

原子动力学蒙特卡洛程序 MISA-KMC 在反应堆压力容器钢辐照损伤研究中的应用



王 栋^{1,2} 商红慧² 张云泉^{1,2} 李 琨^{2,3} 贺新福⁴ 贾丽霞⁴

1 大连海洋大学信息工程学院 辽宁 大连 116023

2 中国科学院计算技术研究所计算机体系结构国家重点实验室 北京 100190

3 中国科学院大学计算机与控制学院 北京 100190

4 中国原子能科学研究院 北京 102413

(yjswangdong@gmail.com)

摘 要 材料科学领域的快速发展,使得核材料(反应堆压力容器钢)微观结构在受到强辐射时产生辐照损伤的问题成为了重点研究对象。采用动力学蒙特卡洛方法,可以模拟反应堆压力容器钢中溶质析出行为。为了给研究核材料在长期服役后微观结构演化及性能变化提供理论依据,文中介绍了自主开发的 MISA-KMC 程序的并行策略及大规模测试结果。在验证程序正确性的基础上,利用 MISA-KMC 程序研究了反应堆压力容器钢中多种溶质原子的析出过程。结果表明,经过长时间演化,溶质原子会发生聚集,形成富 Cu 团簇,富 Cu 团簇是引发反应堆压力容器钢脆化的主要微观结构之一。MISA-KMC 程序模拟结果的准确性、可支持模拟规模大小以及模拟元素的多样化,为后续的材料性能变化研究提供了保障。

关键词: 动力学蒙特卡洛;溶质析出;热老化;辐照脆化

中图分类号 TP311.52

Application of Atomic Dynamics Monte Carlo Program MISA-KMC in Study of Irradiation Damage of Reactor Pressure Vessel Steel

WANG Dong^{1,2}, SHANG Hong-hui², ZHANG Yun-quan^{1,2}, LI Kun^{2,3}, HE Xin-fu⁴ and JIA Li-xia⁴

1 College of Information Engineering, Dalian Ocean University, Dalian, Liaoning 116023, China

2 State Key Laboratory of Computer Architecture, Institute of Computing Technology, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China

3 School of Computer and Control Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China

4 China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China

Abstract With the rapid development of material science, the microstructure of nuclear materials (reactor pressure vessel steel) is subject to radiation damage. The behavior of solute precipitation in reactor pressure vessel steel can be simulated by dynamic monte carlo method. In order to provide theoretical basis for studying the microstructure evolution and performance change of nuclear materials after long-term service, this paper introduced the parallel strategy and large-scale test results of MISA-KMC program developed by ourselves. Based on the correctness of the program, the precipitation process of solute atoms in reactor pressure vessel steel was studied by MISA-KMC program. The results show that, after a long period of evolution, solute atoms will aggregate to form Cu-rich clusters, which is one of the main microstructure leading to the embrittlement of steel in the reactor pressure vessel. The accuracy of the simulation results of MISA-KMC program, the size of the simulation that can be supported, and the diversity of simulation elements provide a guarantee for the subsequent research on material performance changes.

Keywords Kinetic monte carlo, Solute precipitation, Thermal aging, Irradiation embrittlement

1 引言

反应堆压力容器(Reactor Pressure Vessel, RPV)是核安全一级设备,具有密封放射性和防止裂变产物逸散的功能,是压水堆核电站寿期内不可更换的核心部件。RPV 的寿命决

定了核电厂的使用寿命,因而 RPV 的服役能力直接影响反应堆的经济性和安全性。RPV 的服役环境非常恶劣,长期受高温、高压和高能量中子辐照($E \geq 1 \text{ MeV}$),性能不断降级。辐照脆化是典型的性能降级^[1],使得 RPV 的压力温度运行窗口不断缩小,最终导致堆的关闭停运。因此,RPV 钢的辐照脆

收到日期:2019-11-06 返修日期:2020-01-07 本文已加入开放科学计划(OSID),请扫描上方二维码获取补充信息。

基金项目:国家重点研发计划(2017YFB0202302)

This work was supported by the National Key Research and Development Program of China (2017YFB0202302).

通信作者:商红慧(shanghonghui@ict.ac.cn)

化机理,尤其是 RPV 钢辐照脆化程度的预测,一直都是人们关注的焦点。引起 RPV 钢辐照脆化的关键原因之一是中子辐照导致 RPV 钢中富 Cu 团簇的析出,近年人们利用理论模型或者动力学蒙特卡洛(Kinetic Monte Carlo, KMC)方法深入研究了 α -Fe 中的 Cu 析出问题^[2-4]。本文基于我国先进的高性能计算技术,开发了大规模并行动力学蒙特卡洛程序,并研究了 RPV 钢模型材料中 Cu 的析出机理,为改善 RPV 钢的辐照脆化问题及延长服役寿命提供科学依据。

KMC 方法^[5-6]是将微观体系在一定时间内的动力学演化过程当作状态与状态之间的跃迁。跃迁是瞬间发生的,而处于某种状态时的体系可以视为相对稳定的,相对于体系中的状态跃迁来说,停留时间较长。因此,KMC 方法适合对材料的微观结构进行模拟。根据体系演化规则,该方法可以分为 3 种:1) Atomistic KMC (AKMC)^[7],研究对象为晶格点阵上的点缺陷,在原子晶格点阵上执行跃迁,也称为 Lattice KMC (LKMC);2) Object KMC (OKMC)^[8],将杂质、缺陷及团簇作为跃迁对象执行 KMC;3) Event KMC (EKMC)^[9],研究对象与 OKMC 一样,通过定义对象间的反应概率、作用距离等来实现体系跃迁。以上 3 种方法中的对象、反应事件及其(跃迁/反应)概率事先已知;有的 KMC 方法对跃迁/反应路径及其概率的计算是动态搜索完成的,称为 on the fly KMC^[10]。

KMC 方法随着时间的推移产生状态到状态之间的跃迁(变化),即系统在某时刻处于某种状态,这种方式是一种串行算法。但是,该方式受算法复杂度以及内存开销等的限制^[11],模拟时间长,甚至难以正确模拟。因此,对 KMC 并行模拟计算的研究变得尤为重要,而目前高性能集群的快速发展和应用推广,也为此研究提供了有利的条件。

本文介绍了自主开发的 MISA-KMC 程序的并行策略,并对大规模测试结果进行分析。

2 算法介绍及运算流程

2.1 Atomistic KMC

AKMC 利用点阵映射将原子与格点联系起来,从而将事件(跃迁)转化为原子与格点关系的变化^[12]。AKMC 利用原子的运动机制来模拟原子尺度的复杂结构的演化,是通用方法之一。自 AKMC 被开发至今的 40 年,它从最开始的追踪单个空位的移动来研究扩散事件,发展到了在模型中添加杂质间隙子和自间隙子^[13-14]。

在金属材料的辐照损伤 AKMC 模拟中,其原理是从多种化学原子内部引入空位,这些空位处于完美晶格的位置上,利用原子间扩散跳跃,即空位和邻近的原子交换位置,使得不同原子的位置重新分布。该模型最主要的部分包括跃迁概率及跃迁激活能的计算。一个跃迁事件的概率为:

$$P_X = P_0 \times \exp\left(\frac{-E_a^X}{kT}\right) \quad (1)$$

其中, P_0 是尝试频率, k 是玻尔兹曼因子, T 是绝对温度, E_a^X 是事件发生所需激活能。计算激活能时,要确定跃迁前后系统处于稳态的能量值及跃迁过程中一个较高的能量势垒:

$$E_a^X = E_a^0 + \left(\frac{E_f}{2} - \frac{E_i}{2}\right) \quad (2)$$

其中, E_i 和 E_f 分别是空位跃迁前后的系统能量值,对其能量差进行减半是根据系统中的实际情况进行计算的。

在得到跃迁激活能以及相应的跃迁概率的计算方式后,使用驻留时间算法(由 Bortz Kalos 和 Lebowitz 共同提出,简称 BKL 算法)^[15]进行事件的选择。在所有可能发生的事件中,要根据一个随机数 $r \in [0, 1]$ 来选择事件, k 满足以下条件(选中的事件对应的概率为 P_k):

$$\sum_{x=1}^k P_x \leq r \leq \sum_{x=1}^{k+1} P_x \quad (3)$$

在实际模拟中,要根据公式对模拟时间进行换算,得到真实时间。蒙特卡洛模拟时间与真实时间的转换关系如下:

$$t_{\text{real}} = \frac{C_{V,\text{MC-sim}}}{C_{V,\text{real}}} t_{\text{MC-sim}} \quad (4)$$

其中, t_{real} 为真实时间, $C_{V,\text{MC}}$ 和 $C_{V,\text{real}}$ 分别是模拟实验中的空位浓度与真实的空位浓度。真实的空位浓度如下:

$$C_{V,\text{real}} = \exp\left(-\frac{E_{\text{for}}(V^{\text{Fe}})}{kT}\right) \exp\left(\frac{\delta S}{k}\right) \times [1 - 8x_{\text{Cu}} - 6x_{\text{Cu}} + 8x_{\text{Cu}} \exp\left(\frac{E_{b(V-\text{Cu})}^{(1)}}{kT}\right) + 6x_{\text{Cu}} \exp\left(\frac{E_{b(V-\text{Cu})}^{(2)}}{kT}\right)] \quad (5)$$

$E_{\text{for}}(V^{\text{Fe}})$ 为纯 Fe 的空位形成能,计算公式如下:

$$E_{\text{for}}(V^{\text{Fe}}) = 8\epsilon_{(\text{Fe-V})}^{(1)} + 6\epsilon_{(\text{Fe-V})}^{(2)} - 4\epsilon_{(\text{Fe-Fe})}^{(1)} - 3\epsilon_{(\text{Fe-Fe})}^{(2)} \quad (6)$$

在本次计算时, $E_{\text{for}}(V^{\text{Fe}})$ 的值设置为 1.995 eV,文献^[16]中使用的数值为 2.02 eV; $E_{b(V-\text{Cu})}^{(1)}$ (取值 0.17 eV)和 $E_{b(V-\text{Cu})}^{(2)}$ (取值 0.19 eV)分别是第一和第二近邻 V-Cu 的结合能;参考 Mathon 对 Fe-Cu 体系所做工作^[17], $\frac{\delta S}{k}$ 等于 2。

虽然使用 AKMC 方法构建的原子格点位置与实际情况并不完全一致(偏差 0.01 a_0),但是这样做在很多情况下可以简化建模的工作量,而且这种原子点阵映射是有效的;AKMC 方法的另一个优点就是可以对事件(跃迁)进行局域化处理,每条跃迁路径只与其近邻的体系环境有关,这样可以极大地简化计算^[5]。AKMC 方法可以尽可能正确地描述系统微观演化^[12],所以它的模拟更接近于真实情况。

2.2 基于空位跃迁的串行 KMC

基于空位跃迁的 AKMC 方法^[18]将空位作为跃迁对象,研究因其跃迁而引起的溶质析出过程。计算跃迁能量和跃迁概率时,可使用嵌入原子势方法(Embedded Atom Method, EAM)^[19]和 Pair 势方法。

RPV 钢基体材料为 BCC-Fe,它的晶格是体心立方的,如图 1 所示。一个空位的周边会有 8 个第一近邻,即一个空位在其第一近邻范围内会产生 8 个可能的跃迁事件,在获得跃迁事件的发生概率后,根据算法选择一个事件并执行^[18]。

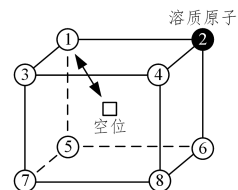


图 1 空位跃迁示意图

Fig. 1 Diagram of vacancy transition

串行算法是顺序执行的,在实际条件下模拟真实情况会受到极大的限制。串行算法的流程如图 2 所示。

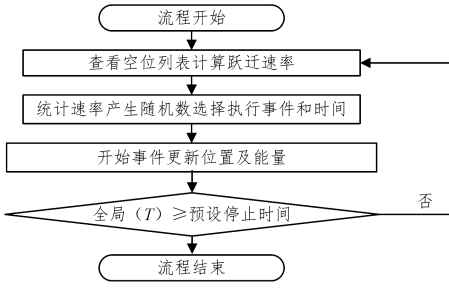


图2 基于空位跃迁的 AKMC 串行算法的流程

Fig. 2 Flow of AKMC serial algorithm based on vacancy transition

从串行算法的流程中不难看出,该算法在运算过程中是通过先选择一个事件然后发生该事件来执行的。发生选中事件前所经过的时间(串行时间增量)的计算公式为:

$$\Delta t = -\frac{\ln(\text{random})}{P_{\text{total}}} \quad (7)$$

其中, P_{total} 是体系处于某一状态时,所有可能跃迁事件对应的概率之和; random 是 $[0, 1]$ 中的随机数。时间增量 Δt , 与所有可能发生事件概率之和的倒数成正比。

2.3 基于空位跃迁的并行 KMC

并行程序通过区域分解、子域划分等保证了运算的规模,每个进程都按照一个固定的顺序在各个子域中独立执行 KMC 模拟,即在相同的时间步长内,每个子域都有空位跃迁发生。因此,子域不能太小,否则两个相邻进程的子域可能会对同一个区域造成影响,进而带来很大的误差。无论在什么时间,进程在同一时刻的模拟区域不会相互影响,避免了边界冲突。并行运算的流程如图 3 所示。

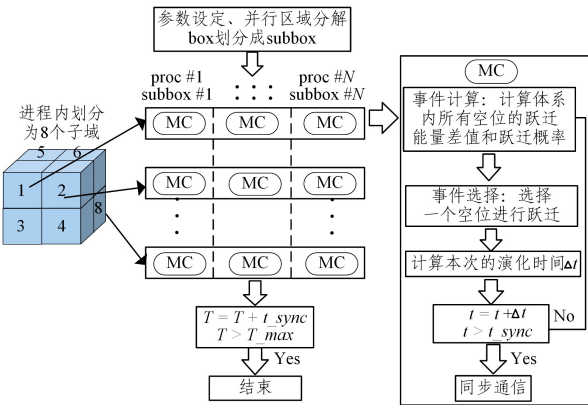


图3 AKMC 并行算法的流程

Fig. 3 Flow of AKMC parallel algorithm

(1) 参数设定: 主要从输入文件中读取各类参数,如模拟盒子大小、晶格常数、温度、势能参数、随机数种子等。在势能参数中,为了观察不同的势函数是否对整体运算产生影响,我们在 EAM 势之外又加入了 Pair 势。在 EAM 势中,原子的相互作用能由 Pair 势和 multi-body 势函数组成,在计算过程中最多会考虑到第三层近邻,其势能计算如式(8)所示:

$$E_{\text{EAM}} = \sum \left[\frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 \sum_{\nu} \epsilon_{(\rho_{\nu})} + F(\rho_{\mu}) \right] \quad (8)$$

其中, μ 和 ν 为原子标识, F 为多体嵌入势函数, ρ_{μ} 是在原子 μ 处的体系电子总密度。

而在独立的 Pair 势模型中,原子间的相互作用能仅使用

第二层近邻内原子对间键能进行表示,其势能计算如下:

$$E_{\text{pair}} = \sum_j \epsilon_{(\text{Fe-Fe})}^{(j)} + \sum_k \epsilon_{(\text{V-V})}^{(k)} + \sum_l \epsilon_{(\text{Fe-V})}^{(l)} + \sum_m \epsilon_{(\text{Fe-Cu})}^{(m)} + \sum_n \epsilon_{(\text{V-Cu})}^{(n)} + \sum_p \epsilon_{(\text{Cu-Cu})}^{(p)} \quad (9)$$

在晶格中,当 $i = 1$ 或 2 时,分别对应于第一近邻或第二近邻; j 为 Fe-Fe 键的个数, k 为 V-V 键的个数, l 为 Fe-V 键的个数, m 为 Fe-Cu 键的个数, n 为 V-Cu 键的个数, p 为 Cu-Cu 键的个数。

(2) 并行区域分解: 此模块是该程序中比较基础的部分之一。动力学蒙特卡洛方法根本上是一个串行算法,一个事件发生后,系统状态随之改变,这将影响下一个事件的选择。因此,要想对其进行并行化,必须进行近似。这种近似物理上可以解释为事件的空间解耦,即某个位置上的一个事件对系统中距离越远事件的依赖越小,这样距离相对较远的事件给整个系统带来的影响可以忽略不计,从而实现空间上的并行。与此同时,我们采用的 AKMC 模型在计算时本身就具有局域化的性质,进行区域并行化相对来说比较容易处理。

进行空间上的并行,需对模拟材料进行区域分解,一般在各个维度均匀分块。如图 3 所示,若在 3D 材料上对数个进程进行模拟,则可以在坐标 (x, y, z 轴) 上进行一个区域分解操作,每一个区域内的独立进程负责模拟演化,同时定时地对边界点进行通信,最后便可以得到整个材料的模拟结果。

(3) 进程内子域划分: 动力学蒙特卡洛方法(KMC)中原子的运动轨迹是一个随机过程^[20],不同进程对同一原子的模拟也可能出现不同的演化。因此,我们依据同步子域算法,在每个进程的区域再进行子域的划分(一共 8 个子域),然后统计各个子域内的空位和边界点等。为了使相邻进程对边界点信息的捕捉保持一致,要对子域同步时间 (t_{sync}) 进行判断, t_{sync} 的取值越小,表示边界区域更新越频繁,模拟结果越准确;然而,频繁的通信导致了较低的并行效率,因为并非所有的通信都是必要的。通过增加 t_{sync} ,并行效率会得到提高,但模拟结果的低精度也会更加明显。因此,我们对 t_{sync} 的设定进行了规范。

在输入文件中,我们自定义了 t_{stop} (同步时间间隔) 来保证 t_{sync} 的取值,并通过式(10)选择一个最小值赋给 t_{sync} 。

$$t_{\text{sync}} = \min(t_{\text{stop}}, T_{\text{max}} - T) \quad (10)$$

程序运行时,若 $T \leq T_{\text{max}}$,遍历每个子域。若子域内的运行时间 $t < t_{\text{sync}}$,执行跃迁事件,计算时间增量 Δt ,并将其累加至运行时间中;当 $t > t_{\text{sync}}$ 时,进行同步通信,并在通信结束后执行 $T += t_{\text{sync}}$,直到 $T > T_{\text{max}}$ 。

(4) 事件计算: 主要负责计算事件发生的概率。

(5) 事件选择: 负责 KMC 中关键的步骤——通过随机数选取发生的事件。

(6) 同步通信: 进行进程间消息的传递以保证数据同步,是保证模拟精度的关键因素。我们采用即时更新通信数据的方法进行通信,其原理分为两个部分: 在子域模拟过程中,将边界发生改变的格点信息存入指定的发送队列;确定邻居进程并发送队列中的数据。相邻区域的对应关系如图 4 所示。图 4 中的 1, 2, 3 区域属于进程 2 第 1 个子域的边界,同时 1 区域也属于进程 0, 1, 3 的边界,所以当进程 2 的 1 子域执行模拟时,将其模拟过程中边界发生改变的格点信息同时加入进程 0, 1, 3 的发送队列中,并在该子域结束模拟时发送队列内

的相应信息来更新相邻区域的信息,以此类推。

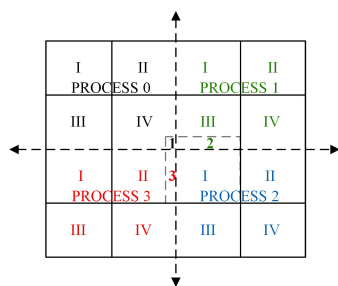


图 4 相邻子域模拟后邻居进程通信方法示意图

Fig. 4 Schematic diagram of communication method for sub-domain simulated post-neighbor processes

(7)结束;统计计算结果并输出。

3 数值实验

3.1 测试环境

在“神威·太湖之光”高效能计算系统上对该软件进行了测试,系统配置和系统环境如表 1 所列。

表 1 超级计算机“神威·太湖之光”的相关参数

Table 1 Parameters of supercomputer sunway taihu light

参数类型	参数
机器名称	“神威·太湖之光”
CPU 型号	“申威 26010”众核处理器 1.5GHz
节点核数	共 4 主核,256 从核
MPI 版本	基于 MPI3.0 开发的 SW-MPP
网络	神威高速计算互连网络

3.2 正确性和一致性

本次实验中,模拟溶剂原子是铁,溶质是占比为 1.5% 的铜,空位浓度是 $8 \times 10^{-4} \%$,模拟温度 $T=573\text{K}$,模拟规模为 $40a_0 \times 40a_0 \times 40a_0$,其中 a_0 为 BCC-Fe 的晶格常数(本文中为 2.8553\AA),是晶体物质的基本结构参数。将孤立溶质原子演化过程与文献[16]中的数据相对比,如图 5 所示。

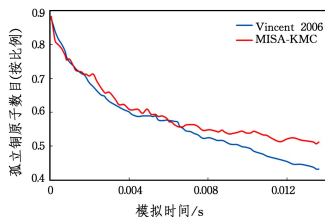


图 5 孤立溶质原子数目随时间函数的演变

Fig. 5 Evolution of number of isolated solute atoms as a function of time

从图 5 可以看出,随着模拟时间的延长,孤立铜原子的数目逐渐减少,原子的模拟过程是马尔可夫过程,模拟结果受随机数连续使用的影响,最终演化结果不同,但含有铜原子析出物的形成趋势与参考文献[16]中的数据是一致的,因此验证了 MISA-KMC 程序模拟结果的正确性。

下面测试单核、20 核、40 核以及 80 核(仅主核)来验证串行算法和并行算法的一致性,模拟规模为 $100a_0 \times 100a_0 \times 100a_0$,其余模拟条件与上述实验保持一致,模拟时长为 1×10^{-5} s。从图 6 看出,串行算法与并行算法在能量变化上存在波动,但总体都呈下降趋势。由表 2 可见,不同核数的运行

结果与串行结果基本保持一致(误差绝对值在可接受范围内)。

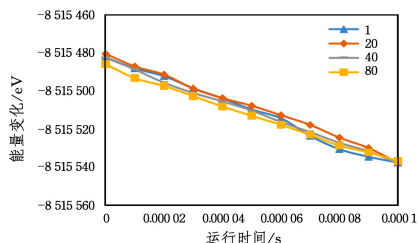


图 6 串并行算法的一致性比较

Fig. 6 Consistency comparison of serial algorithm and parallel algorithm

表 2 串行算法与并行算法结果的对比

Table 2 Comparison results of serial algorithm and parallel algorithm

算法	CPU 核数	末态能量/eV	误差绝对值
串行算法	1	-8515537.73	—
	20	-8515537.94	0.21
并行算法	40	-8515538.00	0.27
	80	-8515536.95	0.78

3.3 性能分析

为了验证并程序的大规模性能,我们在不同条件下测试该程序的强可扩展性和弱可扩展性。

首先,我们采用了两种势函数(EAM 势和 PAIR 势)在溶质为 0.009% 的铜和随机分布的 0.0045% 的空位环境下,使用 320 核、640 核、1280 核、2560 核(仅主核)进行并行程序的强可扩展性数值实验,模拟规模为 $1000a_0 \times 1000a_0 \times 1000a_0$,模拟时间 $t=0.0001$ s,模拟温度 $T=600\text{K}$ 。由于内存占用较多,程序无法从单个核开始计算,因此以 320 核为基准来计算程序的并行效率和加速比,实验结果如图 7 所示。

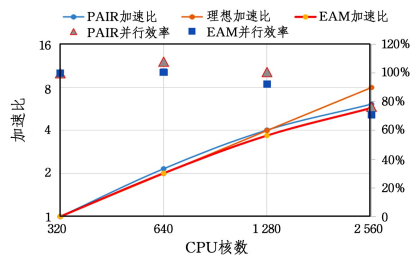


图 7 并行程序的强扩展性测试

Fig. 7 Strong scalability test of parallel program

可以看到,在 2560 核时,加速比达到了 5.76(EAM)和 6.12(Pair),并行效率为 71%(EAM)和 77%(Pair)。

保持每一个主核分配到的粒子数约为 3×10^6 ,分别对采用 EAM 势和 Pair 势的并行程序进行了弱扩展性的测试,如图 8 所示。与强扩展性一样,采用相同的溶质浓度、空位浓度、模拟时间 t 和模拟温度 T ,模拟规模随核数的增加而增加。可以看到,通信时间逐渐增多,这是由于核数不断增加使得各区域之间的通信工作量增加,在程序运行上千核以后,并行效率呈缓慢下降趋势,在 5160 核时,并行效率分别为 85.5%(EAM)和 115.1%(Pair)。图 7 与图 8 说明,本文程序具有良好的强扩展性和弱扩展性,可以扩展至大规模计算。

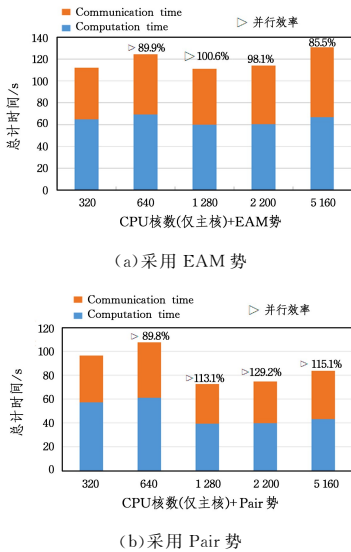


图8 并行程序弱扩展性测试

Fig. 8 Weak scalability test of parallel program

3.4 蒙特卡洛中的事件选择方法

蒙特卡洛方法中的事件选择方法(求解器-solve_style)是指从一个事件列表中随机挑选事件的方法^[21],包括线性(Linear)方法、树(Tree)或组(Group)方法。其中,线性方法是通过线性方式扫描事件列表来选择事件,因此选择事件的复杂度为 $O(N)$,其中 N 是事件的数量。该求解器可适用于少数量的事件模拟。树方法是通过创建概率及其总和的二叉树来选择事件,选择事件的复杂度为 $O(\log N)$ (N 为事件的数量)。组方法是通过预先分组然后再选择的方式来选择事件,计算复杂度为 $O(1)$ 。

我们分别对3种求解器进行了单核测试,溶质是占比1.34%的铜,空位浓度是 $5 \times 10^{-5}\%$,模拟温度为773K,模拟规模为 $128a_0 \times 128a_0 \times 64a_0$,结果如图9和图10所示。

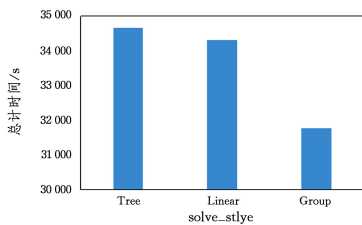


图9 不同求解器的时间统计

Fig. 9 Time statistics of different solvers

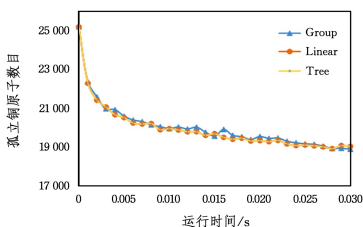


图10 标准参数下孤立原子随时间函数的演变

Fig. 10 Evolution of isolated atoms as a function of time

可以看出,在孤立原子沉淀效果几乎不变的情况下,组(Group)求解器要比线性(Linear)和树(Tree)求解器的效果好。

3.5 对RPV模型合金钢的模拟及结果分析

在实际材料中,溶质元素不只有Cu(铜)原子,还包含Si(硅)、Mn(锰)、Ni(镍)这些微量元素。本文利用MISA-KMC程序对多元合金体系中的溶质析出行为进行模拟研究,并与其他软件进行对比,以检验材料内原子演化状态的正确性(实验中所涉及的实际演化时间均由式(5)计算得出)。

图11(Cu=红色、Ni=绿色)、图12(Cu=红色、Mn=黑色、Si=蓝色)分别给出Fe-1.13Cu1.36Ni(%)二元合金、Fe-1.34Cu0.51Si1.93Mn(%)三元合金在MISA-KMC下的模拟情况。

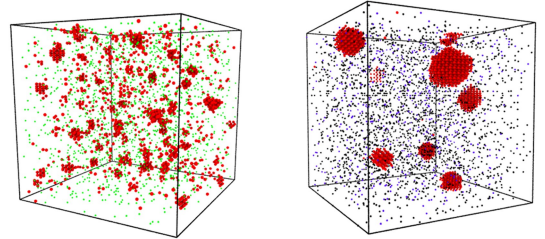
图11 二元合金模拟
(电子版为彩色)图12 三元合金模拟
(电子版为彩色)

Fig. 11 Binary alloy simulation Fig. 12 Ternary alloy simulation

以文献[7]为基准(各原子浓度占比如图11、图12所示),温度为823K,模拟规模为 $40a_0 \times 40a_0 \times 40a_0$,二元合金经过4h的实际演化微观结构产生变化,其中,最大铜原子团簇包含的原子数目为57。三元合金经过1440h的实际演化,析出了几乎纯铜的团簇,最大团簇包含的铜原子数目为629,周围环绕着少量的Mn和Ni,其微观结构变化与文献[7]的结果一致。

图13(Cu原子=红色、Si原子=蓝色、Mn原子=黄色、Ni原子=绿色)给出了四元合金在MISA-KMC中的模拟情况。

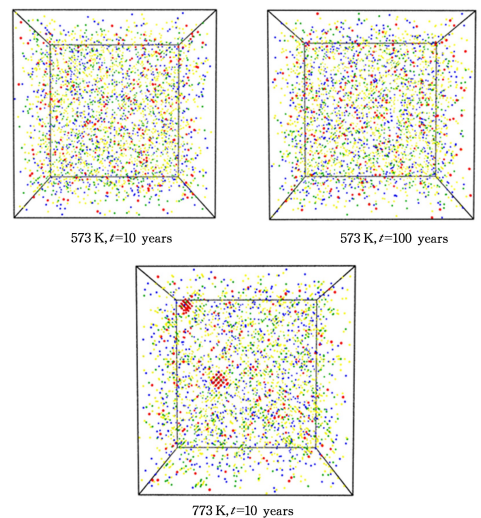


图13 Fe-0.2Cu0.63Si1.26Mn0.53Ni(%)合金模拟

Fig. 13 Fe-0.2Cu0.63Si1.26Mn0.53Ni(%) alloy simulation

以文献[16]为基准(各原子浓度占比如图13所示),温度为573K,模拟规模为 $40a_0 \times 40a_0 \times 40a_0$ 。经过10年和100年的实际演化,模拟结果中形成的最大溶质原子团簇包含5

个 Cu 原子,与文献中[16]得到的结果一致,其微观结构在 573K 下并没有发生太大的变化。

而在 773K 时,相同模拟参数下,经过 10 年的实际演化,同样形成了两种较大的富铜沉淀物(最大团簇包含的原子数为 34),组成结构的各原子占比为 $\text{Cu} \approx 87\%$, $\text{Si} \approx 4\%$, $\text{Mn} \approx 5\%$, $\text{Ni} \approx 4\%$,微观结构发生了根本性的变化,与文献[16]中的实验结果(最大团簇包含的原子数目为 35)相吻合。这种富铜沉淀物是引起压力容器钢脆化的主要微观结构之一。

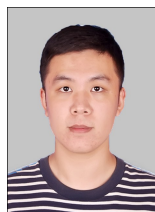
结束语 原子动力学蒙特卡洛方法是从原子尺度上研究材料内溶质析出行为的有力工具。针对 KMC 串行算法在某些条件下受到限制等问题,我们提出并行算法,自主开发了应用程序(MISA-KMC),并对其核心思想以及设计框架进行了概括。本文首先对程序的正确性以及串并行的一致性进行验证;在此基础上进行大规模测试,结果表明程序具有较好的并行效率,具备高可扩展性。最后利用程序研究了 RPV 模型合金钢中多元溶质的析出行为,并与文献结果进行对比,结果表明多元合金体系中会析出富 Cu 团簇。MISA-KMC 对材料内溶质析出行为的研究可为材料性能分析提供支撑。

参 考 文 献

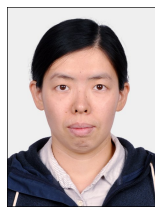
- [1] ODETTE G R, LUCAS G E. Embrittlement of nuclear reactor pressure vessels[J]. JOM, 2001, 53(7): 18-22.
- [2] MATHON M H, BARBU A, DUNSTETTER F, et al. Experimental study and modelling of copper precipitation under electron irradiation in dilute FeCu binary alloys[J]. Journal of Nuclear Materials, 1997, 245(2): 224-237.
- [3] PEREZ M, PERRARD F, MASSARDIER V, et al. Low-temperature solubility of copper in iron: experimental study using thermoelectric power, small angle X-ray scattering and tomographic atom probe[J]. Philosophical Magazine, 2005, 85(20): 2197-2210.
- [4] VINCENT E, BECQUART C S, PAREIGE C, et al. Precipitation of the FeCu system: A critical review of atomic kinetic Monte Carlo simulations[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 373(1/2/3): 387-401.
- [5] YOUNG W M, ELCOCK E W. Monte Carlo studies of vacancy migration in binary ordered alloys: I[J]. Proceedings of the Physical Society, 1966, 89(3): 735.
- [6] VOTER A F. Introduction to the Kinetic Monte Carlo Method [M]// Radiation Effects in Solids. Dordrecht: Springer, 2007.
- [7] BECQUART C S, DOMAIN C. Introducing chemistry in atomistic kinetic Monte Carlo simulations of Fe alloys under irradiation[J]. Physica Status Solidi, 2010, 247(1): 9-22.
- [8] MARTIN-BRAGADO I, RIVERA A, VALLES G, et al. MMon-Ca: An Object Kinetic Monte Carlo simulator for damage irradiation evolution and defect diffusion[J]. Computer Physics Communications, 2013, 184(12): 2703-2710.
- [9] JOURDAN T, BOCQUET J L, SOISSON F. Modeling homogeneous precipitation with an event-based Monte Carlo method: Application to the case of Fe-Cu[J]. Acta Materialia, 2010, 58(9): 3295-3302.
- [10] EL-MELLOUHI F, MOUSSEAU N, LEWIS L J. The Kinetic

Activation-Relaxation Technique: A Powerful Off-lattice On-the-fly Kinetic Monte Carlo Algorithm[J]. Physical Review B, 2008, 78(15): 153202.

- [11] SOISSON F, FU C C. Cu-precipitation kinetics in α -Fe from atomistic simulations: Vacancy-trapping effects and Cu-cluster mobility[J]. Physical Review B, 2007, 76(21): 4102.
- [12] SOISSON F, BECQUART C S, CASTIN N, et al. Atomistic Kinetic Monte Carlo studies of microchemical evolutions driven by diffusion processes under irradiation[J]. Journal of Nuclear Materials, 2010, 406(1): 55-67.
- [13] CASTIN N, PASCUET M I, MALERBA L. Modeling the first stages of Cu precipitation in α -Fe using a hybrid atomistic kinetic Monte Carlo approach[J]. The Journal of Chemical Physics, 2011, 135(6): 064502.
- [14] SOISSON F, BARBU A, MARTIN G. Monte Carlo simulations of copper precipitation in dilute iron-copper alloys during thermal ageing and under electron irradiation[J]. Acta Materialia, 1996, 44(9): 3789.
- [15] BORTZ A B, KALOS M H, LEBOWITZ J L. A new algorithm for Monte Carlo simulation of Ising spin systems [J]. Journal of Computational Physics, 1975, 17(1): 10-18.
- [16] VINCENT E, BECQUART C S, DOMAIN C. Solute interaction with point defects in α -Fe during thermal ageing: A combined ab initio and atomic kinetic Monte Carlo approach[J]. Journal of Nuclear Materials, 2006, 351(1/2/3): 88-99.
- [17] MATHON M H, BARBU A, DUNSTETTER F, et al. Experimental study and modelling of copper precipitation under electron irradiation in dilute FeCu binary alloys[J]. Journal of Nuclear Materials, 1997, 245(2): 224-237.
- [18] DOMAIN C, BECQUART C S, MALERBA L. Simulation of radiation damage in Fe alloys: an object kinetic Monte Carlo approach[J]. Journal of Nuclear Materials, 2004, 335(1): 121-145.
- [19] DAW M S, BASKES M I. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals[J]. Physical Review B Condensed Matter, 1984, 29(12): 6443-6453.
- [20] ALDER B J, WAINWRIGHT T E. Phase Transition for a Hard Sphere System[J]. Journal of Chemical Physics, 2004, 27(5): 1208-1209.
- [21] GILLESPIE D T. A general method for numerically simulating the stochastic time evolution of coupled chemical reactions[J]. Journal of Computational Physics, 1976, 22(4): 403-434.



WANG Dong, born in 1995, postgraduate. His main research interests include computer application technology and so on.



SHANG Hong-hui, born in 1984, Ph.D., associate professor. Her main research interests include the development of the first-principles methods and their applications on the high-performance computer systems.