

基于速率理论的压水堆 UO_2 燃料裂变气体辐照肿胀模型研究

周毅, 刘振海, 肖忠, 刘仕超, 王浩煜, 辛勇, 孙丹, 曾未, 于俊崇
(中国核动力研究设计院 先进核能技术全国重点实验室, 四川 成都 610213)

摘要: 压水堆 UO_2 燃料裂变气体导致的辐照肿胀会促使燃料-包壳接触、降低燃料热导率, 是影响燃料元件性能的关键行为。基于速率理论, 针对不同的燃耗范围, 建立了裂变气体辐照肿胀模型。模型首先提出了低燃耗下晶内气体、晶界气体和点缺陷的控制方程, 然后给出了高燃耗下考虑晶粒细化的晶内气体控制方程、晶界气孔非平衡态长大控制方程, 并建立聚合粗化模型。在此基础上, 采用COMSOL软件实现控制方程的求解。采用试验数据进行了模型初步验证, 模型预测的气泡尺寸、气孔率与试验结果符合较好。

关键词: 裂变气体; 辐照肿胀; 模型; 高燃耗; 速率理论

中图法分类号: TL34

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2025)07-1777-08

1 引言

目前核电压水堆中广泛采用 UO_2 作为燃料, UO_2 中固体裂变产物和裂变气体的累积引起燃料体积随燃耗加深而不断增加,称为辐照肿胀。辐照肿胀会促使燃料-包壳接触、降低燃料热导率,是影响燃料元件性能的关键行为。

裂变气体原子在 UO_2 晶格中的溶解度较小,它们倾向于沉淀而形成气泡,气泡的行为随着燃耗发生变化。在低燃耗下(局部燃耗小于55 GWd/tU),晶内气泡的直径2~6 nm,晶界气泡的直径42~229 nm^[1]。在高燃耗下(局部燃耗超过约60 GWd/tU), UO_2 发生高燃耗结构(HBS)转变。HBS的结构特征包括^[2]:晶粒由制造状态(通常约为10 μ m)细化为0.15~0.3 μ m;形成大量内部气体压力超过热力学平衡压力的微米级球形气孔;晶内基体中的Xe浓度贫化并降至平衡值0.2wt%。在燃耗约60~100 GWd/tU时,随着燃耗增加,气孔尺寸分布保持不变,气孔数量密度增加;在燃耗约100~250 GWd/tU时,随着燃耗增加,气孔尺寸变大,气孔密度减小,气孔发生聚合粗化^[3]。

描述 UO_2 燃料裂变气体辐照肿胀的理论模型分为2类,一是在燃料元件宏观热-力学性能分析程序(如FEMAXI^[4])中使用的半经验模型;二是专用的裂变气体行为分析程序(如MFPR^[5]、GRASS^[6]、MARGARET^[7]),

大多基于速率理论。理论研究主要针对低燃耗下HBS形成前的气体行为开展,已有低燃耗裂变气体行为模型存在以下不足:通常将晶内气泡的数量和半径设为常数,不单独考虑晶内气泡的控制方程,或者假设晶内气泡在晶内均匀分布,不考虑其数量和半径随空间的变化;假定晶内气泡的形核概率为常数,不随时间变化。对于HBS中的气体行为,Pizzocri^[8]拟合实验结果得到了晶粒尺寸随等效燃耗演化规律的半经验模型,并考虑晶粒尺寸的变化,基于扩散理论建立了晶内气体原子浓度随等效燃耗演化的模型。Veshchunov^[9]等人采用平均场方法研究了HBS中气孔粗化的机制,但由于未考虑气孔随时间长大的绝对值,该模型只能预测气孔密度和气孔率之间的相互关系,不能直接预测气孔密度、气孔平均半径随时间的变化。

2 低燃耗下裂变气体行为模型

低燃耗下裂变气体行为模型分别针对晶内气体、晶间气体和点缺陷建立控制方程,主要改进在于晶内气泡的控制方程考虑其数量和半径随空间的变化,通过求解点缺陷控制方程确定晶内气泡的形核概率,使得模型能更好预计晶内气泡密度随着燃耗增加而发生饱和的现象。

2.1 晶内气体行为模型

将晶粒视为理想的球体。晶内气体的控制方程的建

收稿日期:2024-10-30

基金项目:国家自然科学基金(12205286)

作者简介:周毅,男,1983年生,博士,正高级工程师,中国核动力研究设计院先进核能技术全国重点实验室,四川 成都 610213,电话:028-85900294,E-mail: zy214121048@163.com

立采取如下假设:

(1)在所关注的温度范围内,晶内气泡的可动性较差,忽略晶内气泡的运动。

(2)晶内气泡的长大是运动中的裂变气体原子沉淀到气泡中引起的,由于气泡尺寸较小且辐照产生的空位足够多,假设长大中的晶内气泡一直处于热力学平衡状态。

(3)假设晶内气泡具有相同的尺寸,忽略其尺寸分布。

令 $C_g(r,t)$ 为处在 UO_2 基体中的裂变气体原子浓度 (m^{-3}), $C_b(r,t)$ 为晶内气泡的浓度 (m^{-3}), $N_b(r,t)$ 为一个晶内气泡中平均的裂变气体原子数,上述物理量都是随时间 t (s)和空间 r (单位 m,以晶粒中心为球坐标系的原点)变化的函数。晶粒内的气体满足如下的方程组:

$$\frac{\partial C_g}{\partial t} = \frac{D_g}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C_g}{\partial r} \right) - k_{gg} F_n C_g^2 - k_{gb} C_g C_b + \zeta C_b N_b + \kappa G \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_b \cdot C_b}{\partial t} = k_{gg} F_n C_g^2 + k_{gb} C_g C_b - \zeta C_b N_b \quad (2)$$

$$\frac{\partial C_b}{\partial t} = \frac{k_{gg} F_n C_g^2}{2} - \zeta C_b \quad (3)$$

式中, D_g 为裂变气体原子在晶粒内的体扩散系数 (m^2/s); k_{gg} 为扩散中的气体原子发生碰撞的速率常数 (m^3/s), $k_{gg} = 16\pi D_g R_g$, R_g 为气体原子半径 (m); F_n 为气泡形核概率; k_{gb} 为扩散中的气体原子沉淀到静止气泡中的速率常数 (m^3/s), $k_{gb} = 4\pi R_b D_g$; ζ 为辐致重溶速率 (s^{-1}); κ 为裂变气体原子的产额 (0.3); G 为裂变速率 ($n \cdot (m^3 \cdot s^{-1})$), n 为裂变次数。

晶内总的气体原子体积浓度 N_{GAS} 为:

$$N_{GAS} = \int_{r=0}^{\frac{d_g}{2}} (C_g(r,t) + N_b \cdot C_b(r,t)) 4\pi r^2 \cdot dr / \int_{r=0}^{\frac{d_g}{2}} 4\pi r^2 dr \quad (4)$$

2.2 晶界气体行为模型

2.2.1 晶粒边界和晶粒边界气泡的几何描述

在处理晶内气体行为时,将晶粒视为理想的球体,而在模拟晶界气体行为时,考虑更为真实的晶粒几何形状。通常将 UO_2 晶粒近似为十四面体,平均每个晶粒拥有 7 个晶面,12 条晶边和 6 个晶角。晶粒边界不同位置处的气泡具有不同的形状,它们的体积由下式计算^[10]:

$$V_{f,e,c} = \frac{4}{3} \pi R_{f,e,c}^3 P_{f,e,c}(\theta) \quad (5)$$

式中,下标 f,e,c 分别表示晶面、晶边和晶角; $R_{f,e,c}$ 为气泡的曲率半径; $P_{f,e,c}(\theta)$ 为与半二面角 θ 有关的体积修正因子。

由于 UO_2 的晶粒边界能和表面自由能存在差异,晶面气泡是棱镜状的(如图 1 所示),它的表面是由 2 个球面组成的,2 个球面之间的夹角为 2θ ,其体积修正因子为:

$$\begin{cases} P_f(\theta) = 1 - \frac{3}{2}k + \frac{k^3}{2} \\ k = \cos \theta \end{cases} \quad (6)$$

式中, θ 通常取 50° 。

晶面气泡在晶面上的覆盖份额 (A_f) 为:

$$A_f = (R_f \cdot \sin \theta)^2 / R_s^2 \quad (7)$$

式中, R_s 为晶面气泡的俘获单胞半径,与晶面气泡的面密度相关。 R_f 为晶面气泡的曲率半径。

晶边气泡是雪茄状的(如图 2 所示),它的表面是由 3 个球面组成的,两两球面之间的夹角为 2θ ,其体积修正因子为:

$$\begin{cases} P_e(\theta) = \frac{3}{2\pi} \left[\pi - 2\alpha + \frac{k^2}{3} \sqrt{3-4k^2} - \beta k (3-k^2) \right] \\ \alpha = \arcsin \left(\frac{1}{2\sqrt{1-k^2}} \right) \\ \beta = \arccos \left(\frac{k}{\sqrt{3(1-k^2)}} \right) \end{cases} \quad (8)$$

晶边气泡在晶边上的投影长度为:

$$P_e = 2R_e \sqrt{1 - \frac{4k^2}{3}} \quad (9)$$

晶角气泡由 4 个球面组成,为了简化,将其视为球形。

根据几何关系,晶粒边界各种气泡的体积浓度由下式计算:

$$C_f = \frac{N_{bf} \cdot N_{fpg}}{V_g} = \frac{3}{d_g} \cdot \frac{1}{\pi R_s^2} \quad (10)$$

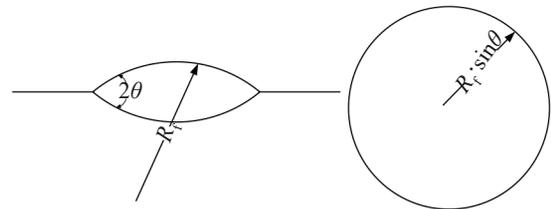


图 1 晶面气泡结构示意图

Fig.1 Schematic diagram of structure of grain face bubble

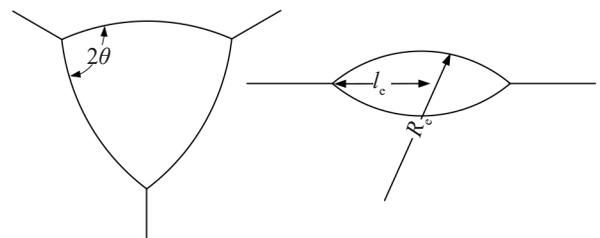


图 2 晶边气泡结构示意图

Fig.2 Schematic diagram of structure of grain edge bubble

$$C_c = \frac{N_{bc} \cdot N_{cpg}}{V_g} = \frac{12N_{bc}}{V_g} \quad (11)$$

$$C_c = \frac{N_{cpg}}{V_g} = \frac{6}{V_g} \quad (12)$$

式中, N_{bf} 为晶面气泡的面密度; N_{ipg} 为一个晶粒拥有的晶面数量; V_g 为晶粒体积; d_g 为晶粒直径; N_{bc} 为单条晶边上的晶边气泡数量; N_{cpg} 为一个晶粒拥有的晶边数量; N_{cpg} 为一个晶粒拥有的晶角数量。

2.2.2 晶界气体的控制方程

晶界气体的控制方程的建立采取如下假设:

(1) 气体原子在晶面上的面扩散系数 D_f 远大于其在晶粒内的体扩散系数 D_g , 晶界处的气体原子都处于晶界气泡中, 气体原子的流动达到稳态。

(2) 晶界处气体原子流向如下, 晶内往晶粒边界扩散的气体原子通量, 一部分直接进入晶面气泡, 一部分进入到晶面上而分别往晶面气泡、晶边气泡、晶角气泡扩散。

(3) 晶界气泡存在重溶效应, 它改变了晶内扩散方程的边界条件, 减缓了晶内扩散。

(4) 晶界气泡在长大过程中处于热力学平衡状态, 当晶界气泡达到饱和后, 裂变气体释放到外表面。

(5) 采用接近实际的晶粒边界气泡的几何形状, 各类气泡分别具有相同的尺寸。

晶粒边界气体的控制方程组为^[11]:

$$\frac{dY_f}{dt} = F_f \cdot \theta(A^* - A_f) \quad (13)$$

$$\frac{dY_e}{dt} = F_e \cdot \theta(L^* - L) \quad (14)$$

$$\frac{dY_c}{dt} = F_c \cdot \theta(L^* - L) \quad (15)$$

式中, Y_f, Y_e, Y_c 分别为晶面气泡、晶边气泡、晶角气泡中所有气体原子的体积浓度; F_f, F_e, F_c 分别为净流入晶面气泡、晶边气泡、晶角气泡中的气体原子通量; $\theta(x)$ 为 Heaviside 阶跃函数; A_f 为晶面气泡在晶面上的覆盖份额, A^* 为拟合系数, 当 $A_f = A^* = 0.5$ 时, 晶面气泡达到饱和; $L = N_{bc} \cdot l_e$, 为晶边气泡在晶边上的覆盖长度, 当 $L = L^* = L_e - 2R_c$ 时, 晶边气泡和晶角气泡达到饱和, l_e 为单个晶边气泡在晶边上的投影长度, $L_e = (\pi/6\sqrt{2})^{1/3} \cdot d_g/2$ 为平均的晶边长度。

净流入晶面气泡、晶边气泡、晶角气泡中的气体原子通量由以下关系式计算:

$$F_f = F_\delta - F_{f \rightarrow e,c} - F_{f \rightarrow g} = F_\delta - F_{f \rightarrow e,c} - \omega^f Y_f \quad (16)$$

$$F_e = \eta_e F_{f \rightarrow e,c} - \omega^e Y_e \quad (17)$$

$$F_c = \eta_c F_{f \rightarrow e,c} - \omega^c Y_c \quad (18)$$

$$F_\delta = F_{g \rightarrow f} + F_{res} \quad (19)$$

$$F_{res} = \omega^f Y_f + \omega^e Y_e + \omega^c Y_c \quad (20)$$

$$F_{f \rightarrow e,c} = F_\delta (1 - A_f) \frac{k_b^2}{k_b^2 + k_e^2} \quad (21)$$

$$\eta_e = N_{bc} / (N_{bc} + 1) \quad (22)$$

$$\eta_c = 1 - \eta_e \quad (23)$$

式中, $F_{g \rightarrow f}$ 表示晶内往晶粒边界的扩散通量; F_{res} 表示所有种类的晶界气泡辐照重溶的通量; $F_{f \rightarrow e,c}$ 表示晶粒边界上的气体原子往晶边和晶角扩散的通量; F_δ 表示考虑晶界气泡辐照重溶后沉积到晶界的气体原子总通量; $F_{f \rightarrow g}$ 表示辐照重溶导致晶面气泡中的气体原子返回晶粒内的通量; $\omega^{f,e,c}$ 为晶界各种气泡的重溶速率; k_b^2 为晶面气泡的俘获强度; k_e^2 为晶边的俘获强度; η_e, η_c 分别表示晶粒边界上的气体原子往晶边和晶角扩散的通量占 $F_{f \rightarrow e,c}$ 的份额。

根据 Nelson^[12] 的辐照重溶模型, $\omega^{f,e,c}$ 可由下式计算:

$$\omega^{f,e,c} = b_0 G \lambda / (\lambda + r_{f,e,c}) \quad (24)$$

式中, $\omega^{f,e,c}$ 为晶界各种气泡的重溶速率 (s^{-1}); $r_{f,e,c}$ 晶界各种气泡在晶面上的投影半径; $b_0 = (2 \sim 3) \times 10^{17} \text{cm}^3$; $\lambda = (1 \sim 1.5) \text{nm}$ 。

根据 Matthews^[13] 的晶面俘获模型, k_e^2, k_b^2 可由下式计算:

$$k_e^2 = \frac{2k_b}{R_{gf}} \quad (25)$$

$$k_b^2 = \frac{8 [1 - (R_f \sin \theta)^2 / R_s^2]}{R_s^2 \{ [(R_f \sin \theta)^2 / R_s^2 - 1] [3 - (R_f \sin \theta)^2 / R_s^2] + 4 \ln [R_s / (R_f \sin \theta)] \}} \quad (26)$$

$$R_s = (\pi X_f)^{-1/2} \quad (27)$$

$$X_f = 3.67 \times 10^8 \exp(1.314 \times 10^4 / T) \quad (28)$$

式中, k_e 为晶边俘获强度; k_b 为晶面气泡俘获强度; $R_{gf} = 0.5557 d_g / 2$, 为晶面的半径; R_s 为晶面气泡的俘获单胞半径; X_f 为晶面气泡的面密度 (m^{-2}), 由实验数据拟合得到的 X_f 与温度 $T(K)$ 的关系见式 (28)。

在求解晶粒内部气体扩散方程得到 $F_{g \rightarrow f}$ 时, 由于晶界重溶现象的存在, 晶粒边界处的气体浓度边界条件为:

$$C_\delta = \frac{d_g \delta}{6D_g} \cdot F_{res} \quad (29)$$

式中, δ 为晶界重溶层的等效厚度 (10 nm)。

通过气体原子的体积浓度 Y_f, Y_e, Y_c 和气泡的体积浓度 C_f, C_e, C_c , 可计算出单个气泡中的气体原子数 N_f, N_e, N_c , 再通过气体状态方程可得到单个气泡的体积 V_f, V_e, V_c , 由下式计算晶间气泡引起的气孔率 w 为:

$$w = C_f V_f + C_e V_e + C_c V_c \quad (30)$$

2.3 点缺陷控制方程

在晶内气体控制方程组式 (1)~式 (3) 中, 晶内气泡的产生率计算中要使用到 F_n 气泡形核概率, 通常的模型中假设 F_n 为常数, 忽略其随燃耗的变化。实际上 2 个气体原子在运动中相遇后能否形核成稳定的气泡, 与相遇处是否有足够的空位相关。随着燃耗的增加, 晶内的点

缺陷陷阱(位错和气泡)数量增加,空位平衡浓度会有所降低,从而使 F_n 降低,气泡密度趋向饱和。本章中假设 F_n 与空位浓度呈线性关系,通过求解点缺陷的控制方程来获得空位浓度。

点缺陷的控制方程的建立采取如下假设:

(1)UO₂燃料中,氧原子空位和间隙原子的迁移能明显小于铀原子空位和间隙原子的迁移能,迁移更慢的铀原子空位和间隙原子在动力学过程中起到速率控制作用,因此只考虑铀原子空位和间隙原子的控制方程。

(2)UO₂燃料中,点缺陷的陷阱主要包括位错和气泡,忽略晶界等其他缺陷的对点缺陷的俘获作用。

(3)气泡处于热力学平衡状态,气泡表面的点缺陷浓度等于该温度下点缺陷的热平衡浓度。

点缺陷的控制方程组为:

$$\begin{cases} \frac{dc_v}{dt} = Y_{iv}G\Omega - \eta_{iv}(D_i + D_v)c_v c_i - Z_v D_v \rho_d c_v \\ \quad - 4\pi R_b D_v C_b (c_v - c_{vU}) \\ \frac{dc_i}{dt} = Y_{iv}G\Omega - \eta_{iv}(D_i + D_v)c_v c_i - Z_i D_i \rho_d c_i \\ \quad - 4\pi R_b D_v C_b (c_i - c_{iU}) \end{cases} \quad (31)$$

式中, c_v 、 c_i 分别为空位和间隙原子的浓度(占据晶格点阵的份额); Y_{iv} 为一次裂变所产生的稳定Frenkel对产额(10^4); Ω 为UO₂燃料的原子体积($41 \times 10^{-30} \text{ m}^3$); η_{iv} 为空位和间隙原子的复合常数(10^{20} m^{-2}); Z_v 、 Z_i 分别为位错对空位、间隙原子的俘获常数; ρ_d 为位错密度(m^{-2}); R_b 为气泡半径(m); C_b 为气泡密度(m^{-3}); c_{vU} 、 c_{iU} 分别为铀原子空位和间隙原子的热平衡浓度; D_v 、 D_i 分别为空位和间隙原子的扩散系数($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$),由下式计算:

$$\begin{cases} D_v = 1 \times 10^{-7} \exp\left(-\frac{E_v}{k \max(T, T_{\min})}\right) \\ D_i = 0.712 \exp\left(-\frac{E_i}{k \max(T, T_{\min})}\right) \\ T_{\min} = \frac{E_v}{k \ln [1 \times 10^{-7} / (\alpha G)]} \end{cases} \quad (32)$$

式中, E_v 为铀原子空位的迁移能(2.4 eV); E_i 为铀原子间隙原子的迁移能(1.9 eV); k 为玻尔兹曼常数($1.38 \times 10^{-23} \text{ K}$); T 为温度(K); T_{\min} 表示辐照引起空位扩散能力增强而相应温度等效提升; α 为辐照引起空位扩散系数增加的经验参数($1.27 \times 10^{-39} \text{ m}^5$)。

辐照条件下的位错密度(ρ_d)采用基于实验数据得到的经验公式^[14]:

$$\rho_d = \exp(0.022Bu + 13.8) \quad (33)$$

式中, Bu 为燃耗(GWd/tU)。

采用Griesmeyer^[15]等人的模型计算铀原子空位和间隙原子的热平衡浓度,该热平衡浓度通过求解下述四元四次方程组得到:

$$\begin{cases} \frac{K_{FU}}{K_S} (c_{vO})^4 + (c_{vO})^3 - \frac{1}{2} K_{FO} (c_{vO}) - K_S = 0 \\ c_{vU} c_{vO}^2 = \exp\left(-\frac{\Delta G_S}{kT}\right) = K_S \\ c_{vO} c_{iO} = \exp\left(-\frac{\Delta G_{FO}}{kT}\right) = K_{FO} \\ c_{vU} c_{iU} = \exp\left(-\frac{\Delta G_{FU}}{kT}\right) = K_{FU} \end{cases} \quad (34)$$

式中, c_{vU} 、 c_{iU} 分别为铀原子空位和间隙原子的热平衡浓度; c_{vO} 、 c_{iO} 分别为氧原子空位和间隙原子的热平衡浓度; ΔG_S 为Schottky缺陷形成能(6.4 eV); ΔG_{FO} 、 ΔG_{FU} 分别为氧原子和铀原子的Frenkel缺陷形成能(3.1、9.5 eV); K_S 为Schottky常数; K_{FO} 、 K_{FU} 分别为氧原子和铀原子的Frenkel常数。

3 高燃耗下裂变气体行为模型

高燃耗下HBS中的裂变气体行为模型分为晶内气体行为、晶界气孔行为和晶界气孔聚合粗化模型:晶内气体行为主要推导了考虑晶粒尺寸变化的晶内气体控制方程;晶界气孔重点研究气孔的非平衡长大机制;在已有气孔聚合粗化模型基础上,同时考虑气孔的非平衡长大和聚合长大,建立晶界气孔的半径、数量密度、气孔率的控制方程。

3.1 晶内气体行为模型

在HBS中,裂变气体原子不断由晶粒内部向晶粒边界扩散,沉淀在微米级的晶界气孔中。晶粒细化的情况下,扩散所需的距离大幅减小。一方面,由于高燃耗下晶内气泡的数量和尺寸达到饱和,俘获速率和重溶速率达到平衡,可将晶内气体的控制方程适当简化;另一方面,现有晶内气体控制方程假设晶粒尺寸为常数,由于高燃耗下晶粒尺寸随燃耗发生变化,需要建立考虑晶粒尺寸变化的晶内气体控制方程。

假设晶内气泡数量不变,忽略晶内气泡的形核项,晶内气体控制方程组式(1)~式(3)简化为:

$$\begin{cases} \frac{\partial C_g}{\partial t} = \frac{D_g}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \cdot \frac{\partial C_g}{\partial r} \right) - \nu C_g + \zeta C_b N_b + \kappa G \\ \frac{\partial N_b \cdot C_b}{\partial t} = \nu C_g - \zeta C_b N_b \end{cases} \quad (35)$$

将上两式相加可得:

$$\frac{\partial (C_g + C_b N_b)}{\partial t} = \frac{D_g}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \cdot \frac{\partial C_g}{\partial r} \right) + \kappa G \quad (36)$$

式中, ν 为晶内气泡的俘获速率(s^{-1})。

晶内气泡的数量和尺寸在中高燃耗后达到饱和,因此,假设俘获速率和重溶速率达到平衡,则有:

$$\nu C_g - \zeta C_b N_b = 0 \quad (37)$$

将式(37)代入(36)可得:

$$\frac{\partial(C_g + C_b N_b)}{\partial t} = D_g \cdot \frac{\zeta}{\zeta + v} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \cdot \frac{\partial(C_g + C_b N_b)}{\partial r} \right) + \kappa G \quad (38)$$

用 ψ 表示在固体基体和晶内气泡中的气体原子的总浓度 (m^{-3}), 即 $\psi = C_g + C_b N_b$, 则式(36)变为:

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = D_g' \cdot \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \cdot \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) + \kappa G \quad (39)$$

式中, $D_g' = D_g \cdot \frac{\zeta}{\zeta + v}$ 为等效扩散系数 (m^2/s)。

为考虑晶粒尺寸变化, 引入无量纲的半径位置参数

$$\eta = \frac{r}{r_g}, r_g \text{ 为晶粒半径, 将式(39)改写成如下形式:}$$

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = \frac{D_g'}{\eta^2 r_g^2} \cdot \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta^2 \cdot \frac{\partial \psi}{\partial \eta} \right) + \kappa G \quad (40)$$

晶内总的气体原子体积浓度 N_{GAS} 为:

$$N_{\text{GAS}} = \int_0^1 \psi(\eta, t) \eta^2 d\eta / \int_0^1 \eta^2 d\eta \quad (41)$$

3.2 晶界气孔长大模型

当燃耗在约 60~100 $\text{GWD} \cdot \text{tU}^{-1}$ 之间时, 气孔密度基本保持不变, 气孔依靠吸收扩散到其中的点缺陷而长大。对气孔采用平均场近似, 取气孔数量密度为 C_p , 平均半径为 R , 气孔体积为 $V = 4\pi R^3/3$ 。气孔在长大过程中处于非热力学平衡态, Olander^[16] 给出了非平衡态气孔长大的控制方程, 具体如下:

$$\frac{dV}{dt} = 4\pi R D_v (c_v - c_{vR}) - 4\pi R D_i (c_i - c_{iR}) \quad (42)$$

式中, c_v, c_i 分别为 UO_2 基体中空位和间隙原子的浓度 (占据晶格点阵的份额), 由 2.3 节中的点缺陷控制方程计算; c_{vR}, c_{iR} 为气孔表面处空位和间隙原子的浓度 (占据晶格点阵的份额); D_v, D_i 分别为空位和间隙原子的扩散系数 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)。

当气孔处于热力学平衡态时:

$$\begin{cases} c_{vR} = c_{vU} \\ c_{iR} = c_{iU} \end{cases} \quad (43)$$

式中, c_{vU}, c_{iU} 分别为铀原子空位和间隙原子的热平衡浓度。

当气孔处于非热力学平衡态时:

$$\begin{cases} c_{vR} = c_{vU} \exp\left(-\frac{\Omega}{kT} \left(p - \frac{2\gamma}{R} - \sigma\right)\right) \\ c_{iR} = c_{iU} \exp\left(\frac{\Omega}{kT} \left(p - \frac{2\gamma}{R} - \sigma\right)\right) \end{cases} \quad (44)$$

式中, p 为气孔内的气体压力; γ 是固体的表面能; σ 为固体内的静水压力 (受压为正); Ω 为 UO_2 燃料的原子体积 ($41 \times 10^{-30} \text{m}^3$)。

气孔内的气体压力采用气体状态方程计算, 状态方程中, p 由气孔半径 R 和气孔内的气体原子数决定。其中, R 由气孔长大控制方程得到, 而气孔内的气体原子数

则由产生的裂变气体原子总数减去晶粒内的气体原子总数得到, 晶粒内的气体原子总数在 3.1 节中计算。

总的气孔率为:

$$w = C_p V \quad (45)$$

3.3 晶界气孔聚合粗化模型

Spino^[3] 的实验结果显示, 当燃料芯块局部燃耗达到约 100 GWD/tU , 局部气孔率达到约 9% 时, 气孔发生粗化, 即气孔密度随燃耗增加而减小, 气孔直径随燃耗增加而增大。当局部燃耗达到约 250 $\text{GWD} \cdot \text{tU}^{-1}$, 最大气孔直径将超过 4 μm 。Spino 提出 3 种可能的粗化机制, 分别为 (1) 气孔迁移聚合; (2) Ostwald 熟化机制, 即由于毛细效应导致小尺寸粒子周围的母相组元浓度高于大尺寸粒子周围的母相组元浓度, 母相组元向低浓度区扩散, 从而大尺寸粒子继续吸收过饱和组元而长大, 小尺寸粒子溶解消失, 粒子尺寸发生粗化; (3) 随机分布的静止气孔由于气孔长大而发生聚合。

Veshchunov^[5] 认为: 在 1500 $^{\circ}\text{C}$ 以下的 UO_2 燃料中, 直径大于 2 nm 的气孔运动可忽略, 机制 (1) 不成立。 UO_2 燃料基体中的平衡气体压力通常达到几个 GPa (与处于热力学平衡态的纳米级气泡内压差不多), 但 HBS 的微米级气孔处于超压状态, 这会强烈抑制气体从气孔往基体中的热溶解, 而使机制 (2) Ostwald 熟化难以发生。因此, 机制 (3) 是导致 HBS 中气孔粗化的主要原因, 并基于平均场理论提出了空间随机分布的气孔由于气孔长大而发生聚合的粗化模型。

3.3.1 气孔粗化模型

假设在辐照后的燃料基体中点缺陷向随机分布的超压气孔扩散, 导致气孔不断长大。对气孔采用平均场近似, 取气孔数量密度为 C_p , 平均半径为 $R(t)$, 气孔体积为 $V = 4\pi R^3/3$ 。每个气孔被一个半径为 $2R$ 的球体包围, 在球体区域中没有其他气孔球心的存在, 称该区域为排除区域。若有气孔球心出现在排除区域中, 则 2 个气孔的体积区域将产生交集而粗化。

在气孔自由分布的假设下, 气孔的平均体积在时间步 dt 内的增量为 $dV = 4\pi R^2 dR$, 相应的排除区域增量为 $8dV$ 。在排除区域内的气孔 $8C_p dV$ 将发生二元粗化, 其概率为 $dP_{12} = 8C_p dV$ 。因此, 二元粗化的总数量为 $(1/2)dP_{12} \cdot C_p = 4C_p^2 dV$, 相应的气孔数量的减少满足如下方程^[5]:

$$\frac{\partial C_p}{\partial t} = -4C_p^2 \frac{\partial V}{\partial t} \Big|_g \quad (46)$$

式中, $\frac{\partial V}{\partial t} \Big|_g$ 代表了气孔的连续长大 (通过吸收扩散到其中的点缺陷), 直到它与其他气孔发生粗化。

当二元粗化发生的时候, 新形成的气孔增大了排除区域的体积, 增加了第 3 个气孔被扫除的概率。球心距离为 z 、半径分别为 x 和 y 的 2 个气孔的重叠区域体

积为^[5]:

$$u(x,y,z) = \frac{\pi(x+y-z)^2 \cdot [(x+y+z)^2 - 4(x^2-xy+y^2)]}{12z} \quad (47)$$

令 V_{12} 为新形成的气孔的排除区域体积, V_1 和 V_2 分别为粗化前 2 个气孔的排除区域体积, $V_{A \cap B}$ 为 V_A 和 V_B 的重叠区域体积, 则二元粗化后瞬时增加的排除区域体积为^[5]:

$$\begin{aligned} dV &= V_{12} - V_{1 \cap 12} - V_{2 \cap 12} + V_{1 \cap 2} \\ &= \frac{4\pi}{3} (\sqrt[3]{2} + 1)^3 R^3 - 2u[2R, (\sqrt[3]{2} + 1)R, R] \\ &\quad + u(2R, 2R, 2R) \\ &= V \cdot 9(2 - \sqrt[3]{2})/4 \end{aligned} \quad (48)$$

即 $dV = \zeta V$, 其中 $\zeta = 9(2 - \sqrt[3]{2})/4 \approx 1.67$, 第 3 个气孔被扫除的概率为 $P_3 = \zeta C_P V$. 因此三元粗化发生的概率为 $dP_{123} = P_3 dP_{12} = dP_{12} \zeta C_P V$, 单位时间单位体积内发生的三元粗化总数量为 $(\frac{1}{2} \frac{dP_{12}}{dt} \zeta C_P V) C_P = 4C_P^3 \zeta V \frac{\partial V}{\partial t} \Big|_g$.

每次三元粗化导致气孔数量减少 2 个, 气孔数量的演化方程由式(46)变为^[5]:

$$\frac{\partial C_P}{\partial t} = -4C_P^2 \frac{\partial V}{\partial t} \Big|_g - 2 \left(4C_P^3 \zeta V \frac{\partial V}{\partial t} \Big|_g \right) \quad (49)$$

3.3.2 气孔聚合粗化过程中的气孔长大

当燃耗超过 100 GWd/tU 后, 气孔将发生聚合而粗化, 气孔密度不断减少, 气孔在依靠吸收扩散到其中的点缺陷而连续长大的同时, 吸收与其聚合的其他气孔而瞬时长大, 即气孔长大由两部分组成. 对于气孔聚合, 假设气孔在瞬时聚合后原有体积保持不变, 即:

$$\frac{d(C_P V)}{dt} = C_P \frac{\partial V}{\partial t} \Big|_c + V \frac{\partial C_P}{\partial t} = 0 \quad (50)$$

式中, $\frac{\partial V}{\partial t} \Big|_c$ 为气孔聚合引起的气孔长大速率; $\frac{\partial C_P}{\partial t}$ 为气孔聚合引起的气孔密度变化速率, 由式(49)计算.

由此可得总的气孔长大速率为:

$$\begin{aligned} \frac{dV}{dt} &= \frac{\partial V}{\partial t} \Big|_c + \frac{\partial V}{\partial t} \Big|_g \\ &= -\frac{\partial C_P}{\partial t} \cdot \frac{V}{C_P} + 4\pi R D_v (c_v - c_{vR}) - 4\pi R D_i (c_i - c_{iR}) \end{aligned} \quad (51)$$

式中, $\frac{\partial V}{\partial t} \Big|_g$ 为点缺陷扩散引起的气孔长大速率.

联立式(49)和式(51)可得总的气孔率, 如式(45).

4 模型求解及验证

采用第 2、3 章中建立的燃料裂变气体行为模型, 基于 COMSOL 的常微分及偏微分模块实现裂变气体行为模拟软件开发: 其中晶粒内的气体扩散方程的求解基于偏微分模块实现, 空位和间隙原子随时间的演化方程、晶

界气体的控制方程、晶界气孔长大及气孔聚合粗化的控制方程基于常微分模块实现. 晶粒采用一维球对称模型进行描述, 由于晶界处气体浓度梯度更大, 网格划分采用非均匀形式, 越靠近晶界, 网格划分越细.

待求解的常微分方程组属于刚性方程组, 解的分量数量级差别很大, 给数值求解带来困难. 为此时间离散采用隐式向后差分格式 BDF, 设置 BDF 格式的最大阶数为 2 阶, 最小阶数为 1 阶. COMSOL 计算中采用的时间步长会根据当前的误差估计进行自适应调整. 计算中采用全耦合的方式对各控制方程进行联立求解, 采用自动牛顿法进行非线性方程组的求解.

4.1 低燃耗裂变气体行为模型验证

采用燃料芯块辐照条件和实验数据^[17]进行了模型验证, 晶粒内气泡直径和气泡密度的验证结果如图 3~图 4 所示. 气泡直径和气泡密度均随燃耗增加而增加, 并呈现饱和趋势. 其中气泡直径在较低燃耗时预测值高于实验值, 在较高燃耗时预测值低于实验值, 气泡密度的计算结果则刚好相反.

晶面气泡直径及其在晶面上的覆盖份额预测值与实

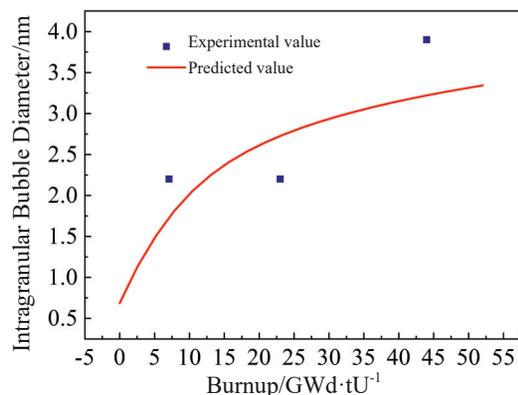


图 3 晶内气泡直径预测值与实验值的对比
Fig.3 Comparison of predicted intragranular bubble diameter with experimental results

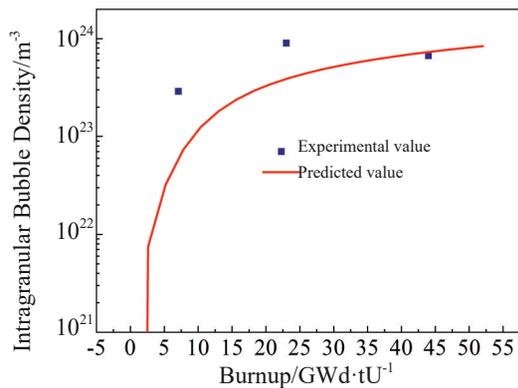


图 4 晶内气泡密度预测值与实验值的对比
Fig.4 Comparison of predicted intragranular bubble density with experimental results

验值^[18]的对比如表1所示。晶面气泡直径的预测值大于实验值,其在晶面上的覆盖份额预测值小于实验值。

微观的实验数据都存在一定的测量误差,总体来说,模型的预测值与实验值较为符合。

4.2 HBS中的裂变气体行为模型验证

采用燃料芯块辐照条件和实验数据^[19]进行了模型验证,如图5所示,图中红色实线代表预测值,当燃耗达到约60 GWd/tU后,晶粒内Xe浓度出现贫化,迅速下降到最低值约0.17%,预测值与实验值符合较好。

在图6中,横坐标代表气孔率预测值,纵坐标代表气孔率实验值,红色实线代表预测值与实验值相等,预测值与实验值整体较符合。

表1 晶面气泡直径及覆盖份额预测值与实验值对比

Table 1 Comparison of predicted grain face bubble diameter and coverage fraction with experimental results

Value	Grain face bubble diameter/nm	Grain face bubble coverage fraction/%
Experimental	229	10.1
Predicted	236	7.0

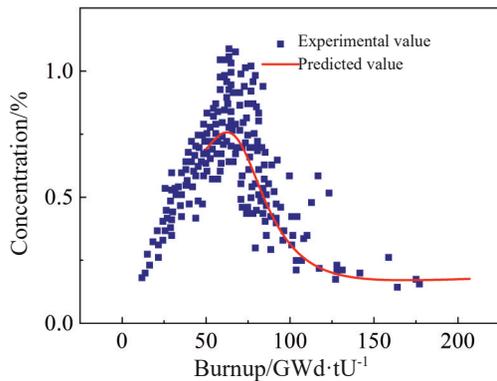


图5 晶粒内Xe浓度预测值与实验值的对比

Fig.5 Comparison of predicted intragranular Xe concentration with experimental results

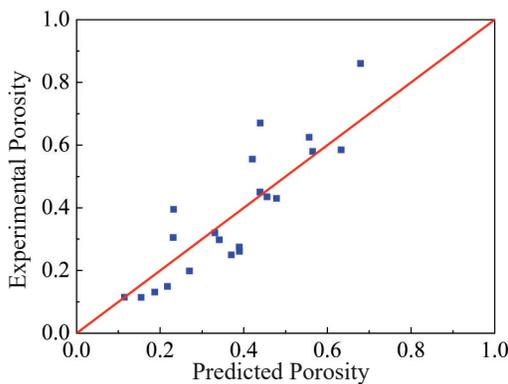


图6 气孔率预测值与实验值的对比

Fig.6 Comparison of predicted porosity with experimental results

5 结论

1)低燃耗下,晶内气泡的控制方程考虑了其数量和半径随空间的变化,通过求解点缺陷控制方程确定晶内气泡的形核概率,使得模型能更好预计晶内气泡密度随着燃耗增加而发生饱和的现象。

2)高燃耗下,主要推导了考虑晶粒尺寸变化的晶内气体控制方程;在气孔聚合粗化模型基础上,同时考虑气孔的非平衡长大和聚合长大,建立晶界气孔的半径、数量密度、气孔率的控制方程。

3)采用试验数据进行了模型初步验证,模型预测的气泡尺寸、气孔率与试验结果符合较好。

参考文献 References

[1] Rest J, Cooper M W D, Spino J et al. *Journal of Nuclear Materials* [J], 2019, 513: 310

[2] Rondinella V V, Wiss T. *Materials Today*[J], 2010, 13(12): 24

[3] Spino J, Stalios A D, Cruz H S et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2006, 354: 66

[4] Suzuki M, Saitou H. *Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-6 (Ver 1): JAEA-Data/Code 2005-003*[R]. Ibaraki: JAEA, 2006

[5] Veshchunov M S, Ozrin V D, Shestak V E et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2006, 236: 179

[6] Rest J, Zawadzki S A. *Fastgrass: A Mechanistic Model for the Prediction of Xe, I, Cs, Te, Ba and Sr Release from Nuclear Fuel Under Normal and Severe-Accident Conditions*[R]. Washington: ANL, 1992

[7] Noirot L, Margare T. *Nuclear Engineer and Design*[J], 2011, 241: 2099

[8] Pizzocri D, Cappia F, Luzzi L et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2017, 487: 23

[9] Veshchunov M S, Tarasov V I. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2017, 488: 191

[10] White R J, Tucker M O. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1983, 118: 1

[11] Berdyshev A V, Veshchunov S M. *Modelling of Grain Face Diffusion Transport and Swelling in UO_2 Fuel: Preprintibrae-2002-14*[R]. Moscow: NSI, 2002

[12] Nelson R S. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1969, 31: 153

[13] Matthews J R, Wood M H. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1980, 91: 241

[14] Baron D, Kinoshita M, Thevenin P et al. *Nuclear Engineering and Technology*[J], 2008, 41(2): 199

[15] Griesmeyer J M, Ghoniem N M. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1979, 80: 88

[16] Olander D R. *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*[M]. Virginia: Energy Research and Development Administration, 1976

[17] Kashibe S, Une K, Nogita K. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1993, 206: 22

[18] Kashibe S, Une K. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1991, 28: 1090

[19] Lassmann K, Eta L. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1995, 226: 1

Modeling of Fission Gas Irradiation Swelling for UO_2 Fuel in Pressurized Water Reactor Based on Rate Theory

Zhou Yi, Liu Zhenhai, Xiao Zhong, Liu Shichao, Wang Haoyu, Xin Yong, Sun Dan, Zeng Wei, Yu Junchong
(State Key Laboratory of Advanced Nuclear Energy Technology, Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610213, China)

Abstract: The irradiation swelling caused by fission gas can promote UO_2 fuel-cladding contact and reduce fuel thermal conductivity, which is a key behavior affecting fuel element performance. A fission gas irradiation swelling model for different burn-up ranges was established based on rate theory. The model first proposed control equations for intragranular gas, intergranular gas, and point defects under low burn-up. Then the control equations for intragranular gas considering grain subdivision and non-equilibrium growth of grain boundary pores under high burn-up were given. Finally, a model for coalescence and coarsening of grain boundary pores was established. On this basis, COMSOL software was used to solve the control equations. The model was preliminarily validated by experimental data. Results show that the predicted bubble size and porosity are in good agreement with the experimental results.

Key words: fission gas; irradiation swelling; model; high burn-up; rate theory

Corresponding author: Zeng Wei, Ph. D., Senior Engineer, State Key Laboratory of Advanced Nuclear Energy Technology, Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610213, P. R. China, Tel: 0086-28-85908241, E-mail: zengwei02@sina.com