



Fe–Cr合金辐照空洞微结构演化的相场法模拟

杨辉 冯泽华 王贺然 张云鹏 陈铮 信天缘 宋小蓉 吴璐 张静

Phase-field modeling of irradiated void microstructure evolution of Fe–Cr alloy

Yang Hui Feng Ze-Hua Wang He-Ran Zhang Yun-Peng Chen Zheng Xin Tian-Yuan Song Xiao-Rong Wu Lu Zhang Jing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 054601 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201457

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201457>

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

–相变中不同晶界特征下铁素体生长形貌的相场模拟

Phase-field modeling of ferrite morphology in austenite-to-ferrite transformation with considering anisotropic effects

物理学报. 2017, 66(7): 070701 <https://doi.org/10.7498/aps.66.070701>

$\text{Ni}_{60}\text{Al}_{20}\text{V}_{20}$ 中熵合金沉淀过程微扩散相场法模拟

Microscopic phase-field simulation for precipitation process of $\text{Ni}_{60}\text{Al}_{20}\text{V}_{20}$ medium entropy alloy

物理学报. 2020, 69(14): 140201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200154>

相场模型及其在电化学储能材料中的应用

Phase-field model and its application in electrochemical energy storage materials

物理学报. 2020, 69(22): 226401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201411>

不同衬底条件下石墨烯结构形核过程的晶体相场法研究

Phase-field crystal modelling the nucleation processes of graphene structures on different substrates

物理学报. 2017, 66(21): 216101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.216101>

质子辐照对永磁合金微观结构演化的研究

Effect of proton irradiation on microstructure evolution of permanent magnet

物理学报. 2018, 67(1): 016104 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172025>

浓度相关的扩散系数对定向凝固枝晶生长的影响

Effect of concentration-dependent diffusion coefficient on dendrite growth in directional solidification

物理学报. 2019, 68(16): 166401 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190603>

Fe-Cr 合金辐照空洞微结构演化的相场法模拟*

杨辉¹⁾ 冯泽华¹⁾ 王贺然²⁾ 张云鹏¹⁾ 陈铮²⁾
信天缘³⁾ 宋小蓉³⁾ 吴璐³⁾ 张静^{2)†}

1) (西安理工大学材料学院, 西安 710048)

2) (西北工业大学, 凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

3) (中国核动力研究设计院第一研究所, 成都 610005)

(2020年9月2日收到; 2020年9月28日收到修改稿)

Fe-Cr 合金作为包壳材料在高温高辐照强度等极端环境下服役, 产生空位和间隙原子等辐照缺陷, 辐照缺陷簇聚诱发空洞、位错环等缺陷团簇, 引起辐照肿胀、晶格畸变, 导致辐照硬化或软化致使材料失效. 理解辐照缺陷簇聚和长大过程的组织演化, 能更有效调控组织获得稳定服役性能. 本文采用相场法研究 Fe-Cr 合金中空洞的演化, 模型考虑了温度效应对点缺陷的影响以及空位和间隙的产生和复合. 选择 400—800 K 温度区间、0—16 dpa 辐照剂量范围的 Fe-Cr 体系为对象, 研究在不同服役温度和辐照剂量下的空位扩散、复合和簇聚形成空洞的过程. 在 400—800 K 温度区间, 随着温度的升高, Fe-Cr 合金空洞团簇形核率呈现出先升高后下降的趋势. 考虑空位与间隙的重新组合受温度的影响可以很好地解释空洞率随温度变化时出现先升高后降低的现象. 由于温度的变化将影响 Fe-Cr 合金中原子离位阈能, 从而影响产生空位和间隙原子. 同一温度下, 空洞半径和空洞的体积分数随辐照剂量的增大而增大. 辐照剂量的增大, 级联碰撞反应加强, 空位与间隙原子大量产生, 高温下空位迅速的扩散聚集在 Fe-Cr 合金中将形成更多数量以及更大尺寸的空洞.

关键词: 相场法, 空洞演化, 辐照剂量, 级联碰撞

PACS: 46.25.Cc, 61.72.-y, 61.80.Hg, 61.72.Qq

DOI: 10.7498/aps.70.20201457

1 引言

化石能源日益枯竭、环境污染问题日益凸显, 清洁、高效核能的发展和利用尤为必要, 发展安全可控的核聚变或裂变行为尤为重要. 安全可控的核电关键要素之一取决于包壳材料在高辐照极端环境下的服役行为, 这对包壳材料组织稳定性和抗辐照性能提出了更高的要求和挑战. 针对包壳材料的微观组织演化与辐照缺陷簇聚的研究将启发强稳定性、高抗辐照性材料的设计和制备. 铁素体/马氏体 (F/M) 合金含铬量高, 具有良好的耐蚀性和

机械性能^[1], 是核反应堆元件的主要候选材料. 含 2%—6% Cr 以及少量的 C, Mn, Ni, N 量的铁素体/马氏体钢具有优异的抗辐照肿胀和抗腐蚀性能, 是聚变堆、四代堆结构材料的重要候选之一^[2]. 因此研究 Fe-Cr 合金包壳材料在服役状态下的微观组织演化对于核工业的发展具有重大的意义.

包壳材料服役环境恶劣, 由于长时间承受高温、高压、高温度梯度和高能粒子辐照, 产生高密度辐照组织损伤, 抗辐照、耐蚀性下降, 组织不稳定导致服役失效. 包壳材料受到高能粒子轰击时, 被轰击原子离开自身晶格点阵位置, 产生由空位和间隙原子组成的 Frenkel 缺陷对^[3-9]. 这些辐照点

* 国家自然科学基金 (批准号: 51704243, 51674205, 51601185)、国防基础科研计划 (批准号: JCKY2017201C016)、中国博士后科学基金 (批准号: 2015M582575) 和国家重点研发计划 (批准号: 2016YFB07001) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: Jingzhang@nwpu.edu.cn

阵缺陷相互作用将导致辐照诱发的显微组织变化,部分空位和间隙原子复合对组织影响不大;部分空位在密排面簇聚形成空位型位错环,沿径向或纵向扩展形成空洞,导致辐照肿胀;部分间隙原子在密排面簇聚形成间隙型位错环,造成局域晶格畸变严重.辐照缺陷导致材料的辐照肿胀、辐照软化、辐照硬化以及开裂.辐照损伤的程度与材料的服役环境密不可分,辐照剂量和辐照温度对辐照损伤的影响最为直接.因此,探究包壳材料在不同辐照温度与辐照剂量下材料内部点缺陷的运动和显微组织演化规律就非常必要.其中在Cu的回复研究和损伤率测量结果中发现,低温时,间隙原子和空位不能迁移;依据Lindhard能量分配理论^[10],用弹性碰撞的能量份额表征损伤效率,则在0 K时,Cu的损伤效率为1,而逸出间隙原子和逸出空位效率为0^[11].Becker等^[12]通过测量电阻率的方法测定损伤速率,即单位时间内所产生的dpa数(dpa/s)或单位时间单位体积内所产生的离位原子数($N/(s \cdot cm^3)$),并由损伤速率确定存活缺陷数量;结果表明随温度升高,离位阈能值较低,产生Frenkel对的效率增大.Huang等^[13]和Ding等^[14]采用7 MeV的 Xe^{26+} 和1 MeV的 Xe^{20+} 在室温和600 °C下分别对316奥氏体不锈钢(316SS)块体和TEM试样进行了辐照实验,认为316SS离子辐照损伤中存在如下温度效应:600 °C下由于辐照在材料内部造成的点缺陷的扩散能力比低温辐照条件下强,因此间隙原子和空位会有更高的几率相遇而发生复合,进而造成材料内部形成的纳米级团簇或位错环等缺陷体积密度减少,从而使材料的辐照硬化现象发生回复.除此之外,辐照剂量的增大,级联碰撞反应加强,产生的Frenkel缺陷对数量也会增加.Huang等^[13]应用分子动力学研究3C-SiC辐照诱发缺陷演化及温度效应,结果表明,级联碰撞产生的空位数与PKA初始运动方向无关而与PKA能量之间呈线性关系.Ding等^[14]通过实验研究离子辐照对IG-110核级石墨中的点缺陷的影响;在低剂量下,辐照产生的点缺陷浓度随着辐照剂量增大而增大;而在高剂量下,由于间隙原子的扩散间隙原子聚集成间隙原子环、空位聚集形成空位簇,点缺陷的浓度也随之减小.

近年来,比利时核能研究中心和美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室,通过离子与中子辐照实验对Fe-Cr合金的辐照性能进行了大量的研究^[15,16].但是辐照实验成本高昂、原位观测难以捕捉,鉴于辐

照的特殊性,以及实验数据获取困难、成本高等的局限性,辐照实验难以满足对Fe-Cr合金微观结构演化的研究.原子尺度的第一性原理、分子动力学和蒙特卡罗等方法在缺陷参数、位错和间隙原子等微观缺陷运动方面做出了突出贡献^[17-22],然而,在更大的空间和时间尺度问题上,如空洞、位错和晶界以及空位团簇或气泡之间的弹性相互作用等^[23,24],受制于计算成本,这些方法无能为力.相场方法能较好地捕捉辐照诱导显微组织的动力学演变和形貌演变,如氦泡的演化行为^[25],空位的结合及自间隙原子的迁移^[26],多晶材料中空洞的形核、长大或湮灭^[27].介观尺度的连续相场法既携带界面、晶体缺陷等微观信息,又能从晶粒尺度描述组织演化,进而和实验数据对照^[28-30];因而,采用相场法模拟、预测辐照条件下显微组织演化具有独特的优越性.

基于上述讨论,本文研究温度和辐照剂量对Fe-Cr合金中点缺陷及空洞微结构演化影响.首先,研究400—800 K温度范围Fe-Cr合金中点缺陷及空洞的演化,观测空洞的簇聚过程,以及温度对不同演化阶段的影响.其次,研究0—16 dpa辐照剂量范围下缺陷以及空洞微结构的演化,得到Fe-Cr合金中空位聚集、簇聚,空洞形核、长大的演化过程,以及不同辐照剂量对空洞形核、长大等过程的影响.针对温度与辐照会对Fe-Cr合金的点缺陷造成影响,对模拟结果中的空洞的平均半径、空洞数量与体积分数进行分析,得到了温度与辐照剂量对于空洞大小与数量的影响.

2 相场模型

相场模型采用一系列保守场变量来描述体系微结构,场变量的空间和时间演化行为由Cahn-Hilliard方程来控制,微结构演化的热力学驱动力依据具体研究问题,主要有体化学自由能、界面能、弹性能、电场能和磁场能等构成.在研究点缺陷的产生和复合对辐照材料中空洞演化的影响时,使用两个变量 $C_v(r, t)$ 和 $C_i(r, t)$ 分别描述空位和间隙的时空分布. $r = (r_1, r_2, r_3) = (x, y, z)$ 和 t 分别是空间坐标和时间.在相场方法的框架下,系统的总自由能,包括化学自由能和梯度能,写成 $C_v(r, t)$ 和 $C_i(r, t)$ 的函数^[31],

$$E = \int_v \left[f(C_v, C_i, T) + \frac{k_v}{2} |\nabla C_v|^2 + \frac{k_i}{2} |\nabla C_i|^2 \right] dv, \quad (1)$$

其中, $f(C_v, C_i, T)$ 为化学自由能, T 为绝对温度, k_v 和 k_i 分别为空位浓度和间隙浓度的梯度能系数. 空洞的化学自由能为^[25]

$$f(C_v, C_i, T) = f_1(C_v, T) + f_2(C_i, T), \quad (2)$$

$$f_1(C_v, T) = k_B T [(1 - C_v) \ln(1 - C_v) + C_v \ln C_v] + b_4 C_v^4 + b_3 C_v^3 + b_2 C_v^2 + b_1 C_v + b_0, \quad (3)$$

$$f_2(C_i, T) = k_B T [(1 - C_i) \ln(1 - C_i) + C_i \ln C_i] + a C_i. \quad (4)$$

空位和间隙原子在基体和空洞表面发生复合. 控制合适的复合速率来确保所有到达空洞表面的间隙原子与空位重新结合, 从而使空洞中间隙原子的浓度为零. 因此, 把自由能分成 $f_1(C_v, T)$ 和 $f_2(C_i, T)$ 两部分^[25]. 在上述等式中 b_0 — b_4 以及 a 都是常数, k_B 是玻尔兹曼常数.

空洞随时间的演化由 Cahn-Hilliard 方程^[32] 控制:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = \nabla \cdot \left[M_v \nabla \frac{\delta E}{\delta C_v} \right] + \xi(r, t) + \dot{g}_v(r, t) + \dot{\gamma}(r, t), \quad (5)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \nabla \cdot \left[M_i \nabla \frac{\delta E}{\delta C_i} \right] + \zeta(r, t) + \dot{g}_i(r, t) + \dot{\gamma}(r, t), \quad (6)$$

其中, M_v 和 M_i 分别是空位和间隙的迁移率, 随机函数 $\xi(r, t)$ 和 $\zeta(r, t)$ 是空位和间隙浓度场的热起伏, 一般使用噪声项来处理, 在程序处理中加入浓度的波动使得缺陷形核得以进行, $\dot{\gamma}(r, t)$ 是空位和间隙原子的重组率. $\dot{g}_v(r, t)$ 和 $\dot{g}_i(r, t)$ 分别是空位和间隙的净生成率, 在基体中不存在空位和间隙的情况下, 空位和间隙的净生成率完全由损伤率 \dot{R} 决定. 如果考虑由于特定辐照对应所有移动缺陷引起空位浓度 (N_v^R) 和间隙浓度 (N_i^R) 的增大, 空位和间隙的生成率可以由下式计算^[31]:

$$\dot{g}_v^R = N_v^R \dot{R}, \quad (7)$$

$$\dot{g}_i^R = N_i^R \dot{R}. \quad (8)$$

然而, 在实际材料中存在不同的缺陷, 如空位和间隙型的位错和晶界, 它们影响空位和间隙原子净生成率. 此外, 裂变碎片和中子损伤级联被认为只发生在基体, 而不是在空洞中. 在本文中, 空位和间隙原子的产生率可由下式表示^[31]:

$$\dot{g}_v(r, t) = \dot{g}_v^0 H(C_v), \quad (9)$$

$$\dot{g}_i(r, t) = \dot{g}_i^0 H(C_v), \quad (10)$$

其中, $H(C_v)$ 是截断平滑函数. 在基体相中为 1.0, 空洞中为 0, 在基体与空洞交界面处从 1.0 到 0 平滑过渡. $\dot{g}_v(r, t)$ 和 $\dot{g}_i(r, t)$ 表示空位和间隙的净生成率, 这取决于 N_v^R , N_i^R , \dot{R} 和沉降强度 ($\dot{g}_v^0 \leq \dot{g}_v^R$, $\dot{g}_i^0 \leq \dot{g}_i^R$). 对于给定的材料和辐射条件, 这些基本的模型参数可以在速率理论文献^[33] 和分子动力学 (MD) 或动力学蒙特卡罗 (KMC) 结果中找到^[34–37]. 空位和间隙的复合速率取决于空位和间隙的浓度以及它们的结合能. 本文中的重组率形式为^[31]

$$\dot{\gamma}(r, t) = -\dot{\gamma}_0 C_v(r, t) C_i(r, t), \quad (11)$$

其中, $\dot{\gamma}_0$ 是与空位和间隙的扩散率和结合能相关的模型参数, 负号表示复合降低了空位和间隙浓度. 在本文中将详细地讨论在不同温度不同辐照剂量下的空洞演化结果. 在模拟中, 对相关的参数进行了无量纲化. 在此次模拟计算选取的参数为: $\Delta x^* = \Delta y^* = \Delta z^* = 1$, 计算体系的尺寸为 $128 \Delta x^* \times 128 \Delta y^* \times 1 \Delta z^*$, 时间步长为 $\Delta t^* = 0.0001$, 其中 Δ 为空间和时间的单位单元. 相场模型中所用的具体模拟参数如表 1 所示, 所有的模拟都是在二维空间中进行的.

3 结果与讨论

选择 400—800 K 温度区间、0—16 dpa 辐照剂量范围的 Fe-Cr 体系为研究对象, 考虑空位和间隙原子的复合, 研究在不同服役温度和辐照剂量下的空位的扩散、复合和簇聚形成空洞的过程.

首先考虑温度对空洞演化的影响, 图 1 显示了不同辐照温度和剂量下 Fe-Cr 合金中单个晶粒内空洞形貌的相场模拟结果, 包括空洞数量、尺寸和分布. 400 K, 500 K 等较低服役温度下, 空洞形成的数量较少并且尺寸也较小, 400 K 增至 500 K, 空洞数和尺寸未有明显变化. 在此低温温度区间内, 随着辐照剂量从 0 dpa 增至 16 dpa, 空洞的数量微量增大、尺寸略微粗化, 总体来说随辐照剂量增大没有明显变化. 由经典形核理论可知, 形核率

表 1 本文模拟使用的物性和模拟参数^[33]
Table 1. Physical properties and simulation parameters used in this paper^[33].

$k_B / (\text{eV} \cdot \text{K}^{-1})$	a	b_0	b_1	b_2	b_3	b_4	M_v	M_i	L	k_{cv}	k_{ci}
8.61733×10^{-5}	8.0	0.02	2.8	50.4	-105.4	52.2	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0

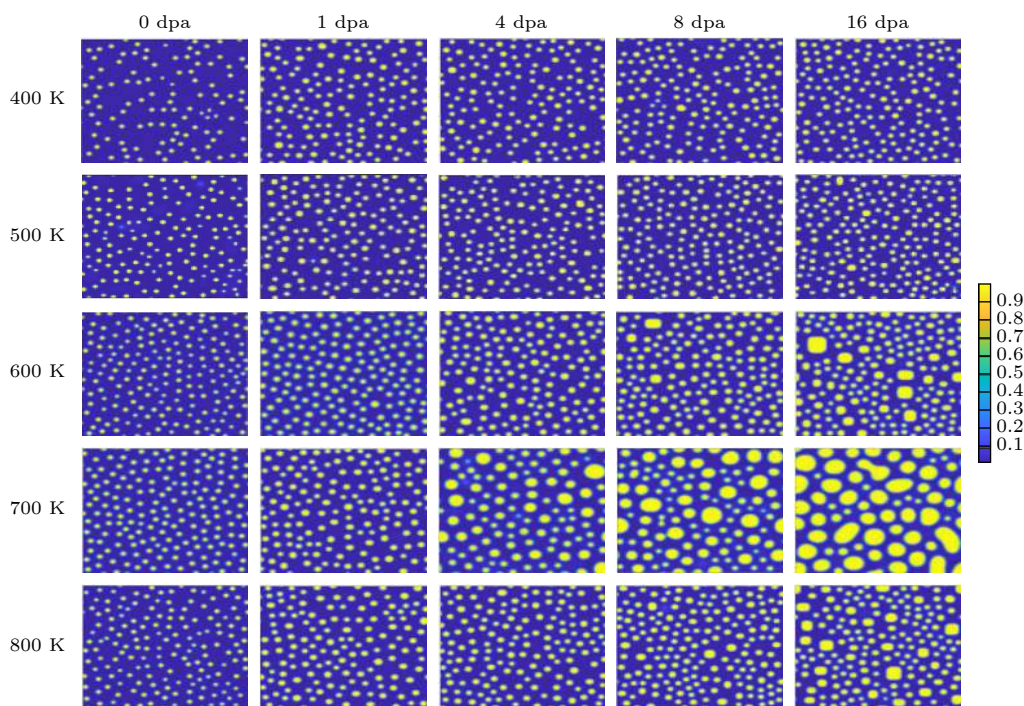


图 1 不同辐照温度和剂量下 Fe-Cr 合金中空洞形貌的变化

Fig. 1. Morphology evolution of voids of Fe-Cr alloys at different irradiation temperature and dose.

会随着过冷度的增加先增大后减小,一方面较大的过冷度可以促进形核,另一方面在温度较低时原子的扩散迁移率很低使得形核率降低,400—500 K 温度区间过冷度大,扩散慢,空洞形核率较低、尺寸较小.此外,由于空位是热缺陷,其浓度与温度存在指数函数关系^[38],在高温下空位浓度高,在低温下空位浓度低,400 K 和 500 K 温度下,空位浓度也相对较低.相对较低的扩散速率和较低的空位浓度,使得在低温阶段辐照剂量的增大对 Fe-Cr 合金中空洞的形核与长大过程并没有产生很大的影响.

温度增至 600 K 时,与相同辐照条件下 400 K 和 500 K 的结果相比,空洞数量要明显增多、空洞尺寸在较高辐照剂量条件下也呈明显粗化.数量增大归结于 600 K 温度下,空位扩散速率快,空洞的形核率增大.随辐照剂量的增大,空洞的数量并无显著变化,而空洞的尺寸却发生明显的增大,个别空洞甚至出现异常长大的现象.空洞尺寸增大或异常粗化与辐照剂量加大时的空位浓度增大有关.本文模拟的辐照温度和辐照剂量下的空洞变化与中子辐照铁中的实验观察结果一致^[6].随辐照剂量的不断升高 Fe-Cr 合金中空洞数量与尺寸都增大,FeCr₁₅Ni₁₅ 单晶中实验所得的空洞的结果与本文模拟结果一致^[34].

为进一步验证温度趋势对空洞的影响,研究温度增至 700 K 时不同辐照剂量下的空洞现象.对照较低温度、较少辐照剂量下的结果,700 K 的空洞形核率无明显增加,但辐照剂量对空洞尺寸影响更为显著.在 4 dpa 时就出现了空洞异常长大现象,在 8 dpa, 16 dpa 辐照剂量下空洞的粗化异常严重.伴随空洞粗化,空洞数量减少,呈现大空洞长大、小孔洞缩小或溶合.级联碰撞过程的增强使得晶体中点缺陷浓度大幅增大,增大的空位浓度未能形核形成新的空洞,而是被原有空洞吸收,导致空洞尺寸增大.大空洞倾向于吸收周边更多的空位,导致小空洞溶解直至消失,或空洞合并形成更大空洞,即空洞的“异常长大”现象.

图 1 给出了 800 K 时 Fe-Cr 合金中空洞与辐照剂量的关系.在较高温度下,空位扩散率高空洞形核率提高;辐照剂量增大,级联碰撞强度增加导致空位浓度大幅度提高,空洞长大得到增强.观测 800 K 时的结果发现,空洞的数量和尺寸与 600 K 相似,并且未出现如 700 K 温度时,空洞对辐照剂量的显著敏感性以及空洞“异常长大”等现象.

空洞的形核、长大和粗化是受空位浓度、扩散速度、形核率和空位-间隙复合等因素综合控制的.为定量描述上述因素的影响,图 2 给出了空位、间隙扩散系数 (D_v , D_i) 与温度的关系,体系中空位

浓度与扩散系数呈正比; 图 3 给出了体系总空位浓度、空位-间隙重组率-温度关系. 在较低温度, 如 400—500 K, 空位浓度和扩散速率均较低, 辐照剂量增大虽然会使得空位浓度增大, 但由于低温时点缺陷的扩散速度太慢, 空洞数量和空洞尺寸均无明显变化. 600 K 时, 加快的扩散速度和显著增加的热空位逐渐主导, 高辐照剂量下部分空洞异常长大; 这一趋势在 700 K 时, 尤为显著, 该温度下空位-间隙复合速率也显著加速, 但是空位-间隙复合减少的空位数量依然小于辐照强度增加和温度上升引入的空位数量, 空位浓度在这一温度下达到峰值, 导致这一温度下高辐照剂量出现时, “异常长大”空洞颗粒形成. 800 K 时, 一方面高温不利于空洞形核, 形核临界尺寸增加, 形核率降低; 另一方面高扩散速率、空位-间隙复合主导, 促使空位和间隙原子快速复合, 空位浓度显著降低, 在高辐照剂量

条件下呈现少量空洞颗粒不显著异常长大. 在同一辐照剂量作用下, 空洞尺寸先随温度升高而增大, 而当温度超过 700 K 时空洞的尺寸却开始减小, 合金组织对 700 K 尤为敏感, 由于本文以 100 K 为梯度研究组织-温度关系, 这一具体敏感温度大概率出现在 700 K 左右范围, 具体温度点有待进一步研究.

图 4 和图 5 分别给出了 700 K 时不同辐照剂量下空洞的平均半径与空洞数量的时间演化曲线. 在经历一段孕育期后, 空洞迅速形核长大. 无辐照条件下, 空洞平均半径达到一定值后趋于稳定. 辐照剂量越大, 空洞孕育期越短, 伴随平均半径增加的同时空洞的数量减少. 随时间延长, 尺寸较大的空洞吸收更多的空位逐渐长大, 相邻的空洞溶合形成更大的空洞, 即所谓的“Ostwald”熟化效应, 从而使空洞的数量减少, 尺寸增大. 随辐照剂量

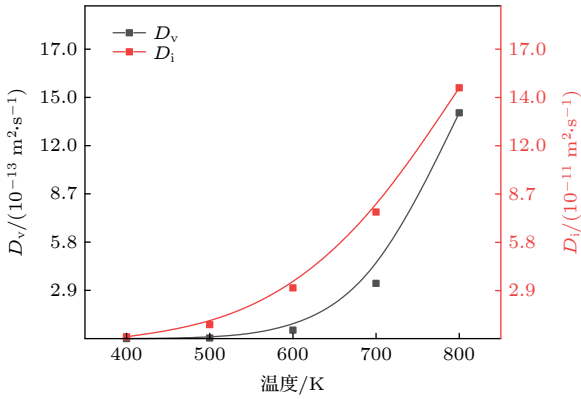


图 2 Fe-Cr 合金空位及间隙原子扩散速度与温度的关系
Fig. 2. The relationship between the diffusion rate of Fe-Cr alloy vacancies, the interstitial atoms and temperature.

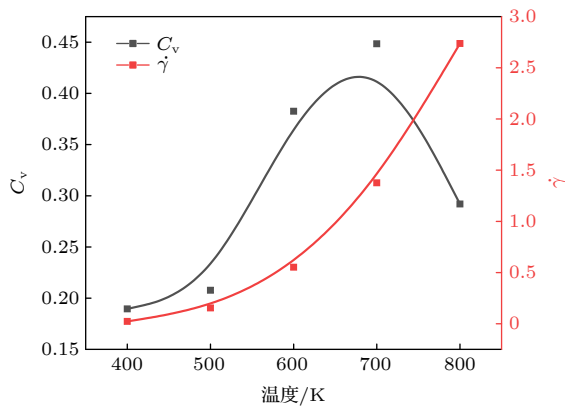


图 3 Fe-Cr 合金中空位浓度、空位-间隙重组率与温度的关系
Fig. 3. Relationship between vacancy concentration, vacancy-interstitial recombination rate, and temperature in Fe-Cr alloy.

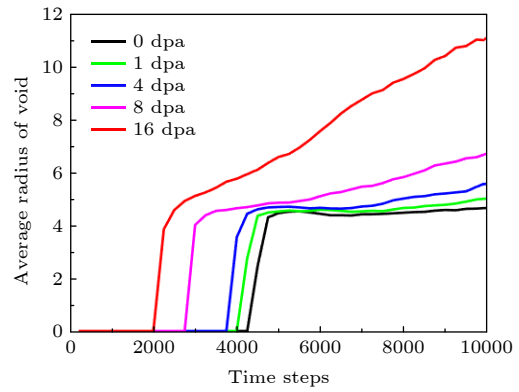


图 4 Fe-Cr 合金在 700 K 温度下 0—16 dpa 辐照剂量下空洞的平均半径演化
Fig. 4. The average radius of the voids of Fe-Cr alloy suffer different irradiation doses at 700 K.

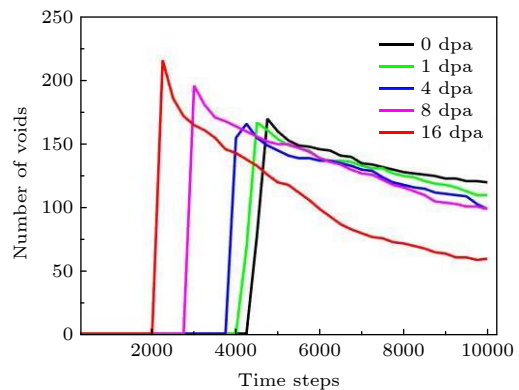


图 5 Fe-Cr 合金在 700 K 时 0—16 dpa 不同辐照剂量下空洞的数量演化
Fig. 5. Void numbers of Fe-Cr alloy suffers different irradiation doses at 700 K.

增大, 辐照的作用使得空位与间隙原子的数量不断地增加, 高缺陷浓度导致空洞孕育期由于辐照的存在而缩短. 图 6 给出了 700 K 时空洞的数量与辐照剂量的关系. 在 1—4 dpa 的低辐照剂量区, 由于在 700 K 时空位与间隙原子的不断复合, 空洞的数量受剂量的影响不大; 但辐照剂量的不断增大使得 Fe-Cr 合金中空位数量大量增大, 促使合金中空洞数量不断增多.

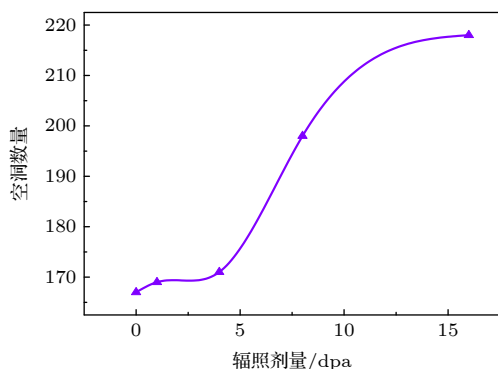


图 6 Fe-Cr 合金在 700 K 时空洞数量与辐照剂量的关系
Fig. 6. Relationship between the number of voids and irradiation dose in Fe-Cr alloy at 700 K.

图 7 为 Fe-Cr 合金在 700 K 时空洞随时间和辐照剂量的形貌演化图. 空洞经历了明显的成分起伏、形核、长大和粗化几个阶段. 2000 Δt^* 时间步

时, 无辐照或低辐照剂量条件下, 空位浓度呈现较大的起伏, 部分区域开始簇聚, 但尚未形核, 但在 16 dpa 剂量下, 空洞已开始形核. 3000 Δt^* 时间步时, 8 dpa 剂量以上空洞开始形核, 低辐照剂量体系的体系依然处于成分起伏状态. 4000 Δt^* 时间步时, 4 dpa 剂量的体系空洞开始形核, 0 dpa 和 1 dpa 剂量的体系空位簇聚成空位团簇, 8 dpa 剂量下空洞长大, 16 dpa 剂量下空洞已严重粗化. 对比 8000 Δt^* 和 10000 Δt^* 的形貌, 空洞形貌逐渐趋于稳定, 且粗化严重, 辐照剂量越高, 粗化越为严重.

结合辐照剂量和温度的计算结果, 以 8 dpa 辐照剂量为例, 分析温度变化下的空洞平均数量和尺寸. 图 8 给出了 Fe-Cr 合金在辐照剂量为 8 dpa 时空洞数量与温度的关系. 图 9 和图 10 分别给出了 Fe-Cr 合金在辐照剂量为 8 dpa 时不同温度下空洞演化的分析结果. 随着温度的升高, Fe-Cr 合金中空洞的数量呈现出先增加后减少的趋势, 在 400—500 K 空洞数量增加, 但在 600—800 K 是空洞数量却开始减少, 并且在 700 K 时空洞的数量最少. 温度的提升使点缺陷的扩散率增加, 空洞形核率也得到了相应的增强, 因此空洞数量增多; 但是在较高温度时空位-间隙结合机制占主导作用使得系统中空洞数量减少. 700 K 时空洞数量最少是由于在此温度下空洞出现异常长大现象, 即系统中

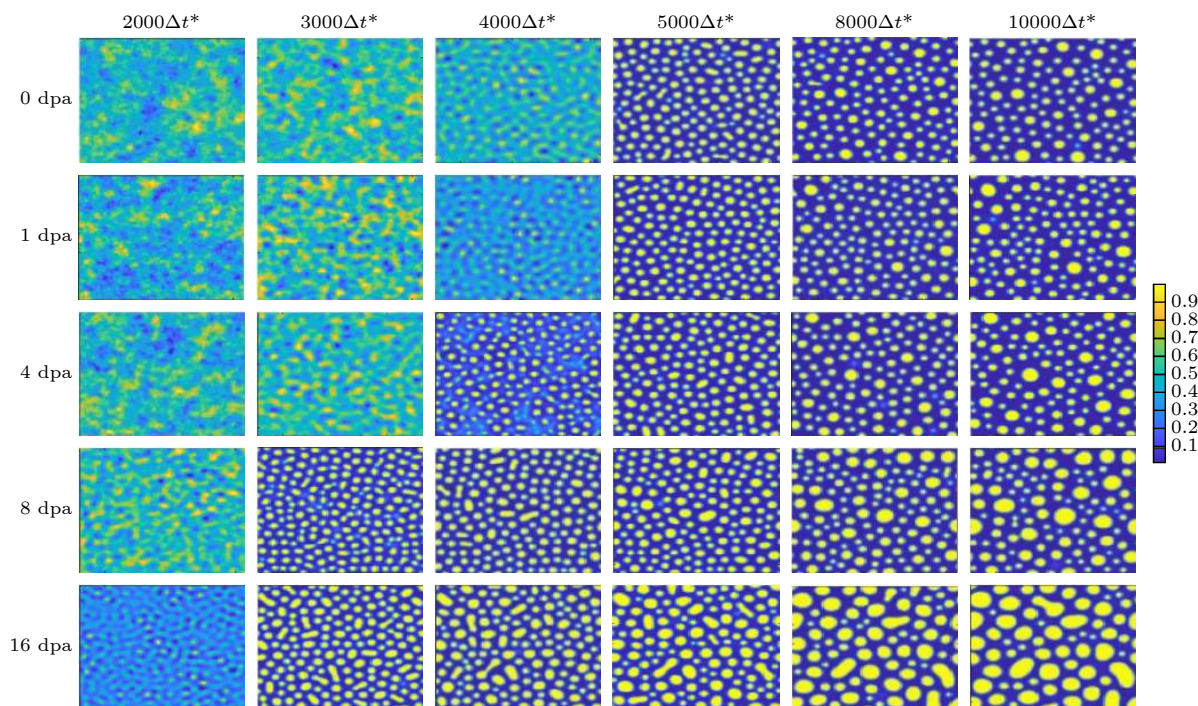


图 7 Fe-Cr 合金在 700 K 时空洞形貌随时间和辐照剂量的时间演化
Fig. 7. Temporal evolution of void in the Fe-Cr alloy at 700 K as functions of time and irradiation dose.

形成了数量更少、尺寸更大的空洞. 图 10 中 700 K 时空洞体积分数最大也证实了空洞的异常长大. 在辐照剂量为 8 dpa 时空洞数量和体积分数随温度

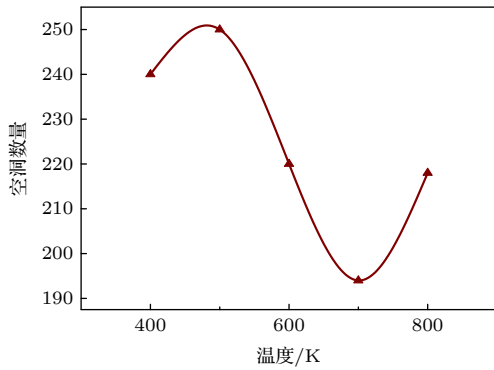


图 8 Fe-Cr 合金在辐照剂量为 8 dpa 时空洞数量与温度的关系

Fig. 8. Relationship between the number of voids and temperature in Fe-Cr alloy irradiated at 8 dpa.

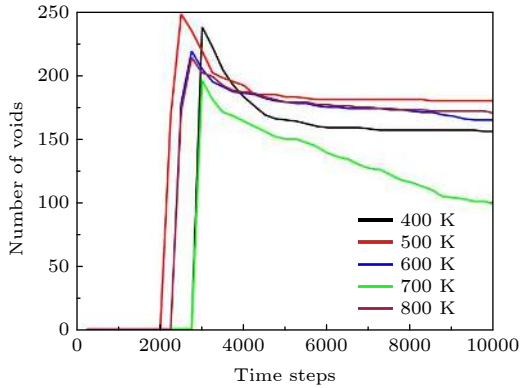


图 9 Fe-Cr 合金在辐照剂量为 8 dpa 时 400—800 K 温度下的空洞数量

Fig. 9. Comparison of the number of voids in Fe-Cr alloy at different irradiation temperatures of 8 dpa.

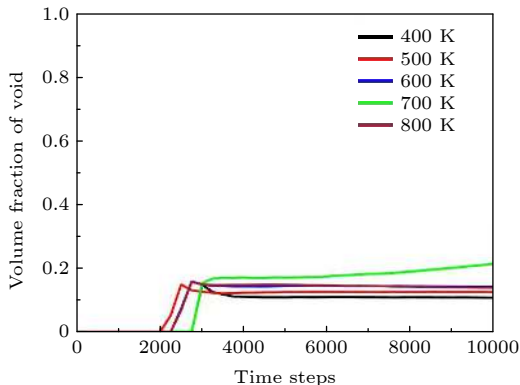


图 10 Fe-Cr 合金在辐照剂量为 8 dpa 时 400—800 K 温度下的空洞体积分数

Fig. 10. Comparison of the results of void volume fractions of Fe-Cr alloy at different irradiation temperatures at 8 dpa.

升高呈现出先增大后减小的趋势, 在辐照铁素体钢的实验观察中得到了与此次模拟相似的结果, 即空洞的数量并不是与温度呈现出正相关关系, 而是会在某一温度以后空洞的数量会减少^[39–41].

由于温度对于空位迁移率的影响以及空位属于热缺陷的原因, 使得在低温阶段辐照剂量的不断增加对于 Fe-Cr 合金中空洞的形核与长大并没有很大的影响. 许多理论都证实了温度对材料中空洞演化的影响^[42,43], 在低于峰值空洞率 ($T < 700$ K) 的温度下, 空位团簇的迁移率很低, 空位和间隙之间的复合对空洞结果的影响很小, 导致空洞的密度很高. 当温度高于 700 K 时, 虽然空位与间隙原子的数量增加, 但此时空位-间隙复合起主导作用, 导致空洞的密度降低.

4 结 论

相场法研究 Fe-Cr 合金中空洞演化以及温度和辐照剂量对空洞演化的影响. 温度通过影响 Fe-Cr 合金中原子离位能与空位-间隙的复合, 从而影响系统中空位和间隙原子数量. 辐照剂量增加、级联碰撞加强, 产生更多高密度的空位和间隙原子浓度. 研究结果得出以下结论.

1) 辐照空位簇聚形成空位团簇, 空位团簇发展成空洞核心, 并有空洞长大、小空洞缩小、以及空洞之间的溶合. 受辐照温度和剂量影响, 空位团簇和空洞形核的孕育期有较大差异. 辐照剂量与孕育期有明确的正相关, 辐照剂量越高, 孕育期越短. 孕育期与温度的关系较为复杂, 相对低温时, 温度升高孕育缩短, 温度继续升高至较高温度时, 孕育期延长, 这与温度升高时空位浓度增加、空位和间隙复合、以及空洞长大的临界晶核半径增加有关.

2) 空洞的长大和粗化过程受辐照剂量影响, 其颗粒数和平均半径随辐照剂量增加而增加. 0—4 dpa 时空洞尺寸增幅较小, 辐照剂量进一步增加加速粗化进程, 且颗粒不均匀性增加. 空洞粗化先是从部分空洞颗粒吸收周围小空洞的异常粗化开始, 导致空洞颗粒数减少但体积分数增大, 辐照剂量越大粗化越严重.

3) 温度上升, 热空位浓度增大、原子扩散加剧、空位/间隙复合加速、形核率减少、临界晶核半径增加, 因而空洞的长大和粗化受上述因素影响与

温度关系较为复杂. 400—500 K 温度下空洞颗粒数和平均半径变化不明显. 600 K, 8 dpa 以上剂量的体系部分空洞颗粒异常粗化. 700 K 温度下, 4 dpa 剂量时空洞颗粒即开始异常粗化, 粗化进程快、空洞颗粒数迅速减少. 800 K 温度下, 粗化程度较 700 K 时大为减缓.

感谢上海大学材料学院赵彦博士、西北工业大学航空学院陈成老师的有益讨论, 对我们模型开发和代码撰写提出了非常宝贵的意见.

参考文献

- [1] Klueh R L, Nelson A T 2007 *J. Nucl. Mater.* **371** 37
- [2] Buongiorno J, Swindeman R, Corwin W, Rowcliffe A, McDonald P, Was G, Mansur L, Wikon D, Nanstad R, Wright I 2003 *Supercritical Water Reactor (SCWR) : Survey of Materials Experience and R&D Needs to Assess Viability, Idaho National Engineering Laboratory Report INEEL/EXT-03-00693 (Rev. 1)* Idaho September 2003
- [3] Sass S L, Eyre B L 1973 *Philos. Mag.* **27** 1447
- [4] Une K, Nogita K, Kashibe S, Imamura M 1992 *J. Nucl. Mater.* **188** 65
- [5] Nogita K, Une K 1993 *J. Nucl. Mater.* **91** 301
- [6] Zacharie I, Lansart S, Combette P, Trotabas M, Coster M, Groos M 1998 *J. Nucl. Mater.* **255** 92
- [7] Katsuyama K, Nagamine T, Matsumoto S, Ito M 2002 *J. Nucl. Sci. Technol.* **39** 804
- [8] Zhang N, Liu B, Lin L W 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 016101 (in Chinese) [张娜, 刘波, 林黎蔚 2020 物理学报 **69** 016101]
- [9] Gao Y L, Zhu Y J, Li J P 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 057104 (in Chinese) [高云亮, 朱尧江, 李进平 2017 物理学报 **66** 057104]
- [10] Lindhard J, Nielsen V, Scharff M, Thomsen P V 1963 *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* **33** 706
- [11] Yu J N 2007 *Nuclear Materials Science and Engineering Radiation Effects of Materials* (Beijing: Chemical Industry Press) pp198–203 (in Chinese) [郁金南 2007 核材料科学与工程——材料辐照效应 (北京: 化学工业出版社) 第198—203页]
- [12] Becker C H 1972 *US Patent* 3 657 707 [1972-4-18]
- [13] Huang H F, Li J J, Liu R D, Chen H C, Yan L 2014 *J. Acta Metall. Sin.* **50** 1189 (in Chinese) [黄鹤飞, 李健健, 刘仁多, 陈怀灿, 闫隆 2014 金属学报 **50** 1189]
- [14] Ding Z N, Yang Y T, Song Y, Zhang L Q, Gou J, Zhang C H, Luo G N 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 112501 (in Chinese) [丁兆楠, 杨义涛, 宋银, 张丽卿, 缙洁, 张崇宏, 罗广南 2017 物理学报 **66** 112501]
- [15] Lambrecht M, Malerba L 2011 *Acta Mater.* **59** 6547
- [16] Reese E R, Almirall N, Yamamoto T 2018 *Scr. Mater.* **146** 213
- [17] Liu Y L, Zhang Y, Zhou H B 2009 *Phys. Rev. B* **79** 172103
- [18] Zhou H B, Liu Y L, Jin S 2010 *Nucl. Fusi.* **50** 115010
- [19] Alkamees A, Liu Y L, Zhou H B 2009 *J. Nucl. Mater.* **393** 508
- [20] Liang J J, Gao N, Li Y H 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 116102 (in Chinese) [梁晋洁, 高宁, 李玉红 2020 物理学报 **69** 116102]
- [21] Zhu Q, Wang S T, Zhao F Q, Pan H 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 036201 (in Chinese) [朱琪, 王升涛, 赵福祺, 潘昊 2020 物理学报 **69** 036201]
- [22] Liang J J, Gao N, Li Y H 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 036101 (in Chinese) [梁晋洁, 高宁, 李玉红 2020 物理学报 **69** 036101]
- [23] Liang L Y, Lü G H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 182801 (in Chinese) [梁林云, 吕广宏 2013 物理学报 **62** 182801]
- [24] Li R R, Zhang Y F, Geng D C, Zhang G W, Watanabe Hideo, Han W T, Wan F R 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 216101 (in Chinese) [李然然, 张一帆, 耿殿程, 张高伟, 渡边英雄, 韩文妥, 万发荣 2019 物理学报 **68** 216101]
- [25] Hu S Y, Henager C H, Heinisch H L 2009 *J. Nucl. Mater.* **392** 292
- [26] Rokkam S, El-Azab A, Millett P 2009 *Model Simul. Mater. Sci. Eng.* **17** 064002
- [27] Millett P C, Rokkam S, El-Azab A 2009 *Model Simul. Mater. Sci. Eng.* **17** 064003
- [28] Zhao B J, Zhao Y H, Sun Y Y, Yang W K, Hou H 2019 *Acta Metall. Sin.* **55** 593
- [29] Yan Z W, Shi S J, Li Y S, Chen J, Maqbool S 2020 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **22** 3611
- [30] Provatas N, Elder K 2010 *Phase-field Methods in Materials Science and Engineering* (Germany: Weinheim Wiley-VCH) pp2–5
- [31] Hu S Y, Henager C H 2010 *Acta Mater.* **58** 3230
- [32] Li Y, Hu S, Sun X 2010 *J. Nucl. Mater.* **407** 119
- [33] Simeone D, Ribis J, Luneville L 2018 *J. Mater. Res.* **33** 440
- [34] Ortiz C J, Caturla M J 2007 *Phys. Rev. B* **75** 184101
- [35] Bacon D J, Gao F, Osetsky Y N 2000 *J. Nucl. Mater.* **276** 1
- [36] Souidi A, Becquart C S, Domain C 2006 *J. Nucl. Mater.* **355** 89
- [37] Boisse J, Domain C, Becquart C S 2014 *J. Nucl. Mater.* **455** 10
- [38] Xu H J 2009 *Foundations of Materials Science* (Vol.1) (Beijing: Beijing University of Technology Press) pp205–214 (in Chinese) [徐恒均 2009 材料科学基础(第一版)(北京: 北京工业大学出版社) 第205—214页]
- [39] Wong K L, Lee H J, Shim J H, Sadigh B, Wirth B D 2009 *J. Nucl. Mater.* **386** 227
- [40] Norris, D I R 1972 *Radiation Effects* **14** 1
- [41] Getto E, Jiao Z, Monterrosa A M 2015 *J. Nucl. Mater.* **462** 458
- [42] Toloczko M B, Garner F A, Voyevodin V N 2014 *J. Nucl. Mater.* **453** 323
- [43] Brailsford A D, Bullough R, Hayns M R 1978 *J. Nucl. Mater.* **60** 246

Phase-field modeling of irradiated void microstructure evolution of Fe-Cr alloy*

Yang Hui¹⁾ Feng Ze-Hua¹⁾ Wang He-Ran²⁾ Zhang Yun-Peng¹⁾
Chen Zheng²⁾ Xin Tian-Yuan³⁾ Song Xiao-Rong³⁾
Wu Lu³⁾ Zhang Jing^{2)†}

1) (*School of Material Science and Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China*)

2) (*School of Material Science and Engineering, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China*)

3) (*The First Sub-institute, Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610005, China*)

(Received 2 September 2020; revised manuscript received 28 September 2020)

Abstract

As cladding materials, Fe-Cr alloys are used in the extreme environments of high temperature, high pressure, and energetic particle radiation, thus generating irradiation defects such as vacancies and interstitials. The clustering of irradiation defects leads the voids or dislocation loops to form, resulting in irradiation swelling and lattice distortion, and further radiation hardening or softening, finally, material failure. It is beneficial to tailor desired microstructures and obtain stable service performances by understanding defects cluster and voids formation process. In this paper, the phase-field method is employed to study the evolution of voids of Fe-Cr alloy. In the model the temperature effects on point defects and generation/recombination of vacancies and interstitials are taken into consideration. The 400–800 K temperature range and 0–16 dpa radiation dose range are selected, in which the voids' formation process including generation and recombination, as well as vacancy clustering caused by vacancy diffusion, is studied for Fe-Cr alloy. The nucleation rate of the void cluster shows a trend of first increasing and then decreasing with temperature increasing from 400 to 800 K. This phenomenon is related to complex interactions among defects concentration, atomic diffusion, recombination, nucleation, and growth conditions. At a given temperature, the average radius and the volume fraction of the voids grow bigger as the radiation dose increases. With the increase of irradiation dose, the cascade collision reaction is strengthened, and the number of Frenkel defect pairs is also increases. A large number of vacancies and interstitial atoms are generated, and the rapid diffusion and accumulation of vacancies in the Fe-Cr alloy at high temperature form a larger number and larger size of voids. The incubation period of vacancy clusters and voids are quite different due to the influence of irradiation temperature and dose. The higher the irradiation dose, the shorter the incubation period is. The relationship between the incubation period and temperature is more complicated. When the temperature is relatively low, the incubation period is shortened as the temperature increases, and as the temperature continues to increase to a higher temperature, the incubation period is extended. This relates to the increase in the concentration of vacancies, the recombination of vacancies and interstitials, and the increase of the critical nucleus radius for the growth of voids when the temperature increases.

Keywords: phase-field method, void evolution, irradiation dose, cascade collision

PACS: 46.25.Cc, 61.72.-y, 61.80.Hg, 61.72.Qq

DOI: 10.7498/aps.70.20201457

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51704243, 51674205, 51601185), the National Defense Basic Scientific Research Program of China (Grant No. JCKY2017201C016), the China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. 2015M582575), and the National Basic Research Program of China (Grant No. 2016YFB07001).

† Corresponding author. E-mail: Jingzhang@nwpu.edu.cn