

文章编号: 0258-0926(2015)01-0038-03; doi:10.13832/j.jnpe.2015.01.0038

# 燃料氧化对裂变产物扩散释放的影响研究

景福庭, 杨洪润, 吕焕文, 于 红

中国核动力研究设计院核反应堆系统设计技术重点实验室, 成都, 610041

**摘要:** 分析燃料氧化对裂变产物扩散释放的影响, 得出结论: 燃料氧化后, 燃料中铀原子空位增多对裂变产物释放的影响要大于导热率降低后燃料温度上升带来的影响; 裂变产物释放份额随氧铀比升高而增大, 燃料棒线功率密度越高, 效应越明显。

**关键词:** 燃料氧化; 裂变产物; 扩散释放

**中图分类号:** TL352.2<sup>7</sup> **文献标志码:** A

## Study on Effect of Fuel Oxidation on Fission Product Diffusion Release

Jing Futing, Yang Hongrun, Lu Huanwen, Yu Hong

Science and Technology on Reactor System Design Technology Laboratory, Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610041, China

**Abstract:** Effect of fuel oxidation on fission product diffusional release is analyzed, and it is concluded that the vacancy increase due to the fuel oxidation has greater effect on the enhanced fission product release than the temperature increase due to the degradation of fuel thermal conductivity. The fission product release fractions increase with the O/U ratio, and this phenomenon is more obvious as the linear heat rate increases.

**Key words:** Fuel oxidation, Fission product, Diffusion release

### 0 引言

在核电厂运行中, 可能会出现燃料棒包壳破损的情况, 裂变产物会通过燃料棒包壳破口进入一回路, 使一回路系统及相关系统受到污染, 增加电厂工作人员和公众的辐射剂量。裂变产物释放的同时, 一回路的冷却剂可能通过破口进入燃料棒的气隙中, 进入气隙的冷却剂会引起燃料的氧化从而加快裂变产物的释放, 主要包含以下几个原因<sup>[1]</sup>: 燃料芯块的热导率下降, 燃料芯块温度升高, 燃料芯块中裂变产物的扩散加快, 扩散释放增多; 燃料芯块的氧铀比升高, 铀原子空位增多, 裂变产物在燃料中的扩散加快, 扩散释放增多; 少量燃料颗粒可能脱离燃料芯块并进入一回路冷却剂, 这些燃料颗粒中的裂变产物

随燃料进入一回路。

PROFIP5<sup>[2]</sup>程序是由法国原子能委员会(CEA)开发的一回路裂变产物源项计算程序。该程序中考虑了燃料棒破损后燃料氧化带来的影响, 但仅考虑了燃料芯块导热率变化, 没有考虑氧铀比的变化, 本文将 KIM<sup>[3]</sup>和 TURNBULL<sup>[4]</sup>等人的研究结果引入 PROFIP5 程序, 分析燃料氧化对裂变产物扩散释放的影响。

### 1 扩散释放

扩散释放是指裂变产物在温度和温度梯度的驱动下由燃料内向燃料外迁移。Booth<sup>[5]</sup>首先建立了裂变产物的扩散释放模型, 将燃料芯块假设成由许多燃料小球组成, 燃料小球间互不影响。裂

变产物通过扩散由燃料小球内向燃料小球外迁移,裂变产物扩散到燃料小球外面后认为是释放。

裂变产物在燃料小球内的平衡方程为:

$$\frac{\partial C(r,t)}{\partial t} = y_c \cdot f(t) + D(t) \cdot \frac{1}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \cdot \frac{\partial C(r,t)}{\partial r} \right) - \lambda \cdot C(r,t) \quad (1)$$

式中,  $C(r,t)$  为  $t$  时刻燃料小球半径为  $r$  处裂变产物的浓度, atoms/m<sup>3</sup>;  $y_c$  为裂变产物的累积裂变产额, atoms/fission;  $f(t)$  为单位体积燃料内的裂变率, fissions·m<sup>-3</sup>/s;  $D(t)$  为裂变产物在燃料小球内的扩散系数, m<sup>2</sup>/s;  $\lambda$  为裂变产物的衰变常数, 1/s。

裂变产物平衡方程初始条件和边界条件为:

$$C(r,0) = 0, \quad 0 < r < a, \quad t = 0 \quad (2)$$

$$\frac{\partial C(r,t)}{\partial r} = 0, \quad r = 0, \quad t > 0 \quad (3)$$

$$C(a,t) = 0, \quad r = a, \quad t > 0 \quad (4)$$

式中,  $a$  为等效燃料小球的半径。

裂变产物扩散释放的释放产生比为:

$$\frac{R}{B} = \frac{3}{a \cdot y_c \cdot f(t)} \left( -D \frac{\partial C(r,t)}{\partial r} \Big|_{r=a} \right) \quad (5)$$

式中,  $R$  为裂变产物的释放率, atoms/s;  $B$  为裂变产物的产生率, atoms/s。

## 2 燃料氧化对扩散释放的影响

### 2.1 燃料氧化后的热导率

燃料氧化后, 燃料芯块的热导率下降, PROFIP5 程序中将燃料棒氧化后的积分热导率降低了 10%, 并没有考虑燃料的具体氧化程度。KIM<sup>[3]</sup> 在实测数据基础上得出了与氧铀比相关的热导率计算公式:

$$k = \left[ (0.02 + 3.5x) + (2.5 \times 10^{-4} - 1.3 \times 10^{-3}x)T \right]^{-1} \quad (6)$$

式中,  $k$  为燃料芯块的热导率, W·m<sup>-1</sup>/K;  $x$  为燃料的氧铀比减去 2;  $T$  表示燃料芯块的温度, K。

由式 (6) 可以得出燃料芯块的积分热导率:

$$\int_{t_s}^{t_c} k dt = \frac{(0.02 + 3.5x) + (2.5 \times 10^{-4} - 1.3 \times 10^{-3}x)T}{(2.5 \times 10^{-4} - 1.3 \times 10^{-3}x)} \Big|_{t_s}^{t_c} \quad (7)$$

式中,  $t_c$  为燃料芯块中心温度;  $t_s$  为燃料芯块表面温度。

### 2.2 燃料氧化后的扩散系数

Booth 模型中通过扩散系数  $D$  表征裂变产物扩散的快慢程度。燃料氧化后, 燃料的氧铀比升

高, 铀原子空位增多, 裂变产物通过空位扩散的速率加快。

人们通过堆内或堆外实验得到了大量扩散系数的计算公式, 其中 Turnbull<sup>[4]</sup> 推荐的公式应用最为广泛, 计算表达式如下:

$$D = D_1(T) + D_2(T,x) + D_3(f) \quad (8)$$

$$D_1(T) = 7.6 \times 10^{-10} \exp(-7 \times 10^4 / HT) \quad (9)$$

$$D_2(T,x) = s^2 j_v (V_i + V_u) \quad (10)$$

$$D_3(f) = 2 \times 10^{-40} \cdot f \quad (11)$$

$$j_v = 10^{13} \cdot \exp[-5.52 \times 10^4 / (HT)] \quad (12)$$

$$V_i = \left( \frac{9 \times 10^{-5} + 100V_u}{200} \right) \left\{ \left[ 1 + \frac{8 \times 10^{-2}}{j_v (9 \times 10^{-5} + 100V_u)^2} \right]^{0.5} - 1 \right\} \quad (13)$$

$$V_u = \frac{Sx^2}{F^2} \left[ 0.5 + \frac{F}{x^2} + 0.5 \left( 1 + \frac{4F^2}{x^2} \right)^{0.5} \right] \quad (14)$$

$$F = \exp[-7.13 \times 10^4 / (HT)] \quad (15)$$

$$S = \exp[-1.47 \times 10^5 / (HT)] \quad (16)$$

式中,  $D_1$  为裂变产物的固有扩散系数, 在高温区占主导, m<sup>2</sup>/s;  $D_2$  为与空位扩散相关的扩散系数, 在中温区占主导, m<sup>2</sup>/s;  $D_3$  为裂变引起的自扩散, 在低温区占主导, m<sup>2</sup>/s;  $f$  为单位体积燃料内的裂变率, fissions/m<sup>3</sup>·s<sup>-1</sup>;  $H$  为气体常数, 1.987 cal·mol<sup>-1</sup>/K;  $s$  为原子跳跃距离, 3 × 10<sup>-10</sup> m;  $j_v$  为空位的跳跃频率, 1/s;  $V_i$  为辐照导致的空位浓度, vacancies/atom;  $V_u$  为铀原子的空位浓度, vacancies/atom;  $S$  为 Schottky 缺陷的浓度;  $F$  为 Frenkel 缺陷的浓度。

### 2.3 影响分析

将式 (7)~式 (16) 引入 PROFIP5 程序, 分析燃料氧化对裂变产物扩散释放的影响。裂变产物扩散释放计算的相关参数 (除氧铀比和线功率密度外) 见表 1。

选择燃料的线功率密度为 186 W/cm, 分别计算 3 种情形下 <sup>133</sup>Xe 的释放份额:

(1) 仅考虑燃料氧化后导热率的变化, 导热率降低, 燃料芯块温度升高, 裂变产物在燃料中扩散加快, 扩散释放增多。

(2) 仅考虑燃料氧化后, 燃料中出现超化学

计量的氧原子,铀原子空位增多,裂变产物在燃料中通过与空位机理相关的扩散加快,扩散释放增多。

(3) 同时考虑前 2 种因素的影响。

不同氧铀比时  $^{133}\text{Xe}$  的释放份额见图 1。

表 1 裂变产物扩散释放计算的相关参数  
Table 1 Associated Parameters for Calculation of Fission Product Diffusion Release

参数名称	参数值
堆芯入口冷却剂温度/	293.4
一回路冷却剂的体积流量/ $\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$	13977
燃料棒活性段长度/cm	365.8
燃料芯块的直径/cm	0.82
包壳外径/cm	0.95
包壳内径/cm	0.836
等效燃料小球半径/ $\mu\text{m}$	10

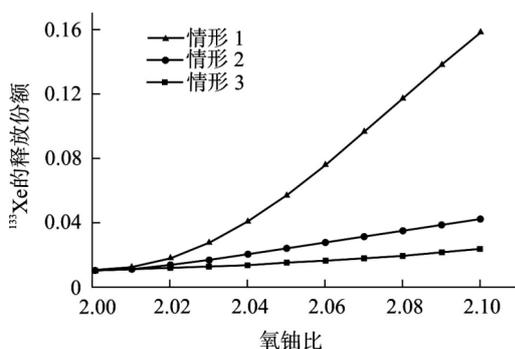


图 1  $^{133}\text{Xe}$  释放份额随氧铀比的变化  
Fig. 1 Effect of O/U Ratio on  $^{133}\text{Xe}$  Fraction Release

由图 1 可见,  $^{133}\text{Xe}$  的释放份额随着氧铀比的增大而增大, 燃料氧化会加快裂变产物释放, 在裂变产物的释放计算中需要考虑燃料氧化的影响; 同时可发现情形 2 的 R/B 高于情形 1, 即在加快裂变产生释放的因素中空位增多引起扩散加快对裂变产物释放的影响要大于导热率降低后燃料温度上升带来的影响, 该结论与 KIM Y. S<sup>[3]</sup>得到的结论一致。

选择燃料的氧铀比为 2.03, 同时考虑燃料导热率和裂变产物扩散系数的变化, 用加速因子  $p$  表示裂变产物释放的加快程度。

$$p = \frac{(R/B)_{x=0.03}}{(R/B)_{x=0.0}} \quad (17)$$

氧铀比为 2.03, 不同线功率密度时 3 种裂变产物释放的加速因子  $p$  见表 2。

从表 2 可知,  $p$  随线功率密度升高而增大,

表 2 不同线功率密度时裂变产物释放的加速因子

Table 2 Enhancement Factor for Fission Product Release at Different Linear Power

线功率密度/ $\text{W}\cdot\text{cm}^{-1}$	$^{131}\text{I}$	$^{133}\text{Xe}$	$^{85\text{m}}\text{Kr}$
120	1.08	1.08	1.02
140	1.26	1.25	1.09
160	1.71	1.67	1.31
180	2.45	2.41	1.75
200	3.31	3.30	2.39
220	4.14	4.19	3.16
240	4.55	4.69	3.77

即线功率密度越高, 燃料氧化对裂变产物释放的加速效应越明显。

由于裂变产物的扩散系数由 3 部分组成, 燃料氧化主要对  $D_2$  有影响, 线功率密度较低时,  $D_3$  起主导作用; 因此, 线功率密度较低时, 燃料氧化对裂变产物释放的加速效应不明显, 随着线功率密度升高,  $D_2$  逐渐取代  $D_3$ , 在扩散系数中起主导作用, 燃料氧化对裂变产物扩散释放的影响逐渐明显。

### 3 结论

将 KIM Y. S<sup>[3]</sup>和 Turnbull<sup>[4]</sup>等人的研究结果引入 PROFIP5 程序, 分析了燃料氧化对裂变产物扩散释放的影响, 得出以下结论:

(1) 燃料氧化后, 裂变产物的扩散释放加快。

(2) 燃料氧化后, 超化学计量引起的空位增多对裂变产物释放的影响要大于导热率降低后燃料温度上升带来的影响。

(3) 线功率密度越高, 燃料氧化对裂变产物释放的加速效应越明显。

参考文献:

- [1] Hastings I J, Hunt C E L, Lipsett J J. Release of short-lived fission product from  $\text{UO}_2$  fuel: effects of operating Conditions[J]. J Nucl Mater. 1985, 130: 407-417.
- [2] Claude Leuthrot. Code PROFIP Version 5.0, Calculation of the activity of fission products and actinides in the primary systems of pressurized water reactors[R]. DEC/SH2C/LTC 99-019, 1999.
- [3] Kim Y S. Fission gas release from  $\text{UO}_{2+x}$  in defective light water reactor fuel rods[R]. ANL/EP/CP-100465. 2000.
- [4] Turnbull J A, Friskney C A. The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide[J]. J Nucl Mater. 1982, 107: 168-184.
- [5] Booth A H. A suggested method for calculating the diffusion of radioactive rare gas fission products from  $\text{UO}_2$  fuel elements and a discussion of proposed in-reactor experiments that may be used to test its validity[R]. DCI-27 AECL-700. 1957.

(责任编辑: 张祚豪)