

理想拉伸/剪切应变对 U_3Si_2 化学键键长及电荷密度分布影响的第一性原理研究*王坤¹⁾ 乔英杰¹⁾ 张晓红^{1)†} 王晓东¹⁾ 郑婷¹⁾
白成英¹⁾ 张一鸣²⁾ 都时禹^{1)2)‡}

1) (哈尔滨工程大学 材料科学与化学工程学院, 哈尔滨 150001)

2) (中国科学院宁波材料技术与工程研究所先进能源材料工程实验室, 宁波 315201)

(2022 年 6 月 20 日收到; 2022 年 7 月 18 日收到修改稿)

2011 年福岛核事故之后, U_3Si_2 作为可代替 UO_2 的核燃料被预测为重要的耐事故燃料. 近年来的研究结果表明, U_3Si_2 作为耐事故燃料的候选材料, 其在微观尺度上进行的模拟还不够深入. 在宏观尺度上不足以建立燃料数据库和模型来有效预测 U_3Si_2 的一些性能. 因此, 采用第一性原理计算 U_3Si_2 核燃料的一些物理化学数据受到了广泛关注. 在之前的工作中, 我们采用第一性原理计算拉伸/剪切实验 (FPCTT/FPCST) 的方法预测了 U_3Si_2 在几个低指数晶面/晶向上的理想强度. 然而, 并未对 U_3Si_2 的断裂行为进行过多的解释. 因此, 本论文通过论述理想拉伸/剪切应变对 U_3Si_2 化学键键长及电荷密度分布影响, 分析了 U_3Si_2 在这几个低指数晶面/晶向上的断裂行为. 结果表明: U_3Si_2 在理想拉伸应变的作用下, 晶体的破坏主要受化学键变化的影响, 而在剪切应变的作用下应变能或应力的突然下降, 可能与 U_3Si_2 的应变诱导结构相变有关.

关键词: 第一性原理, U_3Si_2 核燃料, 化学键, 电荷密度**PACS:** 71.15.Mb, 89.20.-a**DOI:** 10.7498/aps.71.20221210

1 引言

2011 年 3 月, 发生在日本东部的大地震和海啸造成了福岛第一核电站的重大事故. 事故暴露出现有核电站的安全性问题, 促使世界核能研究领域努力寻找新型燃料-包壳解决方案以取代目前轻水反应堆 (LWRs) 中二氧化铀-锆合金的组合来提高核反应堆的事故容错能力^[1]. U-Si 化合物因其具有良好的综合性能, 被认为是轻水反应堆的重要耐事故燃料, 是替代传统 UO_2 核燃料的候选材料^[2]. 其中, 由于 U_3Si 和 U_3Si_2 的高铀密度, 且比传统的 UO_2 燃料表现出更高的热导率, 使得这两种核燃料更受欢迎^[3,4]. 然而, 在研究型反应堆燃料典型的

温度范围内, U-Si 燃料可能会受到辐射诱导而非晶化, 从而限制 U_3Si 和 U_3Si_2 的应用^[1,5,6]. 近年来的研究表明, U_3Si_2 对辐射诱导的非晶化反应是稳定的, 且 U_3Si_2 比 U_3Si 具有更好的辐照非晶化行为和裂变气体行为, 显示出更好的抗辐照性能, 更适合作为 LWR 的燃料^[1,6-9]. 因此, U_3Si_2 具有更高的研究价值, 是目前核燃料研究的热点. 然而, 由于在 LWRs 中, 燃料的运行条件与研究型反应堆有很大的不同, 使得燃料基体的原子结构产生差异, 导致 U-Si 燃料在 LWR 条件下的行为与研究型反应堆中观察到的有很大的不同, 仅从研究型反应堆实验中收集的实验数据不能为评价 U-Si 燃料在 LWRs 中的性能提供足够的参考. 因此, 正在进行多尺度建模工作, 以解决认识上的这一差距^[1,5].

* 国家重点研发计划重点专项 (批准号: 2016YFB0700100) 和浙江省自然科学基金 (批准号: LY18F020025) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhangxiaohong0451@hrbeu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: dushiyu@hrbeu.edu.cn

在正常工况以及事故条件下, 机械性能在核燃料的变形和断裂中起着重要作用. 通过与其他核燃料的性能数据对比可知, U_3Si_2 的许多性能和行为研究较少. 特别是有关 U_3Si_2 在应力和变形下的研究还不够深入, 对其系统性的研究少见, 缺乏整体的认识. 这类数据的缺乏对精确开发安全可靠的核燃料提出了挑战^[10,11]. 因此, 有必要评估其弹性性能, 预测其对热梯度的响应, 并找出拉伸应变和剪切应变下机械失效模式与变形过程之间的关系, 详细研究 U_3Si_2 临界力学响应与包含态电子密度和价电荷密度再分布的底层电子结构之间的内在联系^[11]. 此外, 在将 U_3Si_2 作为核反应堆事故耐受燃料部署之前, 准确详细地了解其力学性质也是非常重要的^[2].

在力学性质方面, Wang 等^[12]、Noordhoek 等^[13]和 Chattaraj 等^[14]根据 U_3Si_2 具有四方晶系 $P4/mbm$ 点群特点, 采用第一性原理计算了 U_3Si_2 的弹性常数, 估计了 U_3Si_2 的力学稳定性和多晶弹性性质, 并根据获得的弹性常数对 U_3Si_2 的德拜温度进行了计算. Wang 等^[12]、Noordhoek 等^[13]和 Chattaraj 等^[14]的研究结果表明: U_3Si_2 为脆性材料, 具有力学稳定性, 这与实验观察结果吻合较好. 德拜温度的计算结果显示出 U_3Si_2 的德拜温度高于 U_3Si , 而低于 USi_2 和 USi_3 . 可以发现, Wang 等^[12]、Noordhoek 等^[13]和 Chattaraj 等^[14]所采用的计算方法和计算参数均不相同. Wang 等^[12]和 Noordhoek 等^[13]采用的是考虑 U 原子 5f 电子强关联效应的 DFT+U 方法, 而 Chattaraj 等^[14]采用的是传统的 DFT 方法. Wang 等^[12]和 Noordhoek 等^[13]研究的主要区别在于 Wang 等^[12]采用 DFT+U 方法中的 U 值为 4 eV, 计算结果基于 U_3Si_2 的非磁性模型, 而 Noordhoek 等^[13]采用的 U 值为 1.5 eV,

得到是铁磁性条件下 U_3Si_2 的计算结果. 表 1 列出了 U_3Si_2 的弹性性质. 可以看出, Noordhoek 等^[13]和 Chattaraj 等^[14]的计算结果趋于一致. 而 Wang 等^[12]的结果相对高估了弹性常数 C_{11} , C_{33} 和 C_{66} . 同时, 计算的 U_3Si_2 弹性模量 E , B 和 G 的值偏高.

表 1 U_3Si_2 的弹性常数 C_{ij} , 弹性模量 E , B 和 G (单位: GPa), B/G 以及泊松比 ν

Table 1. The elastic constants C_{ij} , elastic moduli E , B and G (unit: GPa), B/G and Poisson's ratio ν of U_3Si_2 .

Compound	C_{11}	C_{12}	C_{13}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	E	B	G	B/G	ν	Refs.
	155	47	50	142	65	46	139	83	57	1.46	0.22	[13]
U_3Si_2	149	49	48	139	63	46	—	81	53	1.53	—	[14]
	167	46	53	205	67	74	163	92	68	1.36	0.2	[12]

2019 年, Liu 等^[15]的研究结果表明, 对 U_3Si_2 晶体使用非磁性模型是不正确的, 计算时将体系设置为铁磁性或反铁磁性要比不考虑磁性更加合理. 然而, U_3Si_2 在实验上是顺磁性的, 并无铁磁性或反铁磁性特征^[16,17]. 这反映出在第一性原理计算方面, 确定 U_3Si_2 磁结构的重要性. 然而, 有关 U_3Si_2 磁性结构的研究可能还需要结合 McPhase 等磁性结构的计算软件.

2021 年, Wang 等^[18]采用 U_3Si_2 的铁磁性模型研究了 U_3Si_2 的理想强度, 得到了 U_3Si_2 在几个低指数晶向/晶面上的应力-应变关系, 如图 1 所示.

Wang 等^[18]的研究表明: U_3Si_2 晶体沿 [001], [100] 和 [110] 晶向的拉伸强度分别为 14.65 GPa, 9.25 GPa 和 6.54 GPa, 对应的拉伸应变分别为 0.32, 0.18 和 0.08. 很明显, 在 3 个低指数方向上, U_3Si_2 沿 [001] 方向的形变量最大, 韧性最强, 延展性最好. 而沿 [110] 方向的拉伸强度最小, 这意味

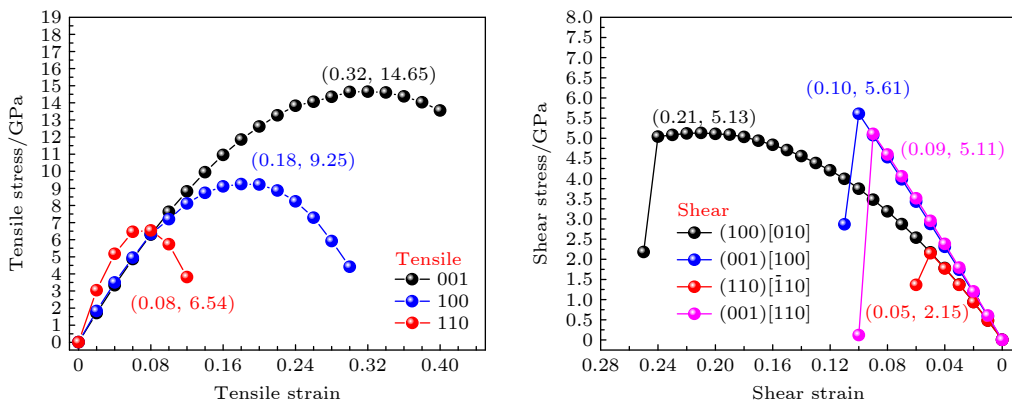


图 1 U_3Si_2 在几个低指数晶面/晶向上的应力-应变关系^[18]

Fig. 1. The stress-strain curves of U_3Si_2 in several low-index crystal planes/orientations^[18].

着在拉伸载荷作用下, 晶体极有可能沿 $[110]$ 晶向断裂. 对于剪切应力-应变曲线, 滑移系 $(100)[010]$, $(001)[100]$, $(110)[\bar{1}10]$ 和 $(001)[110]$ 得到的理想剪切强度分别为 5.13 GPa, 5.61 GPa, 2.15 GPa 和 5.11 GPa, 对应的剪切应变分别为 0.21, 0.10, 0.05 和 0.09. 可以看出, 在 $(110)[\bar{1}10]$ 滑移系上, U_3Si_2 拥有最小的剪切强度和变形量. 这意味着在 (110) 晶面的 $[\bar{1}10]$ 晶向上 U_3Si_2 最先发生破坏. Wang 等^[18] 的研究为 U_3Si_2 的断裂行为提供了理论数据, 为进一步开发高性能 U_3Si_2 核燃料提供了参考. 然而, Wang 等^[18] 的研究在纳观尺度上并未对 U_3Si_2 的断裂行为进行过多的分析.

本文通过计算和总结理想拉伸/剪切应变对 U_3Si_2 化学键键长及电荷密度分布影响对 Wang 等^[18] 研究的 U_3Si_2 断裂行为进行了解释. 首先, 介绍了计算方法、计算参数和理论计算模型. 然后, 弛豫了未应变时 U_3Si_2 的晶体结构, 给出了优化后的晶格参数, 并计算了 U_3Si_2 的电荷密度. 通过在指定的 U_3Si_2 晶面/晶向上施加增量模拟单元来实现应变的效果. 通过弛豫和计算极限应变下 U_3Si_2 的晶体结构和电荷密度来分析理想应变对 U_3Si_2 化学键键长及电荷密度分布的影响. 本文的计算结果可进一步补充 U_3Si_2 核燃料数据库, 并为其他尺度上研究 U_3Si_2 断裂行为的理论建模提供有效的数据支撑和理论参考.

2 计算方法、参数与理论模型

2.1 计算方法和参数

本文采用 FPCTT/FPCST 方法弛豫施加应变后的 U_3Si_2 晶体模型, 即在优化过程中固定应变方向的晶格矢量不被优化, 使其他格点方向和内部坐标松弛, 直到应力在非应变的方向上消失, 从而得

到 U_3Si_2 在应变增量后的晶体结构. 目前, FPCTT/FPCST 方法已经在许多材料的应力与应变关系的计算中得到了应用^[19–22].

本论文采用基于密度泛函理论 (DFT) 的 Vienna *ab initio* 模拟包 (VASP) 代码执行当前的第一性原理计算^[23–26]. 交换关联泛函采用广义梯度近似 (GGA) 的 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 形式^[27]. 利用 Hubbard U (DFT+ U) 近似方案来估计 U 原子的局域 5f 电子之间强相关效应^[28–31]. 其中, U 值选择为 1.5 eV, 已经证明比 $U = 4$ eV 更加合理^[15]. 平面波的截断能选择为 600 eV. 对于 U_3Si_2 的 $[100]$, $[010]$ 和 $[001]$ 基矢方向模型和 $[110]$, $[\bar{1}10]$, $[001]$ 基矢方向模型, 布里渊区 k 点分别选择为 $7 \times 7 \times 13$ 和 $4 \times 4 \times 8$, 采用 Monkhorst-Pack 方法自动生成^[2,32]. 能量和力的收敛标准分别设为 10^{-5} eV 和 0.01 eV/Å, 并且在计算中考虑了电子的自旋极化作用.

2.2 理论模型

模型的搭建是实施第一性原理计算的必要步骤. U_3Si_2 为四方晶系, 空间群为 $P4/mbm$, 其单胞内具有 10 个原子, 包含 6 个 U 原子和 4 个 Si 原子, 相应原子的 Wyckoff 占位为 $U_I: 2a (0, 0, 0)$; $U_{II}: 4h (0.685, 0.185, 0.5)$; $Si: 4g (0.885, 0.385, 0)$. 在计算过程中, 建立适合的模型有助于后续计算结果的分析. 因此, 为了尽可能使晶体模型的晶胞参数相等, 并尽可能多的包含直角, 建立了 U_3Si_2 沿不同基矢方向的晶体模型, 如图 2 所示. 图中标定了 U_3Si_2 的晶面指数和晶向指数便于说明理想拉伸/剪切应变. 其中, $[100]$, $[010]$ 和 $[001]$ 基矢方向模型为 U_3Si_2 的单胞模型; $[110]$, $[\bar{1}10]$, $[001]$ 基矢方向模型可以通过 VESTA 软件由 U_3Si_2 的单胞转换获得, 其包含 8 个 Si 原子和 12 个 U 原子.

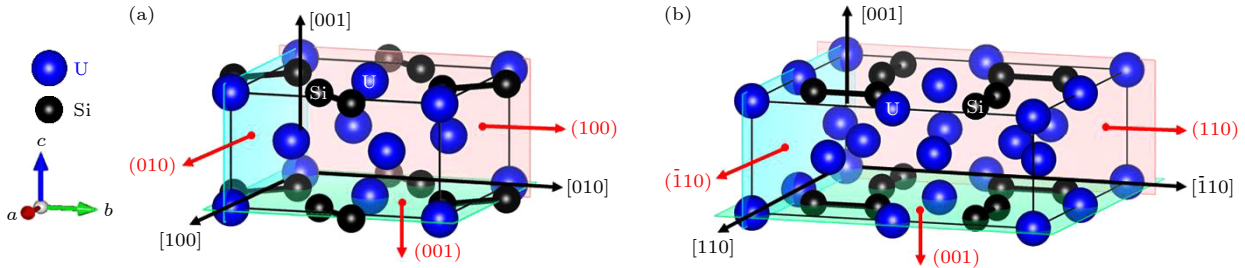


图 2 不同基矢方向的 U_3Si_2 模型 (a) $[100]$, $[010]$ 和 $[001]$ 基矢方向; (b) $[110]$, $[\bar{1}10]$ 和 $[001]$ 基矢方向

Fig. 2. The model of U_3Si_2 with the different basis vector directions: (a) $[100]$, $[010]$ and $[001]$ vector directions; (b) $[110]$, $[\bar{1}10]$ and $[001]$ vector directions.

3 结果与讨论

3.1 无应变下 U_3Si_2 的晶体结构及电荷密度分布

首先, 优化了无应变下 U_3Si_2 的单胞模型, 得到的晶格参数和化学键长信息如表 2 所示. 通过优化后的 U_3Si_2 单胞模型, 建立了晶格常数为 $a = b = 10.50 \text{ \AA}$, $c = 4.02 \text{ \AA}$; $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ 的 $[\bar{1}10]$, $[\bar{1}10]$ 和 $[001]$ 基矢方向的 U_3Si_2 模型. 可以看出, 当前的结果与 Srinivasu 等 [2] 和 Mei 等 [33] 的计算结果接近. 优化得到的 U-U, Si-Si 和 U-Si 化学键长分别为 3.375 \AA , 2.396 \AA 和 2.909 \AA .

表 2 铁磁性条件下采用 DFT+U 计算得到 U_3Si_2 晶格常数及化学键长信息

Table 2. The lattice constants and chemical bond length of U_3Si_2 obtained by DFT+U calculation under ferromagnetic conditions.

Compound	$a/\text{\AA}$	$c/\text{\AA}$	$V/\text{\AA}^3$	$d_{\text{U-U}}/\text{\AA}$	$d_{\text{Si-Si}}/\text{\AA}$	$d_{\text{U-Si}}/\text{\AA}$	Refs.
	7.42	4.03	221.81	3.375	2.396	2.909	Present
U_3Si_2	7.48	3.98	222.58	3.386	2.432	2.930	[2]
	7.45	4.03	223.26	—	—	—	[33]

计算电荷密度的分布情况, 可以通过观察电荷密度的疏密程度来获得材料的成键特点, 初步判断各原子的成键情况. 可以发现, 在以往 U_3Si_2 电子

结构的研究过程中, 都只采用了 U_3Si_2 在 (001) 晶面上的电荷密度和差分电荷密度来分析 U_3Si_2 的成键特性 [11,12,34]. 然而, 通过仔细观察优化后的 U_3Si_2 晶体结构可以发现: 形成化学键最近邻的原子不全在同一平面内, 采用一个电荷密度切平面不能完全准确地描述 U_3Si_2 的电荷密度. 因此, 为了得到 U_3Si_2 中 U 原子和 Si 原子的成键信息, 图 3 给出了 U_3Si_2 在 $(0, 0, 1)$ 切面、 $(1, 1, 0)$ 切面和 $(1.69, 1, 0)$ 切面上的电荷密度. 其中, $(0, 0, 1)$ 切面包含 Si-Si 键成键信息, $(1, 1, 0)$ 切面包含 U-Si 键成键信息, $(1.69, 1, 0)$ 切面包含 U-U 成键信息. 这里的坐标不代表晶面指数, 是切面在 x, y, z 三个坐标轴上的截距, 切面与坐标轴平行时坐标为 0.

从图 3 可以看出, Si 原子周围的电荷密度比 U 低, 这是由于 Si 原子半径小, 价电子数少. 在 $(0, 0, 1)$ 切面上, 近邻的 Si-Si 原子之间的电荷密度分布呈圆柱状, 这是近邻的 Si 原子之间形成共价键的标志. 在 $(1, 1, 0)$ 切面上, U 原子和 Si 原子周围的电荷密度要大于 U 和 Si 原子之间的电荷密度, 相邻的 U-Si 原子之间缺乏弥散的自由电子, 且原子之间的电荷密度均匀接近于 0. 因此, U-Si 原子更接近形成离子键. 在 $(1.69, 1, 0)$ 切面上, U 原子的电荷密度分布呈球形, 除了 U 原子周围电荷密度较大, 其余区域的电荷密度均为 0, 这符合金属键特征, 表明 U-U 原子之间形成金属键. 这些结果与 Wang 等 [12] 和 Jossou 等 [11] 的研究结果相符合.

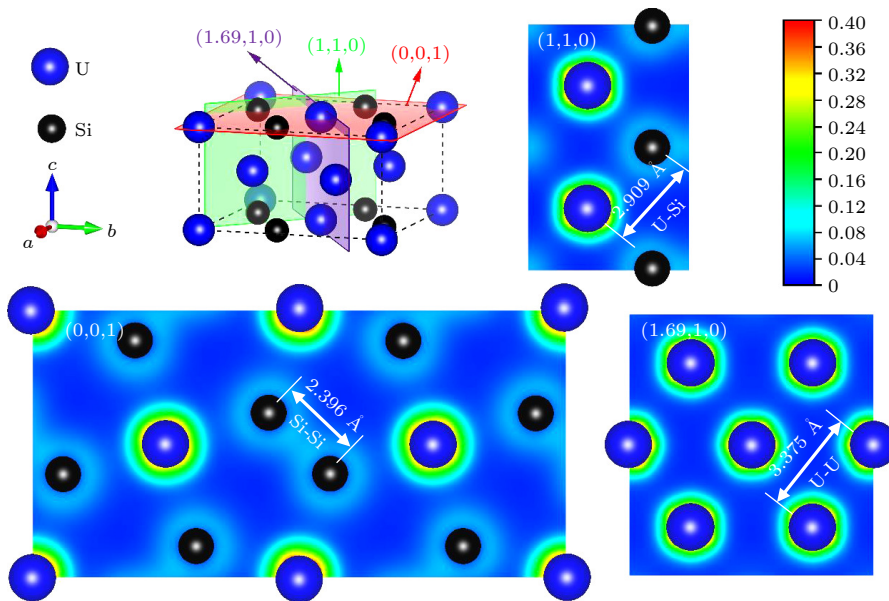


图 3 U_3Si_2 在不同切面上的电荷密度

Fig. 3. The charge density of U_3Si_2 on the different planes.

由于原子间形成化学键会引起电荷密度的变化. 因此, 为观察原子成键时电荷的转移情况以及化学键的极化方向, 获得更多的原子成键信息, 计算了 U_3Si_2 的差分电荷密度, 如图 4 所示. 与电荷密度一样, 图 4 中分别为 U_3Si_2 在 $(0, 0, 1)$ 切面、 $(1, 1, 0)$ 切面和 $(1.69, 1, 0)$ 切面上的差分电荷密度分布情况. 图中红色代表电子的聚积, 差分电荷密度为正值; 蓝色代表电子的缺失, 差分电荷密度为负值; 绿色代表电子无变化, 差分电荷密度为零.

从图 4 可以看出, 电子的聚积和缺失均发生在原子附近. 在 $(0, 0, 1)$ 晶面上, Si 原子周围颜色变化不均匀, 说明 Si 原子存在极化导致的电荷密度的变化, 且近邻的 Si-Si 原子之间颜色为红色, 表明 Si-Si 原子之间存在电子聚积, 这是 Si-Si 形成共价键的标志, 与电荷密度观察结果相同. 在 $(1, 1, 0)$ 晶面上, 近邻的 U 原子和 Si 原子周围的颜色变化明显, 这意味着在近邻的 U 原子和 Si 原子的电子聚积和缺失主要发生在原子周围, 这证实了 U-Si 键具有离子键的特征, 同时也表明, 在 Si 原子上形成不同类型的键. 意外可以看到, 在近邻的 U 原子与 Si 原子之间差分电荷密度呈淡黄色, 显示出 U-Si 原子间存在少量的电子聚积, 表明 U 原子与 Si 原子之间存在共用电子的共价键行为, 这在 Wang 等^[12]和 Jossou 等^[11]的研究中并未体现. 由于目前尚未发现其他 U-Si 核燃料有这一行为的相

关报道. 因此, 这可能成为 U_3Si_2 与其他 U-Si 核燃料行为不同的原因. 在 $(1.69, 1, 0)$ 晶面上, 除了 U 原子周围颜色变化明显, 其他区域的颜色均为绿色, 说明 U-U 原子间不存在电子的聚积和缺失, U-U 键表现为金属性质, 这与分析电荷密度分布情况得到的结论一致.

综合上述分析可知, 在 U_3Si_2 化合物中相邻的 Si-Si 原子之间形成共价键, U-Si 原子在形成离子键的同时拥有共价键属性, U-U 原子之间形成金属键. 此外, 通过比较 U_3Si_2 与其他 U-Si 化合物的成键特性可以发现, U 含量的不同将影响 U-Si 化合物原子间的成键类型, U 含量越多 U-U 形成金属键越多, Si-Si 形成共价键越少. 这可以从 Zachariasen^[35]给出的数据中得到, 如 U_3Si 被报道只有 U-Si 和 U-U 键, 而没有 Si-Si 键.

3.2 理想拉伸应变对 U_3Si_2 化学键键长的影响

对施加拉伸/剪切变形的 U_3Si_2 晶体进行弛豫优化时, 晶体内原子会发生位置的变化, 以降低体系的能量, 达到与应变平衡的效果. 这使得原子间形成的化学键以及晶体内的电荷密度分布发生变化. 若将 U_3Si_2 看作是由 U 原子层和 U/Si 原子层堆叠构成的, 则 U-Si 键是 U 原子层内的 U 原子与 U/Si 原子层内的 Si 原子形成的化学键; U-U 键

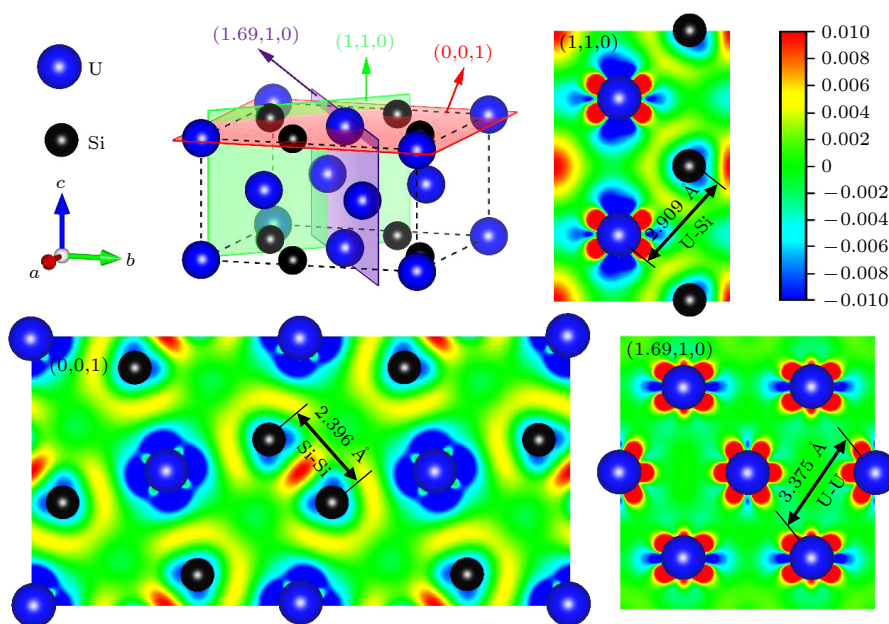


图 4 U_3Si_2 在不同切面上的差分电荷密度

Fig. 4. The differential charge density of U_3Si_2 on the different planes.

是 U 层内的 U 原子与 U/Si 原子层内的 U 原子形成的化学键; Si-Si 键则由 U/Si 原子层内最近邻的两个 Si 原子构成. 在拉伸或剪切的作用下, 从开始稳定的晶格结构到晶格发生破坏, 化学键发生的变化可以通过逐步增加应变弛豫后的晶体结构得到. 这一过程有助于动态观察化学键的变化, 确定晶体发生破坏过程中的键长的变化范围.

键长发生变化是晶体抵抗外界载荷作用的结果. 图 5 为 U_3Si_2 沿不同晶向拉伸时各化学键键长的变化情况. 为了更好说明图中原子间距离的变化, 分别给不同的原子命名, 便于区分.

从图 5(a) 可以看出: 在 U_3Si_2 的 [100] 晶向上, 当应变从 $\varepsilon = 0.00$ 增大到极限应变 $\varepsilon = 0.18$ 时, 其 U-Si 键和 Si-Si 键的键长变化的范围分别是 $\text{U}_\text{V}-\text{Si}_\text{III}$: 2.909—2.976 Å 和 $\text{Si}_\text{I}-\text{Si}_\text{II}$: 2.396—2.411 Å. 而 U-U 键在拉伸过程中存在两种变化范围分别是 $\text{U}_\text{I}-\text{U}_\text{VI}$: 3.375—3.259 Å 和 $\text{U}_\text{I}-\text{U}_\text{III}$: 3.375—3.611 Å. 若将无载荷作用下 U_3Si_2 的各原子的受力视为零, 则在载荷作用下, 原子间的距离发生变化, 距离减小视原子间为斥力, 距离增大视原子间为引力. 从键长的变化可以看出: 拉伸载荷沿 [100] 晶向作用时, U-Si 键和 Si-Si 键伸长, 显示出它们将以原子吸引力的键合方式来抵抗拉伸载荷作用; 而 U-U 键同时存在伸长和缩短, 因此它将以原子吸引力和排斥力混合的键合方式来保证晶体的完整性. 此

外, 可以发现, U-U 键的伸长相比其他键的变化更大, 反映出 U-U 键的伸长是产生拉伸形变的主要贡献者, 这可能成为 U_3Si_2 在 [100] 晶向上具有韧性的原因.

从图 5(b) 可以看出: 在 U_3Si_2 的 [001] 晶向上, U-Si 键、U-U 键和 Si-Si 键可以由 $\text{U}_\text{V}-\text{Si}_\text{III}$, $\text{U}_\text{I}-\text{U}_\text{III}$ 和 $\text{Si}_\text{I}-\text{Si}_\text{II}$ 表示, 其在拉伸过程中 ($0 \leq \varepsilon \leq 0.32$) 键长的变化范围分别是 2.909 Å—3.287 Å, 3.375 Å—3.700 Å 和 2.396 Å—2.336 Å. 可以发现: 拉伸载荷沿 [001] 晶向作用时, U-Si 键和 U-U 键的键长均伸长, 而 Si-Si 键的键长仅有微小的收缩. 这意味着原子吸引力的键合方式将是 U_3Si_2 抵抗 [001] 晶向上拉伸载荷的主要方式. 此外, 由于脆性 Si-Si 键的键长在拉伸时仅有微小的缩短, 这使得 U_3Si_2 在 [001] 晶向上施加载荷时可能不会产生脆性断裂. 与 Si-Si 键相比, U-Si 键和 U-U 键的伸长较大, 说明 U-Si 键和 U-U 键的伸长是产生拉伸形变的主要贡献者, 也反映出 U_3Si_2 在 [001] 晶向上具有一定的韧性.

从图 5(c) 可以看出: 在 U_3Si_2 的 [110] 晶向上, U-Si 键、U-U 键和 Si-Si 键的键长变化均有两种, 同时存在化学键的伸长和缩短. 这意味着 U_3Si_2 将以原子吸引力和排斥力混合的键合方式来抵抗拉伸变形. 在拉伸过程中 ($0 \leq \varepsilon \leq 0.08$), U-Si 键、U-U 键和 Si-Si 键伸长的变化范围分别是 $\text{U}_\text{VII}-\text{Si}_\text{III}$:

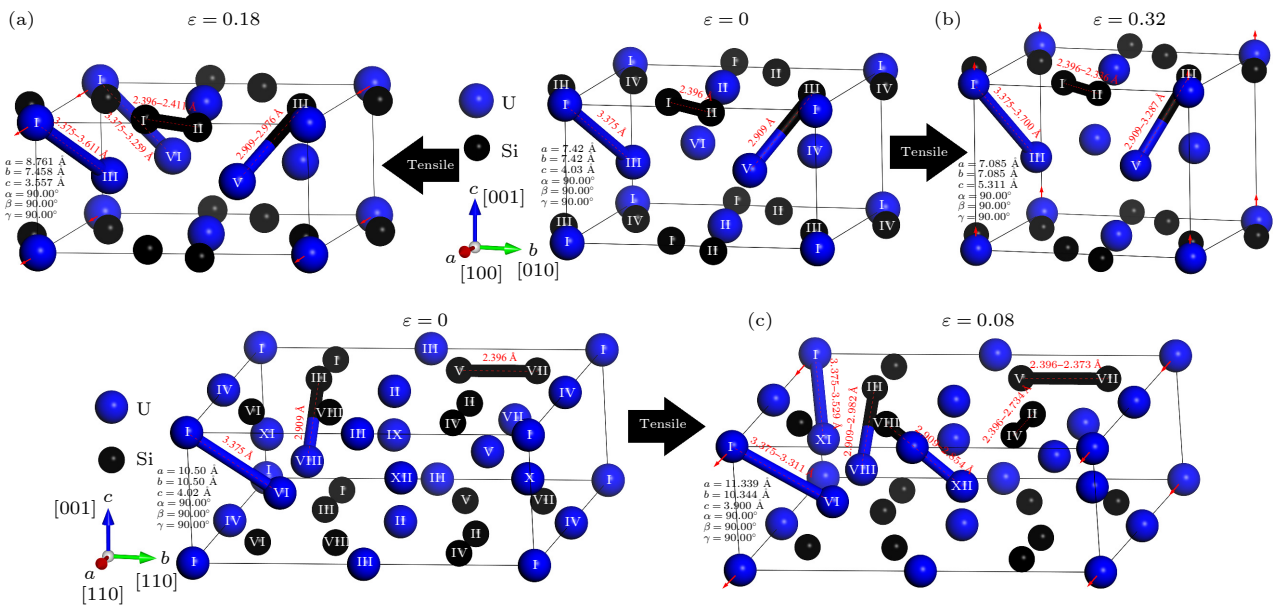


图 5 U_3Si_2 沿不同晶向拉伸过程中各化学键键长的变化情况: (a) 沿 [100] 晶向拉伸; (b) 沿 [001] 晶向拉伸; (c) 沿 [110] 晶向拉伸

Fig. 5. Variation of the bond length of each chemical bond during the stretching of U_3Si_2 along with different crystal directions: (a) [100] crystal direction; (b) [001] crystal direction; (c) [110] crystal direction.

2.909—2.982 Å, U_I-U_{XI} : 3.375—3.529 Å 和 $Si_{II}-Si_{IV}$: 2.396—2.734 Å; 键长缩短的变化范围分别是 $U_{XII}-Si_{VIII}$: 2.909—2.854 Å, U_I-U_{VI} : 3.375—3.311 Å 和 Si_V-Si_{VII} : 2.396—2.373 Å. 从化学键的变化可以看出: 在 [110] 晶向上施加载荷, 脆性 Si-Si 键的键长具有较大的伸长量, 这使得 U_3Si_2 在 [110] 晶向上极有可能产生脆性断裂. 然而, 在图 1 中 [110] 晶向上的应力-应变曲线并未发生脆性断裂现象, 这可能是 U-U 键和 U-Si 键伸长对拉伸形变贡献的结果. 与其他晶向上作用的载荷不同, 在 [110] 晶向上, 脆性 Si-Si 键是 U_3Si_2 拉伸形变的主要贡献者, 反映出在此方向上 U_3Si_2 具有较弱的韧性.

综合以上可以看出, 化学键的伸长是 U_3Si_2 抵抗拉伸变形的主要方式. 虽然, 之前的研究表明 U_3Si_2 是脆性的, 但其 B/G 接近于临界值 1.75, 显示出其脆性没那么大 [14,18]. 因此, 在 [110] 晶向上施加载荷时, 图 1 中并未在此方向上反映出 U_3Si_2 的脆性断裂. 为了弄清原因, 进一步研究了理想拉伸应变对电荷密度分布的影响.

3.3 理想拉伸应变对 U_3Si_2 电荷密度分布的影响

计算施加载荷后晶体内的电荷密度的分布情况有利于分析各原子的成键变化, 同时也有助于理解晶体的断裂行为. 由于 Si-Si 键的变化似乎在晶体的拉伸过程中起到比较关键的作用. 因此, 为了观察和分析 Si-Si 成键的变化, 分别计算了极限拉伸应变下 U_3Si_2 在 (001) 晶面上的电荷密度和差分电荷密度, 如图 6 所示. 图中左侧为电荷密度分布情况, 右侧为差分电荷密度分布情况.

从图 6(a) 可以看出: U_3Si_2 沿 [100] 晶向拉伸时, 在晶体的 (001) 晶面上, 原子周围电荷密度变化很小; 在差分电荷密度分布中可以看到, [100] 方向的载荷几乎未影响到 Si-Si 原子间的电子聚积度, Si-Si 成键依然保持共价键特性, 而 U 和 Si 原子之间具有比 $\epsilon = 0$ 时更高的电子聚积度, 这使得 U 原子和 Si 原子产生更强的交互作用, 增大了 U 和 Si 原子形成共价键的趋势. 通过 Si-Si 共价键

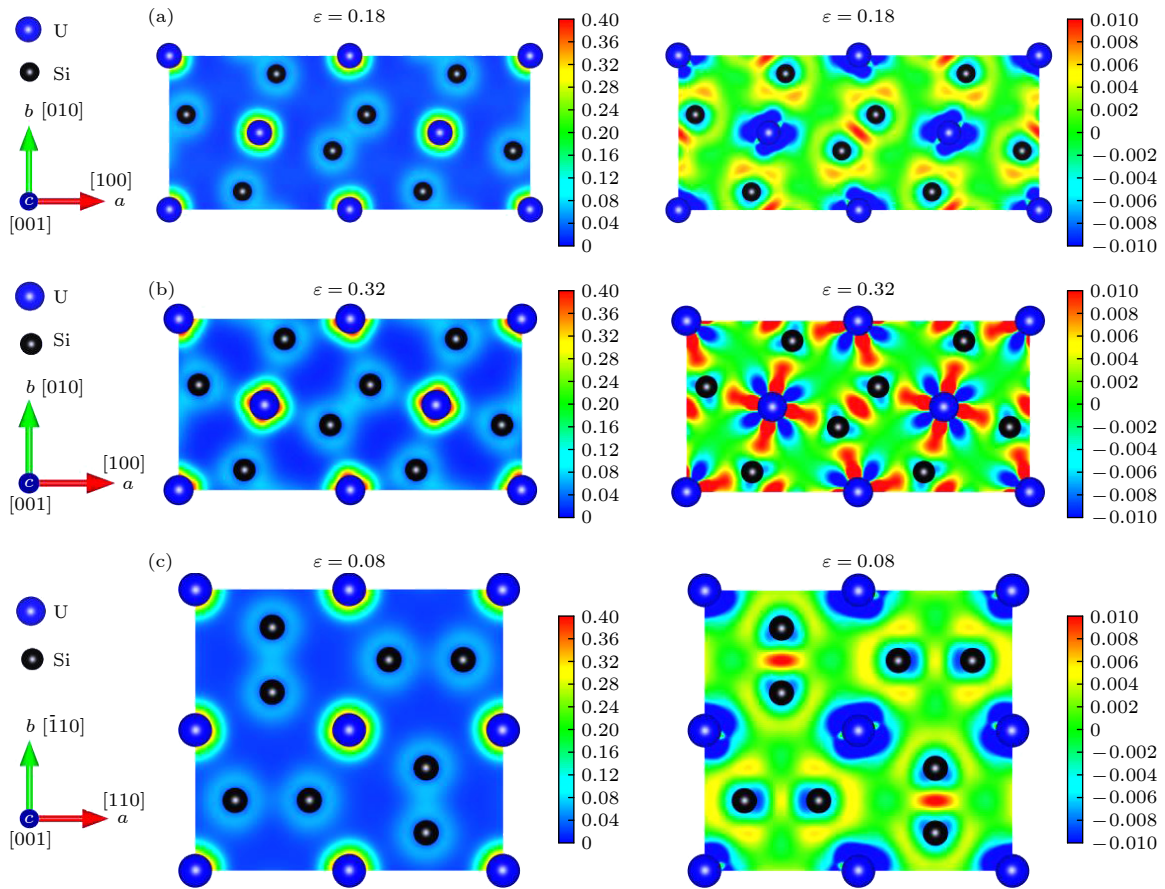


图 6 U_3Si_2 沿不同晶向拉伸时电荷密度的变化: (a) 沿 [100] 晶向拉伸; (b) 沿 [001] 晶向拉伸; (c) 沿 [110] 晶向拉伸

Fig. 6. Variation of charge density when U_3Si_2 is stretched along with crystal directions: (a) [100] crystal direction; (b) [001] crystal direction; (c) [110] crystal direction.

以及增强的 U, Si 原子间的交互作用, 使得 U_3Si_2 在 (001) 晶面的 [100] 晶向上保持了一定的强度.

从图 6(b) 可以看出: U_3Si_2 沿 [001] 晶向拉伸时, 在晶体的 (001) 晶面上, U 原子和 Si 原子之间的电荷密度变化明显, 表现出 U-Si 原子形成共价键特征; 在差分电荷密度分布中可以看到, [001] 方向的载荷增大了 Si-Si 原子间的电子聚积度, 增强了 Si-Si 原子的交互作用, 使得 Si-Si 成键强度增加. 同时, U-Si 原子之间形成了偏向 U 原子的较高电子聚积度, 这是 U-Si 原子生成偏向 U 原子的极性共价键的标志. 可以看出, [001] 方向的载荷使得 U_3Si_2 晶体内各原子的交互作用增强, 这可能就是 [001] 晶向上拥有较高强度的原因.

由图 6(c) 可以看出: U_3Si_2 沿 [110] 晶向拉伸时, 在晶体的 (001) 晶面上, Si 和 Si 原子之间的电荷密度变化明显. 与 $\varepsilon = 0$ 时相比, Si 原子之间的电荷密度减小, 显示出 Si-Si 共价键有断裂的趋势; 在差分电荷密度分布中可以看到, Si 和 Si 原子间存在电子聚积度的减小, 证实了电荷密度的计算结果, 反映出 [110] 方向的载荷使 Si-Si 成键减弱, 导致 U_3Si_2 在 [110] 晶向上拥有较低的强度. 此外, 可以看出, 在 [110] 方向的载荷达到极限应变时, Si 与 Si 原子之间依然存在少量的电子聚积, 说明 Si 与 Si 原子之间存在共用电子的共价键行为, 这可能是在拉伸载荷作用下 U_3Si_2 在 [110] 晶向上未发生脆性断裂的原因.

3.4 理想剪切应变对 U_3Si_2 化学键键长的影响

在剪切应变的作用下, U_3Si_2 的晶格角度发生改变, 使得 U_3Si_2 初始键长会根据不同的滑移系有不同的变化形式. 同样, 为了便于说明变形过程中化学键长的变化, 依次将 U 和 Si 原子标定序号以便区分.

图 7(a) 为 U_3Si_2 在 (100)[010] 滑移系上键长的变化情况. 当应变 ε 达到 0.24 时 U_3Si_2 发生破坏. 在剪切应变 ($0 \leq \varepsilon \leq 0.24$) 的作用下, U-Si 键、U-U 键和 Si-Si 键同时存在伸长和缩短的变化, 其键长伸长的变化范围分别是 $\text{U}_{\text{III}}-\text{Si}_{\text{I}}$: 2.909—3.156 Å, $\text{U}_{\text{II}}-\text{U}_{\text{V}}$: 3.375—3.699 Å 和 $\text{Si}_{\text{I}}-\text{Si}_{\text{II}}$: 2.396—3.038 Å; 键长缩短的变化范围分别是 $\text{U}_{\text{VI}}-\text{Si}_{\text{IV}}$: 2.909—2.837 Å, $\text{U}_{\text{II}}-\text{U}_{\text{III}}$: 3.375—3.241 Å 和 $\text{Si}_{\text{III}}-\text{Si}_{\text{IV}}$: 2.396—2.323 Å. 从化学键的变化可以看出: U-U 键和 Si-Si 键的伸长是剪切应变的主要贡献者. 在变形过程中, U-U 键较大的伸长量使得 U_3Si_2 的 (100)[010] 滑移系具有相当大的韧性. 当 Si-Si 键长达到极限值 3.038 Å 时, U_3Si_2 才发生断裂. 这意味着在应变达到 0.24 以后, 应力的突然下降是源于 Si-Si 键的断裂.

图 7(b) 为 U_3Si_2 在 (001)[100] 滑移系上键长的变化情况. 当应变 ε 达到 0.10 时晶体发生破坏. 可以发现, 在剪切应变 ($0 \leq \varepsilon \leq 0.10$) 的作用下, U-Si 键长存在一组伸长和缩短的变化, U-U 键长存在两组伸长和缩短的变化, 而 Si-Si 键仅有伸长

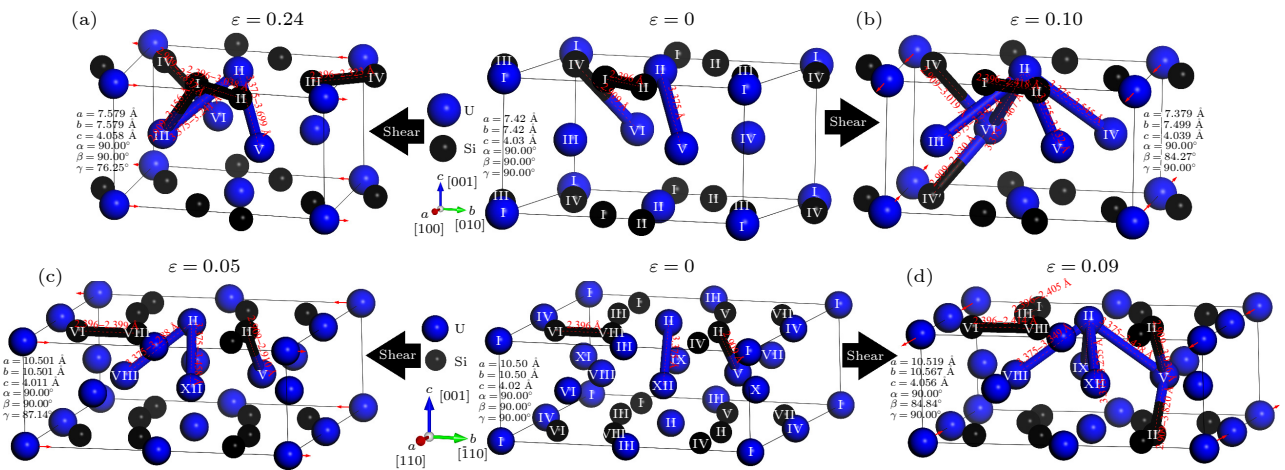


图 7 在剪切应变的作用下 U_3Si_2 键长的变化: (a) (100)[010] 滑移系; (b) (001)[100] 滑移系; (c) (110)[110] 滑移系; (d) (001)[110] 滑移系

Fig. 7. Variation of the chemical bond length of U_3Si_2 under shear strain: (a) (100)[010] slip system; (b) (001)[100] slip system; (c) (110)[110] slip system; (d) (001)[110] slip system.

的变化并无缩短. 其中, U-Si 键伸长的变化范围是 $U_{VI}-Si_{IV}$: 2.909—3.019 Å, 缩短的变化范围是 $U_{VI}-Si_{IV}$: 2.909—2.830 Å; U-U 键伸长的变化范围是 $U_{II}-U_{VI}$: 3.375—3.467 Å 和 $U_{II}-U_{IV}$: 3.375—3.545 Å, 缩短的变化范围是 $U_{II}-U_{V}$: 3.375—3.132 Å 和 $U_{II}-U_{III}$: 3.375—3.342 Å; Si-Si 键的变化范围是 Si_I-Si_{II} : 2.396—2.418 Å.

图 7(c) 为 U_3Si_2 在 (110)[$\bar{1}10$] 滑移系上键长的变化情况. 当应变 ε 达到 0.05 时晶体发生破坏. 在剪切应变 ($0 \leq \varepsilon \leq 0.05$) 的作用下, U-Si 键和 Si-Si 键的键长仅有微弱的变化 $U_{VI}-Si_{II}$: 2.909—2.910 Å, $Si_{VI}-Si_{VIII}$: 2.396—2.399 Å, 而 U-U 键的键长同时存在伸长和缩短, 其变化范围分别为 $U_{II}-U_{XII}$: 3.375—3.458 Å 和 $U_{II}-U_{VIII}$: 3.375—3.288 Å.

图 7(d) 为 U_3Si_2 在 (001)[110] 滑移系上键长的变化情况. 当应变 ε 达到 0.09 时晶体发生破坏. 在剪切应变 ($0 \leq \varepsilon \leq 0.09$) 的作用下, 与 U_3Si_2 的 (001)[100] 滑移系类似, U-Si 键长存在一组伸长和缩短的变化, U-U 键长存在两组伸长和缩短的变化, 而 Si-Si 键仅有伸长并无缩短. 其中, U-Si 键伸长的变化范围是 $U_{VI}-Si_{II}$: 2.909—3.036 Å, 缩短的变化范围是 $U_{VI}-Si_{II}$: 2.909—2.820 Å; U-U 键伸长的变化范围是 $U_{II}-U_{V}$: 3.375—3.438 Å 和 $U_{II}-U_{IX}$: 3.375—3.506 Å; 缩短的变化范围是 $U_{II}-U_{VIII}$: 3.375—3.349 Å 和 $U_{II}-U_{XII}$: 3.375—3.255 Å, Si-Si 键的变化范围分别是 Si_I-Si_{III} : 2.396—2.405 Å 和 $Si_{VI}-Si_{VIII}$: 2.396—2.414 Å.

可以发现, U_3Si_2 的化学键键长在理想剪切应变作用下的 (100)[010] 滑移系上有较大的变化, 其化学键的破坏可能是其理想强度的决定性因素. 对于 U_3Si_2 的 (001)[100], (110)[$\bar{1}10$] 和 (001)[110] 滑移系, 在相对较小的理想剪切应变作用下, U_3Si_2 晶体发生了破坏, 而其键长的变化并不明显. 这意味着 U_3Si_2 晶体在这 3 个滑移系上应变能或应力的突然下降, 并不是由于 U_3Si_2 化学键键长的变化所导致的.

由于应变可能会导致晶体发生结构相变^[36–38]. 这种现象可能也存在于 U_3Si_2 化合物中. 如 Noordhoek 等^[13] 发现具有 $P\bar{1}$ 空间群的 U_3Si_2 ($a = 5.272$ Å, $b = 5.296$ Å, $c = 7.760$ Å; $\alpha = 82.1^\circ$, $\beta = 70.2^\circ$, $\gamma = 66.1^\circ$), 这在实验上未被发现. Noordhoek 等^[13] 的发现意味着在剪切应变的作用下 U_3Si_2 化合物可能被另一种晶体结构所表示, 这种转变导致了

U_3Si_2 的应变能或应变突然下降^[39]. 有关 U_3Si_2 的这种行为还需要更进一步的研究.

3.5 理想剪切应变对 U_3Si_2 电荷密度分布的影响

从理想剪切应力-应变曲线 (图 1) 可以看出, U_3Si_2 发生脆性断裂的现象比较明显. 因此, 通过计算包含 U_3Si_2 脆性 Si-Si 键的 (001) 晶面上的电荷密度, 来讨论理想剪切应变对 U_3Si_2 电荷密度分布的影响. 图 8 为 U_3Si_2 在不同剪切应变的作用下电荷密度的变化情况. 图中左侧为电荷密度分布情况, 右侧为差分电荷密度分布情况.

从图 8(a) 可以看出, 在 U_3Si_2 的 (100)[010] 滑移系上, 当体系达到极限剪切应变 0.24 时, 各原子之间的电荷密度变化明显. 计算的电荷密度分布情况表现出 U 与 Si 原子间的电荷密度增大, Si 与 Si 原子间的电荷密度为零. 同时, 差分电荷密度的计算结果也显示 U 和 Si 原子间的电子聚积度增大, Si 和 Si 原子之间不存在电子的聚积. 这表明 U 和 Si 原子间的相互作用增强, 形成 U-Si 共价键的趋势增大, 而 Si-Si 化学键表现出断裂的特征, 这与 Si-Si 键长的变化表现一致, 说明 Si-Si 键的断裂是 U_3Si_2 晶体在 (100)[010] 滑移系上发生破坏的主要原因.

从图 8(b), (c) 和 (d) 可以看出: 在 U_3Si_2 的 (001)[100], (110)[$\bar{1}10$] 和 (001)[110] 滑移系上, 晶体发生破坏达到的极限剪切应变较小, 由应变引起的各原子间电荷密度的变化较为微弱. 从电荷密度和差分电荷密度的计算结果不能看出各原子之间相互作用有明显的变化. 因此, 在这 3 个滑移系上, 化学键的变化不能成为解释 U_3Si_2 晶体发生破坏的原因, 需要进一步研究在应变过程中产生的结构相变.

4 结 论

本论文采用 FPCTT/FPCST 的方法优化了应变前后 U_3Si_2 的晶体结构, 计算了相应的电荷密度分布和差分电荷密度分布情况, 确定了 U_3Si_2 达到极限应变时化学键长的变化范围. 通过分析理想拉伸/剪切应变对 U_3Si_2 化学键键长及电荷密度分布影响, 解释了 U_3Si_2 在几个低指数晶面/晶向上的断裂行为. 结果表明: 仅采用一个电荷密度切平面

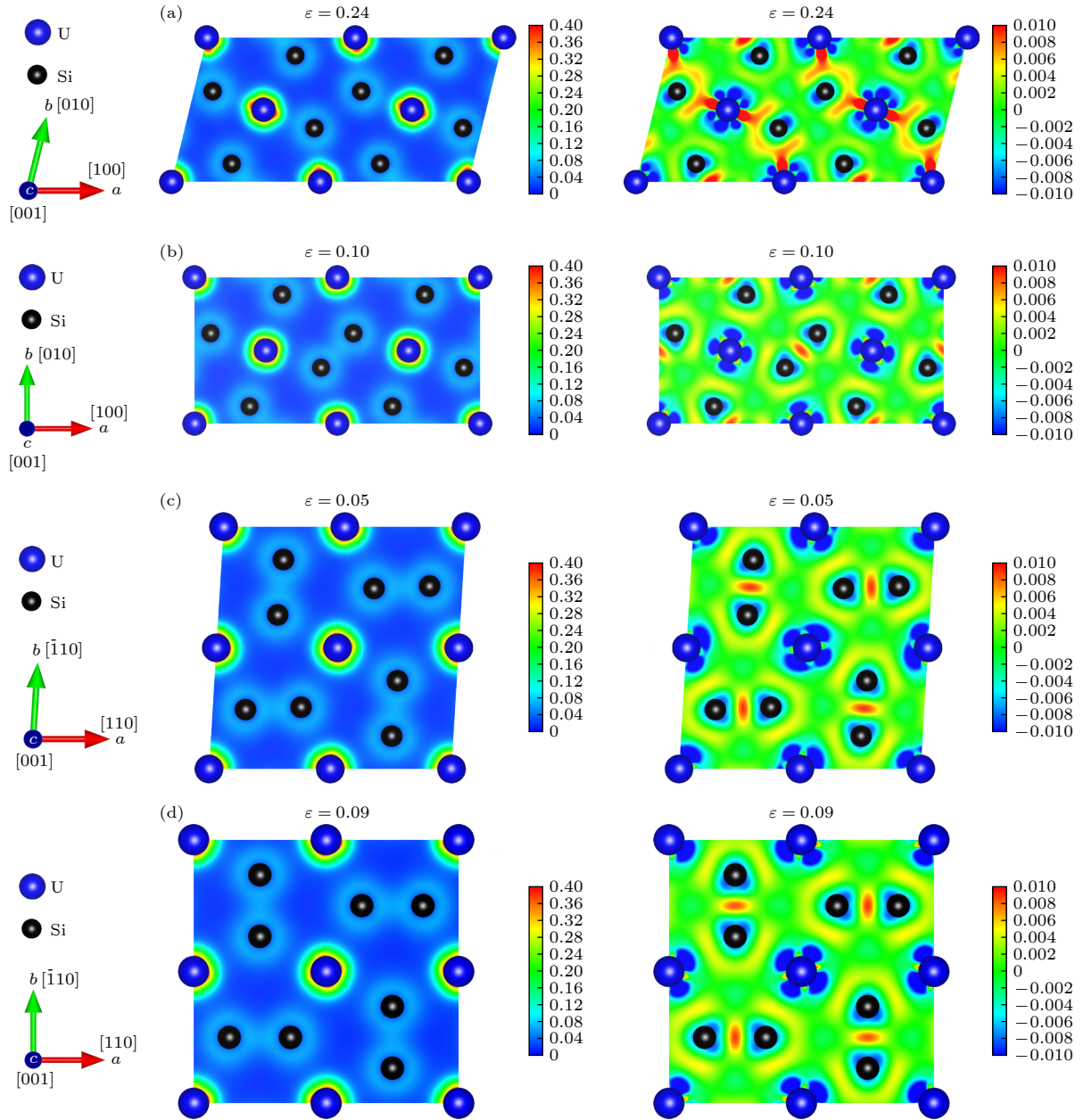


图 8 U_3Si_2 在不同剪切应变的作用下电荷密度的变化: (a) (100)[010] 滑移系; (b) (001)[100] 滑移系; (c) (110)[$\bar{1}10$] 滑移系; (d) (001)[110] 滑移系

Fig. 8. Variation of charge density of U_3Si_2 under shear strain: (a) (100)[010] slip system; (b) (001)[100] slip system; (c) (110)[$\bar{1}10$] slip system; (d) (001)[110] slip system.

不能完全准确地描述 U_3Si_2 的成键信息. 从电荷密度及差分电荷密度的分布情况可以看出 U-Si 原子间存在少量的电子聚积, 表明 U 原子与 Si 原子之间存在共用电子的共价键行为. 在 U_3Si_2 拉伸强度最小的 [110] 晶向上, 当达到极限应变时, Si 与 Si 原子间仍存在少量的电子聚积, 说明 Si-Si 原子间依然存在共价键行为, 这可能是在拉伸载荷作用下 U_3Si_2 在 [110] 晶向上未发生脆性断裂的原因. 在 U_3Si_2 剪切强度最大的 (100)[010] 滑移系上, 当

达到极限剪切应变时, Si 与 Si 原子间电子零聚积, 表明 Si-Si 键断裂, 这导致了体系在极限剪切应变的作用下应力突然下降. 此外可以发现, U_3Si_2 的化学键键长在理想拉伸应变作用下的 [001], [100] 和 [110] 晶向上和理想剪切应变作用下的 (100)[010] 滑移系上均有较大的变化, 其化学键的破坏可能是其理想强度的决定性因素. 对于 U_3Si_2 的 (001)[100], (110)[$\bar{1}10$] 和 (001)[110] 滑移系, 在相对较小的理想剪切应变作用下, U_3Si_2 晶体发生了

破坏, 而其键长的变化并不明显. 这意味着 U_3Si_2 晶体在这 3 个滑移系上应变能或应力的突然下降, 并不是由于 U_3Si_2 化学键键长的变化所导致的. 若要弄清楚原因可能需要更进一步研究 U_3Si_2 在应变过程中的结构相变. 希望本文计算得到的 U_3Si_2 化学键键长的信息可以为其他尺度下的理论建模提供有效的数据支撑, 理论结果可以为进一步了解 U_3Si_2 晶体结构提供更多的帮助.

参考文献

- [1] Miao Y B, Harp J, Mo K, Kim Y S, Zhu S, Yacout A M 2018 *J. Nucl. Mater.* **503** 314
- [2] Srinivasu K, Modak B, Ghanty T K 2018 *J. Nucl. Mater.* **510** 360
- [3] Zhang Y F, Andersson A D R 2017 *A Thermal Conductivity Model for USi Compounds*. United States: N.p.2017
- [4] Liu R, Zhou W Z, Cai J J 2018 *Nucl. Eng. Des.* **330** 106
- [5] Beeler B, Baskes M, Andersson D, Cooper M W D, Zhang Y F 2017 *J. Nucl. Mater.* **495** 267
- [6] Kim Y S 2012 *Comprehensive Nuclear Materials* (Oxford: Elsevier) pp391–422
- [7] Birtcher R C, Wang L M 2011 *MRS Proceedings* **235** 467
- [8] Rest J 1997 *J. Nucl. Mater.* **240** 205
- [9] Yao T K, Gong B W, He L F, Harp J, Tonks M, Lian J 2018 *J. Nucl. Mater.* **498** 169
- [10] Carvajal-Nunez U, Saleh T A, White J T, Maiorov B, Nelson A T 2018 *J. Nucl. Mater.* **498** 438
- [11] Jossou E, Eduok U, Dzade N Y, Szpunar B, Szpunar J A 2018 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **20** 4708
- [12] Wang T, Qiu N X, Wen X D, Tian Y H, He J, Luo K, Zha X H, Zhou Y H, Huang Q, Lang J J, Du S Y 2016 *J. Nucl. Mater.* **469** 194
- [13] Noordhoek M J, Besmann T M, Andersson D, Middleburgh S C, Chernatynskiy A 2016 *J. Nucl. Mater.* **479** 216
- [14] Chattaraj D, Majumder C 2018 *J. Alloy. Compd.* **732** 160
- [15] Liu H, Claisse A, Middleburgh S C, Olsson P 2019 *J. Nucl. Mater.* **527** 151828
- [16] Remschmig K, Le Bihan T, Noël H, Rogl P 1992 *J. Solid State Chem.* **97** 391
- [17] Miyadai T, Mori H, Oguchi T, Tazuke Y, Amitsuka H, Kuwai T, Miyako Y 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **104–107** 47
- [18] Wang K, Qiao Y J, Zhang X H, Wang X D, Zhang Y M, Wang P, Du S Y 2021 *Eur. Phys. J. Plus* **136** 409
- [19] Roundy D, Krenn C R, Cohen M L, Morris J W 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2713
- [20] Roundy D, Krenn C R, Cohen M L, Morris J W 2001 *Philos. Mag. A* **81** 1725
- [21] Ogata S, Li J, Hirotsaki N, Shibutani Y, Yip S 2004 *Phys. Rev. B* **70** 104104
- [22] Li X Q, Schönecker S, Zhao J J, Johansson B, Vitos L 2014 *Phys. Rev. B* **87** 291
- [23] Hohenberg P, Kohn W 1964 *Phys. Rev.* **136** B864
- [24] Kohn W, Sham L J 1965 *Phys. Rev.* **140** A1133
- [25] Kresse G G, Furthmüller J J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [26] Kresse G, Hafner J 1993 *Phys. Rev. B Condens. Matter.* **47** 558
- [27] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [28] Liechtenstein A I, Anisimov V V, Zaanen J 1995 *Phys. Rev. B* **52** R5467
- [29] Sarma D D, Krummacker S, Hillebrecht F U, Koelling D D 1988 *Phys. Rev. B: Condens. Matter.* **38** 1
- [30] Shih B C, Zhang Y B, Zhang W Q, Zhang P H 2012 *Phys. Rev. B* **85** 045132
- [31] Szpunar B 2012 *J. Phys. Chem. Solids* **73** 1003
- [32] Setyawan W, Curtarolo S 2010 *Comput. Mater. Sci.* **49** 299
- [33] Mei Z G, Miao Y B, Liang L Y, Yacout A M 2019 *J. Nucl. Mater.* **513** 192
- [34] Yang X Y, Korzhavyi P A, Liu Y, Wei Q L, Arslanov T R, Wörnå J P A, Yang Y, Zhang P 2022 *Prog. Nucl. Energy* **148** 104229
- [35] Zachariasen W H 1949 *Acta Crystallogr.* **2** 94
- [36] Smirnov M B, Kazimirov V Y, Rita B H, Smirnov K S, Pereira-Ramos J P 2014 *J. Phys. Chem. Solids* **75** 115
- [37] Manikandan M, Rajeswarapalanichamy R, Iyakutti K 2017 *Philos. Mag.* **98** 1
- [38] M I, T L, Bihan, S H, J R 2004 *Phys. Rev. B* **70** 014113
- [39] Dubois S M M, Rignanese G M, Pardo T, Charlier J C 2006 *Phys. Rev. B* **74** 235203

First-principles study of effect of ideal tensile/shear strain on chemical bond length and charge density distribution of U_3Si_2 *

Wang Kun¹⁾ Qiao Ying-Jie¹⁾ Zhang Xiao-Hong^{1)†} Wang Xiao-Dong¹⁾Zheng Ting¹⁾ Bai Cheng-Ying¹⁾ Zhang Yi-Ming²⁾ Du Shi-Yu^{1)2)‡}1) (*College of Material Science and Chemical Engineering, Harbin Engineering University, Harbin 150001, China*)2) (*Engineering Laboratory of Advanced Energy Materials, Ningbo Institute of Materials Engineering and Technology, Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315201, China*)

(Received 20 June 2022; revised manuscript received 18 July 2022)

Abstract

After the Fukushima nuclear accident in 2011, U_3Si_2 was predicted to be an important accident tolerant fuel that can replace UO_2 . The results of recent studies have shown that the simulation at the micro-scale of U_3Si_2 serving as a candidate for accident tolerant fuel is not deep enough. It is not sufficient to build fuel databases and models at a macro-scale to effectively predict some properties of U_3Si_2 . Therefore, employing the first principles to calculate some physicochemical data of U_3Si_2 nuclear fuel has received extensive attention. In previous work, we predicted the ideal strength of U_3Si_2 in several low-index crystal planes/directions by the first-principles computational tensile/shear test (FPCTT/FPCST) approach. However, the fracture behavior of U_3Si_2 has not been explained much. Therefore, in this work, the effects of ideal tensile/shear strain on the chemical bond length and charge density distribution of U_3Si_2 are discussed to analyze the fracture behaviors of U_3Si_2 in these low-index crystal planes/directions. The effect of strain is achieved by using the incremental simulation elements in the specified crystal plane/direction. The crystal structures of U_3Si_2 under different strains are optimized by using the first principles based on density functional theory. The variation ranges of chemical bond length and the charge density distributions of U_3Si_2 under different ultimate strains are summarized and calculated respectively. The results show that the elongation of the U—U bond is the main contributor to the tensile deformation of U_3Si_2 in the [100] crystal direction under tensile load. The toughness of U_3Si_2 in the [001] crystal direction is mainly due to the elongation of the U—Si bond and U—U bond. However, the tensile deformation produced in the [110] crystal direction of U_3Si_2 is mainly related to the elongation of the Si—Si bond. In the (100)[010] slip system, U_3Si_2 has great deformation and the crystal breaks when the Si—Si bond length reaches a limit of 3.038 Å. For the (001)[100], (110)[$\bar{1}$ 10] and (001)[110] slip systems of U_3Si_2 , the crystal is broken under small shear deformation, and the change of its bond length is not obvious, reflecting that the sudden decrease of the strain energy or stress in these several slip systems may be related to the strain-induced structural phase transition of U_3Si_2 .

Keywords: first-principles, U_3Si_2 nuclear fuel, chemical bonds, charge density

PACS: 71.15.Mb, 89.20.–a

DOI: 10.7498/aps.71.20221210

* Project supported by the National Key Research and Development Project, China (Grant No. 2016YFB0700100) and the Natural Science Foundation of Zhejiang province, China (Grant No. LY18F020025).

† Corresponding author. E-mail: zhangxiaohong0451@hrbeu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: dushiyu@hrbeu.edu.cn



理想拉伸/剪切应变对 U_3Si_2 化学键键长及电荷密度分布影响的第一性原理研究

王坤 乔英杰 张晓红 王晓东 郑婷 白成英 张一鸣 都时禹

First-principles study of effect of ideal tensile/shear strain on chemical bond length and charge density distribution of U_3Si_2

Wang Kun Qiao Ying-Jie Zhang Xiao-Hong Wang Xiao-Dong Zheng Ting Bai Cheng-Ying Zhang Yi-Ming Du Shi-Yu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 227102 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221210

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221210>

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

金刚石(111)/Al界面形成及性能的第一性原理研究

First-principles study of formation and performance of diamond (111)/Al interface

物理学报. 2021, 70(18): 188101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210572>

单层 CrI_3 电荷输运性质和光学性质应变调控的第一性原理研究

First-principles study of strain-tunable charge carrier transport properties and optical properties of CrI_3 monolayer

物理学报. 2022, 71(20): 207102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221019>

H对 Mg_2Si 力学性能影响的第一性原理研究

Effect of H on elastic properties of Mg_2Si by the first principles calculation

物理学报. 2019, 68(17): 177102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190368>

铁镁共掺钽酸锂晶体的第一性原理研究

First-principles study of Fe:Mg:LiTaO₃ crystals

物理学报. 2019, 68(20): 204205 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190575>

BaF_2 高压相变行为的第一性原理研究

First-principles study of phase transition of BaF_2 under high pressure

物理学报. 2022, 71(1): 017102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211163>

第一性原理研究 Li_2NH 的晶格动力学和热力学性质

First-principles study of lattice dynamical and thermodynamic properties of Li_2NH

物理学报. 2019, 68(13): 137102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190139>