

大晶粒 UO_2 燃料裂变气体释放行为相场模拟研究*

刘东昆 王庆宇† 张田 周羽 王翔

(哈尔滨工程大学核科学与技术学院, 哈尔滨 150001)

(2023年11月9日收到; 2023年12月11日收到修改稿)

为预测大晶粒 UO_2 燃料中裂变气体的释放行为, 从而为事故容错燃料的发展提供支持, 本文采用相场模型, 对裂变气体在 UO_2 多晶微观结构中的释放行为进行了模拟. 该模型采用一组耦合的 Cahn-Hilliard 方程与 Allen-Cahn 方程, 用守恒场变量表示裂变气体与空位的分布, 以及用序参量区分气泡相与基质相. 该模型重点考察了不同晶粒尺寸、不同温度条件与扩散系数对裂变气体释放行为产生的影响, 展现了气泡的形核、生长、融合等行为, 得到了一定程度燃耗深度下燃料的孔隙度、晶界处气泡覆盖率、气泡平均半径等模拟结果. 结果表明, 温度与扩散系数对孔隙度、晶界处气泡覆盖率的影响较为显著, 在扩散系数较大时, 晶粒尺寸也会对裂变气体释放行为产生较大影响, 扩散系数较小时, 晶粒尺寸的影响则不明显. 此外, 通过该模型得出的高燃耗深度下裂变气体气泡分布状况与实验结果也较为符合, 该模型能较好地预测大晶粒 UO_2 裂变气体释放行为.

关键词: 相场模型, 大晶粒 UO_2 燃料, 裂变气体释放

PACS: 61.80.Az, 61.72.Qq, 61.72.Mm

DOI: 10.7498/aps.73.20231773

1 引言

在反应堆的运行过程中, 随着裂变的进行会持续产生多种裂变产物, 例如惰性气体氙 (Xe) 和氪 (Kr), 这两种气体每次裂变的产额大约 0.25—0.3 个原子^[1], Xe 的产生速率是 Kr 的将近 10 倍^[2]. 由于这两种气体在 UO_2 中的溶解度很低, 因此大多数的 Xe 和 Kr 通过扩散在晶内或晶间形成气泡^[3,4]. 随着气泡的增加和生长, 晶内气泡会导致燃料芯块的肿胀^[3], 晶间气泡连接形成通道, 裂变气体沿通道扩散到自由空间, 造成裂变气体的释放^[4].

裂变气体的产生与释放是提升反应堆燃耗水平的关键制约因素之一. 裂变气体在反应堆燃料棒内的积累, 特别是反应堆燃耗达到一定水平时, 会导致反应堆燃料棒内压升高, 应力增大, 从而导致

燃料棒包壳形变, 并最终导致包壳破裂, 造成放射性物质的泄漏^[5]. 因此, 研究裂变气体的释放规律能够辅助改进燃料设计, 改善反应堆安全性并提升反应堆整体经济性^[6].

根据研究^[7,8], 提升 UO_2 燃料的初始晶粒尺寸可以有效减少裂变气体的释放. 随着晶粒尺寸的增大, 裂变气体扩散到晶界的平均距离增大, 从而更易被晶粒滞留^[5,9]. 并且由于大晶粒相对较小的塑性蠕变与热蠕变能减小燃料的肿胀, 减缓芯块-包壳相互作用^[5,10], 提升反应堆的安全性. 因此, 大晶粒 UO_2 燃料作为事故容错燃料的候选之一, 近年来受到了持续关注.

大晶粒 UO_2 燃料的制造工艺可通过向 UO_2 中掺杂某些氧化物实现, 如 Cr_2O_3 , TiO_2 , Al_2O_3 , MgO 等^[11]. 以 Cr_2O_3 为例, 当 UO_2 燃料中 Cr 的质量百分比达到 0.16% 时 (接近 UO_2 中 Cr 的溶解

* 哈尔滨工程大学高水平科研引导专项 (批准号: 3072022JC1502) 资助的课题.

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

度极限), 可使晶粒平均尺寸增长到 50—60 μm , 同时不过多改变燃料的材料特性^[12]. 针对掺杂 Cr_2O_3 的大晶粒 UO_2 燃料的相关研究已经展开, Killeen^[7] 通过实验对比了 Cr_2O_3 掺杂质量分数为 0.5% 的 UO_2 燃料与未掺杂的燃料在 1500 $^\circ\text{C}$ 、不同燃耗深度下, 燃料的肿胀与裂变气体的释放; Kashibe 和 Une^[13] 测试了不同掺杂组分, 如掺杂质量分数为 0.065% Cr_2O_3 , 掺杂质量分数为 0.076% Al_2O_3 等, 经由 1100—1600 $^\circ\text{C}$ 的辐照后退火实验, 对裂变气体 Xe 扩散系数的影响; Che 等^[14] 使用 BISON 燃料性能分析代码对 Cr_2O_3 掺杂的大晶粒 UO_2 燃料棒的性能进行了计算. Cooper 等^[8] 在 Che 等^[14] 的基础上, 进一步研究了掺杂对 UO_2 燃料扩散系数根源性的影响. 目前围绕大晶粒 UO_2 开展的相关研究多是基于实验或宏观系统模型, 缺少基于介观尺度对大晶粒 UO_2 燃料中裂变气体释放行为的研究, 通过介观尺度研究裂变气体释放时燃料微观结构的演化, 能更好理解大晶粒 UO_2 对裂变气体释放的迟滞作用.

相场法是实现材料学和物理学中不同驱动力(如成分梯度、温度、应力应变、电场、磁场)下微观结构演化模拟的一种重要的介观尺度研究工具. 其以 Ginzburg-Landau 理论为基础, 通过偏微分方程建立起一种能够准确描述系统随时间演化的数学模型^[15], 用以获取体系在时间和空间上的瞬时状态. 相较于蒙特卡罗法、元胞自动机法, 相场法通过将不同的界面描述纳入其公式, 来避免复杂界面的追踪问题, 且易与其他物理场(如噪声场、速度场、成分场等)耦合^[16]. 使用相场法模拟常规 UO_2 燃料裂变气体释放行为已有不少相关研究. Hu 和 Henager^[17] 采用 Cahn-Hilliard 方程构建了一个包含空位浓度场与间隙原子浓度场的相场模型, 该模型模拟了辐照条件下, 空洞的演化规律, 得出空洞临界半径、数量密度等一系列参数. Millett 等^[18] 构建了一个包含 Allen-Cahn 方程的相场模型, 该方程通过控制序参量来区分不同相界, 同时还引入裂变气体浓度场, 研究了辐照条件下, 燃料基质中裂变气体气泡的演化规律. Aagesen 等^[9] 采用抛物线近似的自由能来构建相场模型, 研究裂变气体气泡沿三岔晶界的生长规律, 该模型对相关参数的简化可提高计算效率, 允许模拟更广泛的区域.

采用相场法模拟裂变气体释放的相关研究已比较详尽, 但通过相场法研究晶粒尺寸、温度与扩

散系数等因素对裂变气体释放行为的影响则不够充分. 本研究使用相场模型, 参考上述研究, 采用抛物线近似的自由能泛函、真实的扩散系数值与微米级的晶粒尺寸, 对辐照下不同晶粒尺寸、不同温度与扩散系数条件下 UO_2 燃料中的裂变气体释放行为, 包括裂变气体向晶界扩散, 气泡的形核与生长等, 进行了模拟. 第 2 节将对本模型进行阐述, 包括本模型采用的驱动方程、自由能函数的成分、变量的定义、参数的选取等相关内容. 第 3 节为模拟结果, 包括常规晶粒尺寸 UO_2 燃料的模拟结果验证、温度对裂变气体释放的影响、晶粒尺寸对裂变气体释放的影响、以及同温度下采用不同扩散系数(裂变气体在未掺杂的 UO_2 燃料中的扩散系数与在掺杂 Cr_2O_3 的燃料中的扩散系数)对裂变气体释放的影响 4 个部分. 第 4 节对本文进行概括总结.

2 相场模型

2.1 自变量定义

本模型考察辐照效应产生的点缺陷空位与裂变气体在多晶材料中的浓度分布, 引入两个守恒场变量: $c_v(\mathbf{r}, t)$, $c_g(\mathbf{r}, t)$, 分别表示空位摩尔分数和裂变气体摩尔分数, 该摩尔分数 c 可通过 $c = \rho V_a$ 计算, 其中 ρ 为空位或裂变气体的数密度, V_a 为 UO_2 晶胞中 U 原子体积, 其值为 0.0409 nm^3 ^[9].

如引言所述, 燃料基质中的裂变气体通过扩散形成气泡, 存在两个稳定相: 燃料固体基质相和裂变气体气泡相, 使用序参量 η 区分该两相: 当 $\eta = 0$ 时为基质相, $\eta = 1$ 时为气泡相, 如图 1(a) 所示. 基质相与气泡相中存在空位与气体的平衡浓度, 对于基质相, 空位与气体的平衡浓度用下式表示:

$$c_v^{\text{m,eq}} = \exp\left(-\frac{E_v^f}{k_B T}\right), \quad (1)$$

$$c_g^{\text{m,eq}} = \exp\left(-\frac{E_g^f}{k_B T}\right), \quad (2)$$

其中, E_v^f , E_g^f 分别为空位与裂变气体原子缺陷的形成能, 取 $E_v^f = 5.1 \text{ eV}$ ^[19], Xe 原子在空位中的溶解能 $E_g^s = 5.21 \text{ eV}$ ^[20], 取裂变气体原子的形成能为空位形成能与原子在空位中的溶解能之和, $E_g^f = E_v^f + E_g^s = 10.31 \text{ eV}$; k_B 为玻尔兹曼常量, T 为温度. 对于气泡相, 取气体平衡浓度 $c_g^{\text{b,eq}} = 0.454$ ^[9],

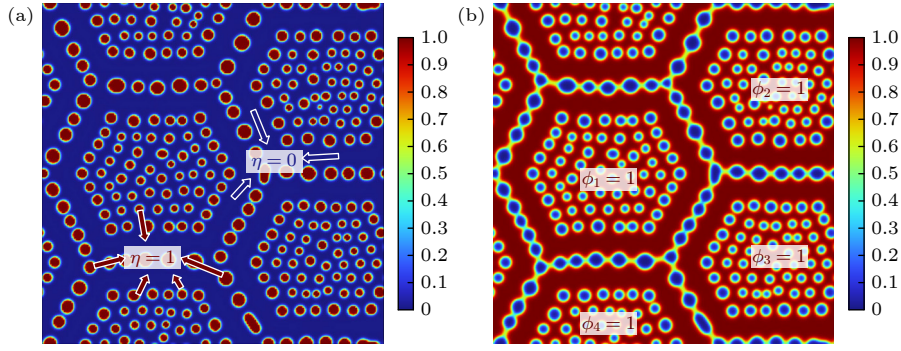

 图 1 序参量 η 与 ϕ_i 的取值在相场模型中的表现

 Fig. 1. Representation of the values of order parameters η and ϕ_i in the phase-field model.

当 $c_g = 0.454$ 时, 气泡相的范德瓦耳斯自由能最小. 由于模拟过程中气体浓度 c_g 存在涨落, 为保持气泡相中 $c_v + c_g \leq 1$, 取空位平衡浓度 $c_v^{b,eq} = 0.9 - c_g$, 随着 c_g 的增大, $c_v^{b,eq}$ 将逐渐减小.

本相场模型关注裂变气体在多晶燃料中的释放行为, 使用序参量 ϕ_i ($i = 1, 2, \dots, P$) 区分 P 种不同取向的晶粒, 在第 i 个取向的晶粒内部 $\phi_i = 1$, 如图 1(b) 所示, 在其他取向的晶粒相中, 该 $\phi_i = 0$. 在不同取向晶粒的接触面附近, ϕ_i 近似等于 0.5, 通过考察 $\Phi = \sum_{i=1}^P \phi_i^2$ 可区分晶体内部与晶界, 当 $\Phi = 1$ 为晶体内部, $\Phi \approx 0.5$ 为晶界, $\Phi = 0$ 的区域与 $\eta = 1$ 的区域重合, 为气泡相. 在本模型中, 不同取向的晶粒不对裂变气体与空位扩散产生相关的应力作用, 仅用于划分不同晶粒区域, 产生晶界.

2.2 自由能方程

相场法采用各相和界面自由能所组成的总自由能泛函 F , 与 Cahn-Hilliard 定义的非均匀系统自由能一致 [21]. 本研究采用的自由能泛函 F 形式如下:

$$F = \int_V h(\eta) f^{\text{solid}}(c_v, c_g) + j(\eta) f^{\text{bubble}}(c_v, c_g) + f^{\text{poly}}(\eta, \phi_{1 \rightarrow P}) + f^{\text{grad}}(c_v, c_g, \eta, \phi_{1 \rightarrow P}) dV, \quad (3)$$

式中, f^{solid} 为基质相自由能密度函数, f^{bubble} 为气泡相自由能密度函数, f^{poly} 为多晶体自由能密度函数, f^{grad} 为梯度贡献项. $h(\eta) = (1 - \eta)^2$, $j(\eta) = \eta^2$ 为权重函数, 当 $\eta = 0$ 时, f^{solid} 对总自由能的贡献达到最大, f^{bubble} 的贡献为 0, $\eta = 1$ 时则相反.

假设基质相的化学自由能近似为理想解, 根据文献 [22], 基质相自由能密度函数写为

$$f^{\text{solid,ideal}} = \frac{1}{V_m} \{ RT [c_v \ln c_v + (1 - c_v) \ln(1 - c_v)] + N_A E_v^f c_v + RT [c_g \ln c_g + (1 - c_g) \ln(1 - c_g)] + N_A E_g^f c_g \}, \quad (4)$$

其中 V_m 为单位晶格内 U 原子的摩尔体积, $V_m = V_a N_A$, R 为理想气体常数, N_A 为阿伏伽德罗常数.

气泡相采用范德瓦耳斯气体处理, 其自由能密度函数由范德瓦耳斯气体的亥姆霍兹自由能给出 [9,23]:

$$f^{\text{bubble,vdw}} = \rho_g k_B T \left[\ln \left(\frac{1}{n_Q (1/\rho_g - b)} \right) - 1 \right] + f_0, \quad (5)$$

其中 ρ_g 为气体原子数密度; $n_Q = \left(\frac{mk_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2}$ 是 Xe 的量子浓度, m 为 Xe 原子的质量, \hbar 为约化普朗克常数; 参数 b 与 Xe 原子体积相关, 其值为 $0.082 \text{ nm}^3/\text{原子}$ [9]; f_0 表示基质相与气泡相自由能之间的偏移, 通过 f_0 的修正使得基质相与气泡相自由能的最小值相等, 其值为 $2.22 \times 10^9 \text{ J/m}^3$ [9].

为简化控制方程的数值计算, 对基质相自由能密度函数和气泡相自由能密度函数进行抛物线近似, 与 Li 等 [22] 采用的自由能密度函数相似, 但进行简单修正以使基质相晶界处的自由能小于晶粒内的自由能, 近似后的基质相自由能密度函数 f^{solid} 的表达式如下:

$$f^{\text{solid}}(c_v, c_g) = f^{\text{solid,v}}(c_v) + f^{\text{solid,g}}(c_g) = \frac{1}{2} f^{\text{m,fix}} k_v^{\text{m}} (c_v - c_v^{\text{m,eq}})^2 + \frac{1}{2} f^{\text{m,fix}} k_g^{\text{m}} (c_g - c_g^{\text{m,eq}})^2, \quad (6)$$

其中修正项为 $f^{\text{m,fix}} = 4/5 + 1/5\Phi$, 假设基质相晶界处空位与气体的自由能密度是晶粒内的约十分之九, 这么做使得空位与裂变气体产生向晶界扩散的趋势.

自由能密度函数表达式中的 k_v^{m} , k_g^{m} 控制抛物

线的曲率, 形式如下:

$$k_v^m = \frac{1}{(c_v^0 - c_v^{m,eq})} \left[\frac{RT}{V_m} [\ln c_v^0 - \ln(1 - c_v^0)] + \frac{N_A E_v^f}{V_m} \right], \quad (7)$$

$$k_g^m = \frac{1}{(c_g^0 - c_g^{m,eq})} \left[\frac{RT}{V_m} [\ln c_g^0 - \ln(1 - c_g^0)] + \frac{N_A E_g^f}{V_m} \right], \quad (8)$$

其中假设 $c_v^0 = c_g^0 = 0.01$ [22]. $T = 1276$ K 条件下, 计算得 $k_v^b = 1.7999 \times 10^{12}$ J/m³, $k_g^b = 3.8408 \times 10^{12}$ J/m³.

类似地, 近似后的气泡相自由能密度函数 f^{bubble} 的表达式如下:

$$f^{\text{bubble}}(c_v, c_g) = f^{\text{bubble},v}(c_v) + f^{\text{bubble},g}(c_g) \\ = \frac{1}{2} f_v^{\text{b,fix}} k_v^b (c_v - c_v^{\text{b,eq}})^2 + \frac{1}{2} f_g^{\text{b,fix}} k_g^b (c_g - c_g^{\text{b,eq}})^2. \quad (9)$$

修正项:

$$f_v^{\text{b,fix}} = \begin{cases} 1, & c_v \leq c_v^{\text{b,eq}}, \\ (1 + c_v - c_v^{\text{b,eq}})^{10}, & c_v > c_v^{\text{b,eq}}, \end{cases} \quad (10)$$

$$f_g^{\text{b,fix}} = \begin{cases} 1, & c_g \leq c_g^{\text{b,eq}}, \\ (1 + c_g - c_g^{\text{b,eq}})^{10}, & c_g > c_g^{\text{b,eq}}, \end{cases} \quad (11)$$

该修正项是根据气泡相亥姆霍兹自由能随气体浓度的增大所表现的特征而添加的, 当气体浓度 c_g 趋近平衡浓度 0.454 时, 亥姆霍兹自由能将急剧增长 [9]. 同时假设空位浓度 c_v 趋近 1 时自由能也有类似的特征. 取 f^{solid} 的曲率 $k_g^b = 2.25 \times 10^9$ J/m³, 通过该曲率控制的近似自由能随浓度的变化与亥姆霍兹自由能在 $0 < c_g < 0.454$ 范围上较匹配. 另一曲率 $k_v^b = 2 \times 10^{10}$ J/m³, 这是假设气泡形核时, 基质相中空位浓度 c_v 不超过 0.02 所设的值. 基质相自由能密度与气泡相自由能密度随浓度的变化如图 2 所示.

多晶体自由能密度函数 f^{poly} 的表达式如下:

$$f^{\text{poly}}(\eta, \phi_{1 \rightarrow P}) \\ = m \left[\sum_{i=1}^P \left(\frac{\phi_i^4}{4} - \frac{\phi_i^2}{2} \right) + \left(\frac{\eta^4}{4} - \frac{\eta^2}{2} \right) \right. \\ \left. + a_{\text{GB}} \sum_{i=1}^{P-1} \sum_{j>i}^P \phi_i^2 \phi_j^2 + a_s \sum_{i=1}^P \phi_i^2 \eta^2 \right], \quad (12)$$

式中, m 是自由能势垒系数, a_{GB} 和 a_s 为扩散界面系数, a_{GB} 取 1.2, a_s 取 0.8.

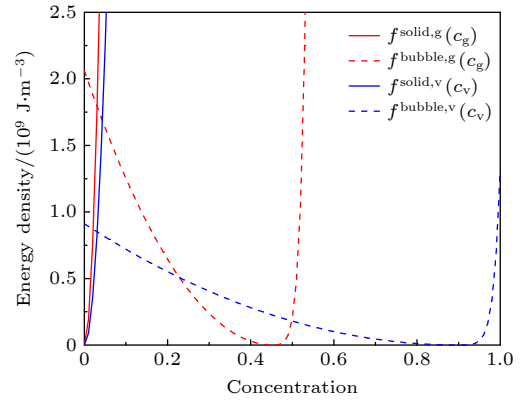


图 2 自由能密度随浓度 (c_v, c_g) 分布的变化, 曲线最低点的横坐标为平衡浓度, 随着 c_g 增加, $c_v^{\text{b,eq}}$ 逐渐减小, $f^{\text{bubble},v}$ 的图像 (蓝色虚线) 将向左平移

Fig. 2. Variation of free energy density with concentration (c_v, c_g) distribution, the abscissa of the lowest point of the curve is the equilibrium concentration. As c_g increases, $c_v^{\text{b,eq}}$ gradually decreases, and the image of $f^{\text{bubble},v}$ (blue dashed line) will shift to the left.

梯度贡献项 f^{grad} 的表达式如下:

$$f^{\text{grad}}(c_v, c_g, \eta, \phi_i) = \frac{\kappa_v}{2} |\nabla c_v|^2 + \frac{\kappa_g}{2} |\nabla c_g|^2 + \frac{\kappa_\eta}{2} |\nabla \eta|^2 \\ + \frac{\kappa_\phi}{2} \sum_{i=1}^P |\nabla \phi_i|^2, \quad (13)$$

式中 $\kappa_v, \kappa_g, \kappa_\eta, \kappa_\phi$ 分别是空位、气体、两种序参量的梯度项系数.

m 和 κ_ϕ 与界面能 γ_{int} 和界面宽度 l_{int} 相关 [24,25]:

$$m = \frac{6\gamma_{\text{int}}}{l_{\text{int}}}, \quad (14)$$

$$\kappa_\phi = \frac{3}{4} \gamma_{\text{int}} l_{\text{int}}, \quad (15)$$

$\gamma_{\text{int}} = 1.5$ J/m² [9], l_{int} 取 0.3 μm , 该值大于参考文献 [9] 给出的值, 计算得 $m = 3.0 \times 10^7$ J/m³, $\kappa_\phi = 3.38 \times 10^{-7}$ J/m³. $\kappa_v, \kappa_g, \kappa_\eta$ 取 1.69×10^{-6} J/m³.

2.3 控制方程

本相场模型的控制方程采用 Cahn-Hilliard 方程 [21,26] 控制守恒场变量 c_v, c_g , 采用 Allen-Cahn 方程 [27,28] 控制序参量 η, ϕ . c_v, c_g 的控制方程如下:

$$\frac{\partial c_v}{\partial t} = \nabla \cdot \left(M_v \nabla \frac{\delta F}{\delta c_v} \right) + P_v(\mathbf{r}, t) + \xi_v(\mathbf{r}, t), \quad (16)$$

$$\frac{\partial c_g}{\partial t} = \nabla \cdot \left(M_g \nabla \frac{\delta F}{\delta c_g} \right) + P_g(\mathbf{r}, t) + \xi_g(\mathbf{r}, t). \quad (17)$$

这里, M_v, M_g 分别为空位与气体的迁移率,

$$M_v = \frac{V_a D_v c_v}{k_B T}, \quad (18)$$

$$M_g = \frac{V_a D_g c_g}{k_B T}, \quad (19)$$

其中, D_v , D_g 分别为空位与气体的扩散系数, 假设 $D_v = D_g$. 未掺杂 Cr_2O_3 的 UO_2 燃料中的裂变气体扩散系数由 Turnbull 的模型给出^[29,30]:

$$D_1^{\text{undoped}} = 7.6 \times 10^{-10} \exp\left(\frac{-4.68 \times 10^{-19}(\text{J})}{k_B T}\right), \quad (20)$$

$$D_2^{\text{undoped}} = 5.64 \times 10^{-25} \sqrt{\dot{F}} \exp\left(\frac{-1.91 \times 10^{-19}(\text{J})}{k_B T}\right), \quad (21)$$

$$D_3^{\text{undoped}} = 8 \times 10^{-40} \dot{F}. \quad (22)$$

对应 3 种温度条件下裂变气体的扩散^[29], 其中, D_1 为高温条件 (T 大于 1650 K) 下的本征扩散, D_2 为中间温度条件 (T 在 1650—1350 K 之间) 下的辐射增强扩散, D_3 为低温条件 (T 小于 1350 K) 下无热辐射驱动扩散.

掺杂 Cr_2O_3 的 UO_2 燃料的裂变气体扩散系数引自文献^[8]:

$$D_1^{\text{doped}} = \exp\left[-\frac{\Delta H_1}{k_B} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_1}\right)\right] D_1^{\text{undoped}}, \quad (23)$$

$$D_2^{\text{doped}} = \exp\left[-\frac{\Delta H_2}{k_B} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_2}\right)\right] D_2^{\text{undoped}}, \quad (24)$$

$$D_3^{\text{doped}} = D_3^{\text{undoped}}, \quad (25)$$

其中, $\Delta H_1 = 0.3198$ eV, $\Delta H_2 = -0.3345$ eV, $T_1 = T_2 = 1773$ K. 在模拟中, 根据不同温度、晶粒尺寸采用不同的扩散系数.

该控制方程包含两个源项, P_v , P_g 分别表示空位与气体的产生速率, 裂变气体 P_g 产生速率由 $P_g = V_a \dot{F} Y$ 计算, \dot{F} 为裂变率密度, 根据典型压水堆的运行数据, \dot{F} 取 1.09×10^{13} 次裂变/ $(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$ ^[9], Y 为 U-235 每次裂变裂变气体的产额, 取 $Y = 0.27$. 计算得 $P_g = 1.2037 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$, 并假设 $P_v = 20P_g = 2.4074 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$. ξ_v , ξ_g 是用简单随机函数分别表示的空位与气体的热涨落, 以使浓度非均匀分布, ξ_v 的具体形式为 $\xi_v = c_v R_v(r, t)$, R_v 为随机函数, 范围从 -0.01 — 0.01 , ξ_g 与之类似.

序参量 η , ϕ 的控制方程如下:

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} = -L_\eta \frac{\delta F}{\delta \eta}, \quad (26)$$

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -L_\phi \frac{\delta F}{\delta \phi_i} \quad (i = 1 \rightarrow P), \quad (27)$$

其中, L_η , L_ϕ 为迁移率, $L_\eta = L_\phi = 1.56 \times 10^{11} \text{ m}^3/(\text{J} \cdot \text{s})$ ^[9].

模拟中使用的部分参数如表 1 所列. 本研究使用 COMSOL Multiphysics[®]^[31] 进行建模, 该软件采用有限元法求解偏微分方程, 时间步进为默认配置, 网格尺寸 $0.1 \mu\text{m}$. 对模型进行尺度变换但不做无量纲处理, 时间变换 $t^* = 1 \times 10^{-5}$, τ 为模拟时间, 对应实际时间 $t = \tau/t^*$, 自由能密度变换 $f^* = 0.1$. 模拟中采用的扩散系数 $\bar{D} = D/t^*$, 迁移率 $\bar{L} = L/t^*$, 自由能密度 $\bar{f} = f \times f^*$.

表 1 模拟采用的部分参数
Table 1. Parameters used in simulation.

参数	符号	值
玻尔兹曼常量/ $(\text{J} \cdot \text{K}^{-1})$	k_B	1.3806×10^{-23}
理想气体常数/ $(\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$	R	8.3145
UO_2 晶胞 U 原子体积/ nm^3	V_a	0.0409
空位形成能/eV	E_v^f	5.1
气体原子缺陷形成能/eV	E_g^f	10.31
扩散界面系数	a_{GB}	1.2
	a_s	0.8
自由能势垒系数/ $(\text{J} \cdot \text{m}^{-3})$	m	3.0×10^7
梯度项系数/ $(\text{J} \cdot \text{m}^{-3})$	κ_ϕ	3.38×10^{-7}
	$\kappa_v, \kappa_g, \kappa_\eta$	1.69×10^{-6}
迁移率/ $(\text{m}^3 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	L_η, L_ϕ	1.56×10^{11}
裂变率密度/ $(\text{次裂变} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1})$	\dot{F}	1.09×10^{13}
Xe 产额	Y	0.27

3 结果与分析

3.1 常规晶粒模拟结果与验证

本节讨论在 $5 \mu\text{m}$ 的固定晶粒尺寸, $T = 1276$ K, $D = 8.72 \times 10^{-21} \text{ m}^2/\text{s}$ 条件下, 裂变气体的释放行为, 并与相关实验与模拟结果进行对比和分析. 模型根据不同晶粒尺寸选取不同模拟区域大小, 针对直径 $5 \mu\text{m}$ 的晶粒选取的模拟区域为 $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$, 周期性边界条件. 在模拟区域中构建 4 个正六边形晶粒, 空位与裂变气体 Xe 在整个区域内的初始浓度为基质相平衡浓度 $c_v^{\text{m,eq}}$, $c_g^{\text{m,eq}}$.

$T = 1276$ K, $0 < \tau < 550$ s 的晶粒与气泡分布随时间的演化如图 3 所示, 该分布采用 Φ 在模

拟区域的分布, 其中红色区域为燃料的基质相, 介于红色区域间的黄色线条为晶界, 蓝色区域为气泡相. 图 3(a) 为初始状态, 由 4 个完整的六边形燃料晶粒构成. 随着裂变的进行, 燃料中不断产生裂变气体与空位, 两者浓度不断升高, 同时空位与裂变气体 Xe 原子向晶界扩散, 晶界处的缺陷浓度高于晶粒内, 如图 4(a), (b) 所示. 在模拟时间 $\tau < 140$ s 内, 没有观察到气泡形核, 分析认为这一时间段为气泡演化的孕育阶段, 同 Millett 在文献 [32] 中的模拟一样, 在这一阶段, 缺陷浓度上升但不形成气泡. 随着缺陷浓度的上升, 系统总自由能逐渐增加, 在 $\tau = 160$ s 时, 观察到气泡在晶界处形核. 在 $\tau = 200$ s 时, 气泡在晶粒内大量形核, 当气泡数密度达到一定水平时, 形核停止, 在之后的时间里没有新的气泡产生, 现有气泡不断长大, 同时距离较近的气泡会互相融合形成更大的气泡, 气泡数密度降低, 平均直径增加, 这一过程被称为奥斯特瓦尔德熟化 [33]. $\tau = 550$ s 时的空位与裂变气体的浓度分布如图 4(c), (d) 所示, 气泡中空位的平均浓度 $\bar{c}_v \approx 0.95$, 裂变气体的平均浓度 $\bar{c}_g \approx 0.05$, 晶界上气泡平均直径 $0.37 \mu\text{m}$, 稍大于平均直径 $0.30 \mu\text{m}$ 的晶粒内部气泡. 在晶界附近观察到明显的“无气泡区”, 与 Bullough 和 Nelson [34] 在实验中观察到的和 Millett 等 [18] 模拟得到的“空洞剥蚀区”类似, 表

明晶界对缺陷和气体原子有吸收作用. 在本模型中, 由于空位与裂变气体的源项为净生成项, 且为固定正值, 无湮灭项、复合项、重融项等会减少点缺陷浓度的项, 气泡的尺寸会随着时间无限生长下去, 故选取 600 s 为模拟的结束时间.

经过换算, 该条件下模拟中 $\tau = 550$ s 的累计裂变时间对应实际能耗 25.03 GWd/tU (UO_2 密度取 10 t/m^3), 在这一时刻, 燃料中裂变气体气泡分布 (图 3(f)) 与 Zacharie 等 [35] 实验中得到的在堆芯温度不超过 $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ 的反应堆中燃烧至 25 GWd/tU 并退火的 UO_2 燃料样品断裂表面的扫描电子显微镜照片较为相似.

整个模拟区域内平均自由能密度随时间的变化如图 5(a) 所示. 平均自由能密度在 $\tau = 180$ s 左右存在峰值, 到达峰值后急剧下降, 随后缓慢攀升. 自由能抵达峰值到急剧下降这一时间段, 与气泡的形核期时间重合 (对比图 9(a) 红色曲线), 表明促使裂变气体扩散形成气泡的驱动因素为整体自由能趋于最低. 从图 2 中自由能随浓度的变化曲线也可以观察到, 当空位与裂变气体的浓度较低时, 基质相自由能密度小于气泡相, 空位与裂变气体弥散在基质中不会形成气泡, 当浓度达到一定水平, 基质相自由能密度开始大于气泡相时, 空位与裂变气体开始形成气泡, 以满足整体自由能最小状态.

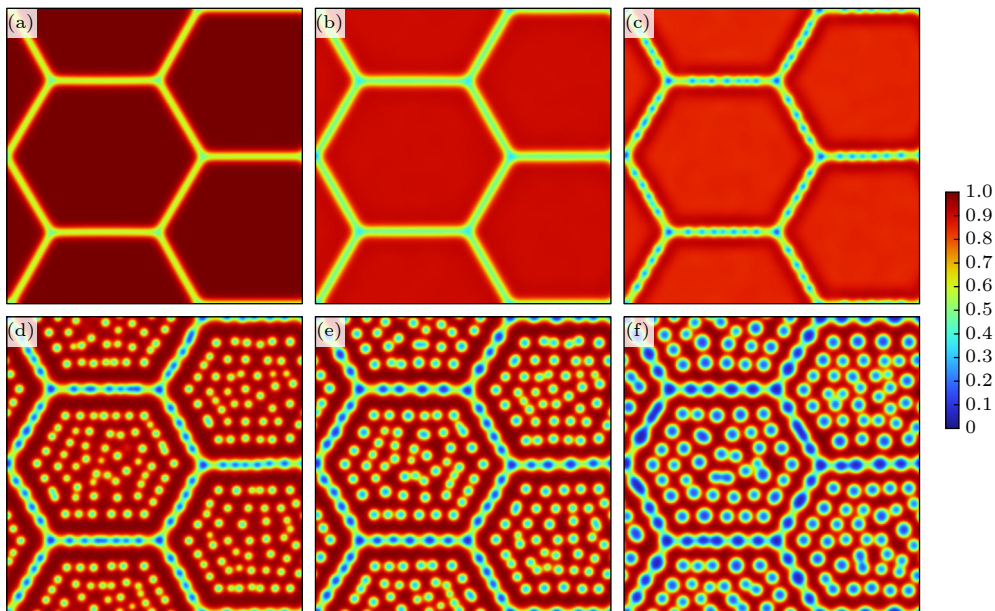


图 3 $T = 1276 \text{ K}$ 条件下直径 $5 \mu\text{m}$ 晶粒与气泡随时间演化分布 (a) $\tau = 0 \text{ s}$; (b) $\tau = 140 \text{ s}$; (c) $\tau = 160 \text{ s}$; (d) $\tau = 200 \text{ s}$; (e) $\tau = 300 \text{ s}$; (f) $\tau = 550 \text{ s}$

Fig. 3. Distribution of grain with a diameter of $5 \mu\text{m}$ and bubble evolution over time at $T = 1276 \text{ K}$: (a) $\tau = 0 \text{ s}$; (b) $\tau = 140 \text{ s}$; (c) $\tau = 160 \text{ s}$; (d) $\tau = 200 \text{ s}$; (e) $\tau = 300 \text{ s}$; (f) $\tau = 550 \text{ s}$.

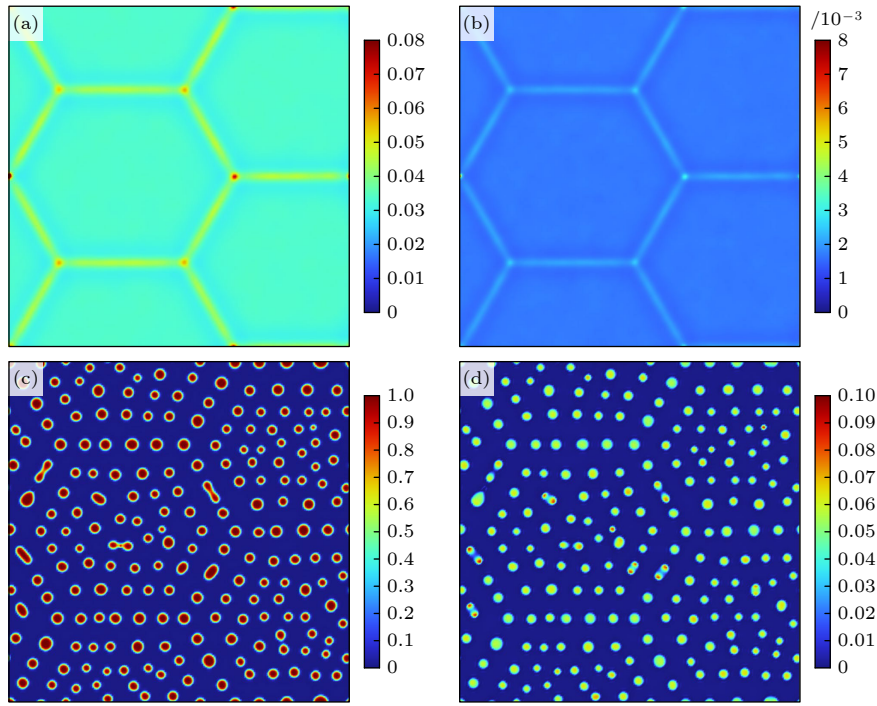


图 4 空位 (c_v , (a), (c)) 与裂变气体 (c_g , (b), (d)) 在 $\tau = 140$ s 与 $\tau = 550$ s 的浓度分布 (不同的颜色代表浓度的取值) (a), (b) $\tau = 140$ s; (c), (d) $\tau = 550$ s

Fig. 4. Concentration distribution of vacancies (c_v , (a) and (c)) and fission gases (c_g , (b) and (d)) at $\tau = 140$ s and $\tau = 550$ s, different color represent the value of concentration: (a), (b) $\tau = 140$ s; (c), (d) $\tau = 550$ s.

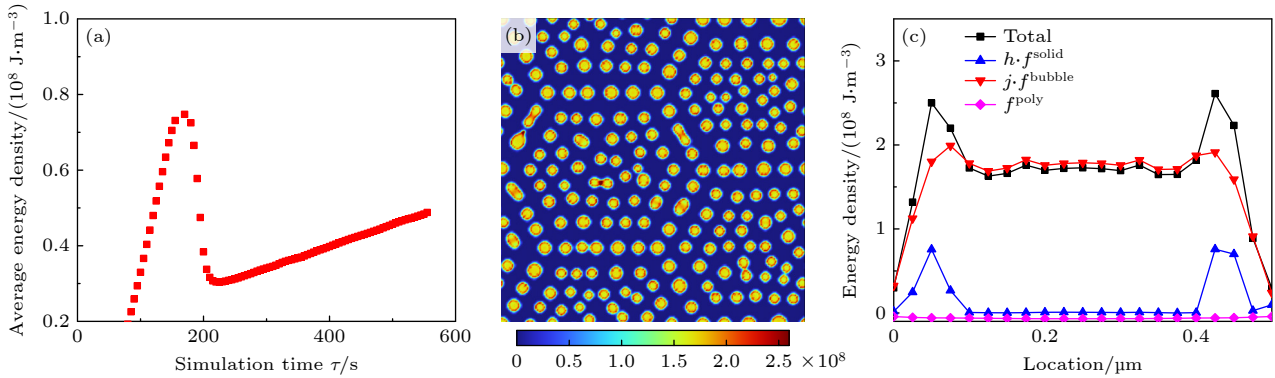


图 5 (a) 整个模拟区域内的平均自由能密度随时间的变化; (b) 总自由能密度在整个模拟区域分布, 颜色栏为取值范围; (c) 某一气泡径向自由能密度分布

Fig. 5. (a) Variation of average free energy density over time in simulation area; (b) distribution of the total free energy density in simulation area, the color bar represents the range of values; (c) radial free energy density distribution of a certain bubble.

$\tau = 550$ s 时整个模拟区域总自由能密度分布如图 5(b) 所示, 忽略 f^{grad} 的贡献. 可以观察到气泡边缘的总自由能密度较高而内部较低. 随机抽取单个气泡径向自由能密度如图 5(c) 所示, 气泡边缘存在总自由能密度峰值, 其值在 2.3×10^8 — 2.7×10^8 J/m³ 之间, 比气泡内部高出约 1/3, 气泡内部总自由能密度在 1.6×10^8 — 1.8×10^8 J/m³ 之间, 气泡外总自由能密度趋近于零. 在总自由能密度的各项贡献中, 气泡相自由能密度贡献了最高份额,

在气泡内部, 基质相自由能密度贡献几乎为 0 而多晶项的贡献为负数, 导致总自由能密度小于气泡相自由能密度. 气泡边缘峰值除了气泡相的贡献, 也明显受到基质相自由能密度贡献峰值的影响.

3.2 温度的影响

本节讨论在 10 μm 的固定晶粒尺寸下, 不同温度和扩散系数对裂变气体扩散行为的影响, 针对直径为 10 μm 的晶粒选取的模拟区域为 20 $\mu\text{m} \times$

20 μm . 选取 3 种温度条件: 1276, 1476, 1676 K, 分别对应第 2 节所述 Turnbull 模型中 3 种类型的扩散. 由 (20)—(25) 式计算得出的温度与扩散系数的对应关系如表 2 所列. 空位和 Xe 的初始浓度与 3.1 节相同.

表 2 不同温度下采用的扩散系数

Table 2. Diffusion coefficients used at different temperatures.

温度 T/K	$D_{\text{undoped}}/(\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1})$	$D^{\text{doped}}/(\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1})$
1276	8.72×10^{-21}	8.72×10^{-21}
1476	1.583×10^{-19}	2.4593×10^{-19}
1676	5.7461×10^{-19}	5.0906×10^{-19}

$T = 1276, 1476, 1676$ K 条件下晶粒与气泡在 $\tau = 180, 500$ s 的分布图如图 6 所示. 从图 6 可以观察到, 在 $\tau = 180$ s 时, $T = 1276$ K 条件下气泡尚未形核, 而 $T = 1476, 1676$ K 条件下气泡轮廓十分清晰. $\tau = 500$ s 时, $T = 1276$ K 条件下晶界上气泡平均直径为 $0.35 \mu\text{m}$, 数密度为 1.38 个/ μm (晶界上气泡数/晶界长度), 晶粒内气泡平均直径为 $0.32 \mu\text{m}$, 数密度为 1.96 个/ μm^2 (晶粒内气泡数/晶粒面积); $T = 1476$ K 条件下晶界上气泡平均直径为 $0.67 \mu\text{m}$, 数密度为 0.85 个/ μm , 晶粒内气泡平均直径为 $0.47 \mu\text{m}$, 数密度为 17.87 个/ μm^2 ; $T =$

1676 K 条件下晶界上气泡平均直径为 $1.34 \mu\text{m}$, 数密度为 0.23 个/ μm , 晶粒内气泡平均直径为 $1.4 \mu\text{m}$, 数密度为 0.02 个/ μm^2 . 相同时刻高温条件下形成的气泡的平均半径明显大于低温形成的. 以上现象表明温度和扩散系数对裂变气体气泡的形核时间、平均半径、数量密度的影响较为显著, 温度越高, 扩散系数越大, 形核越早, 气泡平均直径越大、数量密度越少. 此外, “无气泡区”也随着温度的升高而加宽, 并且 $T = 1676$ K 下形成的“无气泡区”的宽度相较于晶粒尺寸而言较大, 宽于有气泡的区域面积, 晶粒内气泡的平均半径和数密度也因高温受到影响.

3 种温度下气泡面积占整个模拟区域面积的百分比 (以下简称孔隙度) 与穿过气泡的晶界占整条晶界长度的百分比 (以下简称晶界气泡覆盖率) 随时间的演化如图 7 所示, 在本研究所采用的统计中, 将 $\eta \geq 0.9$ 的格点均视为气泡相. 从图 7(a) 可以看出, 孔隙度随时间的演化分为 3 个阶段: 第 1 阶段, 维持在零水平; 第 2 阶段, 快速增长阶段; 第 3 阶段, 低速平稳增长阶段. 这 3 个阶段与前文所述的气泡生成的 3 个阶段: 孕育期, 形核期与长大期相对应, 在图 7(a) 中以 $T = 1676$ K 条件下的曲线为例标记了此 3 个阶段. 在 $T = 1676$ K 条件下,

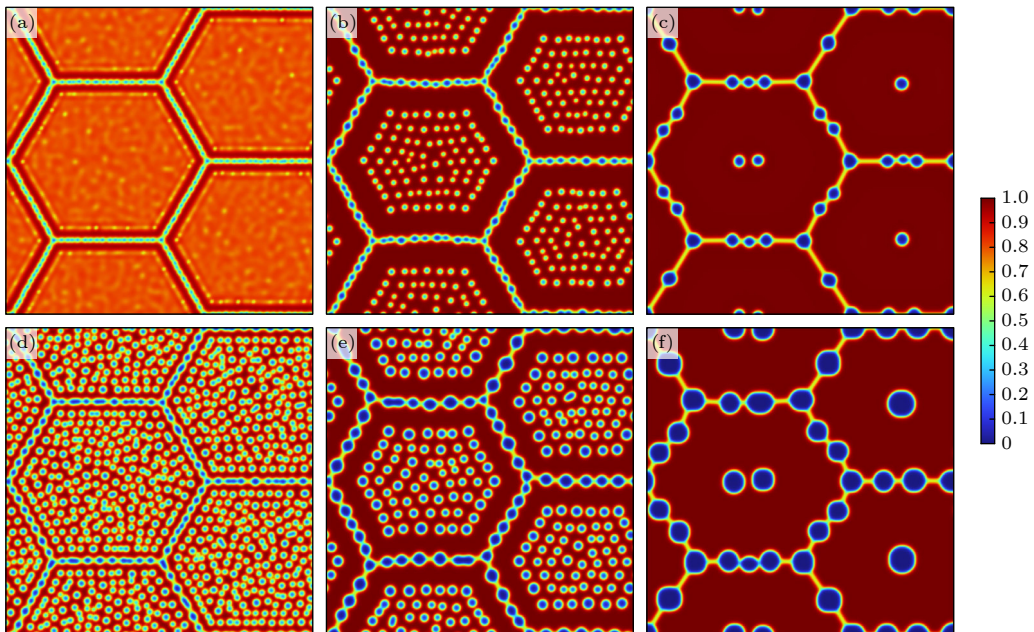


图 6 $T = 1276, 1476, 1676$ K 条件下直径 $10 \mu\text{m}$ 晶粒与气泡分布图 (a) $T = 1276$ K, $\tau = 180$ s; (b) $T = 1476$ K, $\tau = 180$ s; (c) $T = 1676$ K, $\tau = 180$ s; (d) $T = 1276$ K, $\tau = 500$ s; (e) $T = 1476$ K, $\tau = 500$ s; (f) $T = 1676$ K, $\tau = 500$ s

Fig. 6. Distribution of grains with a diameter of $10 \mu\text{m}$ and bubbles under $T = 1276, 1476, 1676$ K: (a) $T = 1276$ K, $\tau = 180$ s; (b) $T = 1476$ K, $\tau = 180$ s; (c) $T = 1676$ K, $\tau = 180$ s; (d) $T = 1276$ K, $\tau = 500$ s; (e) $T = 1476$ K, $\tau = 500$ s; (f) $T = 1676$ K, $\tau = 500$ s.

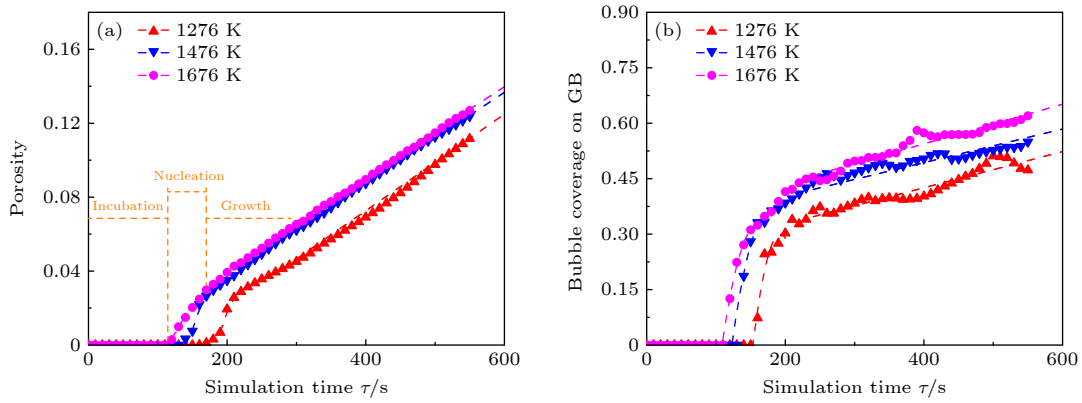


图 7 直径 10 μm 晶粒 3 种温度条件下 (a) 孔隙度与 (b) 晶界气泡覆盖率随时间演化

Fig. 7. Evolution of (a) porosity and (b) bubble coverage on grain boundaries over time under three temperature conditions for grains with a diameter of 10 μm .

$\tau = 115$ s 时气泡开始形核, 模型孔隙度开始增长, 而在 $T = 1476, 1276$ K 条件下则分别在 $\tau = 125, 160$ s 开始增长, 温度较高的模型, 孔隙度明显更早进入增长阶段. 由于温度越高扩散系数越大, 空位与裂变气体向晶界扩散得越快, 相同时间内晶界上聚集了更多的空位与裂变气体, 从而更早形核, 孔隙度更早进入增长阶段. 而在平稳增长阶段, 将增长趋势外推至 $\tau = 600$ s, $T = 1676$ K 条件下的孔隙度为 0.14, $T = 1476$ K 条件下为 0.137, $T = 1276$ K 条件下为 0.125, 温度较高的模型孔隙度稍高. 如果将温度与扩散系数对孔隙度的影响延伸至对肿胀率的影响, 孔隙度越大的燃料肿胀率越大, 那么该结果意味高温条件下消耗的燃料, 其肿胀率比低温条件下的稍大.

图 7(b) 表明, 当气泡开始形核时, 晶界气泡覆盖率快速增长, 随后增长逐渐放缓. $\tau = 600$ s, $T = 1676$ K 条件下的晶界气泡覆盖率为 0.651, $T = 1476$ K 条件下为 0.584, $T = 1276$ K 条件下为 0.523. 相较于孔隙度, 高温条件下晶界气泡覆盖率明显大于低温条件下, 高温条件下空位与裂变气体更多地聚集在晶界处, 晶界被气泡覆盖的面积较大. 而晶界气泡覆盖率越大, 意味着裂变气体更容易从燃料芯块沿晶界排放到外界, 即发生裂变气体的释放, 假设当晶界气泡覆盖率达到 0.4 时裂变气体开始释放, 那么对于 $T = 1276, 1476, 1676$ K 条件下, 裂变气体释放的模拟时间分别为 $\tau = 400, 215, 195$ s, 对应实际燃耗深度分别为 18.1, 9.7, 8.8 GWd/tU.

在统计晶界上气泡覆盖率时, 采用的方法是在晶界处画一条直线, 统计直线穿过气泡的长度占整

条直线长度的百分比, 视为穿过气泡的晶界占整条晶界长度的百分比, 但在演化过程中, 由于存在钉扎效应, 晶界会因气泡的存在而扭曲变形, 造成了统计中波动.

3.3 晶粒尺寸效应

本节讨论在相同的 3 种温度以及扩散系数条件下, 不同晶粒尺寸对裂变气体扩散的影响. 针对直径为 15 μm , 20 μm 的晶粒分别选取的模拟区域为 30 $\mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$, 40 $\mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$. 选取 3 个温度参数: 1276, 1476, 1676 K, 对应未掺杂 Cr_2O_3 的裂变气体扩散系数如表 2 所列, 晶粒构造与初始浓度均与 3.2 节相同.

$\tau = 250$ s, 采用未掺杂 D^{undoped} , 直径为 5, 10, 15, 20 μm 的晶粒在 1476 K 温度下, 气泡的分布如图 8 所示. 可以看到直径 5 μm 的晶粒内部没有形成气泡, 而其他晶粒尺寸内部形成气泡, 且分布较为类似.

相同温度下不同晶粒尺寸孔隙度与晶界气泡覆盖率随时间演化见图 9. 通过对比可以看到, 如果不改变温度和扩散系数, 仅改变晶粒尺寸, 对燃料孔隙度几乎没有影响. 而晶界气泡覆盖率在某些条件下会受晶粒尺寸的影响, 具体来讲, 从图 9(d) 可以看出, 在模拟进行一段时间后, 直径 5 μm 晶粒的晶界气泡覆盖率高与其他晶粒尺寸, 且增长趋势也高于其他晶粒尺寸, 分析认为这是由于直径 5 μm 晶粒的尺寸较小, 在 1476 K 温度条件下, 较大的扩散系数使得晶粒内裂变气体全部扩散至晶界, 晶粒内没有发生气泡的形核, 而其他尺寸晶粒则不同 (如图 8 所示), 晶粒内没有气泡捕捉裂变气

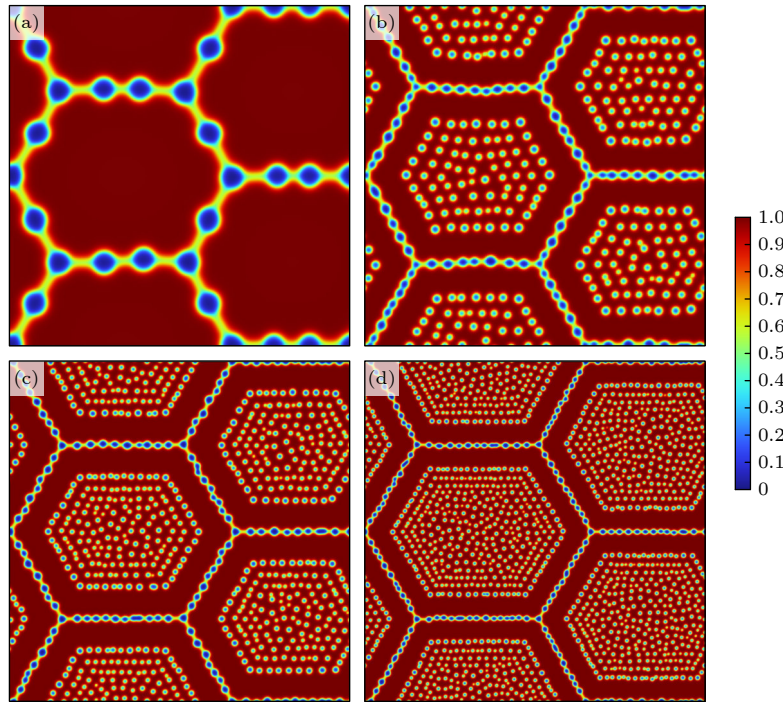


图 8 $T = 1476 \text{ K}$, $\tau = 250 \text{ s}$ 时晶粒与气泡分布 (a) $5 \mu\text{m}$; (b) $10 \mu\text{m}$; (c) $15 \mu\text{m}$; (d) $20 \mu\text{m}$

Fig. 8. Distribution of grains and bubbles at $\tau = 250 \text{ s}$, $T = 1476 \text{ K}$: (a) $5 \mu\text{m}$; (b) $10 \mu\text{m}$; (c) $15 \mu\text{m}$; (d) $20 \mu\text{m}$.

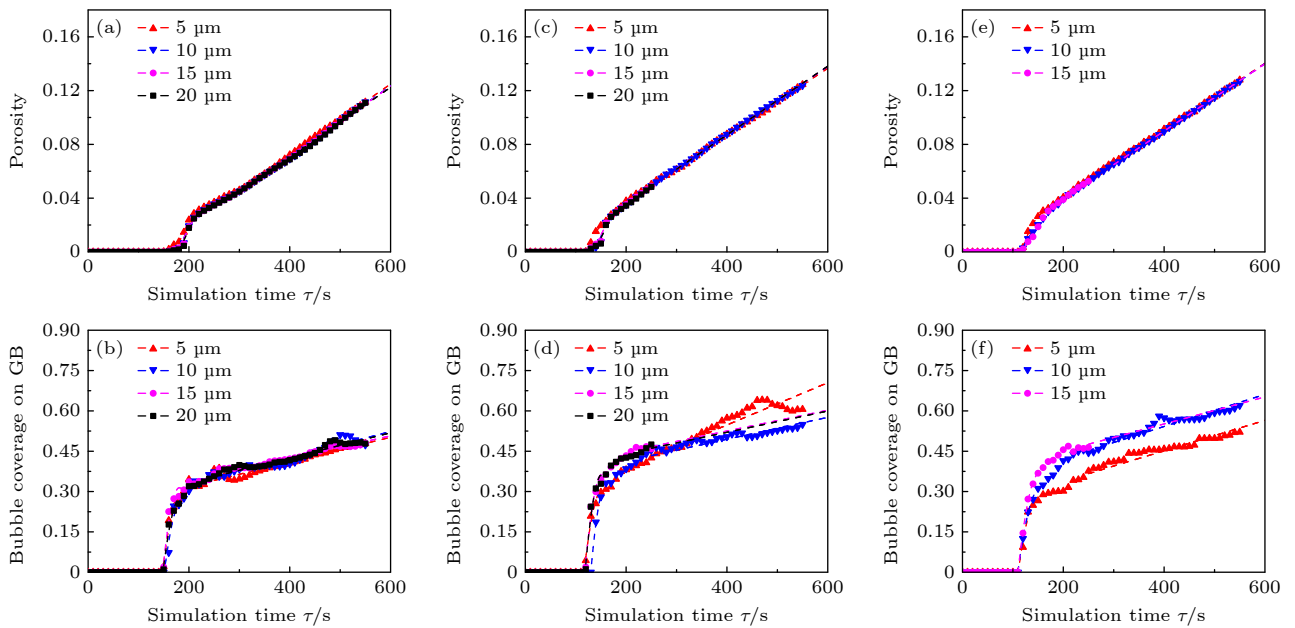


图 9 相同温度不同晶粒尺寸, (a), (c), (e) 孔隙度与 (b), (d), (f) 晶界气泡覆盖率随时间演化 (a), (b) $T = 1276 \text{ K}$; (c), (d) $T = 1476 \text{ K}$; (e), (f) $T = 1676 \text{ K}$

Fig. 9. Evolution of (a), (c), (e) porosity and (b), (d), (f) bubble coverage on GB over time for the same temperature but different grain sizes: (a), (b) $T = 1276 \text{ K}$; (c), (d) $T = 1476 \text{ K}$; (e), (f) $T = 1676 \text{ K}$.

体原子, 又使得源源不断产生的气体原子扩散到晶界, 被晶界上的气泡捕捉, 使得这些气泡相较于其他晶粒尺寸的晶界气泡, 吸收了更多气体原子, 半径更大, 在 $\tau = 500 \text{ s}$ 时, 直径 $5 \mu\text{m}$ 晶粒晶界上的气泡平均直径为 $0.89 \mu\text{m}$, 数密度为 $0.65 \text{ 个}/\mu\text{m}$,

而 $10 \mu\text{m}$ 晶粒晶界上的气泡平均直径为 $0.64 \mu\text{m}$, 数密度为 $0.85 \text{ 个}/\mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ 晶粒晶界上的气泡平均直径与数密度的乘积大于 $10 \mu\text{m}$ 晶粒, 意味着其晶界气泡覆盖率大于 $10 \mu\text{m}$ 晶粒, 形成图 9(d) 所示的趋势. 1476 K 温度下的扩散系数是 1276 K

下的近 30 倍, 在 1276 K 下, 5 μm 内部同样产生大量气泡 (如图 3 所示), 没有产生类似前文所述的情况, 故在 1276 K 条件下不同尺寸晶粒的晶界气泡覆盖率差别不大 (如图 9(b) 所示).

此外从图 9(f) 看出, 1676 K 温度下, 5 μm 晶粒的晶界气泡覆盖率较小, 不仅小于同温度下其他尺寸晶粒的, 还小于 1476 K 温度条件下同尺寸晶粒的, 与 3.2 节的分析结论相悖, 分析后将这一现象同样归咎于 5 μm 晶粒的尺寸较小. 根据前文的分析, 1476 K 温度下 5 μm 晶粒内部的裂变气体已全部被晶界上的气泡吸收, 1676 K 下更大的扩散系数并不能使这些气泡吸收到更多的气体原子, 但能促进形成半径更大的气泡, 同时通过对比图 7(a)、图 9(c)、图 9(e) 可以了解到 5 μm 晶粒在 1476 K 和 1676 K 条件下的孔隙度十分近似, 即两者气泡面积十分近似. 晶界长度一致且穿过所有气泡, 气泡面积近似相等且形状近似为圆形, 1676 K 下的气泡半径大于 1476 K, 通过几何论证可以证明, 1676 K 条件下穿过气泡的晶界占整条晶界长度的百分比, 即晶界气泡覆盖率, 小于 1476 K 条件下的晶界气泡覆盖率. 当晶粒尺寸较

大, 1676 K 条件下可以比 1476 K 吸收到更多的裂变气体原子时, 便不会出现上述情况.

3.4 大晶粒掺杂效应

考虑到直径为 15, 20 μm 的晶粒尺寸介于普通 UO_2 燃料 (5—10 μm) 与掺杂 Cr_2O_3 的大晶粒 UO_2 燃料 (50—60 μm) 之间, 本节在相同温度下采用掺杂 Cr_2O_3 的裂变气体扩散系数 D^{doped} 对该两种尺寸晶粒再进行一次模拟, D^{doped} 与温度的对应关系如表 2 所列, 其他条件均与 3.3 节相同.

采用 D^{undoped} 与 D^{doped} 部分条件下的晶粒与气泡分布对比如图 10 所示, 可以看出, 相同温度下采用不同扩散系数对裂变气体气泡的演化也会产生影响, 但由于选取的扩散系数相差不大, 所以影响较小.

对于直径 15 μm 与 20 μm 晶粒, 孔隙度与晶界气泡覆盖率随时间演化如图 11 所示. 1476 K 与 1676 K 条件下采用的两种扩散系数相差 1.2—1.6 倍, 对孔隙度与晶界气泡覆盖率的影响不大, 不同温度下采用的扩散系数相差 5—30 倍, 此时对孔隙度与晶界气泡覆盖率的影响才比较显著.

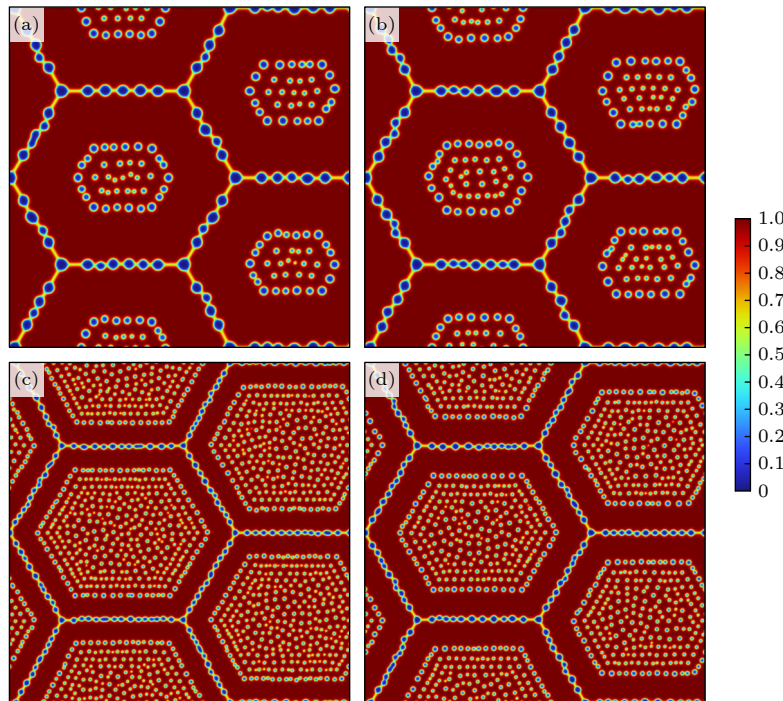


图 10 采用 D^{undoped} 与 D^{doped} 晶粒与气泡分布对比 (a) $T = 1676 \text{ K}$, 15 μm , D^{undoped} ; (b) $T = 1676 \text{ K}$, 15 μm , D^{doped} ; (c) $T = 1476 \text{ K}$, 20 μm , D^{undoped} ; (d) $T = 1476 \text{ K}$, 20 μm , D^{doped}

Fig. 10. Comparison of the distribution of grains and bubbles using D^{undoped} and D^{doped} : (a) $T = 1676 \text{ K}$, 15 μm , D^{undoped} ; (b) $T = 1676 \text{ K}$, 15 μm , D^{doped} ; (c) $T = 1476 \text{ K}$, 20 μm , D^{undoped} ; (d) $T = 1476 \text{ K}$, 20 μm , D^{doped} .

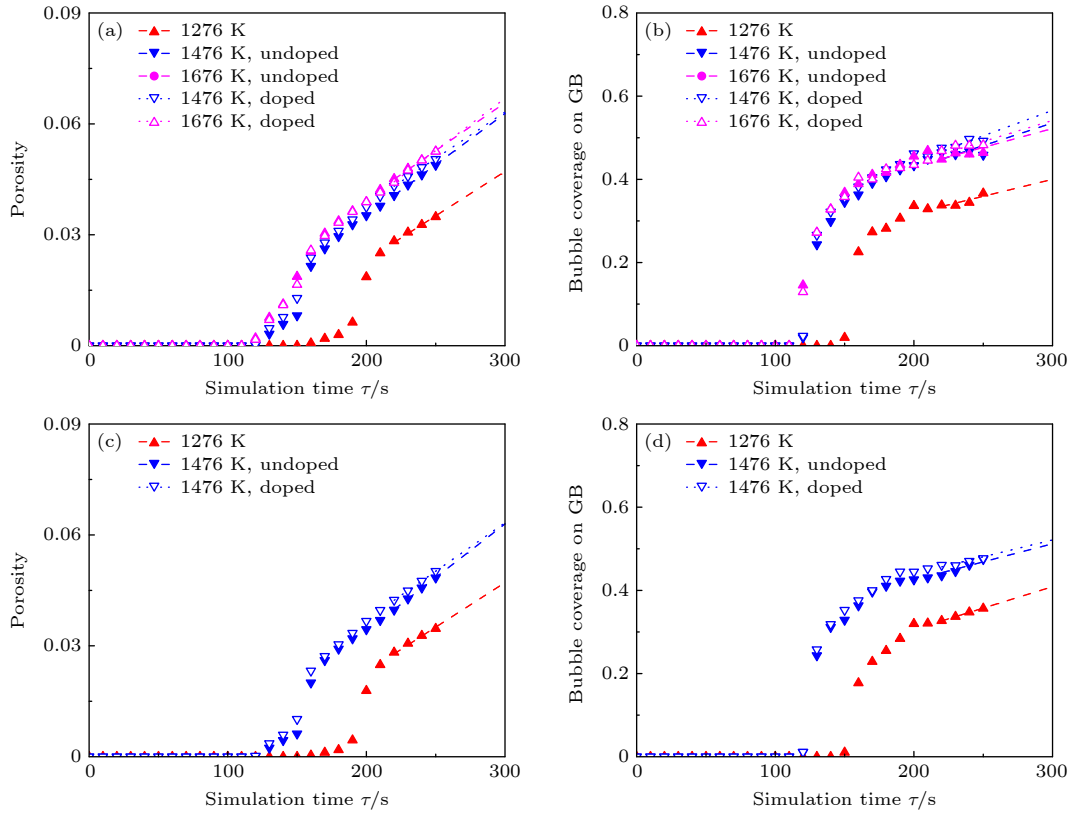


图 11 对于直径 15 μm 与 20 μm 晶粒, (a), (c) 孔隙度与 (b), (d) 晶界气泡覆盖率随时间演化 (a), (b) 直径 15 μm ; (c), (d) 直径 20 μm

Fig. 11. Evolution of (a), (c) porosity and (b), (d) bubble coverage on grain boundary with time for grains with a diameter of 15 μm and 20 μm : (a), (b) Diameter 15 μm ; (c), (d) diameter 20 μm .

4 结 论

采用 Turnbull 模型中给出的裂变气体扩散系数, 包括普通 UO_2 燃料中的裂变气体扩散系数与掺杂 Cr_2O_3 的大晶粒 UO_2 燃料中的裂变气体扩散系数, 建立了不同晶粒尺寸下晶粒与气泡演化的相场模型, 考察了不同时间、温度、扩散系数条件下燃料模型的晶粒与气泡分布、孔隙度、晶界气泡覆盖率, 得到与实验和其他相场模型相近的结果。

验证了裂变气体气泡形成的 3 个阶段: 孕育阶段, 形核阶段, 生长阶段。在孕育阶段, 没有气泡产生, 孔隙度与晶界气泡覆盖率不增大; 在形核阶段, 气泡大量形成且优先在晶界上形成, 孔隙度与晶界气泡覆盖率高速增长; 在生长阶段, 气泡停止产生, 现有气泡不断生长并与临近气泡相互融合, 孔隙度与晶界气泡覆盖率平稳增长。此外还观察到了较明显的“无气泡区”, 以及气泡边缘存在能量峰值。

研究表明, 温度与扩散系数对裂变气体的释放行为产生较大影响, 温度越高、扩散系数越大,

裂变气体气泡形核越早, 平均半径越大且数密度越小。同时在晶粒半径较大的模型中, 扩散系数越大, 孔隙度与晶界气泡覆盖率越高, 晶粒尺寸对这两者的影响较小, 但在晶粒半径较小的模型中则不同, 较小的晶粒尺寸会对孔隙度与晶界气泡覆盖率产生较大影响。

在进一步的工作中, 可通过孔隙度、气泡半径及密度等数据进而计算燃料的热导率、肿胀率等参数, 从而研究裂变气体释放行为对燃料的导热性能、力学性能的影响。此外根据文献 [36–38] 的相关研究, 晶粒中存在应力分布和弹性能, 该应力可能会影响气泡的生长和形状, 促使气泡成长为透镜状, 而在本文中, 气泡多为圆形, 故在之后的研究中, 需要考虑弹塑性能对气泡演化的影响。

参考文献

- [1] Rest J 2010 *J. Nucl. Mater.* **402** 179
- [2] Trinkaus H, Singh B N 2003 *J. Nucl. Mater.* **323** 229
- [3] Rest J, Hofman G L 1999 *Nucl. Technol.* **126** 88
- [4] Pastore G, Luzzi L, Di Marcello V, van Uffelen P 2013 *Nucl. Eng. Des.* **256** 75

- [5] Piro M H, Sunderland D, Livingstone S, Sercombe J, Revie R W, Quastel A, Terrani K A, Judge C 2020 *Comprehensive Nuclear Materials* (2nd Ed.) (Amsterdam: Elsevier) p248
- [6] He W, Wu X Y, Wu L, Wen B, Zhu W, Zhang W, Pan R J, Wang Z, Huang W J 2017 *Nucl. Power Eng.* **38** 170 (in Chinese) [何文, 伍晓勇, 吴璐, 温榜, 朱伟, 张伟, 潘荣剑, 王楨, 黄伟杰 2017 *核动力工程* **38** 170]
- [7] Killeen J C 1980 *J. Nucl. Mater.* **88** 177
- [8] Cooper M W D, Pastore G, Che Y, Matthews C, Forslund A, Stanek C R, Shirvan K, Tverberg T, Gamble K A, Mays B, Andersson D A 2021 *J. Nucl. Mater.* **545** 152590
- [9] Aagesen L K, Schwen D, Tonks M R, Zhang Y 2019 *Comput. Mater. Sci.* **161** 35
- [10] Yuda R, Harada H, Hirai M, Hosokawa T, Une K, Kashibe S, Shimizu S, Kubo T 1997 *J. Nucl. Mater.* **248** 262
- [11] Pang H, Xin Y, Yue H F, Peng H, Pu Z P, Qiu X, Sun Z P, Liu S C 2022 *Mater. Rev.* **36** 5 (in Chinese) [庞华, 辛勇, 岳慧芳, 彭航, 蒲曾坪, 邱玺, 孙志鹏, 刘仕超 2022 *材料导报* **36** 5]
- [12] Delafoy C, Dewes P, Miles T 2007 *Proceedings of the 2007 LWR Fuel Performance Meeting/TopFuel 2007* San Francisco, CA, United States, September 30–October 3, 2007 p1
- [13] Kashibe S, Une K 1998 *J. Nucl. Mater.* **254** 234
- [14] Che Y, Pastore G, Hales J, Shirvan K 2018 *Nucl. Eng. Des.* **337** 271
- [15] Moelans N, Blanpain B, Wollants P 2008 *Comput. Coupling Phase Diagrams Thermochem* **32** 268
- [16] Guo C, Kang C R, Gao Y, Zhang Y C, Deng Y Y, Ma C, Xu C J, Liang S H 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 096401 (in Chinese) [郭灿, 康晨瑞, 高莹, 张一弛, 邓英远, 马超, 徐春杰, 梁淑华 2022 *物理学报* **71** 096401]
- [17] Hu S, Henager Jr C H 2009 *J. Nucl. Mater.* **394** 155
- [18] Millett P C, El-Azab A, Rokkam S, Tonks M, Wolf D 2011 *Comput. Mater. Sci.* **50** 949
- [19] Jiang Y B, Liu W B, Li W J, Sun Z Y, Xin Y, Chen P H, Yun D 2021 *Comput. Mater. Sci.* **188** 110176.
- [20] Zhao J J, Sun D, Xi L, Chen P, Zhao J J, Wang Y Y 2023 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **25** 14928
- [21] Cahn J W, Hilliard J E 1958 *J. Chem. Phys.* **28** 258
- [22] Li Y, Hu S, Montgomery R, Gao F, Sun X 2013 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **303** 62
- [23] Kittel C, Kroemer H 1980 *Thermal Physics* (New York: WH Freeman and Company) pp287–306
- [24] Moelans N 2011 *Acta Mater.* **59** 1077
- [25] Moelans N, Blanpain B, Wollants P 2008 *Phys. Rev. B* **78** 024113
- [26] Cahn J W 1961 *Acta Metall.* **9** 795
- [27] Allen S M, Cahn J W 1972 *Acta Metall.* **20** 423
- [28] Allen S M, Cahn J W 1973 *Scr. Metall.* **7** 1261
- [29] Turnbull J A, Friskney C A, Findlay J R, Johnson F A, Walter A J 1982 *J. Nucl. Mater.* **107** 168
- [30] Turnbull J A, White R J, Wise C 1989 *Technical Committee on Water Reactor Fuel Element Computer Modelling in Steady State, Transient and Accident Conditions* Preston, United Kingdom, September 18–22, 1988 p174
- [31] INTRODUCTION TO COMSOL Multiphysics, COMSOL Co Ltd. https://cdn.comsol.com/doc/5.2/IntroductionToCOMSOLMultiphysics.zh_CN.pdf [2023-11-1]
- [32] Millett P C, El-Azab A, Wolf D 2011 *Comput. Mater. Sci.* **50** 960
- [33] Sagni C, Grant M 1999 *Phys. Rev. E* **59** 4175.
- [34] Bullough R, Nelson R S 1974 *Phys. Technol.* **5** 29
- [35] Zacharie I, Lansart S, Combette P, Trotabas M, Coster M, Groos M 1998 *J. Nucl. Mater.* **255** 85
- [36] Sheng J, Wang Y C, Liu Y, Wu S, Xu K, Chen Z H, Bo S, Liu H F, Song H F 2022 *Comput. Mater. Sci.* **213** 111663
- [37] Wu S, Sheng J, Yang C, Shi X, Huang H, Liu Y, Song H 2022 *Front. Mater.* **9** 916593
- [38] Jiang Y B, Liu W B, Sun Z P, La Y X, Yun D 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 026103 (in Chinese) [姜彦博, 柳文波, 孙志鹏, 喇永孝, 恽迪 2022 *物理学报* **71** 026103]

Phase-field simulation on fission gas release behavior of large grain UO_2 fuel*

Liu Dong-Kun Wang Qing-Yu[†] Zhang Tian Zhou Yu Wang Xiang

(College of Nuclear Science and Technology, Harbin Engineering University, Harbin 150001, China)

(Received 9 November 2023; revised manuscript received 11 December 2023)

Abstract

In order to predict the release behavior of fission gas in large grain UO_2 fuel and provide support for the development of accident tolerant fuel, a phase-field model is used to simulate the release behavior of fission gas in the microstructure of UO_2 polycrystalline in this work. This model adopts a set of coupled Cahn-Hilliard equations and Allen-Cahn equations, using conserved field variables to represent the distribution of fission gas and vacancies, and distinguishing bubble phase from matrix phase by using order parameters. This model focuses on investigating the effects of different grain sizes, temperature conditions, and diffusion coefficients on the release behavior of fission gas, demonstrating the nucleation, growth, and fusion behavior of bubbles. Simulation results are obtained for fuel porosity, bubble coverage on grain boundaries, and average bubble radius at a certain degree of burnup. The results show that temperature and diffusion coefficient have a significant influence on porosity and bubble coverage on grain boundaries. When the diffusion coefficient is high, grain size also has a significant influence on fission gas release behavior. And when the diffusion coefficient is low, the influence of grain size is not significant. In addition, the distribution of fission gas bubbles under high burnup obtained through this model is also in good agreement with experimental result. The model can predict the behavior of fission gas release in large grain UO_2 fuel.

Keywords: phase field model, large grain UO_2 fuel, release of fission gas

PACS: 61.80.Az, 61.72.Qq, 61.72.Mm

DOI: [10.7498/aps.73.20231773](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231773)

* Project supported by the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. 3072022JC1502).

[†] Corresponding author. E-mail: wangqingyu@hrbeu.edu.cn



大晶粒 UO_2 燃料裂变气体释放行为相场模拟研究

刘东昆 王庆宇 张田 周羽 王翔

Phase-field simulation on fission gas release behavior of large grain UO_2 fuel

Liu Dong-Kun Wang Qing-Yu Zhang Tian Zhou Yu Wang Xiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 066102 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231773

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231773>

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

外加应力作用下 UO_2 中空洞演化过程的相场模拟

Phase-field simulation of void evolution in UO_2 under applied stress

物理学报. 2022, 71(2): 026103 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211440>

第一性原理研究Zr的掺杂对Xe在 UO_2 中溶解能力的影响

Influence of Zr doping on solubility of Xe in UO_2 : A first-principle study

物理学报. 2018, 67(4): 046101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171863>

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>

$\text{U}_{1-x}\text{Th}_x\text{O}_2$ 混合燃料力学性能的分子动力学模拟

Effects of Th doping on mechanical properties of $\text{U}_{1-x}\text{Th}_x\text{O}_2$: An atomistic simulation

物理学报. 2021, 70(12): 122801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202239>

电离层中性气体释放的早期试验效应研究

Early time effects produced by neutral gas ionospheric chemical release

物理学报. 2018, 67(1): 019401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171620>

运动晶界与调幅分解相互作用过程的相场法研究

A phase-field study on interaction process of moving grain boundary and spinodal decomposition

物理学报. 2022, 71(7): 078101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211973>