

两相复合燃料烧结末期晶粒长大过程的相场模拟

翟静杰¹, 喇永孝¹, 廖宇轩¹, 吴学志², 申文龙¹, 柳文波^{1,3}

(1. 西安交通大学 核科学与技术学院, 陕西 西安 710049)

(2. 中国原子能科学研究院, 北京 102413)

(3. 西安交通大学 陕西省先进核能技术重点实验室, 陕西 西安 710049)

摘要: 本研究基于相场方法构建了两相复合燃料烧结末期晶粒长大过程的数值模型, 并系统模拟了 UO_2 -UN复合燃料体系的晶粒演化行为。首先, 通过建立双晶粒夹持空洞的简化模型, 揭示了晶界与空洞的交互作用机制。研究表明: 晶界附近空洞呈现收缩动力学特征并形成透镜状形貌, 且与高界面能晶粒接触的空洞收缩速率显著提升; 体系的三重界面角由两相晶界能与界面能的比值决定。其次, 针对两相多晶体系的晶粒长大过程进行定量分析, 相体积分数影响研究表明: 相界面对晶粒迁移具有显著制约作用, 随着第二相体积分数增加, 相界面密度增大导致晶粒生长速率衰减。最后, 构建两相多晶含空洞体系晶粒长大模型, 对空洞产生的钉扎效应进行研究并阐明烧结末期的生长动力学机制, 空洞钉扎效应研究表明: 空洞对晶界产生钉扎作用, 其钉扎强度与孔隙密度呈正相关, 且局部空洞分布的非均匀性将诱发异常晶粒生长现象, 三维空洞钉扎分析显示: 复杂的晶粒拓扑结构强化了空洞的钉扎效应, 使得异常晶粒生长在三维体系中呈现更显著的形貌特征。

关键词: 相场模拟; 复合燃料; 烧结; 晶粒生长; 晶界与相界

中图分类号: TL11

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2026)05-1223-10

1 引言

二氧化铀(UO_2)作为传统核燃料, 因其高熔点($>2800\text{ }^\circ\text{C}$)、优异辐照稳定性及与锆合金包壳的良好相容性, 被广泛应用于各种反应堆^[1-2]。然而, UO_2 燃料热导率偏低, 易导致燃料芯块中心温度过高, 诱发热应力开裂及燃料-包壳相互作用(FCCI)风险^[3]。相比之下, 氮化铀(UN)展现出显著的热导率优势, 室温下UN的热导率为 $20.6\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$, 显著高于 UO_2 的热导率($3.5\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$), 可有效降低运行温差^[4]。但UN存在耐水腐蚀性较差的问题, 在潮湿或水环境中容易发生化学反应, 这可能影响其长期使用性能和可靠性^[5]。近年来, UO_2 -UN复合燃料因其协同强化效应备受关注。 UO_2 相可抑制UN的辐照肿胀及高温分解, 而UN相通过构建三维导热网络显著提升整体热导率(提升幅度达 $30\%\sim 50\%$)^[6]。 UO_2 -UN复合燃料一般通过烧结方法制备, 烧结时两相界面的演化机制尚不明确, 制约了复合燃料的工程化应用。因此, 研究 UO_2 -UN复合燃料烧结末期的晶粒生长动力学, 对优化燃料微结构设计具有重要的意义。

复合燃料的烧结组织形貌受相界面含量、气泡或空

洞对晶界的拖曳等多种因素影响, 使其成为核燃料领域研究的热点^[7-10]。实验研究表明, 两相材料在烧结过程中会形成独特的互穿网络结构, 其形貌特征(如相分布均匀性、界面曲率及晶粒尺寸)对复合燃料的热导率、力学强度及辐照稳定性具有决定性影响^[7-8]。Jaques等^[9]系统研究了 UO_2 -UN两相的烧结行为, 揭示了温度、压力及界面对微观组织的耦合作用规律。研究表明, 在 $1600\sim 1800\text{ }^\circ\text{C}$ 烧结温度范围内, UO_2 与UN的致密化动力学存在显著差异: UO_2 的致密化受体积扩散主导, 而UN则通过晶界扩散机制快速致密; 并且初始粉末特性会引发混合不均匀性, 致使烧结后 UO_2 富集区域的孔隙率较UN区域高 $20\%\sim 30\%$ 。Fang等^[10]对烧结过程中晶粒粗化、致密化和晶粒长大现象进行了系统研究, 研究表明, 在烧结过程中, 存在晶界迁移、表面扩散等多种机制, 要实现较高致密化以及优异的燃料性能, 需要对烧结后期的晶粒长大过程进行控制, 此阶段不同生长机制的影响直接决定了复合燃料的微观形貌和缺陷分布。传统实验手段(如SEM、EBSD)受限于时间-空间分辨率, 难以动态捕捉烧结末期的瞬态界面演化行为, 而通过数值模拟工作能够有效地追踪烧结末期复杂界面的演变过程, 进而更

收稿日期: 2025-05-20

基金项目: 国家自然科学基金委员会与中国工程物理研究院联合基金(NSAF基金)(U2130105); 中国核工业集团有限公司领创科研项目

作者简介: 翟静杰, 男, 2000年生, 硕士生, 西安交通大学核科学与技术学院, 陕西 西安 710049, 电话: 029-82668648, E-mail: zhajingjiexjtu@stu.xjtu.edu.cn

高效地揭示其烧结微观组织演变。

近年来,相场模型已经被应用于模拟陶瓷粉末的烧结过程以及复杂组织演变^[1-21]。申文龙^[11]和孙启明^[12]等针对陶瓷或金属基材料的烧结过程开展了模拟研究。刘续希等^[13]利用相场方法对 Zr 合金高温腐蚀的过程展开分析。Chen 等^[14]系统梳理了相场模型与热力学的关系。Zhao^[15]总结了相场模型在金属材料微观组织演变的热力学驱动力和机制方面的最新进展。Xin 等^[16]利用相场模型对镁合金的力学性能进行了综合计算。在空洞生长和迁移方面,朱伟等^[17]对温度场作用下 Fe-Cr 合金中空洞的演化和迁移进行了深入研究。张伟等^[18]建立了辐照作用下奥氏体钢中空洞演化的相场模型,总结出应力场对空洞演化与生长的影响。在晶粒长大相关的研究中,Fan 等^[19]基于 Cahn-Hilliard 方程构建了双相体系相场模型,首次阐明了 Ostwald 熟化过程中相分数与扩散系数的竞争机制,为多相系统晶粒生长动力学研究奠定理论基础。针对核燃料烧结过程,Guo 等^[20]建立了孔隙-晶界交互作用模型,发现当孔隙密度超过临界值时,局部钉扎效应会引发 UO₂ 晶粒的异常生长现象。Rehn 等^[21]在三维相场模拟中建立了孔隙率-晶粒尺寸的定量关系式,指出低孔隙体系中晶粒生长速率与孔隙数量呈线性相关,而高孔隙体系则遵循 $R^3 \propto t$ 的生长规律,其中 R 为晶粒尺寸, t 为时间。然而,现有研究多聚焦于单相材料或简化多相系统,未能充分耦合相界面约束、孔隙钉扎与扩散传质等多物理场效应,特别是在两相复合燃料烧结末期,晶粒长大过程涉及 UO₂-UN 相界能差异、孔隙曲率驱动迁移等多因素协同作用,需发展能够精确描述多场耦合机制的相场模型。

本工作在前期工作^[22]的基础上,建立了包含空洞和两种固相的相场模型,采用扩散迁移率系数以及与表面能和晶界能相关的模型参数,模拟了 UO₂-UN 两相复合燃料烧结末期的晶粒长大过程,分别对空洞与晶界的相互作用、不同体积比的两相组织演化以及含不同空洞数量的两相组织演化过程进行了研究。

2 相场模型

本工作建立了一个相场模型描述含空洞的两相材料中组织结构的演化,在该模型中,引入了 4 种类型的相场序参量,包括 2 种保守型序参量 c_v 、 c_s 和 2 种非保守型序参量 η 、 $\phi_i (i=1, 2, \dots, p)$ 。保守型序参量 c_v 和 c_s 分别表示空位浓度和原子浓度,在 UO₂-UN 体系中, c_s 表示 U 原子的浓度。为了区分空洞相和材料基体相。在空洞中 $\eta=1.0$,在基体中 $\eta=0.0$,在基体和空洞的界面处, η 取值由 0~1 连续变化。 $\phi_i (i=1, 2, \dots, p)$ 表示不同取向的晶粒,其中, $\phi_i (i=1, 2, \dots, r)$ 表示 α 相 (UO₂) 的晶粒取向,而 $\phi_i (i=r+1, r+2, \dots, p)$ 表示 β 相 (UN) 的晶粒取向。实际材

料中,存在无数个晶粒取向,在相场方法模拟晶粒演化中,Fan 等^[23]的研究表明晶粒取向个数 $p>36$ 时,晶粒演化对晶粒取向个数的依赖性可以忽略,因此在本工作中的晶粒取向设置数量均大于 36。模型中序参量的示意图如图 1 所示。

2.1 自由能方程

本工作中,自由能泛函数为:

$$F = \int_V [h(\eta)f^m + j(\eta)f^b + \omega f^{\text{poly}} + f^{\text{chem}} + f^{\text{grad}}] dV \quad (1)$$

式中, V 为体系总体积, f^m 表示基体相自由能, f^b 表示空洞相自由能, f^{poly} 为多晶相能量, f^{chem} 为化学能, f^{grad} 为梯度能。 $h(\eta)=1-\eta^3(6\eta^2-15\eta+10)$, $j(\eta)=\eta^3(6\eta^2-15\eta+10)$ 为插值函数,表示基体相和空洞相的占比,在固相中 $h(\eta)=1.0$,在空洞中 $h(\eta)=0.0$,插值函数的引入保证系统能量从固相到空洞相的平稳过渡。 ω 表示多晶相互作用的势垒。

基体相自由能 f^m 为:

$$f^m(c_v) = \phi_\alpha k_B T \left[c_v \ln \left(\frac{c_v}{c_{v\alpha}^\alpha} \right) + (1 - c_v) \ln \left(\frac{1 - c_v}{1 - c_{v\alpha}^\alpha} \right) \right] + \phi_\beta k_B T \left[c_v \ln \left(\frac{c_v}{c_{v\beta}^\beta} \right) + (1 - c_v) \ln \left(\frac{1 - c_v}{1 - c_{v\beta}^\beta} \right) \right] \quad (2)$$

式中, k_B 为玻尔兹曼常数, T 表示温度。 c_v 表示体系中空位的浓度, $c_{v\alpha}^\alpha$ 和 $c_{v\beta}^\beta$ 分别为 α 相和 β 相达到热力学平衡时的空位浓度, $c_{v\alpha}^\alpha = \exp(-E_f^\alpha/k_B T)$, $c_{v\beta}^\beta = \exp(-E_f^\beta/k_B T)$, E_f^α 和 E_f^β 分别为 α 相和 β 相空位的结合能。 ϕ_α 和 ϕ_β 表示 α 相和 β 相的占比,表达式为:

$$\phi_\alpha = \frac{\sum_{i=1}^r \phi_i^2}{\sum_{i=1}^p \phi_i^2 + \eta^2} \quad (3)$$

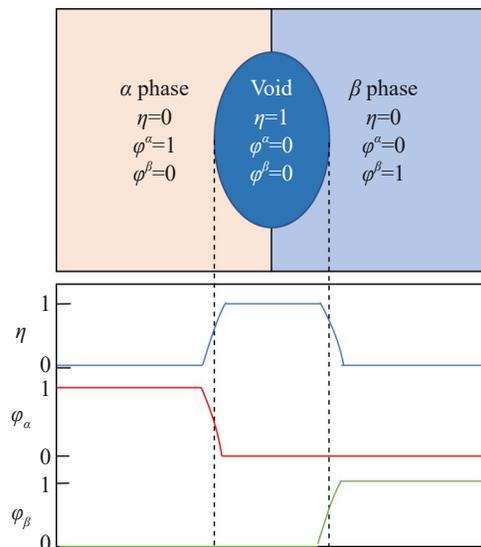


图 1 相场模型中序参量的示意图

Fig.1 Schematic diagram of order parameter in the phase-field model

$$\phi_\beta = \frac{\sum_{i=r+1}^p \varphi_i^2}{\sum_{i=1}^p \varphi_i^2 + \eta^2} \quad (4)$$

空洞相自由能 f^b 表达式为:

$$f^b(c_v) = (1 - c_v)^2 \quad (5)$$

该表达式为与空位浓度 c_v 有关的抛物线函数,从 f^b 表达式中可以看出,自由能在 $c_v = 1.0$ 时取得最小值。

多晶自由能 f^{poly} 表达式为^[24]:

$$f^{\text{poly}}(\eta, \varphi_i) = \sum_{i=1}^p \left(\frac{\varphi_i^4}{4} - \frac{\varphi_i^2}{2} \right) + \left(\frac{\eta^4}{4} - \frac{\eta^2}{2} \right) + a_{\text{gb}} \sum_{i=1}^p \sum_{j>i}^p \varphi_i^2 \varphi_j^2 + a_s \eta^2 \sum_{i=1}^p \varphi_i^2 + \frac{1}{4} + \eta^2 (\eta - 1)^2 \quad (6)$$

式中, a_{gb} 为晶界能系数, a_s 为界面能系数,本工作中取 $a_{\text{gb}} = 1.5^{[25]}$, $a_s = a_{\text{gb}} \gamma_s / \gamma_{\text{gb}}$, γ_s 为界面能, γ_{gb} 为晶界能。在本工作中,存在两相固体(α 相和 β 相)与空洞的相互作用,故可以将相互作用项更详细的表示为:

$$a_s \eta^2 \sum_{i=1}^p \varphi_i^2 = a_s^\alpha \eta^2 \sum_{i=1}^r \varphi_i^2 + a_s^\beta \eta^2 \sum_{i=r+1}^p \varphi_i^2。$$

化学能 f^{chem} 为:

$$f^{\text{chem}}(\eta, \varphi_i, c_s) = \frac{A}{2} (c_s - c_\alpha \phi_\alpha - c_\beta \phi_\beta - c_\eta \phi_\eta)^2 \quad (7)$$

式中, ϕ_α 、 ϕ_β 和 ϕ_η 表示 α 相、 β 相和空洞相的占比, ϕ_η 表达式为 $\phi_\eta = \eta^2 / \left(\sum_{i=1}^p \varphi_i^2 + \eta^2 \right)$ 。化学能密度自由能的引入可以保证在各相中的相对稳定性^[26], c_α 、 c_β 、 c_η 分别表示在 α 相、 β 相和空洞相中的平衡原子浓度,其中 $c_\alpha = 0.9$, $c_\beta = 0.1$, $c_\eta = 0.0001$ 。参数 A 决定自由能的陡峭程度,表示各相之间的势垒^[27], $A = \left[12(\phi_\alpha \gamma_s^\alpha + \phi_\beta \gamma_s^\beta) - 7(\phi_\alpha \gamma_{\text{gb}}^\alpha + \phi_\beta \gamma_{\text{gb}}^\beta) \right] / \delta$,

γ_s^α 、 γ_s^β 分别为 α 相和 β 相的界面能, $\gamma_{\text{gb}}^\alpha$ 、 γ_{gb}^β 分别为 α 相和 β 相的晶界能, δ 为晶界宽度。

梯度项能量 f^{grad} 为:

$$f^{\text{grad}}(c_v, c_s, \eta, \varphi_i) = \frac{\kappa_v}{2} |\nabla c_v|^2 + \frac{\kappa_s}{2} |\nabla c_s|^2 + \frac{\kappa_\eta}{2} |\nabla \eta|^2 + \sum_{i=1}^p \frac{\kappa_\varphi}{2} |\nabla \varphi_i|^2 \quad (8)$$

式中, κ_v 、 κ_s 、 κ_η 和 κ_φ 为相应的梯度能系数,采用五点差分法求解 Laplace 项。各梯度能系数与物理参数之间的关系为:

$$\kappa_\varphi = \kappa_\eta = \frac{3(\phi_\alpha \gamma_{\text{gb}}^\alpha + \phi_\beta \gamma_{\text{gb}}^\beta) \delta}{4} \quad (9)$$

$$\kappa_v = \kappa_s = \frac{3\delta \left[2(\phi_\alpha \gamma_s^\alpha + \phi_\beta \gamma_s^\beta) - (\phi_\alpha \gamma_{\text{gb}}^\alpha + \phi_\beta \gamma_{\text{gb}}^\beta) \right]}{4} \quad (10)$$

2.2 演化方程

在该相场模型中,各序参量随时间和空间的演化方

程为:

$$\frac{\partial c_v}{\partial t} = \nabla M_v \nabla \frac{\delta F}{\delta c_v} \quad (11)$$

$$\frac{\partial c_s}{\partial t} = \nabla M_s \nabla \frac{\delta F}{\delta c_s} \quad (12)$$

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} = -L_\eta \frac{\delta F}{\delta \eta} \quad (13)$$

$$\frac{\partial \varphi_i}{\partial t} = -L_\varphi \frac{\delta F}{\delta \varphi_i} \quad (14)$$

其中, t 为时间, M_v 和 M_s 为空位和界面的迁移率, $M_v = \phi_\alpha M_{v\alpha}^\alpha + \phi_\beta M_{v\alpha}^\beta$, $M_s = \phi_\alpha M_{s\alpha}^\alpha + \phi_\beta M_{s\alpha}^\beta$ 。 $M_{v\alpha}^\alpha$ 、 $M_{v\alpha}^\beta$ 分别为 α 相和 β 相的本征空位迁移率, $M_{s\alpha}^\alpha$ 、 $M_{s\alpha}^\beta$ 分别为 α 相和 β 相的本征原子迁移率。 L_η 、 L_φ 分别表示空洞相与晶粒相的界面迁移率。与扩散率相关的浓度迁移率表示为^[28]:

$$M_{v\alpha} = \frac{D_v V_m}{RT} \quad (15)$$

$$M_{s\alpha} = \frac{D_s V_m}{RT} \quad (16)$$

式中, D_v 和 D_s 为空位和原子的扩散系数, R 为理想气体常数, T 为温度, V_m 为摩尔体积。

演化方程采用式(11)和式(12)的 Cahn-Hilliard 方程^[29]与式(13)和式(14)的 Allen-Cahn 方程^[27],对所有相场变量进行求解,并采用有限差分法求解相场方程,在时间上采用显式 Euler 算法对非线性偏微分方程进行离散化。

2.3 无量纲化处理

模拟为提高计算效率,需要将模型中的参数进行无量纲化处理,可将自由能方程简化为:

$$f^0(c_v, c_s, \eta, \varphi_i) = h(\eta) f^m + j(\eta) f^b + \omega f^{\text{poly}} + f^{\text{chem}} \quad (17)$$

在此使用以米为单位的特征长度 l^* 和以秒为单位的特征时间 t^* ,通过 $\lambda = l/l^*$ 和 $\tau = t/t^*$ 的定义使长度和时间无量纲化,其中的 l 和 t 为实际长度和时间。梯度的无量纲化表示为 $\tilde{\nabla} = l^* \nabla$,并引入一个特征能量密度 e^* (J/m³),通过上述参量的引入将 Cahn-Hilliard 方程和 Allen-Cahn 方程无量纲化。

选取式(18)与式(19)作为无量纲化过程示例:

$$\frac{\partial c_v}{\partial t} = \frac{t^*}{l^*} \tilde{\nabla} M_v e^* \tilde{\nabla} \frac{1}{l^*} \left[\frac{\delta(f^0/e^*)}{\delta c_v} - \frac{\kappa_v}{e^*(l^*)^2} \tilde{\nabla}^2 c_v \right] \quad (18)$$

$$= \tilde{\nabla} \left[\tilde{M}_v \tilde{\nabla} \left(\frac{\delta \tilde{f}^0}{\delta c_v} - \tilde{\kappa}_v \tilde{\nabla}^2 c_v \right) \right]$$

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} = -t^* e^* L_\eta \left[\frac{\delta(f^0/e^*)}{\delta \eta} - \frac{\kappa_\eta}{e^*(l^*)^2} \tilde{\nabla}^2 \eta \right] \quad (19)$$

$$= -\tilde{L}_\eta \left(\frac{\delta \tilde{f}^0}{\delta \eta} - \tilde{\kappa}_\eta \tilde{\nabla}^2 \eta \right)$$

因此,无量纲化后的参数为 $\tilde{M} = M e^* t^* / (l^*)^2$, $\tilde{f}^0 = f^0/e^*$, $\tilde{\kappa} = \kappa / [e^*(l^*)^2]$, $\tilde{L} = L e^* t^*$ 。特征值的选取原则是

使无量纲化参数的值互相接近,故本工作选取的特征值为: $t^*=1/(Le^*)$, $e^*=B$, $B=(\phi_\alpha\gamma_{gs}^\alpha+\phi_\beta\gamma_{gs}^\beta)/\delta$, l^* 的取值与晶界宽度 δ 有关,对应无量纲化后的一个单位长度占有的截面宽度,本工作取 $l^*=\delta$ 。

根据参考物理量的选择,其余相场参数对应的无量纲形式分别为:

$$\tilde{A} = \frac{A}{e^*} = \frac{12(\phi_\alpha\gamma_s^\alpha + \phi_\beta\gamma_s^\beta) - 7(\phi_\alpha\gamma_{gb}^\alpha + \phi_\beta\gamma_{gb}^\beta)}{\phi_\alpha\gamma_{gb}^\alpha + \phi_\beta\gamma_{gb}^\beta} \quad (20)$$

$$\tilde{B} = \frac{B}{e^*} = 1 \quad (21)$$

本工作利用相场模型对 UO_2 和 UN 的两相材料包含空洞体系进行了模拟,模拟当中用到的物理参数如表1所示^[30-34]。

在本工作针对多晶体系进行模拟演化时,无量纲化处理时将 UN 和 UO_2 的占比各假设为0.5,即 $\phi_\alpha = 0.5$ 和 $\phi_\beta = 0.5$,再将物理参数代入上述方程中,得各无量纲化参数。

本工作中引入一个可视化参数 Φ ,通过将不同相内非守恒场变量随空间分布的特征值进行处理,可以将模拟结果进行可视化并进行观察。将可视化参数定义为:

$$\Phi = \sum_{i=1}^r \varphi_i^2 + 1.5 \sum_{i=r+1}^p \varphi_i^2 + 2\eta^2 \quad (22)$$

3 结果与讨论

3.1 两相晶界与空洞的相互作用

本节研究了 UO_2 和 UN 两相晶界与空洞的相互作用,模拟了 UO_2 和 UN 两相晶粒与空洞的形貌演化过程,并且计算了不同相含空洞形成的三重界面角,模拟区域的差分网格尺寸为 128×128 。

3.1.1 两相晶界处的空洞收缩

图2展示了 UO_2 和 UN 两相晶粒中含空洞的微观组织演化过程。其中,橙色部分代表 UO_2 晶粒,蓝色部分代表 UN 晶粒,红色部分代表空洞。从图2中可见,初始时刻,位于两相晶界处的空洞呈圆形,随着时间演化过程中,空洞逐渐被挤压,形状变为透镜状。由图2还可以看出,演化初期,长宽比曲线迅速增大,随着时间推移,曲线

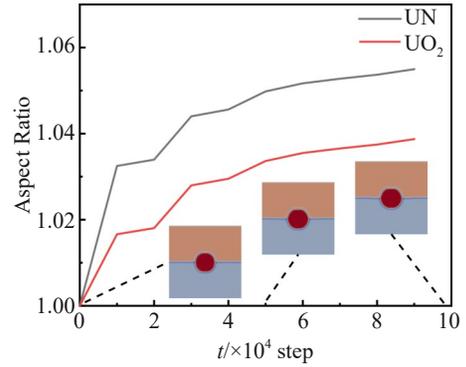


图2 UO_2 和 UN 两相晶粒含空洞演化过程及长宽比曲线
Fig.2 Evolution and aspect ratio curves of voids in UO_2 - UN two-phase grains

趋于平衡,表明空洞与晶界的张力逐渐达到平衡状态。在相同时间内, UN 相中空洞的长宽比大于 UO_2 相中的空洞,即与 UN 相接触的空洞界面收缩更快。这一现象与Du等^[35]对单相材料烧结过程中晶界处空洞收缩速率一致的结果不同。这是因为孔隙收缩的根本动力源于表面自由能的降低。界面能与晶界能的差异会通过张力平衡调控空洞变形。且空洞表面能量差异越大,驱动扩散的动力越强,进而加速空洞收缩。 UO_2 和 UN 的界面能不同,导致空洞与各相晶界的晶面张力也不同。 UN 的界面能 γ_s^β 大于 UO_2 的界面能 γ_s^α ,因此空洞与 UN 的晶界之间的晶界张力更大,这使得与 UN 相接触的空洞收缩更快,长宽比更大。

3.1.2 三重界面角

研究表明,晶界与空洞形成的三重界面角取决于晶界能 γ_{gb} 与界面能 γ_s 的比值^[36]:

$$\cos \alpha = \frac{\gamma_{gb}}{2\gamma_s} \quad (23)$$

式中, α 为晶粒相与空洞相的相界处形成的平衡二面角。

图3展示了空洞在不同相晶粒中演化趋于平衡时形成的界面角。本研究中, UO_2 相晶界能与界面能的比值为 $\gamma_{gb}/\gamma_s=0.58$,利用式(23)中的三角函数公式计算, UO_2 相的界面角为 $\alpha = 73.1^\circ$,模拟结果见图3b; UN 相的晶界能与界面能的比值为 $\gamma_{gb}/\gamma_s=0.43$,依据式(23), UN 相的界面角为 $\alpha=77.5^\circ$,模拟结果见图3c。从图3b和3c中可以看出,模拟结果中的晶界角与理论计算值吻合较好,表明三重界面角由材料特性决定,不同的界面角反映了界面能的差异。

从图3d可以看出,在两不同相晶粒含空洞的演化过程中,界面发生向一侧的偏移,这与图3b和3c中的单相晶粒含空洞体系形成的平直界面不同。对三重界面处的受力进行简要分析,如图3d所示。三重界面处主要受晶界能与界面能的影响,图3b与图3c所示的空洞两侧为同

表1 UO_2 和 UN 的物理参数

Table 1 Physical parameters of UO_2 and UN ^[30-34]

Parameter	UO_2	UN
E_f/eV	3.27	7.85
$D_s/m^2 \cdot s^{-1}$	6.09×10^{-11}	7.5×10^{-12}
$D_v \times 10^{-14} m^2 \cdot s^{-1}$	3.346	4.0
$\gamma_{gb}/J \cdot m^{-2}$	0.3	0.7
$\gamma_s/J \cdot m^{-2}$	0.6	1.62
δ/nm	6	6

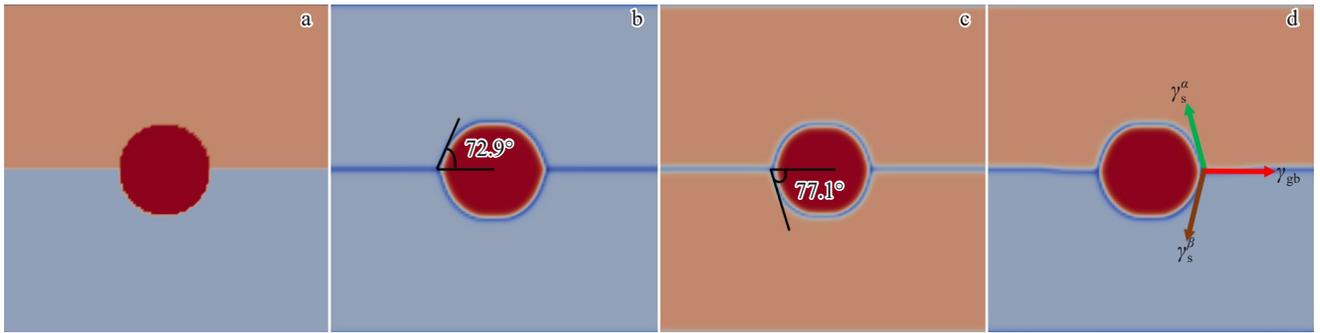


图3 不同相含空洞二面角测量

Fig.3 Dihedral angles in different systems with voids: (a) initial configuration; (b) UO₂ phase with void; (c) UN phase with void; (d) UO₂-UN two-phase with void

相晶粒,三重界面处两侧界面能相同,故三重界面处保持稳定平直界面。图3d所示的两种不同相晶粒含空洞的体系中,空洞上下两侧材料不同,界面能也不同。在本研究中,空洞下侧(UN相)的界面能较大,导致三重界面向下发生轻微偏移,直到达到平衡状态。综上所述,在两相体系中,不同相的界面能不同,会导致三重界面处的失衡,界面角不对称,可能会改变晶粒生长的方向和速率。

3.2 两相复合燃料晶粒生长的相场模拟

在实际材料中,晶粒取向是多样且复杂的,然而,已有研究表明,当晶粒取向的数量 $p > 36$ 时,可以有效地描述晶粒的组织演化过程^[23]。根据廖宇轩等^[25]的两相烧结模拟研究,由烧结制备的两相陶瓷燃料,基体相与第二相晶粒之间为随机分布。本工作中,二维模拟采用了大小为 512×512 的区域,并设定周期性边界条件,区域内随机分布了100个晶粒,通过随机选择这些晶粒并赋予不同的性能,获得第二相体积分数可控的混合两相晶粒组织。所使用的初始晶粒组织体系如图4所示,每个晶粒用不同颜色进行表示。

统计了不同时刻模拟区域内晶粒的平均半径,并通过与无外界扰动的理想晶粒长大情况进行对比,验证模拟结果的准确性。理论研究中通常使用晶粒生长经验公式对晶粒生长动力学进行描述,经典的晶粒生长经验公式可表示为^[37]:

$$\bar{R}^m - \bar{R}_0^m = kt \quad (24)$$

式中, \bar{R} 为晶粒平均半径, \bar{R}_0 为初始晶粒半径, m 为晶粒生长指数, k 为与材料性质及环境条件相关的生长速率常数, t 为生长时间。在理想的无外界干扰的单相情况下,晶粒生长通常由晶界迁移驱动,生长指数 m 为2,即 $R^2 \propto t$ 。

本工作通过计算体系内每个晶粒的面积,将其近似等效转化为圆形,可获得二维情况下的晶粒平均半径:

$$\bar{R} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{A_i}{\pi}} \quad (25)$$

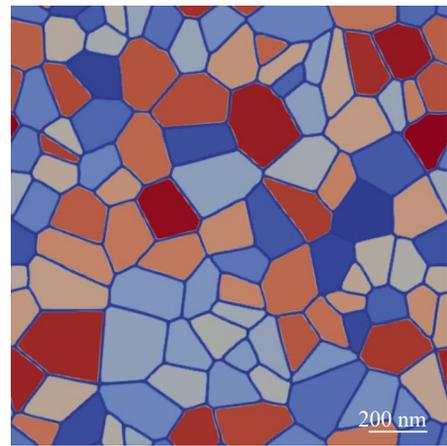


图4 初始晶粒取向示意图

Fig.4 Schematic diagram of initial grain orientation

式中, N 为晶粒的总数, $\frac{A_i}{\pi}$ 表示第 i 个晶粒的等效圆半径平方。

图5为不同体积比的UO₂-UN两相体系晶粒随时间演化过程, Δt 为时间步长。其中,浅色区域代表UN分布,深红色区域代表UO₂的分布。图5a~5c表示单相UO₂体系晶粒随时间演化过程。可以看出,初始晶粒组织较为均匀,随着时间的推移,晶粒逐渐长大,小晶粒被吞并,晶界趋于减少,这是典型的晶粒长大行为。图5d~5f为75vol% UO₂+25vol% UN体系中晶粒随时间的演化过程。可以看出,当体系中存在两种晶粒时,降低了晶界迁移的自由度,使得晶粒生长变得不规则,抑制了晶粒的生长。当UN所占体积比为50%时(如图5g~5i所示),晶粒形态更加复杂,两相晶粒的生长都受到了显著的限制,整体的晶粒生长速度较图5a~5c明显降低。

图6为不同体积比的两相复合燃料的平均晶粒半径随时间的变化情况。结果显示,UN体积分数不同的复合燃料体系中,平均晶粒半径呈现显著规律性变化:单相UO₂体系的平均晶粒半径最大,随着UN体积分数的增加,平均晶粒半径整体呈减小趋势。具体而言,纯UO₂与

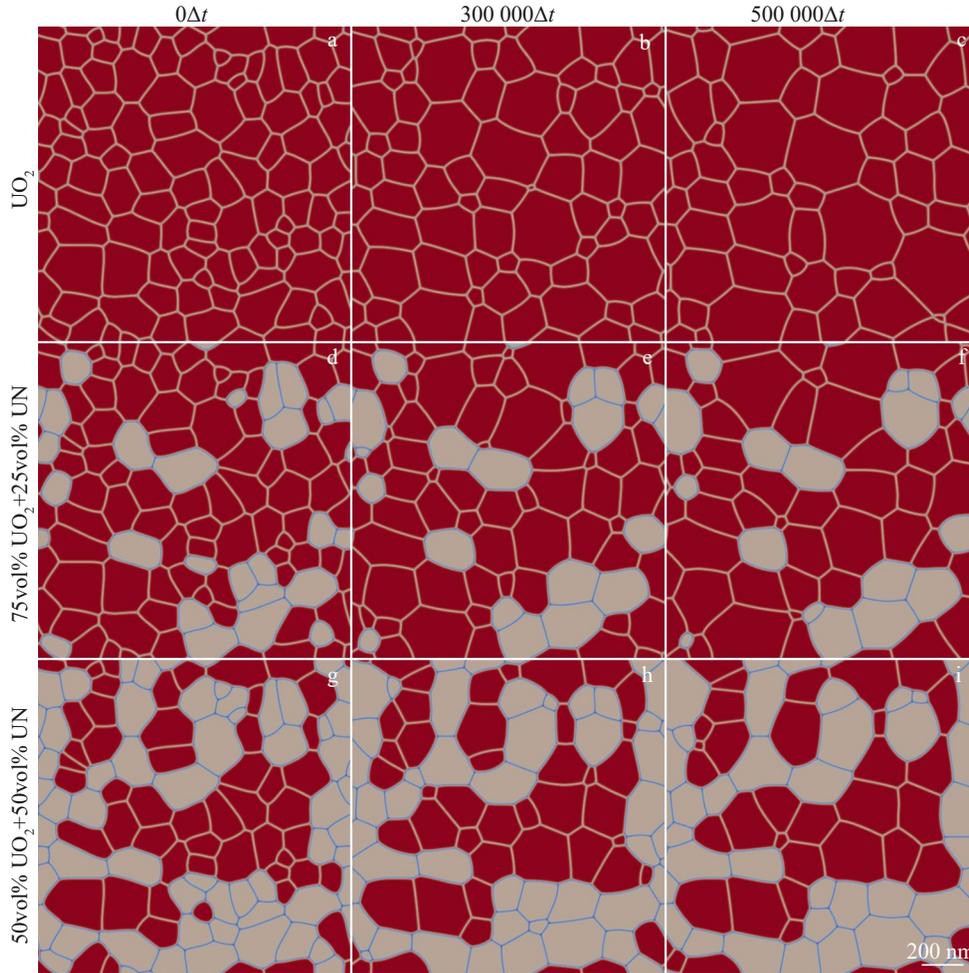


图5 不同体积比的UO₂和UN微观组织演化

Fig.5 Microstructural evolution of UO₂ and UN with different volume fractions

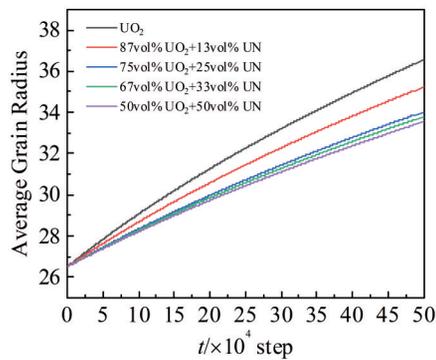


图6 两相体积比不同的情况下平均晶粒半径随时间的变化曲线

Fig.6 Evolution of average grain radius over time with different two-phase volume fractions

13vol% UN 组的平均晶粒半径存在显著差异, 13vol% UN 组与 25vol% 及更高的体积分数组的平均半径差异同样显著, 而 25vol%、33vol% 与 50vol% UN 三组之间, 平均晶粒半径持续下降但差异幅度明显缩小。87vol% UO₂+13vol% UN 体系与纯 UO₂ 相比, 阻碍作用“从无到有”, 第

二相晶粒分散分布, 晶粒生长显著受阻, 晶粒平均半径下降明显; 当 UN 体积分数超 25% 时, 体系进入高体积分区间, 第二相晶粒形成较密集分布并局部团聚, 此时相界面的阻碍作用减弱, 晶粒平均半径下降幅度减小。该现象与 Fan 等^[38]对两相体系中晶粒生长机制的研究相符, 相界面对晶粒生长的影响整体上呈“低含量时阻碍明显, 高含量时阻碍减弱”的规律。

3.3 烧结末期晶粒长大行为

3.3.1 烧结末期晶粒长大过程的二维模拟

对复合燃料烧结末期晶粒长大体系进行了二维模拟, 研究了具有恒定半径的空洞数量对晶粒生长机制的影响。二维模拟采用了大小为 512×512 的区域, 设定周期性边界条件, 区域内随机分布了 100 个晶粒, 在模拟体系中随机生成不同数量的半径 $r=48$ nm 的空洞, 统计了模拟时间内晶粒平均半径的变化。在本工作中, 选用相同尺寸的空洞可以定量分析空洞对晶界的钉扎效应。

图 7 为含不同空洞数量的 50vol% UO₂+50vol% UN 复合燃料的晶粒组织随时间演化。其中, 红色相表示空

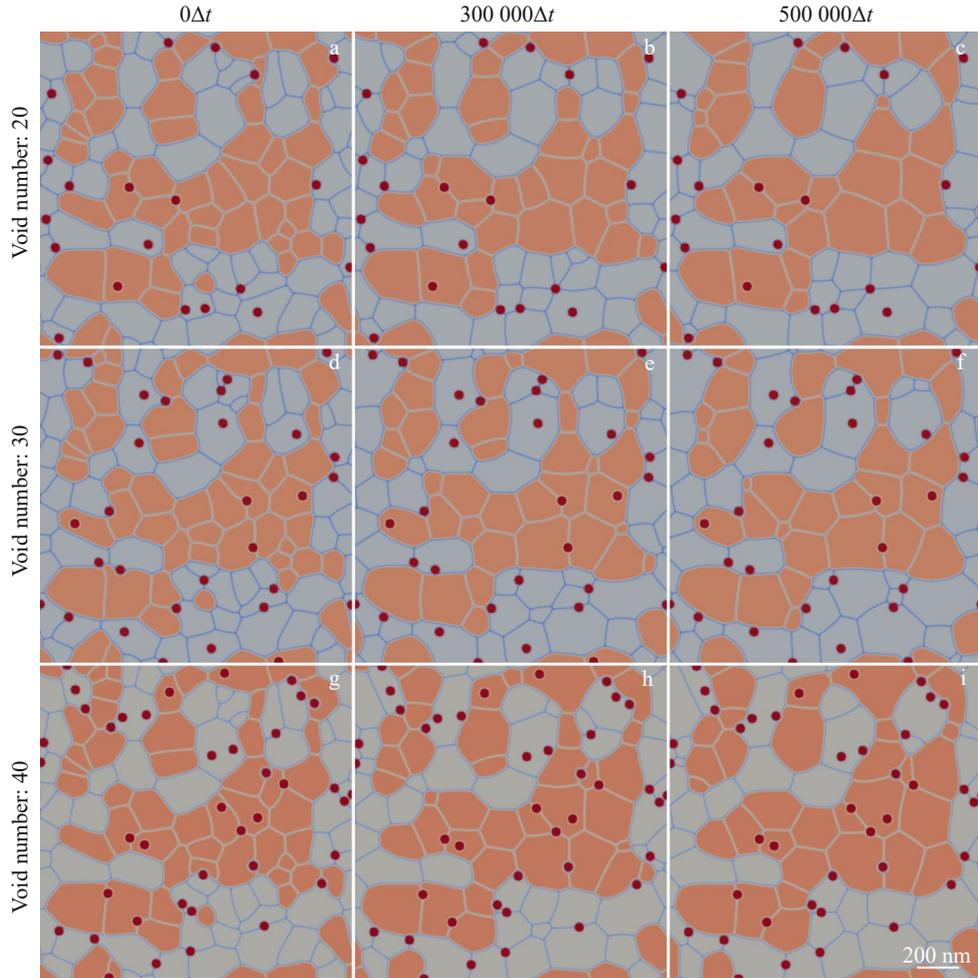


图7 含不同数量空洞的50vol% UO₂+50vol% UN体系微观组织演化
Fig.7 Microstructure evolution of 50vol% UO₂+50vol% UN system with different numbers of voids

洞,橙色相表示UO₂,蓝色相表示UN。从中可以明显看出,随时间演化后,空洞大多存在于三岔晶界处,且空洞的出现对晶粒产生了钉扎效应,明显降低了晶粒生长速度,随空洞数量的增加,晶粒组织更复杂,生长速度更慢。随着空洞数量的增加,晶粒形态趋于不规则,部分晶界附近由于空洞分布导致晶界曲率增大,晶界的稳定性下降。尤其当空洞数量为40时,晶界的局部曲率和形态复杂性显著增加,进一步减缓晶粒的长大速度。

图8为50vol% UO₂+50vol% UN复合燃料体系中不同空洞数量下平均半径随时间的变化曲线,图中 N_p 表示体系中空洞的数量。可以看出,随空洞数量的增加,整体晶粒平均半径呈现下降趋势,这一现象源于空洞对晶界迁移的抑制作用。一方面,空洞作为分散的缺陷相,会通过界面张力对晶界产生钉扎效应,其数量越多,单位体积内的钉扎位点越密集,对晶界移动的阻碍作用越强;另一方面,空洞的存在割裂了基体相的连续结构,延长了原子扩散路径,降低了晶界迁移所需的扩散动力学速率。两者协同作用下,晶粒长大过程受到显著抑制,最终表现为

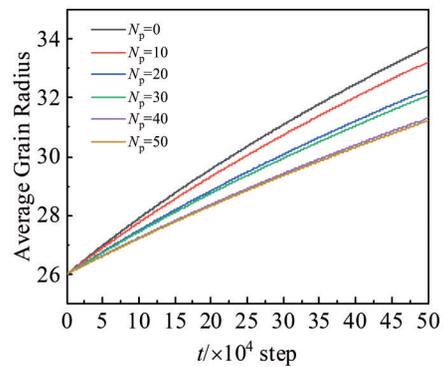


图8 二维模拟中不同空洞数量下平均晶粒半径随时间的变化曲线
Fig.8 Evolution of average grain radius over time under different numbers of voids in 2D simulation

平均晶粒半径随空洞数量增加而整体下降的规律。

3.3.2 烧结末期晶粒长大过程的三维模拟

三维模拟体系的大小为128 × 128 × 128,共包含150个晶粒。图9为空洞数量不同的50vol% UO₂+50vol% UN两相复合燃料烧结末期晶粒长大的三维体系演化,其中

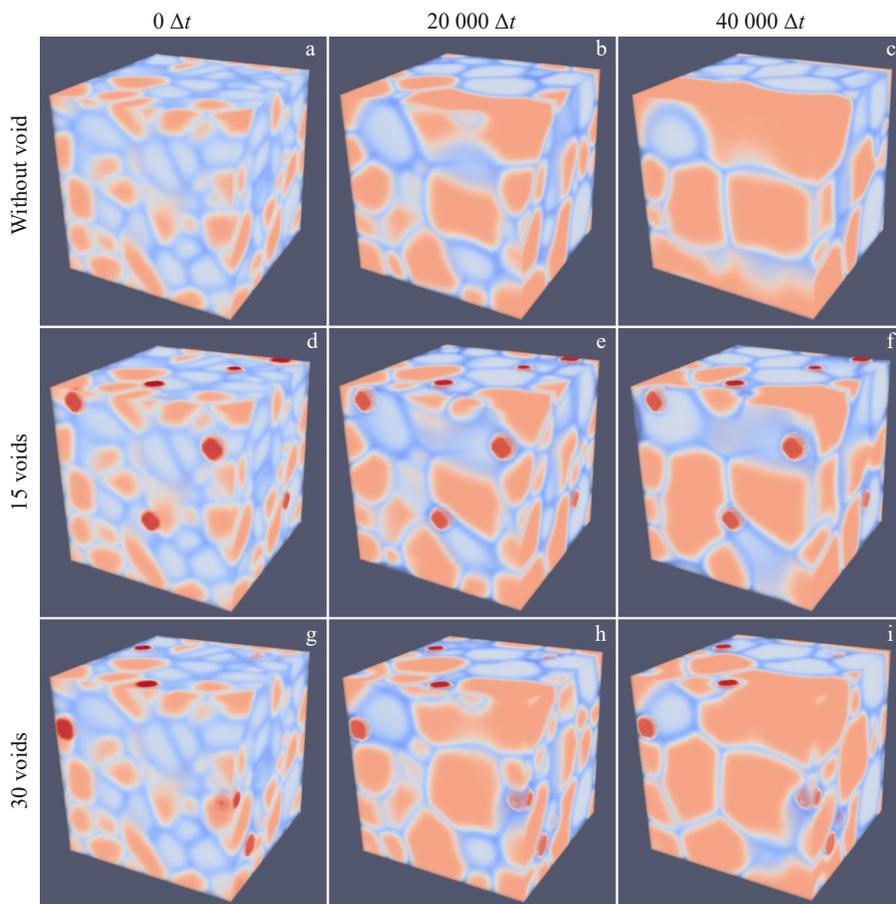


图9 不同空洞数量的50vol% UO₂+50vol% UN体系三维微观组织演化

Fig.9 3D microstructural evolution of 50vol% UO₂+50vol% UN system with different numbers of voids

深红色相表示空洞,橙色相表示UO₂,浅蓝色相表示UN。在图9a~9c所示无空洞体系中,晶粒演化与图5所示的二维体系中晶粒生长的机制相同,相界面为核心影响因素。如图9d~9i所示,当体系中存在空洞时,微观组织发生明显变化,空洞的存在阻碍了晶粒的生长,“钉扎效应”更为明显。如图9f和图9i所示,在足够长时间的演化后,最终晶粒形态具有明显差异。

图10为不同空洞数量下平均晶粒半径随时间的变化曲线,图中 N_p 表示体系中空洞数量。可以看出,晶粒的生长速度差异明显,随空洞数量的增加,各体系的平均晶粒半径减小,这表明空洞数量增加,“钉扎效应”增强,阻碍晶粒生长。三维体系与二维体系相比,晶粒拓扑结构存在显著差异。三维拓扑结构下,晶粒边界变为复杂的曲面,导致界面能分布更不均匀,晶界曲率与晶粒取向的变化对晶界运动与晶粒长大的影响更为复杂。在烧结末期,两相复合燃料晶粒生长同时受到相界、晶界和空洞的共同作用。廖宇轩等^[25]对UN-U₃Si₂两相多晶烧结模拟中发现,空洞会优先在相界面处聚集,这是因为相界面处的原子排列相对疏松,空洞形成的能量更低。这些聚集在相界面处的空洞进一步增强了对晶界迁移的钉扎效果,因为晶界在迁移过程中不仅要克服相界面的阻力,还

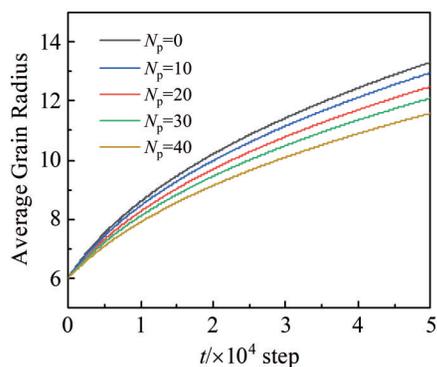


图10 三维模拟中不同空洞数量下平均晶粒半径随时间的变化曲线
Fig.10 Evolution of average grain radius over time under different numbers of voids in 3D simulation

要挣脱空洞的钉扎。高UN体积分数下,体系具有更高的相界面体积分数,而空洞的存在也会增加体系的能量;高体积分数的相界面与高密度的空洞抑制了晶界迁移,从而对晶粒长大过程产生显著影响。

4 结论

1)两相晶界与空洞相互作用的模拟结果表明,两相

界面处空洞的形态与空洞两侧材料的界面能相关, UN相的界面能更大, 与UN相接触的空洞的向透镜状变化的速度更快, 形成的长宽比更大; 平衡时在两相界面与空洞交界处形成三重界面角, 其取值由两相的晶界能和界面能的比值所决定; 空洞附近的晶界张力平衡变化可能导致界面局部不规则形变, 在 UO_2 -UN体系中, 因空洞两侧材料不同, 界面能不同, 三重界面向界面能更大的UN相一侧弯曲。

2) 对两相复合燃料晶粒长大现象进行了模拟, 模拟结果显示, 在含有不同体积比的 UO_2 -UN体系中, 因两相体积比不同导致体系中的相界面含量不同, 当体系中的相界面增加时, 对晶粒生长的阻碍作用增加, 使得晶粒生长速度变慢, 随着第二相体积分数增加, 第二相的局部团聚导致相界面对晶粒生长的阻碍效率相对减弱。

3) 空洞对 UO_2 -UN复合燃料晶粒长大影响模拟结果显示, 在含有不同数量空洞的两相体系中, 空洞对晶界产生“钉扎效应”, 对晶粒生长起到较强阻碍作用, 随空洞数量增加, 晶粒生长速度变慢。在含不同数量空洞的三维模拟中, 因空洞与晶界的相互作用面积增加和钉扎效应的多维叠加, 使得空洞对晶粒生长产生了更强的抑制作用, 使得晶粒异常长大现象明显, 最终晶粒组织形态受空洞分布影响明显。

参考文献 References

- [1] Sun Zhengyang(孙正阳), Yang Chao(杨超), Liu Wenbo(柳文波). *Acta Metallurgica Sinica(金属学报)*[J], 2020, 56(9): 1295
- [2] Jiang Yanbo(姜彦博), Liu Wenbo(柳文波), Sun Zhipeng(孙志鹏) et al. *Acta Physics Sinica(物理学报)*[J], 2022, 71(2): 026103
- [3] Ott L J, Robb K R, Wang D. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2014, 448(1-3): 520
- [4] Qi Xiaoyong(戚晓勇), Liu Wenbo(柳文波), He Zongbei(何宗倍) et al. *Acta Metallurgica Sinica(金属学报)*[J], 2023, 59(11): 1513
- [5] Yang K, Kardoulaki E, Zhao D et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2021, 557: 153272
- [6] Yang J H, Kim D J, Kim K S et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 465: 509
- [7] Sakai K. *Journal of Crystal Growth*[J], 2002, 237-239: 144
- [8] Hötzer J, Seiz M, Kellner M et al. *Acta Materialia*[J], 2019, 164: 184
- [9] Jaques B J, Watkins J, Croteau J R et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 466: 745
- [10] Fang Z Z, Wang H T, Kumar V. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2017, 62: 110
- [11] Shen Wenlong(申文龙), Liao Yuxuan(廖宇轩), Wu Xuezhì(吴学志) et al. *Acta Metallurgica Sinica(金属学报)*[J], 2024: 00138
- [12] Sun Qiming(孙启明), Shen Wenlong(申文龙), Liao Yuxuan(廖宇轩) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2025, 54(3): 671
- [13] Liu Xuxi(刘续希), Gao Shisen(高士森), La Yongxiao(喇永孝) et al. *Acta Physics Sinica(物理学报)*[J], 2024, 73(13): 148201
- [14] Chen L Q, Zhao Y H. *Progress in Materials Science*[J], 2022, 124: 100868
- [15] Zhao Y H. *npj Computational Materials*[J], 2023, 9(1): 94
- [16] Xin T Z, Zhao Y H, Mahjoub R et al. *Science Advances*[J], 2021, 7(23): eabf3039
- [17] Zhu Wei(朱伟), Cheng Dazhao(程大钊), Liu Caiyan(刘彩艳) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2024, 53(8): 2193
- [18] Zhang Wei(张伟), Cheng Dazhao(程大钊), Liu Caiyan(刘彩艳) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2024, 53(10): 2926
- [19] Fan D, Chen L Q. *Acta Materialia*[J], 1997, 45(8): 3297
- [20] Guo Y L, Liu Z, Huang Q et al. *Computational Materials Science*[J], 2018, 145: 24
- [21] Rehn V, Hötzer J, Rheinheimer W et al. *Acta Materialia*[J], 2019, 174: 439
- [22] La Y X, Jiang Y B, Lan X et al. *Nuclear Engineering and Design*[J], 2024, 428: 113485
- [23] Fan D, Geng C W, Chen L Q. *Acta Materialia*[J], 1997, 45(3): 1115
- [24] Jiang Y B, Sun Z P, Wang D J et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2024, 588: 154757
- [25] Liao Yuxuan(廖宇轩), Shen Wenlong(申文龙), Wu Xuezhì(吴学志) et al. *Acta Physics Sinica(物理学报)*[J], 2024, 73(21): 210201
- [26] Folch R, Plapp M. *Physical Review E*[J], 2005, 72(1): 011602
- [27] Yadav V, Vanherpe L, Moelans N. *Computational Materials Science*[J], 2016, 125: 297
- [28] Ahmed K, Yablinsky C A, Schulte A et al. *Modelling and Simulation in Materials. Science and Engineering*[J], 2013, 21(6): 065005
- [29] Cahn J W. *Acta Metallurgica*[J], 1961, 9(9): 795
- [30] Wang Y F, Xiao Z H, Shi S Q. *Scientia Sinica: Physica, Mechanica & Astronomica*[J], 2019, 49(11): 114607
- [31] Kinoshita M. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1997, 248: 185
- [32] Maiya P S. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1971, 40(1): 57
- [33] Kuksin A Y, Starikov S V, Smirnova D E et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2016, 658: 385
- [34] Bocharov D, Gryaznov D, Zhukovskii Y F et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 435(1-3): 102
- [35] Du L F, Yang S M, Zhu X W et al. *Journal of Materials Science*[J], 2018, 53(13): 9567
- [36] Riedel H, Svoboda J. *Acta Metallurgica et Materialia*[J], 1993, 41(6): 1929
- [37] Burke J E, Turnbull D. *Progress in Metal Physics*[J], 1952, 3: 220
- [38] Fan D, Chen S P, Chen L Q et al. *Acta Materialia*[J], 2002, 50(8): 1895

Phase-Field Simulation of Grain Growth During Final Stage of Sintering in Two-Phase Composite Fuels

Zhai Jingjie¹, La Yongxiao¹, Liao Yuxuan¹, Wu Xuezhong², Shen Wenlong¹, Liu Wenbo^{1,3}

(1. School of Nuclear Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(2. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

(3. Shaanxi Key Laboratory of Advanced Nuclear Energy and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: A numerical model based on phase-field method to simulate the grain growth during the final sintering stage of a two-phase UO_2 -UN composite fuel was established, systematically investigating the grain evolution within the composite fuel system. Firstly, a simplified model of a void held between two grains was established to elucidate the interaction mechanism between grain boundary (GB) and voids. The results show that voids near GBs exhibit shrinkage dynamics and evolve into an ellipsoidal shape. Additionally, voids in contact with grains of high interfacial energy show significantly accelerated shrinkage rate. The triple interface angle in the system is determined by the ratio of the two-phase GB energy to the interface energy. Furthermore, a quantitative analysis was conducted on the grain growth process within the two-phase polycrystalline system. The investigation into the effect of phase volume fraction reveals that grain migration is significantly constrained by phase interface. As the volume fraction of the secondary phase increases, the increased phase interface density reduces the grain growth rate. Finally, the grain growth model for the two-phase polycrystalline system containing voids was developed to investigate the pinning effect induced by voids and to elucidate the growth kinetics at the final sintering stage. The results show that voids induce GB pinning, with the pinning strength positively correlated with void density. Non-uniform local void distribution can trigger abnormal grain growth. A three-dimensional void pinning analysis further shows that complex grain topology enhances the void pinning effect, resulting in more distinctive morphological features of abnormal grain growth in three-dimensional systems.

Key words: phase-field simulation; composite fuel; sintering; grain growth; grain boundary and phase boundary

Corresponding author: Liu Wenbo, Ph. D., Professor, School of Nuclear Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, P. R. China, Tel: 0086-29-82668648, E-mail: liuwenbo@xjtu.edu.cn