

空位扩散诱导点缺陷环与富 Cu 相的相互作用

裴嘉琪^{1,2}, 侯 华^{1,2,4}, 杨文奎^{1,2}, 赵宇宏^{1,2,3}

(1. 中北大学, 山西 太原 030051)

(2. 教育部共建高性能铝/镁合金材料开发及应用协同创新中心, 山西 太原 030051)

(3. 北京科技大学 北京市材料基因工程高精尖创新中心, 北京 100083)

(4. 太原科技大学, 山西 太原 030024)

摘 要: 辐照诱导产生的点缺陷会加速核电站材料微观组织的演变, 在很大程度上影响反应堆的寿命。本研究基于相场法的四元连续相场模型, 耦合了空位和间隙原子, 利用该模型模拟了 Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn (原子分数) 合金在空位扩散机制下的相分离, 研究了点缺陷与富 Cu 相的相互作用机制。结果表明, 空位和间隙原子会促进富 Cu 相的长大和粗化, 点缺陷浓度的升高会促进相分离, 加快析出相的失稳分解速率, 并且升高温度会延缓 Cu 原子和空位环的生长和粗化, 点缺陷也可以增加一定的屈服强度, 为探究空位扩散机制影响抗辐照材料性能方面提供了新的思路。

关键词: 相场法; 点缺陷; 富 Cu 析出相; 空位; 间隙原子

中图分类号: TG111.5

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2024)03-0834-07

反应堆压力容器 (reactor pressure vessel, RPV) 作为核电站寿期内不可更换的重要部件, 在高辐照环境下的服役行为, 对材料组织稳定性和抗辐照性能提出了更高的要求和挑战。RPV 钢在服役时受到高能粒子轰击, 被轰击的原子会离开自身晶格点阵位置, 从而产生由空位和间隙原子组成的 Frenkel 缺陷对。这些点缺陷会诱发材料内部发生相分离, 从而影响材料结构降低构件的服役性能。因此, 探究 RPV 钢在承受高温、高压和高能粒子辐照下材料内部点缺陷的运动对微观组织演化规律的影响具有重要意义。

RPV 钢在辐照后产生的缺陷主要有 3 种类型:

(1) 晶界偏析; (2) 溶质原子沉淀, 主要以富 Cu 沉淀和富 Mn-Ni-Si 沉淀这 2 种形式存在; (3) 基体损伤, 主要由中子辐照级联碰撞引发的空位型缺陷和间隙原子型缺陷造成^[1]; 其中, 溶质沉淀和基体损伤可以增加屈服强度。由于辐照诱导相分离是重要的材料性能退化过程之一^[2], 辐照条件下空位的聚集会加速这一过程。例如, Fe-Cu 合金在反应堆环境中经历了辐射诱导相分离, 从固溶体变成富含 Cu 的沉淀相^[3], 因此, 辐照产生的空位对于 RPV 钢中富 Cu 析出相的形成和相变过程中同样也起着重要作用。

经级联碰撞产生 Frenkel 缺陷对的过程在皮秒量

级^[4], 受实验条件限制, 对这样短时间过程的实验研究较少。随着计算模拟技术的发展, Blackstock 等^[5]采用分子动力学模拟了与 α -Fe 共格的 Cu 析出相从 bcc 结构转变为与 α -Fe 非共格的孪晶 9R 结构的过程, 为 Othen 等^[6]提出的 Cu 析出相由 bcc $\rightarrow$ 9R 演化的理论提供了支撑, 同时认为空位浓度对 Cu 析出相的结构演变十分关键。吕国才^[7]利用分子动力学模拟发现随着空位浓度从 0.1% 增大到 0.3%, Cu 原子的扩散系数从 $8.39 \times 10^{-8} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 增大到 $2.42 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, 证实了空位的存在提高了 Cu 原子的扩散能力, 从而促进富 Cu 相的析出。Hu 等^[8]利用有限元方法研究发现随着富 Cu 团簇尺寸增大, 基体强度先增大后减小, 并且 5 nm 的 Cu 析出相对材料的强化作用更强。Molnar 等^[9]利用动力学蒙特卡罗模拟和相场法研究了不同 Cu 原子浓度下 Fe-Cu 合金在 α -Fe 基体中富 Cu 析出相的粗化过程, 发现富 Cu 团簇都遵循 LSW (lifshitz-slyozov-wagner) 定律, 粗化速率常数随着析出相体积分数的增加而从 $0.1024 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 增加到 $0.2389 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 。在多种探究空位对富 Cu 相析出影响的模拟方法中, 扩散界面连续相场法以材料相变热力学和动力学为基础^[10-12], 不仅携带界面、晶体缺陷等微观信息, 又能从晶粒尺度描述微观组织的演化, 可以更清楚地观察到富 Cu 相附近

收稿日期: 2023-03-01

基金项目: 国家自然科学基金 (52074246, 22008224, 52275390, 52205429, 52201146); 国防基础科研计划 (JCKY2020408B002, WDZC2022-12); 山西省重点研发计划 (202102050201011, 2022ZDYF035); 山西省科技重大专项 (20191102008, 20191102007); 中央引导地方科技发展专项 (YDZJSX2022A025, YDZJSX2021A027); 山西省研究生创新项目 (2021Y592)

作者简介: 裴嘉琪, 女, 1997 年生, 博士, 中北大学, 山西 太原 030051, E-mail: b20220309@st.nuc.edu.cn

点缺陷随时间的演化过程以及与富 Cu 相的相互作用。

Biner 等^[13]运用相场方法研究了 Fe-Cu-Mn-Ni 合金中沉淀相稳定性以及晶格失配对富 Cu 相析出过程的影响。杨辉^[14]构建了相场模型来研究铁基、铁镍基材料中温度梯度对点缺陷的影响,发现了空位与间隙原子朝着温度更高的区域扩散的 Soret 效应^[15],上述研究都没有考虑点缺陷浓度对空位扩散机制的影响。刘续希等^[16]利用相场模拟和约束弦方法研究发现在富 Cu 团簇中的空位浓度比 Fe-Cu 基体更低,而且 Cu 浓度越高,空位浓度越低。Yan 等^[17]通过相场模拟研究了点缺陷与富 Cr 纳米级颗粒的交互作用对动力学演化的影响,表明随着初始缺陷浓度的增加,空位扩散加速了相分离,点缺陷在温度升高时对相分离有显著影响。

由于时效温度和初始点缺陷浓度对富 Cu 相沉淀有重要影响,而相关研究不足或存在争议,本工作在 Fe-Cu-Ni-Mn 四元连续相场模型中耦合了空位和间隙原子,分析了点缺陷与富 Cu 相析出的相互作用对合金形貌的影响,点缺陷浓度以及温度对沉淀相组织、体积分、颗粒密度、平均颗粒半径、生长和粗化的影响规律。

1 相场模型

相场模型的演化方程由采用浓度场变量来表征材料相变动力学过程的 Cahn-Hilliard (C-H) 方程^[18-19]和采用结构相关的序参数场变量来表征相变过程中不同相之间结构变化的 Allen-Cahn (A-C) 方程^[20-21]组成,可以写为^[22-23]:

$$\frac{\partial c_i(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \nabla \cdot M_{ij} \cdot \nabla \cdot \frac{\partial F}{\partial C_i(\mathbf{r}, t)} + \xi_{c_i}(\mathbf{r}, t) \quad (1)$$

$$\frac{\partial \eta(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -L_\eta \frac{\partial F}{\partial \eta(\mathbf{r}, t)} + \xi_\eta(\mathbf{r}, t) \quad (2)$$

式中, $C_i(\mathbf{r}, t)$ 表示 i 元素在空间位置 $\mathbf{r}$ 和时间 t 的瞬时浓度,其中 $i=1, 2, 3, 4$, 分别代表 Fe、Cu、Ni、Mn; $\xi_{c_i}(\mathbf{r}, t)$ 是热噪声项; $\eta(\mathbf{r}, t)$ 表示体系中 α 相 (bcc) 和 γ 相 (fcc) 在空间的相分布; M_{ij} 为合金成分的化学迁移率; L_η 是表征 α 相和 γ 相之间相变动力学系数。总化学自由能 F 可表示为:

$$F = \int_V \left[f_{\text{chem}} + \frac{\kappa_c}{2} |\nabla C_i|^2 + \frac{\kappa_\eta}{2} |\nabla \eta|^2 + \frac{\kappa_v}{2} |\nabla C_v|^2 + \frac{\kappa_l}{2} |\nabla C_l|^2 \right] dV \quad (3)$$

式中, f_{chem} 为合金的化学自由能; $\frac{\kappa_c}{2} |\nabla C_i|^2$ 和 $\frac{\kappa_\eta}{2} |\nabla \eta|^2$ 是成分和结构序参量的梯度自由能; 系数 κ_c 和 κ_η 分别为成分和序参量的梯度自由能系数; 后两项为空位和间隙原子的梯度能, κ_v 、 κ_l 分别为空位和间隙原子的梯度能系数。

将缺陷的形成能及其浓度耦合到系统的化学自由能中:

$$f_{\text{chem}} = \int \left\{ \begin{aligned} & E_v^f c_v + E_l^f c_l + [1 - h(\eta)] \\ & (G_c^\alpha(c_i, T)) + W g^2(\eta) + h(\eta) \\ & G_c^\gamma(c_i, T) + RT(c_v \ln c_v + c_l \ln c_l) \end{aligned} \right\} dV \quad (4)$$

式中, E_v^f 和 E_l^f 分别为空位和间隙原子形成能, G_c^α 和 G_c^γ 分别代表了 α 相和 γ 相的 Gibbs 自由能; $h(\eta)$ 和 $g(\eta)$ 是 2 个插值函数, 分别用公式 (5)、(6) 表示; W 为势垒高度; $W g^2(\eta)$ 为 bcc 相和 fcc 相之间的相变势垒; R 是气体常数; T 是绝对温度。相场模拟所使用的参数^[24]和 Gibbs 自由能的数值见附录。

$$h(\eta) = \eta^2(3 - 2\eta) \quad (5)$$

$$g(\eta) = \eta(1 - \eta) \quad (6)$$

初始成分为 $C_{\text{Cu}}=0.15$, $C_{\text{Ni}}=0.01$, $C_{\text{Mn}}=0.01$, 空位和间隙原子初始浓度 $C_v=C_l=10^{-5}$, 网格点 $64\Delta x \times 64\Delta y \times 64\Delta z$, 每个网格之间的间距为 $d_x=d_y=d_z=0.3$ nm。采用周期性边界条件, 半隐式傅里叶谱方法求解动力学演化方程, 可以同时描述相分离、长大以及粗化的过程^[25]。

2 模拟结果与分析

随着时效时间延长, Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn (原子分数, 下同) 合金中各溶质原子和点缺陷在 823 K 时效温度下的相分离演化过程如图 1 所示。时效初期富 Cu 相开始颗粒逐渐长大, 随后, 逐渐形成水滴状富 Cu 沉淀相。随着富 Cu 相的生长, 空位和间隙原子从最初的团簇位置迁移到富 Cu 相的周围, 并形成了缺陷浓度环。在 $t^*=25 \sim 27$ 之间, 辐照诱导产生了点缺陷, 进而诱导富 Cu 相的快速生长, 造成明显的 Cu 原子聚集, 产生较多的析出相颗粒。在时效后期, Fe 基体中球状富 Cu 相颗粒以 Ostwald 熟化机制进行粗化, 其中一些独立的颗粒通过吸收周围的小颗粒或基体内的溶质原子, 合并成较大的椭圆形颗粒。这一现象表明, 富 Cu 相的生长和粗化是在凝聚和 Ostwald 熟化的共同作用下发生的^[26]。

在空位扩散机制中, 原子的扩散是通过与空位交换位置来完成迁移的, 而在辐照诱导的空位机制下, 空位和间隙原子为溶质原子的扩散提供了高速率的扩散通道。空位从富含 Fe 的一侧流向富含 Cu 的一侧, 所以空位浓度在富 Cu 相中较高。

时效温度为 823 K, 空位、间隙原子的浓度为 10^{-5} 时, 合金中各原子和点缺陷的浓度变化曲线如图 2 所示。Fe 原子分布规律与 Cu 原子基本相反, 该过程对应于富 Cu 区域以及富 Fe 区域的富集生长, 由于 Ni 原子和 Mn 原子在富 Cu 相周围富集, 故 Mn、Ni 原子的分布情况大致相同。辐照条件下, 空位与间隙原子同时聚集在缺陷浓度环中, 在相分离过程中, 随着时

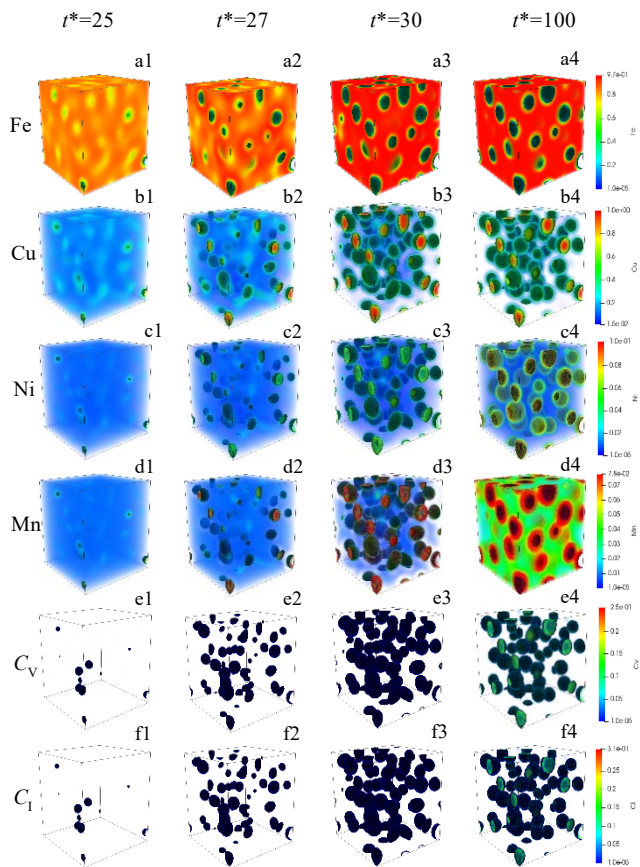


图1 在 823 K 时效温度下 Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn 合金中各溶质原子和点缺陷随时间变化的演化模拟图

Fig.1 Simulation of the evolution of each solute atom and point defect in Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn alloy with time at aging temperature of 823 K

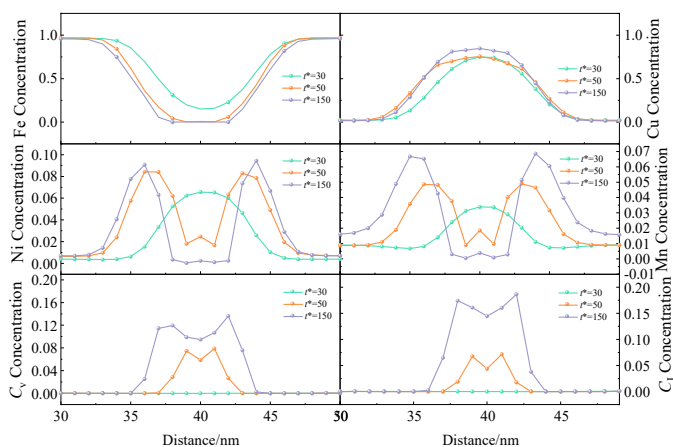


图2 Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn 四元合金各原子和点缺陷的浓度变化曲线

Fig.2 Concentration variation curves of each atom and point defect of Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn quaternary alloy

间的变化, Cu 原子从 Fe 基体中逐渐向富含 Cu 的沉淀相迁移, 而空位的迁移方向也与其相同。因此, Cu 原子聚集形成富 Cu 相, 导致周围产生晶格畸变, 使得空位逐渐在 Cu 周围富集, 空位环逐渐在 Cu 原子周围形成。

从无点缺陷作用(图 3a)和有点缺陷作用(图 3b)的模拟结果中各选取 1 个演化完整的颗粒(红色矩形所示), 得到 Cu 颗粒随时间的变化如图 3 所示。在 $t^*=27$ 和 $t^*=30$ 时, 与图 3a1~3a3 中的 Cu 原子的演化相比, 图 3b1~3b3 中的 Cu 原子发生分离的时间更早, 失稳分解速率更快, 富 Cu 相粗化生长的速度更快, 这是由于空位可以促进富 Cu 相的析出。由此可见, 空位和间隙原子会随着时效时间的延长, 逐渐迁移到富 Cu 相周围, 对原子聚集以及富 Cu 团簇失稳分解有促进作用, 从而加快时效后期富 Cu 相长大和粗化速率。通过比较有无缺陷的 Cu 原子演化结果, 可以得到点缺陷的存在可以促进 Cu 原子的扩散, 逐渐形成富 Cu 相。

3 讨论

3.1 不同温度下富 Cu 相析出

在 $t^*=40$ 时刻下, 空位、间隙原子浓度为 10^{-5} , 不同温度下 Cu 原子和空位的演化过程如图 4 所示。随着温度从 723 K 升高到 870 K 时, Cu 原子和空位的失稳分解速率变慢, 导致富 Cu 析出相明显逐渐减少, 一方面是由于温度升高, 化学驱动力逐渐降低, 能够克服形核势垒达到临界形核尺寸颗粒数量有所减少; 另一方面由于温度升高, 其它原子(Mn、Ni)扩散速度逐渐增大, 也限制了 Cu 原子的堆积^[27]。

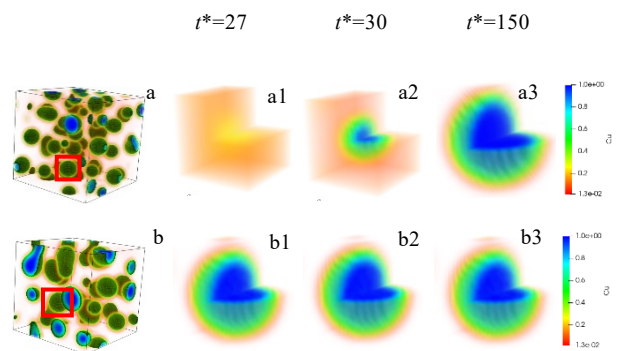


图3 Cu 团簇无点缺陷作用和有点缺陷作用的演化过程

Fig.3 Evolutions of Cu clusters without (a-a3) and with (b-b3) point-defect interaction

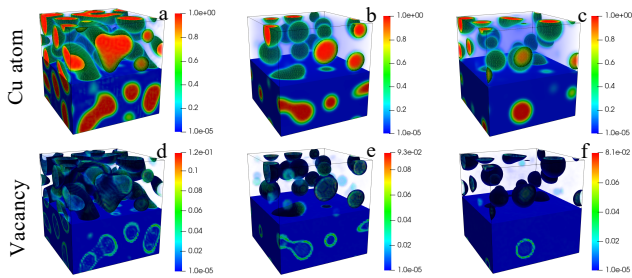


图4 不同温度下Cu原子以及空位的演化过程

Fig.4 Evolutions of Cu atoms as well as vacancies at different temperatures: (a, d) 723 K, (b, e) 823 K, and (c, f) 870 K

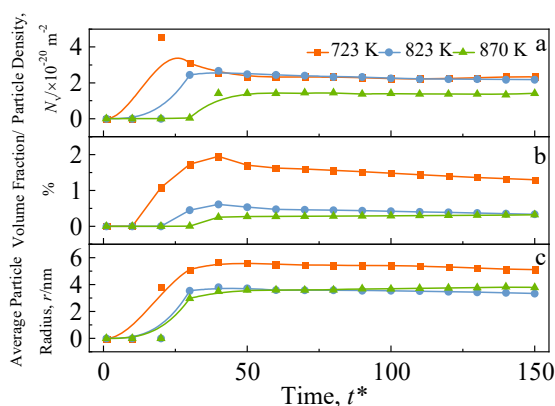


图5 不同温度下析出相的颗粒密度、体积分数及平均颗粒半径随时间的变化图

Fig.5 Variations of particle density (a), volume fraction (b) and average particle radius (c) of the precipitated phase with time at different temperatures

通过统计某一时效时间下对应的Cu原子三维演化图的其中的截面,从而获得纳米富Cu相的体积分数、颗粒密度和平均颗粒半径 r 随时间步长的变化如图5所示。在统计颗粒数目的过程中,颈部相连的2个富Cu相看作一个颗粒。选取空位、间隙原子浓度为 $C_V=C_I=10^{-5}$,进一步观察温度为723、823和870 K对相分离的影响。根据经典的成核理论,颗粒密度是由成核速率决定的,随着温度723、823增加到870 K,可以发现相分离时间大约逐渐从 $t^*=2, 20$ 延长到30,由于失稳分解速率逐渐变慢,颗粒密度逐渐降低。成核和生长过程中,在成核和生长阶段,空位迅速聚集在富Cu相周围, r 早期迅速增加。当 r 变化速率变慢时,富Cu相的体积分数也逐渐达到平衡。体积分数的曲线也存在同样的变化,颗粒总体积的增长率和颗粒长大速率都随温度的升高而变慢,温度为870 K会延缓

析出颗粒的长大与粗化,会抑制辐照诱导的空位扩散,进而抑制Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn合金的相分离。

3.2 不同点缺陷浓度下富Cu相析出

在 $t^*=26$ 时刻下,时效温度为823 K下,在不同的空位、间隙原子初始浓度下,Cu原子和空位的演化过程如图6所示。辐照条件下,辐照速率逐渐增大,导致空位和间隙原子浓度增大,Cu原子和空位的粗化生长速度明显随着点缺陷浓度的增加而增大,析出相颗粒逐渐增加,在富Cu相的周围形成空位环,进而促进相分离。

空位、间隙原子浓度分别为 $C_V=C_I=10^{-4}$ 、 $C_V=C_I=10^{-5}$ 、 $C_V=C_I=10^{-6}$ 、 $C_V=C_I=0$ 时,各原子以及点缺陷浓度变化曲线如图7所示。随着辐照速率加快,点缺陷浓度增加,空位和间隙原子作用下的Fe、Cu、Mn、Ni原子浓度的增加速率大于无点缺陷作用下($C_V=C_I=0$)的原子浓度,且增加的速率明显随着辐照速率的增加而加快。高辐照速率可以加强溶质原子和点缺陷之间的相互扩散,辐照诱导的空位和间隙原子,致使局部能量发生波动,空位扩散机制加速了富Cu相的聚集,降低了能量势垒,进而导致相分解加速。

不同空位、间隙原子浓度时,富Cu相的颗粒密度、平均颗粒半径及体积分数在时效温度823 K下随时效时间的变化如图8所示。在早期相分离阶段,由于富Cu相的失稳分解,颗粒密度(图8a)随着时效时间的变化而上升,其增加速率由快到慢依次为 $C_V=C_I=10^{-4}$ 、 $C_V=C_I=10^{-5}$ 、 $C_V=C_I=10^{-6}$ 。当 $t^*=30$ 时颗粒密度开始减少,析出相进入粗化阶段,平均颗粒半径(图8b)中 r 在时效时间初期快速上升,主要驱动因素是基体过饱和度和界面能量的降低^[28],在 $C_V=C_I=10^{-4}$ 浓度下的 r 上升速率比其它浓度条件下快,而在 $t^*=37$ 之后趋势一致。因此,空位和间隙原子浓度对 r 的最大值没有影响,并未影响

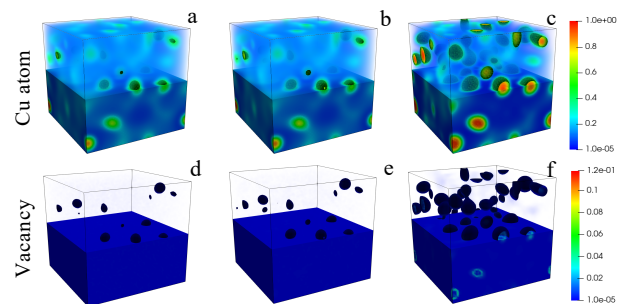


图6 不同点缺陷浓度下Cu原子和空位的演化过程

Fig.6 Evolutions of Cu atoms and vacancies with different point defect concentrations: (a, d) 10^{-6} , (b, e) 10^{-5} , and (c, f) 10^{-4}

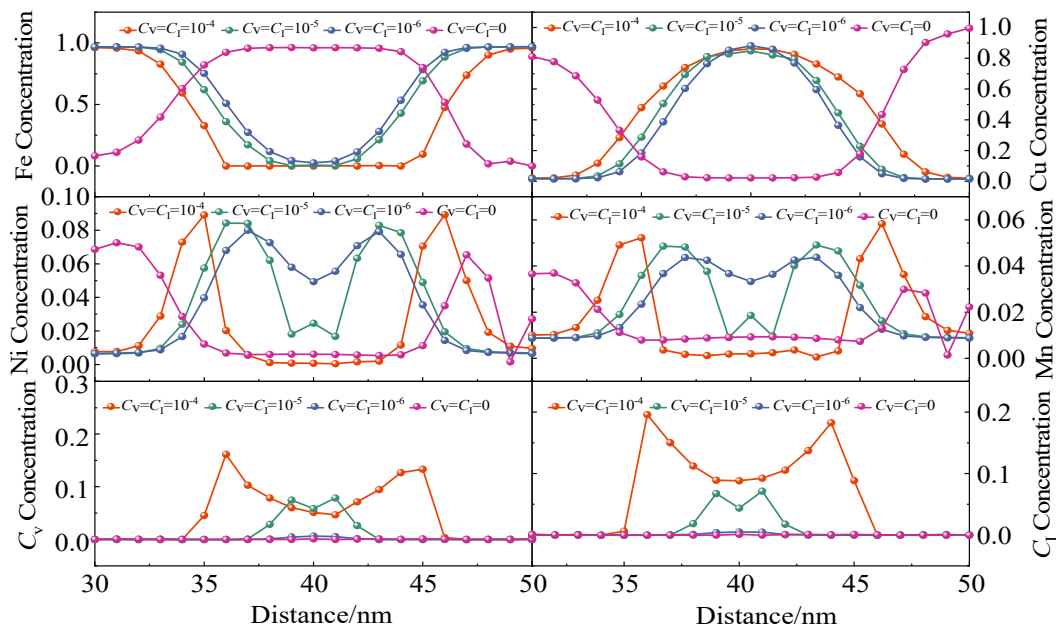


图 7 不同点缺陷浓度下各原子以及空位、间隙原子浓度变化曲线

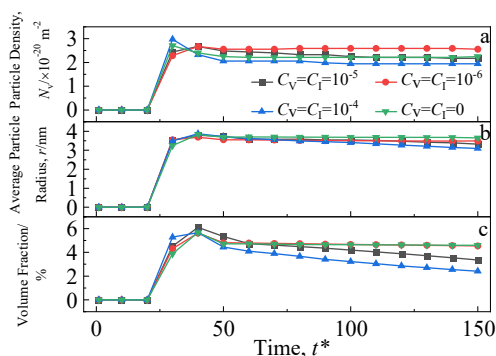
Fig.7 Variations of atoms, vacancies and interstitial atoms with defect concentrations of 10^{-4} , 10^{-5} , 10^{-6} and 0

图 8 不同点缺陷浓度下析出相的颗粒密度、平均颗粒半径及体积分数的变化

Fig.8 Variation of particle density (a), average particle radius (b) and volume fraction (c) of precipitated phase with time at different point defect concentrations

最终析出相形貌，只是加快了颗粒粗化长大；空位和间隙原子浓度为 $C_v=C_i=10^{-4}$ 时，体积分数的图 8c) 在时间 $t^*=20$ 左右开始逐渐上升，此时其他浓度还没有开始增长，并且不同点缺陷浓度下在达到平衡状态后体积分数的差值较大，这说明点缺陷浓度对体积分数的影响最为明显。表明在 Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn 合金与 Fe-Cr 合金^[17]中，空位和间隙原子对体积分数的影响一致，均能加速相分离。

图 8 中体积分数的、颗粒半径、平均颗粒半径的曲

线变化趋势都是先略有下降，后逐渐上升，之后达到平台期。这一现象主要有 2 个原因：(1) 小颗粒在析出之后变得不稳定，在基体中再次溶解；(2) Ni、Mn 原子在富 Cu 颗粒界面形成团簇，从而导致富 Cu 析出相的减少和溶质元素扩散界面的形成。体积分数的曲线逐渐向右移动，其峰值明显下降。随着辐照速率的增大，点缺陷浓度增加，体积分数和平均颗粒半径也有所增加，进而促进相分离。Xu 等^[29]认为，这种增加是由于富 Cu 析出相的空位偏析造成的。Badillo 等^[30]开发了一种基于离散-连续方法的相场方法来捕获这一过程。

3.3 点缺陷与屈服强度

辐照产生的过饱和的空位型缺陷，会引入应变和应力，产生应变硬化，提高辐照钢的屈服强度^[31]。辐照产生的空位浓度为 n_{defects} 个单位，可导出空位型缺陷产生的屈服强度增量 $\Delta\sigma_{\text{defects}}$ 为：

$$\Delta\sigma_{\text{defects}} = \alpha M \mu n_{\text{defects}} \quad (5)$$

式中， $\alpha=0.16$ 表示空位型缺陷的强化因子， $M=3$ 为 Taylor 因子， $\mu=80$ GPa 为切变模量。

说明空位型缺陷引起的屈服强度增量 ($\Delta\sigma_{\text{defects}}$) 主要取决于空位的浓度 (n_{defects})。文献数据^[32]指出小于 10 个空位的空位团的强化因子非常小，甚至可以忽略不计，其次按照这个较小的强化因子进行计算，空位型缺陷引起的屈服强度增量仍然不大。因此，本研究主要考虑富 Cu 析出相对材料屈服强度的强化效果。

析出强化对材料总体的强度贡献可以表示为^[33-35]：

$$\Delta\sigma_{\text{Orowan}} = M \frac{0.4Gb}{\pi\sqrt{1-\nu}} \frac{\ln(2\bar{r}/b)}{\lambda_p} \quad (6)$$

式中, ν 表示泊松比(对于 Fe-Cu-Ni-Mn 合金其值 0.3), $G=80$ GPa 和 $M=3$ 分别为 Fe 基体的剪切模量和 Taylor 因子, $\bar{r}$ 表示析出相在随机平面中圆形截面的平均半径, $\bar{r} = \sqrt{\frac{2}{3}}r$, r 为析出相的平均半径, b 为氏矢量 (0.15 nm), λ_p 为 face-to-face 的析出相之间的间距, 与析出相的体积分数和半径相关:

$$\lambda_p = 2\bar{r} \left(\sqrt{\frac{\pi}{4f}} - 1 \right) \quad (7)$$

式中, f 为析出相体积分数。根据此公式可以看出, 析出相颗粒半径和体积分数同样是影响屈服强度增量高低的关键因素。

对比有无点缺陷作用下的屈服强度的变化如图 9 所示。由于颗粒长大粗化也是 Ostwald 与合并 2 种机制的共同作用, 随着时效时间的延长, Cu 析出相发生明显长大, 随后失稳分解速率逐渐增大, 富 Cu 相加速聚集, 屈服强度达到最高点, 随后析出相颗粒开始减少, 析出相形态由球状颗粒转变为杆状或短棒状, 屈服强度随之减弱并逐渐保持稳定。图 9 中, 有点缺陷作用下的合金屈服强度略大, 说明辐照条件下诱导产生的空位和间隙原子引起的屈服增量虽然不大, 但还是比无点缺陷作用下略微提升, 这也为后期进一步研究空位对屈服强度的提升提供了思路, 从而指导抗辐照材料性能的研究与设计。

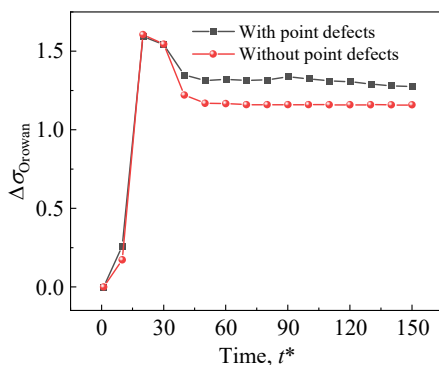


图9 有点缺陷作用下的屈服强度变化曲线

Fig.9 Yield strength change curve with and without point defects

4 结 论

1) Fe-15%Cu-1%Ni-1%Mn (原子分数) 合金中, Cu 原子从 Fe 基体中向富含 Cu 的沉淀相迁移, 聚集形成富 Cu 相, 富 Cu 相通过辐照增强扩散快速成核并继

续生长, 导致周围产生晶格畸变, 辐照诱导产生的空位和间隙原子会逐渐迁移到富 Cu 相的周围, 对原子的聚集以及富 Cu 团簇的失稳分解有促进作用, 从而会加快时效后期富 Cu 相长大和粗化的速率, 促进相分离。

2) 辐照条件下, 随着辐照速率的增加, 点缺陷浓度会逐渐增加, 加快颗粒的粗化长大, 促进富 Cu 析出相的形成, 进而促进相分离。温度的升高会抑制 Cu 原子和空位环的生长和粗化。通过对比有无点缺陷作用下的析出相形貌和屈服强度, 点缺陷会明显加快富 Cu 相的相分离, 并且增大了合金的屈服强度, 对以后探究 RPV 钢如何进一步提升抗辐照性能有一定的意义。

参考文献 References

- [1] Li Peiyao(李沛尧), Lv Shasha(吕沙沙), Wang Haitao(王海涛) et al. *Equipment Environmental Engineering*(装备环境工程)[J], 2022, 19 (1): 20
- [2] Eason E D, Odette G R, Nanstad R K et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 433(1): 240
- [3] Odette G R, Lucas G E. *Radiation Effects and Defects in Solids*[J], 1998, 144 (1-4): 189
- [4] Li Xiang(李翔), Yin Yihui(尹益辉), Zhang Yuanzhang(张元章). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2022, 51(8): 2881
- [5] Blackstock J J, Ackland G J. *Philosophical Magazine A*[J], 2001, 81: 2127
- [6] Othen P J, Jenkins M L, Smith G D W. *Philosophical Magazine A*[J], 1994, 70(1): 1
- [7] Lv Guocai(吕国才). *Computer Simulation of the Effect of Copper-Riched Precipitates on Hardening and Embrittlement in Reactor Pressure Vessel Steels*(富 Cu 析出物对 RPV 钢硬化和脆化影响的计算机模拟研究)[D]. Beijing: University of Science and Technology Beijing, 2017
- [8] Hu L, Zhao S J, Liu Q. *Materials Science and Engineering A*[J], 2012, 556: 140
- [9] Molnar D, Mukherjee R, Choudhury A et al. *Acta Materialia*[J], 2012, 60(20): 6961
- [10] Xin T Z, Tang S, Ji F et al. *Acta Materialia*[J], 2022, 239: 118248
- [11] Zhao Y H, Liu K, Hou H et al. *Materials & Design*[J], 2022, 216: 110555
- [12] Zhao Y H, Zhang B, Hou H et al. *Journal of Materials Science & Technology*[J], 2019, 35: 1052
- [13] Biner S B, Rao W, Zhang Y. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2016, 468: 9
- [14] Yang Hui(杨辉). *Phase Field Method Simulation of the*

- Evolution of Iron-Based Alloy Irradiated Void Structure and Its Stress Effect*(铁基合金辐照空洞组织演化及其应力效应的相场法模拟)[D]. Xi'an: Xi'an University of Technology, 2021
- [15] Platten J K. *Journal of Applied Mechanics-Transactions of the ASME*[J], 2006, 73(1): 5
- [16] Liu Xuxi(刘续希), Liu Wenbo(柳文波), Li Boyan(李博岩) et al. *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2022, 58 (7): 943
- [17] Yan Z, Shi S, Li Y et al. *Physical Chemistry Chemical Physics*[J], 2020, 22(6): 3611
- [18] Xin T Z, Zhao Y H, Mahjoub R et al. *Science Advances*[J], 2021, 7(23): 3039
- [19] Cahn J W. *Acta Metallurgica*[J], 1961, 9(9): 795
- [20] Tian X L, Guo Y L, Xu F Q et al. *Materials Science and Engineering A*[J], 2022, 849: 143485
- [21] Liu W, Zhao Y H, Zhang Y T et al. *International Journal of Plasticity*[J], 2023, 164: 103573
- [22] Zhang J B, Wang H F, Kuang W W et al. *Acta Materialia*[J], 2018, 148: 86
- [23] Chen L Q, Zhao Y H. *Progress in Materials Science*[J], 2022, 124: 100868
- [24] Buerger M J. *Zeitschrift für Kristallographie*[J], 1961, 115(3-4): 319
- [25] Zhao Y H. *Journal of Materials Research and Technology*[J], 2022, 21: 546
- [26] Sun Y, Zhao Y, Zhao B et al. *Journal of Materials Science*[J], 2019, 54(16): 11263
- [27] Sun Yuanyang(孙远洋). *Effects of Elastic Field and Microelements on the Precipitation of Cu-rich Phase in Fe-Cu-Mn-Ni-Al Alloy: A Phase-Field Study*(相场法研究弹性场及微量元素调控 Fe-Cu-Mn-Ni-Al 合金富 Cu 相析出过程)[D]. Taiyuan: North University of China, 2020
- [28] Wang J C, Osawa M, Yokokawa T et al. *Computational Materials Science*[J], 2007, 39(4): 871
- [29] Xu Q, Yoshiie T. *Philosophical Magazine*[J], 2011, 91(28): 3716
- [30] Badillo A, Bellon P, Averback R S. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*[J], 2015, 23(3): 035008
- [31] Wan Qiangmao(万强茂). *Microstructure Evolution Law and Brittleness Prediction Model of Reactor Pressure Vessel Steels under the Irradiation Condition* (辐照钢的微观结构演变规律与脆化预测模型研究)[D]. Wuhan: Wuhan University, 2013
- [32] Lambrecht M, Almazouzi A. *International Conference on Nuclear Engineering*[C]. Brussels, Belgium: Nuclear Engineering Division, 2009: 297
- [33] Stachurski Z H. *Materials Today*[J], 2009, 12(3): 44
- [34] Hou Yanhui(侯延辉), Liu Zhiyi(刘志义), Li Yuntao(李云涛) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2010, 39(8): 1435
- [35] Srivatsan T S. *Materials and Manufacturing Processes*[J], 1991, 6(3): 565

Interaction Between Vacancy Diffusion Induced Point Defects and Cu-rich Phase

Pei Jiaqi^{1,2}, Hou Hua^{1,2,4}, Yang Wenkui^{1,2}, Zhao Yuhong^{1,2,3}

(1. North University of China, Taiyuan 030051, China)

(2. Collaborative Innovation Center of Ministry of Education and Shanxi Province for High-performance Al/Mg Alloy Materials, Taiyuan 030051, China)

(3. Beijing Advanced Innovation Center for Materials Genome Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

(4. Taiyuan University of Science and Technology, Taiyuan 030024, China)

Abstract: The irradiation-induced point defects accelerate the evolution of the microstructure of nuclear power plant materials and affect the reactor lifetime to a large extent. In this paper, based on the quadratic continuous phase field model of the phase field method with coupled vacancy and interstitial atoms, the phase separation of Fe-15at%Cu-1at%Ni-1at%Mn alloy under the vacancy diffusion mechanism was simulated, and the interaction mechanism between the point defects and the Cu-rich phase was investigated. The results show that the vacancy and interstitial atoms promote the growth and coarsening of the Cu-rich phase, the increase in the point defect concentration promotes the phase separation and accelerates the destabilization decomposition of the precipitated phase, and the increase in the temperature delays the growth and coarsening of Cu atoms and vacancy rings, and the point defects can also increase the yield strength to a certain extent. It provides a new idea to investigate the effect of the vacancy diffusion mechanism on the properties of irradiation-resistant materials.

Key words: phase field method; point defect; Cu-rich precipitates; vacancy; interstitial atom

Corresponding author: Zhao Yuhong, Ph. D., Professor, North University of China, Taiyuan 030051, P. R. China, E-mail: zhaoyuhong@nuc.edu.cn