

氦对 LaNi_5 晶体结构的影响及其扩散特性研究^{*}

张传瑜^{1,2)} 高 涛^{1)†} 张云光¹⁾ 周晶晶¹⁾ 朱正和¹⁾ 陈 波³⁾

1) 四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

2) 四川大学物理科学与技术学院, 成都 610065)

3) 中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

(2006 年 8 月 19 日收到, 2007 年 6 月 18 日收到修改稿)

从密度泛函理论为基础的第一性原理出发, 运用全势能线性缀加平面波 (FLAPW) 方法, 对氦衰变后氦在合金中的占位以及 LaNi_5He 晶体结构进行了理论计算, 并系统给出了氦在间隙间的迁移曲线. 结果表明, 氦原子在十二面体 ($1b$) 格位最稳定, 并且氦从 $6m$ 格位向 $1b$ 格位迁移不存在势垒, 而从 $2d$ 格位向 $1b$ 格位迁移则需越过 1.55 eV 高的势垒. 另外, 氦从 $12n$ 格位穿过 $12o$ 格位最后到达 $6m$ 格位也无明显势垒存在, 并且处于 $4h$ 格位之间的氦原子可以自由迁移, 而相应 $12n$ 格位之间的直接迁移则需跨越 13.6 eV 高的势垒. 最后还计算给出了氦衰变后合金的态密度、电子密度以及势能分布图, 并与相应的 LaNi_5H 结构作了详细比较.

关键词: 全势能线性缀加平面波 (FLAPW), LaNi_5He , 态密度, 扩散

PACC: 6155H, 6630L, 7115A, 7115M

1. 引 言

储氢材料作为一种新型的功能材料, 在很多领域得到了广泛的应用. LaNi_5 是 AB_5 型合金中较为理想的二元储氢材料, 由于其吸放氢特性优异, 在实验和理论上都得到了较为全面的研究. 在储氢过程中, 随着体系中氦衰变成 ^3He , 引起材料的宏观及微观性能发生变化, 这种现象被称为氦老化效应. 因此研究 ^3He 对储氢材料的微观结构以及储氢过程的影响对于了解和改进储氢材料的性能有着重要的意义. 近几年在实验上对氦老化效应研究的比较多, 熊义富等^[1]探讨了氦老化对 LaNi_5 热力学性能的影响. 李嵘等^[2]利用“老料释气”的实验方法, 从 LaNi_5 氟化物的解吸等温线中观察到明显的氦老化效应. Welters^[3]把不同铝含量的 $\text{LaNi}_{5-x}\text{Al}_x$ 等温解吸线与老化的 $\text{LaNi}_{4.25}\text{Al}_{0.75}$ 氟化物的等温解吸线进行比较, 得出氦老化效应的真正原因是晶格中滞留的衰变产物 ^3He 引起的. 刘实等^[4]通过正电子寿命测量及结构分析研究了氦在 $\text{LaNi}_{4.75}\text{Al}_{0.25}$ 合金的存在行为. 李嵘等^[5]通过对老化后 LaNi_5 的氟化物的等温解吸线

的形貌变化推断衰变后的 ^3He 可能占据四面体间隙位. 但理论上对氦老化效应研究的较少, 平飞林等^[6]利用赝势法模拟了 ^3He 在 LaNi_5 中的占位和对储氢性能的影响, 初步探讨了氦老化效应的微观原因. 但理论上对氦老化微观机理的认识还远远不够, 而研究 ^3He 在合金中的占位以及对 LaNi_5 储氢性能变化一方面可以验证实验结果的正确性, 另一方面对储氢实验过程的设计也具有一定的指导意义.

本文从密度泛函理论为基础的第一性原理出发, 运用全势能线性缀加平面波 (FLAPW) 方法, 对 LaNi_5He 中 ^3He 的占位进行了计算机模拟. 为了进一步探索氦原子在合金中聚集成泡行为, 作出了 ^3He 在几个模型中的迁移曲线. 通过对体系态密度、电子密度和等势面图的分析比较, 发现氦衰变后合金稳定性有所降低, 与实验结果一致.

2. 计算模型与方法

2.1. 计算模型

2.1.1. 晶体结构

^{*} 国家自然科学基金委员会-中国工程物理研究院联合基金(批准号:10276027)资助的课题.

[†] 通讯联系人, E-mail: gthhl@163.com

LaNi₅是一种具有 CaCu₅ 型晶体结构的稀土储氢合金,属于六方晶系,空间群为 $P6/mmm$,吸氢后晶系和空间群保持不变.其中 La 原子占据 $1a$ 格位, Ni 原子分别占据 $2c$ 和 $3g$ 格位,原子的具体位置如图 1 所示.

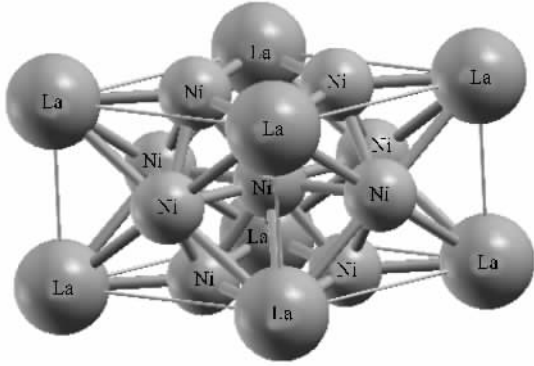


图 1 LaNi₅ 合金的晶体结构

2.1.2. LaNi₅He 的模型

LaNi₅ 吸氢后,一般认为 H 原子处于合金中 La 原子及 Ni 原子组成的四面体或八面体间隙位置^[7,8],但王宏等^[9],平飞林等^[6]认为 H 原子还可能占据于六面体和十二面体间隙位置,因此具体到一个 LaNi₅ 单胞中,H 原子最可能占据的间隙位置共有 40 个,即 $6m$ 型空隙 6 个, $12n$ 型空隙 12 个, $12o$ 型 12 个, $4h$ 型空隙 4 个, $3f$ 型空隙 3 个, $1b$ 型空隙 1 个, $2d$ 型空隙 2 个.根据 Gross 等^[10]计算间隙大小的方法,计算了 $1b$ 和 $2d$ 间隙的大小.其他间隙的位置按照 Soubeyroux 等^[11]的计算值.由于氢和氘、氚和氚-3 的电子结构相同,在实际的计算中用氢代替氘,氘代替氚-3.对氘原子在晶格中的占位构建了如表 1 所示的模型.

表 1 LaNi₅He 晶胞中的初始 He 原子占位模型

	x	y	z	空穴半径/nm	配位
$3f$	0.500	0.500	0.000	0.0257	La \times 2, Ni \times 2, Ni ₂ \times 2
$4h$	0.333	0.667	0.370	0.0301	Ni \times 1, Ni ₂ \times 3
$6m$	0.137	0.274	0.500	0.0551	La \times 2, Ni ₂ \times 2
$12o$	0.204	0.408	0.354	0.0388	La \times 1, Ni \times 1, Ni ₂ \times 2
$12n$	0.455	0.000	0.117	0.0408	La \times 1, Ni \times 12, Ni ₂ \times 21
$1b$	0.000	0.000	0.500	0.0304	La \times 2, Ni ₂ \times 6
$2d$	0.333	0.667	0.500	0.0195	Ni \times 2, Ni ₂ \times 3

2.2. 计算方法

为了计算晶体 LaNi₅He 的电子结构和总能量,

本文采用全电子水平下的全势能线性缀加平面波方法 (FLAPW).采用该方法计算晶体的电子结构非常精确,它是从密度泛函理论为基础的第一性原理出发,首先将晶体多电子方程化为单电子方程 (Kohn-Sham 方程),然后通过引入线性缀加平面波基函数求解单电子方程,同时也引入了广义梯度近似理论 (GGA) 将单电子的交换能表示成电子密度和梯度的函数,对于该项有不同的简化方法,本文采用的是 Perdew96.在线性缀加平面波基函数的选取和对单电子方程自洽场求解时势能模型的建立均采用了“Muffin-Tin”模型.

本文所有计算均运用 WIEN2K 软件,上述计算方法已包含在该程序中^[12].

3. 计算结果和讨论

本文所有的计算都是在密度泛函框架下进行的,在求解方程 Kohn-Sham 时,采用了 Muffin-Tin 模型对不同的区域的电子使用不同的波函数,其中 La 和 Ni 原子的 R_{MT} 均为 0.095 nm, H 原子为 0.037 nm; 基组的大小由 $R_{mt} \times K_{max} = 7.0$ 控制,其中 K_{max} 表示倒易空间中最大的波矢;在能量的求解自洽场迭代过程中收敛精度控制为 1.36×10^{-3} eV.在交换能的计算中取 -81.6 eV 将内层电子和价电子分开,外层电子的电子组态为 La- $5s^2 5p^6 5d^1 6s^2$; Ni- $3p^6 3d^8 4s^2$; He- $1s^2$.以前计算发现自旋耦合对 LaNi₅ 的几何结构和电子性质的影响较小^[13],所以在自洽场循环中没有考虑自旋极化.由于计算中对内层电子采用了相对论的密度泛函处理,故在计算中考虑了相对论效应.

3.1. 结构优化结果

进行结构优化时,由于体系属于六角晶系,只需优化晶胞参数 c/a 和体积 V ,故采用两步交替法:分为 1)保持 c/a 不变,变化体积 V 和 2)保持体积 V 不变,变化 c/a 比值;两种运算分别反复多次进行,直到前后两次的结构计算结果之差小于 1%.构建模型时,由于氢原子和氘原子的引入,使得内部各原子由于格位对称性的改变,会有非对称的受力,因此对晶胞参数进行优化的同时还要对内部原子进行内坐标优化,才能得到整体的优化结构.本文采用牛顿时力学方法对每个原子的平衡位置进行优化.

表 2 LaNi_5He 晶体优化后的结果

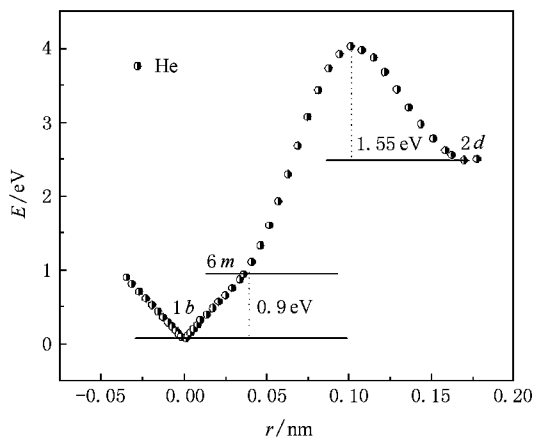
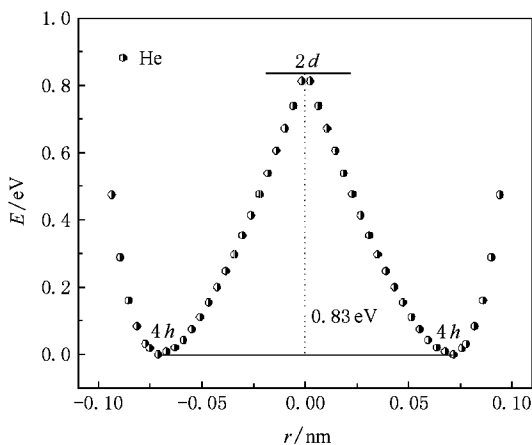
	x	y	z	a/nm	c/nm	E/eV	$(\Delta V/V)\%$
$3f$	0.5001	0.0002	0.0000	0.5185	0.4209	-438044.734	12.86
$4h$	0.3333	0.6667	0.3132	0.5266	0.4082	-438043.741	12.88
$6m$	0.0978	0.1955	0.5000	0.5210	0.4122	-438045.736	11.60
$12o$	0.2016	0.3860	0.3393	0.5140	0.4083	-438044.123	7.58
$12n$	0.3576	0.0072	0.1367	0.5223	0.4153	-438045.099	13.01
$1b$	0.0000	0.0000	0.5000	0.4985	0.4191	-438045.962	3.85
$2d$	0.3377	0.6680	0.5000	0.5280	0.4152	-438042.682	15.46

由表 2 的数据可得,在优化过程中 He 原子在占据间隙周围移动,经过弛豫,最后达到稳定状态.由于 He 在母体合金中的惰性不溶,使得氦衰变成 He 后体系总能量有所降低.在模型中体系总能量高低关系为 $1b < 6m < 12n < 3f < 12o < 4h < 2d$,而齐新华等^[14]根据实验数据计算的 LaNi_5H 模型中总能量关系为 $6m < 12n < 3f < 4h < 12o$,二者基本一致.由于 $2d$ 间隙较小,惰性不溶的 He 原子太大,它会推动处于周围位置上的原子离开原来的平衡位置,因而引起的晶格膨胀最大,能量最高,所以 He 原子很难稳定的处于 $2d$ 间隙位,而 $1b$ 位间隙横向相对较大,对周围原子的排斥作用的影响比它在四面体和八面体间隙时要小,只是 c 轴变大, a 轴基本保持不变,因而晶格膨胀也较小,能量最低,因此 He 原子处于 $1b$ 格位最稳定,这也与平飞林等^[6]利用赝势法计算的结果一致.

3.2. 间隙迁移曲线

为了进一步研究氦原子在间隙位置的稳定性,作出了迁移曲线(见图 2—5).

图 2 和图 3 分别是以 $2d$ 格位和 $4h$ 格位的稳定结构为基础,改变 He 原子在晶胞内的位置得到的;而图 4 和图 5 分别以 $6m$ 格位和 $12n$ 格位的稳定结构为基础得到的.由于处于间隙位置的 He 原子迁移到另一位置的激活能很小,因此在室温下有很高的跳跃概率^[15].在图 2 中可以看出, $1b$ 格位处势阱最深,因此束缚 He 原子的能力最强,并且从 $6m$ 格位到 $1b$ 格位没有明显的势垒存在,它们之间的迁移能为 0.9 eV ,由于衰变的氦原子具有的反冲能量为 1.03 eV ,这个能量足以让 He 原子从 $1b$ 格位迁移到 $6m$ 格位,而从 $2d$ 到 $6m$ 存在 3.55 eV 高的势垒,He 原子要想从 $2d$ 迁移到 $6m$ 需要从周围吸收能量,因此迁移的概率相对较小.从图 3 可得出, $2d$ 格

图 2 $1b-6m-2d$ 的迁移曲线图 3 $2d-4h$ 的迁移曲线

位不稳定,这与优化结果分析是一致的,He 原子很容易迁移到 $4h$ 格位,它们之间的迁移能为 0.83 eV ,He 原子也可以在 $4h$ 格位之间进行迁移.在图 4 中作出了从 $6m-12o-12n$ 的迁移曲线,可以看出从 $12n$ 格位向 $6m$ 格位跃迁没有势垒,He 原子很容易越过 $12o$ 格位到达 $6m$ 格位,将最终可以到达 $1b$ 格

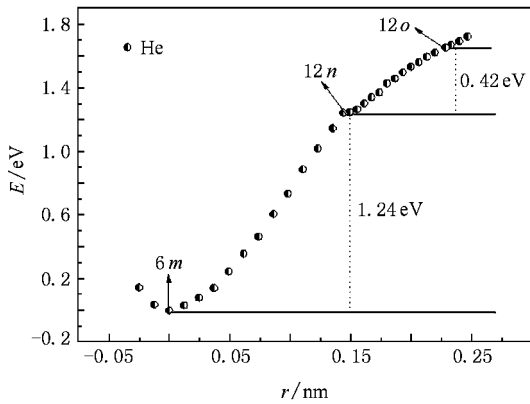


图4 6m—12o—12n 的迁移曲线

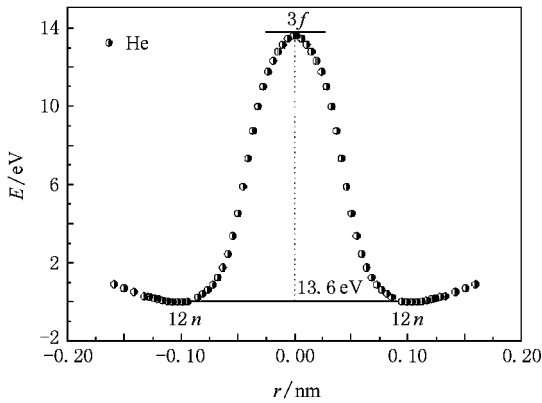


图5 12n—3f 的迁移曲线

位.而 $6m$ 向 $12o$ 格位跃迁需要大约 1.24 eV 的能量,若要再到达 $12n$ 格位则还需从外界吸收 0.42 eV 的能量,所以这条迁移路径不容易实现.从图 5 可以看出,虽然 $12n$ 格位和 $3f$ 格位距离较近,并且共用一个三角面,但是间隙之间却存在 13.6 eV 高的势垒,这也说明了 He 原子在两个 $12n$ 格位之间是不能直接跃迁的,必须通过 $12o$ 格位才能实现,这与 Westlake^[16]分析的 H 原子在 $12n$ 格位之间跃迁的结果一致.

另外,间隙 He 原子的迁移,为彼此聚集,形成氦泡,并长大提供了及时补充 He 原子的途径.从图 2—5 可以看出,He 原子一旦稳定滞留在 $1b$ 间隙位置,其他间隙位置的 He 原子可以在此位置迁移,又由于 $1b$ 间隙位置的势阱较深,有利于晶格间隙中的 He 原子有成团的趋势.并且很小的 He 原子原子团就能产生很大的晶格畸变.在这种能量条件下,处于晶格间隙中的基体原子有可能脱离原来的位置,挤入临近的晶格间隙形成所谓的自间隙原子-空位

对.而 He 原子有可能被激发到留下的空位上,成为捕陷原子,形成 $\text{He}_n V_m$ 复合体,即氦泡早期成核的自间隙发射机理^[17].其次,由于 $1b$ 间隙位置的势阱较深,从而使氦原子落入此深势阱中而稳定存在,表现为“氦俘获”,造成氦的滞留,致使等温解析线平台缩短,并且右移.滞留氦的出现也是可逆储氦量减少的原因之一.

3.3. 态密度的分析

为了分析氦衰变后晶体结构的变化,分别作出了氦和氢处于十二面体时 LaNi_5H 和 LaNi_5He 投影态密度图.

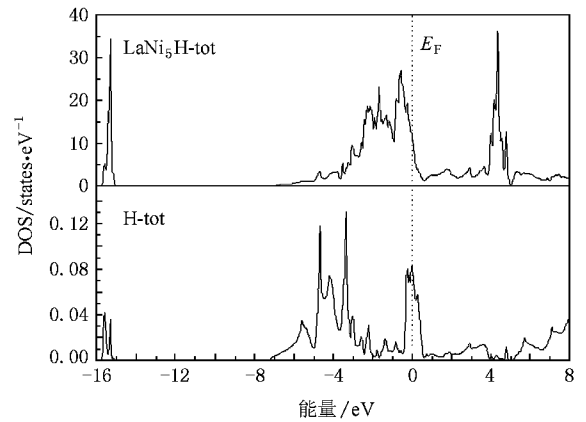
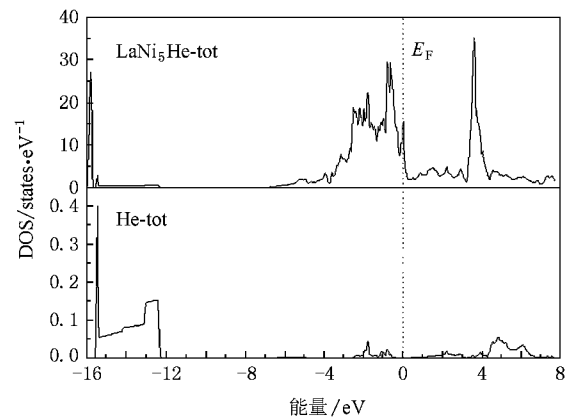
图6 LaNi_5H 和 H 的总体态密度图7 LaNi_5He 和 He 的总体态密度

图 6 是 LaNi_5H 和 H 的总体态密度图,其中以 $E_F = 9.66 \text{ eV}$ 为 0 点,而图 7 为 LaNi_5He 和 He 的总体态密度图,以 $E_F = 10.02 \text{ eV}$ 为 0 点,与 LaNi_5H 相比,体系费米能级升高,使得体系总能量降低.从两图可以发现两者的总体形状大体相同,如 Ni 原子的

3d 电子占据了价带的绝大部分权重,而 La 的 4f 分量主要构成了价带.所不同的是由于费米能级的升高,总体态密度向左平移,并且由于 He 原子对费米能级处的态密度没有贡献,使得费米面的态密度略微降低.此外, LaNi_5H 的带隙出现在 -14.99 — -7.29 eV 之间,且宽度为 7.70 eV,而 LaNi_5He 在 -12.23 — -6.92 eV 之间存在宽度为 5.31 eV 的带隙,宽度有所减小,并且费米能级下的态密度进一步展宽,这是由 He 原子的 s 轨道电子提供的.另外,在图 6 中,在价带中 La 提供了 3.58 个电子,每个 Ni (2c) 提供了 7.99 个电子,以及每个 Ni (3g) 提供了 7.81 个电子;而在图 7 中与此对应的是,它们提供的电子数分别为 3.01, 7.77 和 7.80.由此可以看出氬衰变成氦后,La 和 Ni (2c) 都发生了一定程度的电荷转移到导带,即跃迁到反键轨道,而 Ni (3g) 的电子排布基本不变,造成了 La 和 Ni (2c) 的相互作用稍微减弱.又因为 La 和 Ni (2c) 的成键较强于 La 和 Ni (3g) 的成键^[18],因此 La 和 Ni (2c) 原子之间成键的减弱致使 LaNi_5 合金固氮性能不如 $\text{LaNi}_{5-x}\text{Al}_x$ 体系^[19] 的原因之一.

3.4. 电荷密度和等势面的分析

电荷密度的空间分布,对于分析材料的原子之间成键以及材料特性也有重要的作用.势能结构图与电荷密度图具有一一对应的关系,它们可以从不同的侧面反映了原子之间的特殊性质.

图 8 分别是 LaNi_5H 和 LaNi_5He 的在 $(10\bar{1}0)$ 面的电荷密度投影.从两图可以看出,由于 H 和 He 均分布在该表面上,它们周围的电荷密度比较大. La 原子和周围 H 原子之间的鞍部处电荷密度为 0.4,而与 He 之间电荷密度却为 0.3 相对较小,这说明了 La 原子和 H 原子之间有较强的相互作用,而与 He 原子的相互作用相对较弱,因此 LaNi_5H 更为稳定.并且 Ni 原子与 H 原子之间的电荷密度也明显高于和 He 之间的电荷密度,这可能是因为氬衰变后,与氢原子相比,氦原子体积较大,并且氦原子属于惰性气体,具有闭壳层电子结构,与金属元素相互作用较弱,因此氦原子若稳定处于间隙位置则必须对周围的原子产生一定的推动作用,使得原子之间的距离增大,也就造成了氦原子与周围的原子之间的电荷密度较低.位于 He 原子周围的 La 原子和 Ni 原子离域形成金属键^[20],把 He 原子紧密地束缚在十二面体内,减弱了氬泡形成趋势,降低了内应力和氬脆

程度.这种特性有利于固氮,这也是氬在十二面体格位较为稳定的原因之一.

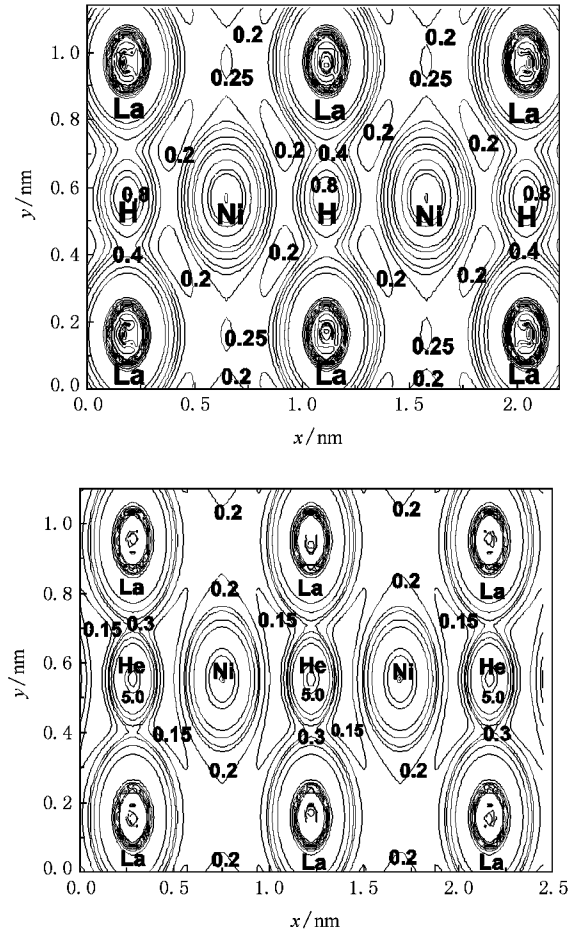


图 8 LaNi_5H 和 LaNi_5He 在 $(10\bar{1}0)$ 面的电荷密度

图 9 分别为 LaNi_5H 和 LaNi_5He 在 $(10\bar{1}0)$ 面的势能分布图.图中的势能面是 H/He 原子运动的势能面,并且势能分布是沿 a 轴和 c 轴两个方向扩展形成的(也就是晶格参数 a 和 c 的势能分布函数),图中标记的数值为各处势能的绝对值.通过两图可以得到,La 原子和 Ni 原子之间均有较深的势阱存在,这也与 LaNi_5 的势能分布图是一致的^[13],并且 H 原子和 He 原子均处于 La 原子和 Ni 原子围成的势阱处.与 H 原子相比,He 原子所在处的势阱相对较浅,与 Ni 原子之间的距离较大,说明 He 原子与周围金属原子之间的相互作用较弱,也进一步揭示了氬衰变后体系 LaNi_5He 稳定性降低的原因.从图中还可以看出,氬衰变成氦后,La 原子与 Ni (3g) 原子之间的势阱有所升高,这是由于它们之间的电荷分布降低引起的,这也与态密度分析相一致.

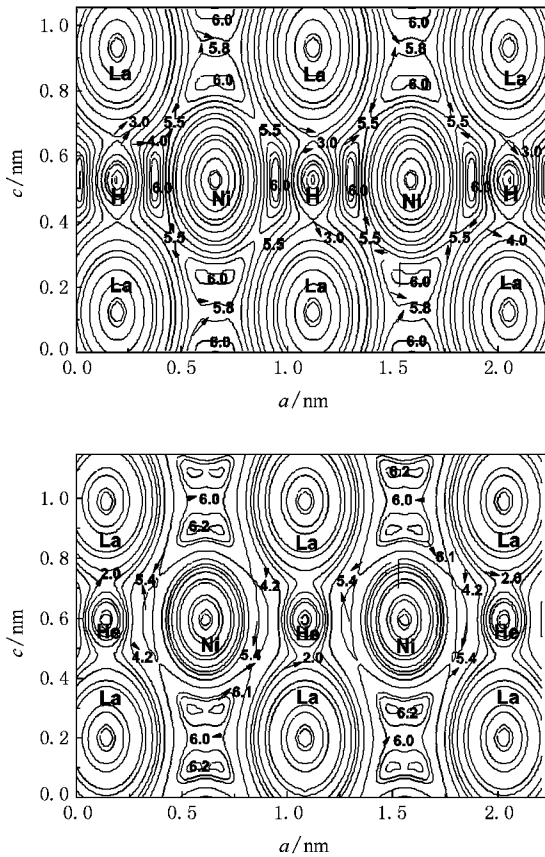


图9 LaNi_5H 和 LaNi_5He 在 $(10\bar{1}0)$ 面的势能分布

4. 结 论

1. 从密度泛函理论为基础的第一性原理出发, 对 LaNi_5He 的晶体结构和稳定性进行了建模研究, 计算了相应的晶体结构、迁移曲线、态密度、电子密度以及相应的势能分布。

2. 优化结果表明, 氦在十二面体间隙 ($1b$) 的能量最低, 因此氦衰变后, 氦原子优先占据该间隙位置。

3. 通过对氦迁移曲线的分析可得, 氦原子从 $6m$ 格位向 $1b$ 格位的迁移不需跨越势垒, 而从 $2d$ 格位向 $1b$ 格位迁移则要越过 1.55 eV 高的势垒才能实现。另外, 氦从 $12n$ 格位穿过 $12o$ 格位最后到达 $6m$ 格位也无明显势垒存在, 并且处于 $4h$ 格位之间的氦原子越过 0.83 eV 的势垒便可以自由迁移, 而相应 $12n$ 格位之间的直接迁移则需跨越 13.6 eV 高的势垒。

4. 由 LaNi_5H 和 LaNi_5He 二者态密度、电荷密度以及等势面分布的比较, La 原子和 $\text{Ni}(2c)$ 原子之间电荷密度的降低和势垒的升高, 导致了它们之间成键的减弱, 这也是氦衰变后合金稳定性降低的原因之一。

[1] Xiong Y F, Li R, Luo D L 2002 *J. At. Mol. Phys.* **19** 11 (in Chinese) 熊义富、李 嵘、罗德礼 2002 原子与分子物理学报 **19** 11]

[2] Li R, Jiang G Q, Xue Y, Zhang Y T 2002 *Nucl. Tech.* **25** 103 (in Chinese) 李 嵘、蒋国强、薛 炎、张义涛 2002 核技术 **25** 103]

[3] Walters R T 1990 *J. Less-Common Met.* **157** 97

[4] Liu S, Zheng H, Zhao Y, Xiong L Y, Wang L B, Yang X 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 756 (in Chinese) [刘 实、郑 华、赵 越、熊良钺、王隆保、杨 勋 2003 物理学报 **52** 756]

[5] Li R, Jiang G Q, Sun Y, Wang Q G, Shuai M B 2003 *Nucl. Tech.* **26** 753 (in Chinese) 李 嵘、蒋国强、孙 颖、王勤国、帅茂兵 2003 核技术 **26** 753]

[6] Ping F L, Jiang G, Zhang L, Zhu Z H 2005 *Science in China G* **35** 424 (in Chinese) 平飞林、蒋 刚、张 林、朱正和 2005 中国科学 G 辑 **35** 424]

[7] Lartigue C, Le Bail A, Percheron-Guegan A 1987 *J. Less-Common Met.* **129** 65

[8] Tatsumi K, Tanaka I, Inui H, Ma K, Yamaguchi M, Adachi H 2001 *Phys. Rev. B* **64** 184105

[9] Wang H, Liu Z Y 2004 *Rare Met Mater Eng.* **33** 239 (in Chinese) [王 宏、刘祖岩 2004 稀有金属材料与工程 **33** 239]

[10] Gross K, Züttel A, Schlupbach L 1998 *J. Alloys Compd.* **274** 239

[11] Soubeyrou J L, Percheron-Guegan A, Achard J C 1987 *J. Less-Common Met.* **129** 181

[12] Blaha P, Schwarz K, Madsen G K H, Kvasnicka D, Luitz J 2001 *Computer Code WIEN2K (An Augmented Plane Wave Plus Local Orbital Program for Calculating Crystal Properties, ISBN 3-9501031-1-2 Vienna, Austria: Vienna University of Technology)*

[13] Qi X H, Gao T, Zhu Z H, Li Y X, Chen B, Fan Z J 2004 *J. At. Mol. Phys.* **21** 366 (in Chinese) 齐新华、高 涛、朱正和、李跃勋、陈 波、范智剑 2004 原子与分子物理学报 **21** 366]

[14] Qi X H, Gao T, Chen B 2005 *Acta Metall Sin.* **41** 910 (in Chinese) 齐新华、高 涛、陈 波 2005 金属学报 **41** 910]

[15] Wang L B, Liu M Q, Li Y Y 2003 *Acta Metall Sin.* **39** 449 (in Chinese) 王隆保、吕曼祺、李依依 2003 金属学报 **39** 449]

[16] Westlake D G 1983 *J. Less-Common Met.* **91** 275

[17] Wilson W D, Bisson C L, Baskes M I 1981 *Phys. Rev. B* **56** 16

[18] Qian C F, Du H, Wang H X 1999 *Rare Met. Mater. Eng.* **28** 368 (in Chinese) 钱存富、杜 昊、王洪祥 1999 稀有金属材料与工程 **28** 368]

- [19] Schober T , Lasser R , Jager W , Thomas G J 1984 *J. Nucl. Mater.* **122** 571
- [20] Hector L G , Herbst J F , Capehart T W 2003 *J. Alloys Comp.* **353** 74

Theoretical studies on the structure and He interstitial diffusion of LaNi_5He compounds^{*}

Zhang Chuan-Yu^{1)†} Gao Tao^{1)†} Zhang Yun-Guang¹⁾ Zhou Jing-Jing¹⁾ Zhu Zheng-He¹⁾ Chen Bo²⁾

¹ *Institute of Atomic and Molecular Physics , Sichuan University , Chengdu 610065 , China)*

² *School of Physical Science and Technology , Sichuan University , Chengdu 610065 , China)*

³ *Institute of Nuclear Physics and Chemistry , Chinese Academy of Engineering Physics , Mianyang 621900 , China)*

(Received 19 August 2006 ; revised manuscript received 18 June 2007)

Abstract

Based on the generalized gradient approximation (GGA) of density function and the full-potential linearized augmented plane wave (FLAPW) method , the micro-arrangement of He atoms after tritium decay in LaNi_5He have been modeled for theoretical study. The energy curves between $1b$ - $6m$ - $2d$, $4h$ - $2d$ - $4h$, $6m$ - $12o$ - $12n$ and $12n$ - $3f$ - $12n$ interstitial sites for LaNi_5He are worked out theoretically. The results indicate that $1b$ site is most stable for He occupation in LaNi_5He among the seven nonequivalent interstices. The potential barrier doesn't exist when He atoms migrate from $6m$ site to $1b$ site , but there is a potential barrier of height 1.55 eV between $2d$ site and $1b$ site. And He atoms which lie in the $12n$ sites can easily go through the $12o$ sites to get to the $6m$ sites finally. Helium atoms can freely migrate between the $4h$ sites. By getting through a 13.6 eV potential barrier , He atoms are able to directly migrate between the $12n$ sites. Finally , the density of states (DOS) , charge density (CD) and potential distribution for characteristic interstitial LaNi_5He and LaNi_5H are plotted and compared with each other in detail.

Keywords : full-potential linearized augmented plane wave (FLAPW) , LaNi_5He , density of states (DOS) , diffusion

PACC : 6155H , 6630L , 7115A , 7115M

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China and the Chinese Academy of Engineering Physics (Grant No.10276027).

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