

$U_{1-x}Pu_xO_2$ 热膨胀性质分子动力学模拟研究*

王丽莉¹⁾ 万明杰²⁾ 马江将³⁾ 蒋刚^{3)†}

1) (中国工程物理研究院计算机应用研究所, 绵阳 621900)

2) (宜宾学院, 计算物理四川省高等学校重点实验室, 宜宾 644007)

3) (四川大学原子与分子研究所, 成都 610065)

(2013年11月28日收到; 2014年1月9日收到修改稿)

基于部分离子势函数的分子动力学方法, 研究了 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25$ 和 0.5) 在 $300\text{--}3000\text{ K}$ 温度范围和 $0\text{--}1.5\text{ GPa}$ 下的热力学性质. 研究发现, 在等压和不同温度下, 随着钚 (Pu) 比率的增加, $U_{1-x}Pu_xO_2$ 的晶格常数线性减小, 线性膨胀系数有所增大, 等温压缩系数减小. 通过拟合得到了零压下 $U_{1-x}Pu_xO_2$ 晶格常数和线膨胀系数随 Pu 比率变化的经验表达式.

关键词: 分子动力学, 部分离子势, 线性膨胀系数, 等温压缩系数

PACS: 31.15.xv, 65.40.De, 65.40.G-, 65.60.+a

DOI: 10.7498/aps.63.083103

1 引言

目前, 很多核反应堆的燃料都是混合氧化物燃料 (MOX), 例如俄罗斯的 VVER-1000 压水堆、美国的压水反应堆. 各个国家的安全性能分析证明 MOX 燃料能在反应堆中安全燃烧. 这些安全性分析须依据 MOX 燃料的热力学性能, 尤其是其高温下的热力学数据.

近十几年来, 钚 (Pu) 和铀 (U) 的氧化物和氢化物的光谱性质、外场效应、光学性质和磁性等已有少量的研究^[1-9]. 然而, MOX 燃料的热力学性质的实验数据并不完整, 一般都是通过 Vegard 法则拟合 U 和 Pu 相关物理量的实验数据得到的. 目前为止, 有少量的文献采用分子动力学方法或从头计算第一性原理来模拟计算核材料的热力学性能^[10-21]. 2005 年, Arima 等^[14] 给出了关于 Pu 和 U 对势的相关参数, 并模拟了 UO_2 , PuO_2 从 $300\text{--}2000\text{ K}$ 下的热力学性质, 包括晶格常数、压缩系数、体弹模量以及热导率. 以压缩系数 β 为

例, UO_2 和 PuO_2 的 β 值在室温下为分别为 0.00446 和 0.00427 GPa^{-1} , 分别符合 UO_2 和 PuO_2 的实验值 $0.00432\text{--}0.00495$ 和 0.00435 GPa^{-1} . 说明该势函数能够有效模拟 MOX 燃料的热力学性质. 2011 年, Basak 和 Kolokol^[19] 模拟了 $U_{0.8}Pu_{0.2}O_2$ 燃料的热力学性质, 低于 2200 K 时, 晶格常数和 Vegard 法则给出的参考值符合得很好, 高于 2200 K 后, 晶格常数小于参考值.

采用基于部分离子势 (PIM) 的分子动力学方法模拟了 $U_{1-x}Pu_xO_2$ 燃料在 $300\text{--}3000\text{ K}$ 温度区间的热力学性质, 包括晶格常数、膨胀系数和压缩系数, 并给出了经验表达式.

2 计算方法

对于同晶的理想系统, 如 MOX 核燃料, Pu 和 U 适合选取不同的势函数. 针对 MOX 体系, 目前存在的势函数有 Arima 等^[14]、Kurosaki 等^[18]、Basak 等^[19] 和 MOX-07^[20,21] 开发的 PIM 离子势, 其表达

* 中国工程物理研究院预研项目资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: gjiang@scu.edu.com

式为

$$\begin{aligned}
 U_{\text{PIM}}(r_{ij}) = & \frac{z_i z_j e^2}{r_{ij}} + f_0(b_i + b_j) \\
 & \times \exp\left(\frac{a_i + a_j - r_{ij}}{b_i + b_j}\right) \left(-\frac{r_{ij}}{\rho_j}\right) \\
 & - \frac{C_{ij}}{r_{ij}^6}, \quad (1)
 \end{aligned}$$

其中, f_0 为调节参数, 选取 4.186; z_i 是有效电荷; a_i , b_i 和 c_i 为 i 类型离子的势参数.

(U, Pu) O_2 和 UO_2 , PuO_2 有着同样的晶体结构, 都是萤石结构, 单胞中 4 个金属离子 (Pu^{4+} 或 U^{4+}), 8 个氧离子 O^{2-} , 对应 $Fm-3m$ 空间群. 模拟体系初始为 $6 \times 6 \times 6$ 的 UO_2 超晶胞. 由 Pu 离子替代 U 离子的方法有多种, 本文选取体系中 Pu 离子取代顶位的 U 离子, 构成 $\text{Pu} : \text{U} = 1 : 3$, 计算 $\text{U}_{0.75}\text{Pu}_{0.25}\text{O}_2$ 的热力学性质. 在此基础上, 用 Pu 随机取代 U 形成 $\text{U}_{0.5}\text{Pu}_{0.5}\text{O}_2$ 的初始结构, 用 U 取代 Pu 形成 $\text{U}_{0.85}\text{Pu}_{0.15}\text{O}_2$ 和 $\text{U}_{0.93}\text{Pu}_{0.07}\text{O}_2$ 的初始结构. 由于实际结构的随机性, 我们不能保证 U 和 Pu 的原子位置重现真正意义上的随机结构. 模拟中选取等温等压 (NPT) 系综, 采用 Nose-Hoover 控温控压 [22,23], 时间步长为 1 fs. 能量收敛精度选取 10^{-5} eV, 长程库仑力采用 Ewald 求和法 [24]. 本工作在 LAMMPS 程序 [25] 下完成.

我们对 $\text{U}_{1-x}\text{Pu}_x\text{O}_2$ 体系进行模拟, 其中 $x = 0.07, 0.15, 0.25$ 和 0.5 , 并与 PuO_2 以及 Vegard 推荐值进行对比.

3 结果与讨论

3.1 晶格常数

首先采用 Arima 势和 MOX-07 势分别模拟了零压下 $\text{U}_{0.75}\text{Pu}_{0.25}\text{O}_2$ 的晶格常数随温度的变化, 温度变化范围为 300—3000 K, 见图 1, 并与其他理论值和实验值进行比较. 可以看出, Arima 势的模拟结果和文献 [19] 更为接近, 趋势相同, 各温度下的值略小于文献 [19]; 而 MOX-07 在低温下的晶格常数要小于 Arima 势的值以及 Martin 的值 [15], 高温下的值大于 Arima 势, 这样必然会过高地估计线性膨胀系数 α 以及其他的热力学性质. 所以我们选用了 Arima 势来模拟 MOX 燃料的热力学性质.

图 1 中 Martin 的曲线 [15] 是通过实验值结合 Vegrad 法则拟合出来的. 对于理想的 MOX 燃料, 其相关的物理性质可由 PuO_2 和 UO_2 的值通过 Vegrad 法则拟合得到. Vegrad 法则可以写为

$$F(\text{U}_{1-x}\text{Pu}_x\text{O}_2) = (1-x)F_{\text{UO}_2} + xF_{\text{PuO}_2}, \quad (2)$$

式中 F 为相关的物理性质, x 为 PuO_2 的摩尔百分比. 从图 1 中还可以看出, 在 1500 K 以下时, 本文的模拟的结果和 Martin 通过实验值结合 Vegrad 法则拟合得到的结果符合得很好, 但高于 2000 K 后, 本文模拟的晶格常数相比于 Martin 的结果明显偏低. Yamada 等 [10] 模拟得到 UO_2 中由于 O 的子晶格不稳定性导致了当温度高于 2350 K 后体系存在 Bredig 过渡, 而 PuO_2 体系不存在 Bredig 过渡, 由此导致了模拟结果偏向 PuO_2 的值. 也就是说, 此结构已经偏离了理想的结构, 和 Basak 的模拟结果一致.

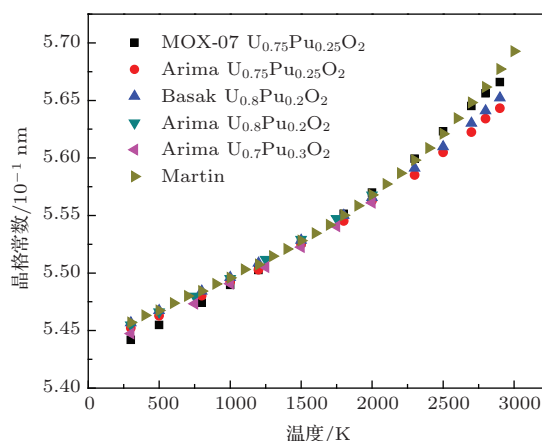


图 1 零压下 $\text{U}_{0.75}\text{Pu}_{0.25}\text{O}_2$ 的晶格常数随温度的变化以及 MOX-07 势和 Arima 势的对比, 温度范围为 300—3000 K

图 2 描述的是零压下 $\text{U}_{1-x}\text{Pu}_x\text{O}_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$) 的晶格常数, 线条为 Vegrad 法则的计算值, 由于对 UO_2 的热力学性质研究已经比较完善, 本文没有对 UO_2 进行模拟. 晶格常数选取用的是 Martin 的实验值, PuO_2 的晶格常数选取以前的模拟结果 [26].

对于其他比率 Pu 的 MOX 燃料的晶格常数也和 $\text{U}_{0.75}\text{Pu}_{0.25}\text{O}_2$ 类似, 低温和 Vegrad 法则的值符合很好, 高温时比 Vegard 推荐值要小, 偏向 PuO_2 结构的值, 偏离了理想结构. 可以看到随着 x 的增加, 晶格常数也相应地变小, 即 $L_{7\%}\text{Pu} > L_{15\%}\text{Pu} > L_{25\%}\text{Pu} > L_{50\%}\text{Pu}$. 本文的

模拟结果和 Vegrad 法则给出的参考值符合得很好, 这也说明模拟的晶格常数是可靠的.

晶格常数通过四阶多项式函数进行拟合:

$$L(T) = a_0 + a_1T + a_2T^2 + a_3T^3 + a_4T^4, \quad (3)$$

分别得到 Vegrad 法则下和本文模拟的 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$) 的参数, 见表 1. 可以分别得到本文模拟的各个结构晶格常数的拟合表达式如下:

$$L(T)_{7\%MOX} = 5.44996 + 4.68T + 9.9816T^2 - 3.128T^3 + 8.8606T^4,$$

$$L(T)_{15\%MOX} = 5.4483 + 4.6T + 9.987T^2 - 3.1079T^3 + 8.4738T^4,$$

$$L(T)_{25\%MOX} = 5.43766 + 4.58T + 9.892T^2 - 3.0087T^3 + 8.3808T^4,$$

$$L(T)_{50\%MOX} = 5.42071 + 4.668T + 7.082T^2 - 1.8087T^3 + 6.0803T^4. \quad (4)$$

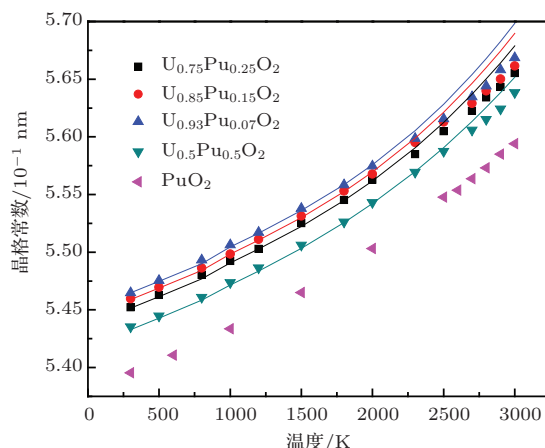


图2 零压下 Amira 势模拟的 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$) 的晶格常数随温度的变化趋势, 线条为 Vegrad 法则的拟合值

表1 晶格常数的拟合参数

		$a_0/\text{\AA}$	$a_1(10^{-5})/\text{\AA}\cdot\text{K}^{-1}$	$a_2(10^{-9})/\text{\AA}\cdot\text{K}^{-2}$	$a_3(10^{-12})/\text{\AA}\cdot\text{K}^{-3}$	$a_4(10^{-16})/\text{\AA}\cdot\text{K}^{-4}$	$L_{300}/\text{\AA}$
$U_{0.93}Pu_{0.07}O_2$	本文工作	5.44996	4.68	9.9816	-3.1288	8.8606	5.46482
	Vegrad 法则	5.44960	4.71	8.2701	-2.4404	12.1390	5.46485
$U_{0.85}Pu_{0.15}O_2$	本文工作	5.44483	4.60	9.987	-3.1079	8.4735	5.45975
	Vegrad 法则	5.44390	4.86	5.022	-1.1499	10.5250	5.45889
$U_{0.75}Pu_{0.25}O_2$	本文工作	5.43766	4.58	9.892	-3.0087	8.38080	5.45218
	Vegrad 法则	5.43676	4.79	4.975	-1.0589	10.2170	5.45134
$U_{0.5}Pu_{0.5}O_2$	本文工作	5.42071	4.568	7.182	-1.8087	6.1803	5.43532
	Vegrad 法则	5.41843	4.710	4.899	-1.1870	9.8800	5.43280

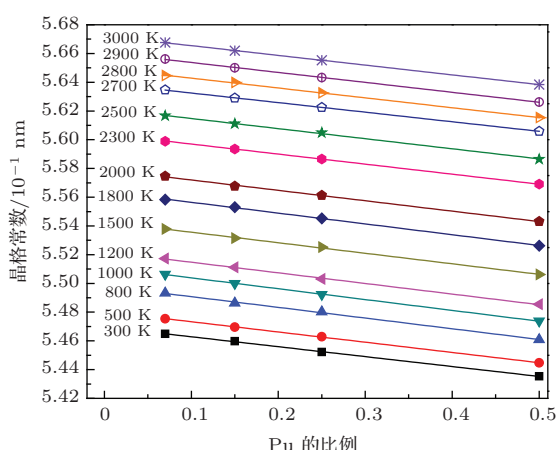


图3 零压下晶格常数随 Pu 比率增大的变化趋势, 实线为 Vegrad 法则下的计算值

在零压下, 体系温度低于 2000 K 以前, MOX 晶格常数的变化规律符合 Vegrad 法则; 但体系温度高于 2000 K 后, MOX 偏离了理想结构. 为找出

其变化的规律, 我们给出了在相同的温度下 MOX 的晶格常数随着 Pu 比例增加的变化趋势, 见图 3. 图中分别给出了从 300—3000 K 的曲线, 线条为各个温度下对晶格常数的拟合.

在体系低于 2000 K 时, 与预计结果一样, 由于符合 Vegrad 法则, 所以各个温度下的晶格常数都是随 Pu 比率的增大而线性减小. 同样, 从图中还可以看出, 在体系温度高于 2000 K 以后, 虽然我们模拟的晶格常数的结果不满足 Vegrad 法则, 但是晶格常数也是随 MOX 中 Pu 含量的增加呈线性减小的趋势. 对于其线性变化的拟合值见表 2.

从表 2 可以看出, 从 2000 K 以后拟合的斜率比 2000 K 时的绝对值要小, 即相比于在 2000 K 温度时晶格常数增加的趋势有所减缓, 也可以从另一方面反映出 MOX 的晶格常数偏向于 PuO_2 .

表2 零压及不同温度下晶格常数随Pu比率变化的拟合参数, $L = A + Bx$

	300 K	500 K	800 K	1000 K	1200 K	1500 K	1800 K
$A/\text{\AA}$	5.46975	5.48044	5.49821	5.51138	5.52212	5.54295	5.56394
$B/\text{\AA}$	-0.06900	-0.07123	-0.07445	-0.07543	-0.07387	-0.07328	-0.07513
	2000 K	2300 K	2500 K	2700 K	2800 K	2900 K	3000 K
$A/\text{\AA}$	5.57922	5.60397	5.62177	5.63916	5.64972	5.66066	5.67223
$B/\text{\AA}$	-0.07233	-0.06985	-0.07022	-0.06663	-0.06861	-0.06914	-0.06774

由于其斜率不相同, 故不同Pu比率下的MOX膨胀系数不同, 我们将在下一节讨论其膨胀系数.

3.2 膨胀系数

因为本文研究的温度范围是从300—3000 K, 所以选择了 L_{300} (300 K时的晶格常数)作为计算膨胀系数的初始值. 图4给出了 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$)的相对线性热力学膨胀 $\Delta L/L_{300}$. 在2000 K以下, 不同的Pu含量 ($x = 0, 0.07, 0.15, 0.25, 0.5, 1$) MOX燃料的 $\Delta L/L_{300}$ 基本相等; 在高于2000 K后MOX燃料的 $\Delta L/L_{300}$ 的值基本和 PuO_2 相等, 而 UO_2 增长速度明显增大. 可以清楚地看出MOX的晶格常数在高温下偏向 PuO_2 . 这一结果和文献[10—19]模拟的 $U_{0.8}Pu_{0.2}O_2$ 趋势相同.

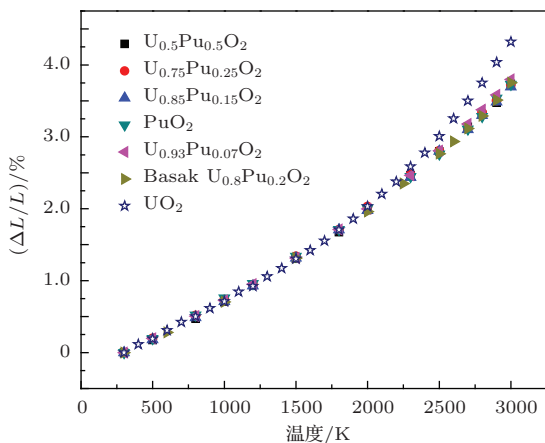


图4 零压下 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$)的相对热力学膨胀

线性热力学膨胀系数可以表示为

$$\alpha(T) = \frac{1}{L_{300}} \left(\frac{dL(T)}{dT} \right)_P, \quad (5)$$

结合(4)式, 我们可以得到MOX的线性热力学膨胀系数. 图5给出了MOX在零压下不同Pu含量下的线性膨胀系数随温度的变化趋势. 本文的模

拟结果和Vegard法则的推荐值以及文献[19]模拟的20% MOX的值进行了对比. 本文计算的结果整体上比文献[19]的模拟结果略小, 在低于1200 K时和Vegard法则的推荐值符合得很好. 随着Pu比率的增加, 线性膨胀系数逐渐的减小, 和Vegard法则的规律吻合. 由于各温度下MOX的相对热力学膨胀基本相等, 可以从图4中清楚地看出 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$)每条曲线的相对热力学膨胀的变化趋势基本一样, 不同Pu含量的MOX燃料线性膨胀系数的差别不大, 这些趋势同样在图5中可以反映出.

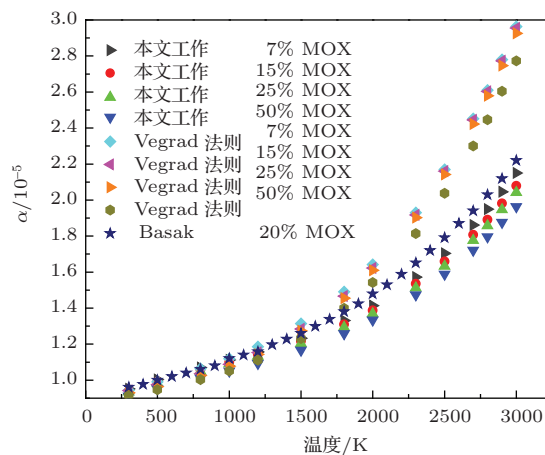


图5 零压下 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$)的线性膨胀系数

表3分别列出了低温下(300—1200 K) MOX燃料的 $\alpha(T)$, 并和Vegard法则的推荐值进行对比. 所有结果和推荐值的误差都不超过3%, 在低温下符合得很好.

3.3 等温压缩系数

等温压缩系数表示为

$$\beta_T = -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P} \right)_T. \quad (6)$$

我们计算了晶格体积随压强的变化, 压强从 0—1.5 GPa, 温度从 300—3000 K 变化. 图 6 分别给出了在 300 K 下, $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15,$

0.25, 0.5) 体积随压强的变化, 并与 PuO_2 比较. 因为 UO_2 的单胞体积比 PuO_2 大, 随着 x 增大, 同一压强下的晶格体积减小, 符合 Vegard 法则.

表 3 300 和 1200 K 下 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$) 的线性膨胀系数 ($\times 10^{-6}$)

温度	$U_{0.93}Pu_{0.07}O_2$		$U_{0.85}Pu_{0.15}O_2$		$U_{0.75}Pu_{0.25}O_2$		$U_{0.5}Pu_{0.5}O_2$	
	本文工作	Vegard 法则	本文工作	Vegard 法则	本文工作	Vegard 法则	本文工作	Vegard 法则
300 K	9.5155	9.4301	9.3859	9.4188	9.3446	9.3020	9.1190	9.1399
1200 K	11.57	11.86	11.42	11.53	11.32	11.43	10.920	11.109

通过图 6 可以拟合出 300 K 下的压缩系数, 通过同样的方法可以得到不同温度下的等温压缩系数, 这样就可以得到不同 Pu 含量 MOX 燃料各个温度下的压缩系数曲线, 压缩系数随温度变化的曲线在图 7 中描绘, 其中线条为拟合的曲线.

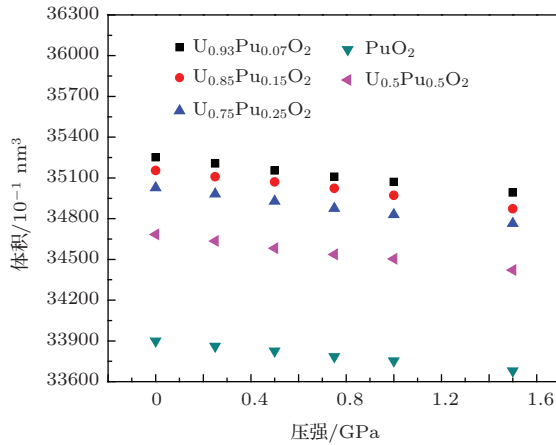


图 6 300 K 下 $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$) 体积随压强的变化趋势

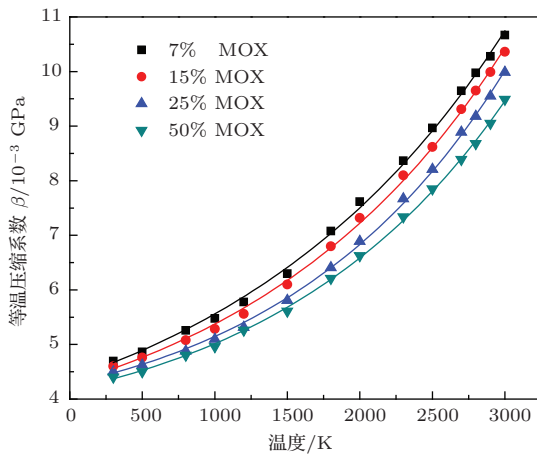


图 7 MOX 的等温压缩系数随温度的变化, 线条为拟合的曲线

我们模拟得到的等温压缩系数随着 MOX 中

Pu 比例的增加而减小, 温度越高, 变化的趋势越加明显. 300 K 时, 得到 7% MOX, 15% MOX, 25% MOX 以及 50% MOX 的弹性模量分别为 212.9517, 217.3913, 222.195 和 227.22 GPa; 由于没有 MOX 的实验值进行对比, 我们采用 Vegard 法则以及 PuO_2 和 UO_2 的实验数据拟合得到 MOX 燃料的弹性模量分别为 203.97—231.37, 206.2—231.2, 208.98—231.08 和 215.9—230.7 GPa. 300 K 时, 模拟的不同 Pu 比例的 MOX 的压缩系数都与 Vegard 推荐值符合得很好.

等温压缩系数可以通过 (7) 式拟合, 其中 β_0 为 0 K 下的等温压缩系数, a 和 b 为拟合参数,

$$\beta_T = \beta_0 \exp(aT + bT^2), \quad (7)$$

拟合得到 MOX 的压缩系数的经验表达式, 温度范围为 300—3000 K:

$$\begin{aligned}
 (\beta_T)_{7\%MOX} &= 0.004369 \exp(0.00021T \\
 &\quad + 2.9492 \times 10^{-8}T^2) \text{ GPa}^{-1}, \\
 (\beta_T)_{15\%MOX} &= 0.004298 \exp(0.00019T \\
 &\quad + 3.6024 \times 10^{-8}T^2) \text{ GPa}^{-1}, \\
 (\beta_T)_{25\%MOX} &= 0.0042804 \exp(0.00013T \\
 &\quad + 4.9575 \times 10^{-8}T^2) \text{ GPa}^{-1}, \\
 (\beta_T)_{50\%MOX} &= 0.0041765 \exp(0.00014T \\
 &\quad + 4.476 \times 10^{-8}T^2) \text{ GPa}^{-1}.
 \end{aligned} \quad (8)$$

4 结 论

我们采用基于部分离子势的分子动力学方法模拟了混合燃料 $U_{1-x}Pu_xO_2$ 的热力学性质, 计算了其晶格常数、线性膨胀系数、等温压缩系数.

Pu的比例为7%, 15%, 25% 和50%, 温度范围为300—3000 K, 压强范围为0—1.5 GPa.

模拟得到在等压条件下, 不同温度时 $U_{1-x}Pu_xO_2$ 的晶格常数随着Pu比率的不同而变化的规律, 在低于2000 K情况下和Vegard法则的推荐值符合得很好, 随着Pu比率的增大, 晶格常数线性减小, 高于2000 K后, 由于 UO_2 中O的子晶格不稳定性导致了体系存在Bredig过渡, MOX不满足Vegard法则, 其晶格常数偏向 PuO_2 , 晶格常数仍然线性减小. 随后得到了各个不同Pu比率下的线性膨胀系数, 随Pu比率的变大, 线性膨胀系数增大. 通过拟合得到了零压下不同Pu比率的晶格常数和线性膨胀系数的经验表达式. 等温压缩系数随Pu比率的增大而减小.

由于没有实验值和理论值做对比, 我们和Vegard法则的推荐值以及部分的 $U_{0.8}Pu_{0.2}O_2$ 的理论值对比, 得到了合理的结果, 补充了部分的热力学数据.

参考文献

- [1] Xie A D, Meng D Q, Luo D L, Ma M Z, Zhu Z H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2180 (in Chinese)[谢安东, 蒙大桥, 罗德礼, 马美仲, 朱正和 2006 物理学报 **55** 2180]
- [2] Gao T, Wang H Y, Yi Y G, Tan M L, Zhu Z H, Sun Y, Wang X L, Fu Y B 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 2222 (in Chinese)[高涛, 王红艳, 易有根, 谭明亮, 朱正和, 孙颖, 汪小琳, 傅依备 1999 物理学报 **48** 2222]
- [3] Li Q, Liu X Y, Gao T, Zhu Z H, Fu Y B, Wang X L, Sun Y 2000 *Acta Phys. Chim. Sin.* **16** 987 (in Chinese)[李权, 刘晓亚, 高涛, 朱正和, 傅依备, 汪小琳, 孙颖 2000 物理化学学报 **16** 987]
- [4] Gao T, Zhu Z H, Wang X L, Sun Y, Meng D Q 2004 *Acta Chim. Sin.* **62** 454 (in Chinese) [高涛, 朱正和, 汪小琳, 孙颖, 蒙大桥 2004 化学学报 **62** 454]
- [5] Gao T, Sun Y 1999 *Acta Phys. Chim. Sin.* **15** 1082 (in Chinese)[高涛, 孙颖 1999 物理化学学报 **15** 1082]
- [6] Gao T, Zhu Z H, Li G, Sun Y, Wang X L 2004 *Chin. J. Chem. Phys.* **5** 554 (in Chinese)[高涛, 朱正和, 李赣, 孙颖, 汪小琳 2004 化学物理学报 **5** 554]
- [7] Wang H Y, Gao T, Yi Y G, Tan M L, Zhu Z H, Fu Y B, Wang X L, Sun Y 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 2215 (in Chinese)[王红艳, 高涛, 易有根, 谭明亮, 朱正和, 傅依备, 汪小琳, 孙颖 1999 物理学报 **48** 2215]
- [8] Chu M F, Meng D Q, Lai X C, Lü X C, Bai B, Zhang Y B 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4895 (in Chinese)[褚明福, 蒙大桥, 赖新春, 吕学超, 白彬, 张永彬 2009 物理学报 **58** 4895]
- [9] Guo Y, Ai J J, Gao T, Ao B Y 2013 *Chin. Phys. B* **22** 057103
- [10] Yamada K, Kurosaki K, Uno M, Yamanaka S 2000 *J. Alloy. Compd.* **307** 1
- [11] Tiwary P, van de Walle A, Jeon B, Gronbech-Jensen N 2011 *Phys. Rev. B* **83** 094104
- [12] Minamoto S, Kato M, Konashi K, Kawazoe Y 2009 *J. Nucl. Mater.* **385** 18
- [13] Morelona N D, Ghaleb D, Delaye J M, van Brutzela L 2003 *Phil. Mag.* **83** 1533
- [14] Arima T, Yamasaki S, Inagaki Y, Idemitsu K 2005 *J. Alloy. Compd.* **400** 43
- [15] Martin D G 1988 *J. Nucl. Mater.* **152** 94
- [16] Potashnikov S I, Boyarchenkov A S, Nekrasov K A, Kupryazhkin A Y 2011 *J. Nucl. Mater.* **419** 217
- [17] Kurosaki K, Yamada K, Uno M, Yamanaka S, Yamamoto K, Namekawa T 2011 *J. Nucl. Mater.* **294** 160
- [18] Carbajo J J, Yoder L G, Popov S G, Ivanov V K 2001 *J. Nucl. Mater.* **299** 181
- [19] Basak C B, Kolokol A S 2012 *J. Am. Ceram. Soc.* **95** 1435
- [20] Potashnikov S I, Boyarchenkov A S, Nekrasov K A, Kupryazhkin A Y 2007 *ISJAE* **8** 43
- [21] Potashnikov S I, Boyarchenkov A S, Nekrasov K A, Kupryazhkin A Y 2007 *ISJAE* **5** 86
- [22] Hoover W G 1985 *Phys. Rev. A* **34** 2499
- [23] Melchionna S, Ciccotti G, Holian B L 1993 *Mol. Phys.* **78** 533
- [24] Ewald P 1921 *Ann. Phys.* **64** 253
- [25] <http://lammmps.sandia.gov>
- [26] Wan M J, Zhang L, Du J G, Huang D H, Wang L L, Gang G 2012 *Physica B* **407** 4595

Molecular dynamic study on thermal expansion of $U_{1-x}Pu_xO_2$ *

Wang Li-Li¹⁾ Wan Ming-Jie²⁾ Ma Jiang-Jiang³⁾ Jiang Gang^{3)†}

1) (*Institute of Computer Application, China Academy of Engineering Physics, Miangyang 621900, China*)

2) (*Computational Physics Key laboratory of Sichuan Province, Yibin University, Yibin 644007, China*)

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

(Received 28 November 2013; revised manuscript received 9 January 2014)

Abstract

Molecular dynamic simulation is performed to investigate the thermal properties of $U_{1-x}Pu_xO_2$ ($x = 0.07, 0.15, 0.25, 0.5$) using the potential of partially ionic model at temperatures ranging from 300 to 3000 K and pressures in a range of 0–1.5 GPa. The results indicate that the lattice parameters decrease linearly with Pu ratio increasing under different temperatures. The linear expansion coefficient increases with Pu ratio increasing. The isothermal compressibility decreases with Pu ratio decreasing. In addition, the experience functions of lattice parameter and linear expansion coefficient are also derived.

Keywords: molecular dynamics, partially ionic model, thermal expansion, isothermal compressibility

PACS: 31.15.xv, 65.40.De, 65.40.G-, 65.60.+a

DOI: [10.7498/aps.63.083103](https://doi.org/10.7498/aps.63.083103)

* Project supported by the Pre-Research Project of China Academy of Engineering Physics.

† Corresponding author. E-mail: gjiang@scu.edu.com