S, Gao F 2018 *Nat. Commun.* **9** 4880
- [18] Granberg F, Byggmästar J, Sand A E, Nordlund K 2017 *Europhys. Lett.* **119** 56003
- [19] Byggmästar J, Granberg F, Sand A E, Pirttikoski A, Alexander R, Marinica M C, Nordlund K 2019 *J. Phys. Condens. Matter.* **31** 245402
- [20] Wang X Y, Gao N, Wang Y N, Liu H L, Shu G G, Li C L, Xu B, Liu W 2019 *J. Nucl. Mater.* **519** 322
- [21] Marinica M C, Willaime F, Crocombette J P 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 025501
- [22] Gao J, Gagaidze E, Kaiser B, Aktaa J 2021 *J. Nucl. Mater.* **557** 153212
- [23] Esfandiarpour A, Byggmästar J, Balbuena J P, Caturla M J, Nordlund K, Granberg F 2022 *Materialia.* **21** 101344
- [24] Arakawa K, Hatanaka M, Kuramoto E, Ono K, Mori H 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 125506
- [25] Chen J, Gao N, Jung P, Sauvage T 2013 *J. Nucl. Mater.* **441** 216
- [26] Gao N, Chen J, Kurtz R J, Wang Z G, Zhang R F, Gao F 2017 *J. Phys. Condens. Matter.* **29** 455301
- [27] Xu H, Stoller R E, Osetsyky Y N, Terentyev D 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 265503
- [28] Wang X Y, Gao N, Wang Y N, Wu X Y, Shu G G, Li C L, Li Q L, Xu B, Liu W 2019 *Scr. Mater.* **162** 204
- [29] Plimpton S 1995 *J. Comput. Phys.* **117** 1
- [30] Qiu R Y, Chen Y C, Liao X C, He X F, Yang W, Hu W Y, Deng H Q 2021 *J. Nucl. Mater.* **557** 153231
- [31] Stukowski A 2010 *Model. Simul. Mater. Sc.* **18** 015012
- [32] Fellman A, Sand A E 2022 *J. Nucl. Mater.* **572** 154020
- [33] Fellman A, Sand A E, Byggmästar J, Nordlund K 2019 *J. Phys. Condens. Matter.* **31** 405402
- [34] Qiu R Y, Chen Y C, Gao N, He X F, Dou Y K, Yang W, Hu W Y, Deng H Q 2023 *Nucl. Mater. Energy* **34** 101394

Cascade overlap simulation of formation of dislocation loops in Ti-V-Ta multi-principal element alloy*

Zhao Yong-Peng Dou Yan-Kun[†] He Xin-Fu Yang Wen

(Reactor Engineering Technology Research Institute, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

(Received 27 July 2024; revised manuscript received 27 September 2024)

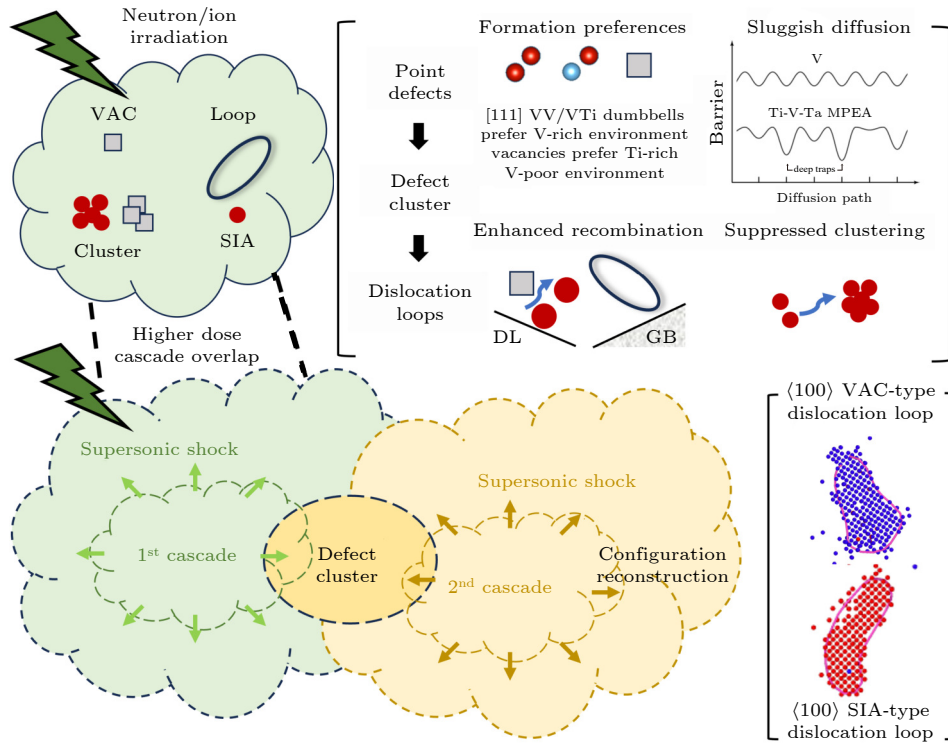
Abstract

Among the currently developed multi-principal element alloys (MPEAs), Ti-V-Ta MPEA stands out because of its good high-temperature strength, good room-temperature plasticity, stable organizational structure, and low neutron activation, and becomes a first option for cladding material of special power reactors. The radiation resistance of Ti-V-Ta MPEA is the focus of current research. Dislocation loops are the main irradiation defects in Ti-V-Ta MPEA, which can significantly affect the mechanical properties. Therefore, clarifying the formation mechanism of dislocation loops in Ti-V-Ta HEA can help to understand its radiation resistance. The formation behavior of dislocation loops in Ti-V-Ta MPEA is studied based on molecular dynamics method in this work. Cascade overlap simulations with vacancy clusters and interstitial clusters are carried out. The cascade overlap formation mechanism of dislocation loops is analyzed and discussed. In Ti-V-Ta MPEA, the cascade overlap with defect clusters can directly produce different types of dislocation structures. The defect configuration after cascade overlap is determined by the primary knock-on atom (PKA) energy and the type and size of the preset defect clusters. Cascade overlap can improve the formation probability of $\langle 100 \rangle$ dislocation loops in Ti-V-Ta MPEA. Cascade overlap with vacancy clusters is an important mechanism for the formation of $\langle 100 \rangle$ vacancy dislocation loops, and the size of vacancy clusters is the dominant factor for the formation of $\langle 100 \rangle$ vacancy dislocation loops. When the PKA energy is enough to dissolve the defect clusters, $\langle 100 \rangle$ vacancy dislocation loops are more likely to form. Furthermore, cascade overlap with interstitial clusters in Ti-V-Ta MPEA is a possible mechanism for the formation of $\langle 100 \rangle$

* Project supported by the National Youth Natural Science Foundation of China (Grant No. 12405324), the Dean's Fund of China Institute of Atomic Energy (Grant No. 219256), and the Director's Fund of China Institute of Atomic Energy (Grant No. 218296).

[†] Corresponding author. E-mail: douyankun3@163.com

interstitial dislocation loops. This study can contribute to understanding the evolution behavior of irradiation defects in Ti-V-Ta MPEA, and provide theoretical support for designing the composition and optimizing the high-entropy alloys.



Keywords: Ti-V-Ta multi-principal element alloy, dislocation loop, cascade overlap, molecular dynamics

PACS: 61.72.J-, 02.70.Ns, 61.82.Bg

DOI: 10.7498/aps.73.20241074

CSTR: 32037.14.aps.73.20241074

Ti-V-Ta多主元合金辐照位错环形成的级联重叠模拟

赵永鹏 豆艳坤 贺新福 杨文

Cascade overlap simulation of formation of dislocation loops in Ti-V-Ta multi-principal element alloy

Zhao Yong-Peng Dou Yan-Kun He Xin-Fu Yang Wen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 226102 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20241074

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241074>

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

不同温度下bcc-Fe中螺位错滑移及其与 \square 位错环相互作用行为

Screw dislocation slip and its interaction with \square dislocation loop in bcc-Fe at different temperatures

物理学报. 2021, 70(6): 068701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201659>

体心立方Fe中位错环对微裂纹扩展影响的分子动力学研究

Effect of interstitial dislocation loop on expansion of micro-crack in body centered cubic iron investigated by molecular dynamics method

物理学报. 2020, 69(11): 116102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200317>

间隙型位错环在纯钨及含氦杂质钨(010)表面下运动行为的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of dynamic migration of interstitial dislocation loops under (010) surfaces of pure W and W containing helium impurity

物理学报. 2023, 72(24): 245204 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230651>

表面效应对铁间隙型位错环的影响

Surface effect on interstitial dislocation loop in iron

物理学报. 2020, 69(3): 036101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191379>

层错四面体对单晶铜层裂行为影响的分子动力学研究

Effect of stacking fault tetrahedron on spallation of irradiated Cu via molecular dynamics study

物理学报. 2020, 69(3): 036201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191425>

锆铌合金的特殊准随机结构模型的分子动力学研究

Molecular dynamics study of special quasirandom structure of Zr-Nb alloys

物理学报. 2021, 70(3): 033103 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201407>