



超高通量快中子研究堆核燃料概念设计研究

李文杰, 夏榜样, 余红星, 焦拥军, 李 权, 孙 丹, 吴 裕

Conceptual Design Study of Ultra-high Flux Fast Neutron Research Reactor Fuel

Li Wenjie, Xia Bangyang, Yu Hongxing, Jiao Yongjun, Li Quan, Sun Dan, and Wu Yu

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13832/j.jnpe.2022.06.0217>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

CPR1000核电机组乏燃料水池后备冷却方式设计研究

Design and Study of Backup Cooling Mode for Spent Fuel Pool of CPR1000 Unit

核动力工程. 2021, 42(5): 240–244

双流体熔盐快堆概念设计可行性研究

Feasibility Study on Conceptual Design of Dual Fluid Fast Reactor

核动力工程. 2019, 40(1): 42–47

超高温下核级316H不锈钢材料基础特性研究

Research on Fundamental Characteristics of Nuclear Grade 316H Stainless Steel at Ultra High Temperature

核动力工程. 2021, 42(4): 270–276

基于多专业耦合分析的钍基熔盐堆反应堆本体设计研究

Design Study of Thorium Molten Salt Reactor Body on Basis of Multi-Specialty Coupling Analysis

核动力工程. 2019, 40(5): 23–28

燃料试样堆内辐照温度设计与实验研究

Design and Experimental Study of Irradiation Temperature in Fuel Specimen

核动力工程. 2018, 39(6): 43–48

某研究堆应急电力系统设计

Design of an Emergency Power Supply System for a Research Reactor

核动力工程. 2019, 40(3): 165–169



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

文章编号: 0258-0926(2022)06-0217-05; DOI:10.13832/j.jnpe.2022.06.0217

超高通量快中子研究堆核燃料概念设计研究

李文杰¹, 夏榜样¹, 余红星^{1*}, 焦拥军¹, 李 权¹, 孙 丹¹, 吴 裕²

1. 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, 610213;
2. 中国核动力研究设计院核燃料与材料技术重点实验室, 成都, 610213

摘要: 提高中子注量率是高通量研究堆的发展趋势, 能够大幅加速反应堆材料研发进程。但若提高中子注量率至 $10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 将导致功率密度峰值相较于现有研究堆高数倍, 对反应堆和核燃料设计带来许多挑战。为此, 本文从中子学、传热、燃料材料堆内行为等方面半定量分析了提高中子注量率对核燃料性能的影响, 并提出应对超高通量和功率密度挑战的设计措施, 为发展超高通量快中子研究堆燃料设计提供指导。

关键词: 超高通量; 研究堆; 核燃料; 传热; 设计

中图分类号: TL334 文献标志码: A

开放科学 (OSID) 标识码:



Conceptual Design Study of Ultra-high Flux Fast Neutron Research Reactor Fuel

Li Wenjie¹, Xia Bangyang¹, Yu Hongxing^{1*}, Jiao Yongjun¹,
Li Quan¹, Sun Dan¹, Wu Yu²

1. Science and Technology on Reactor System Design Technology Laboratory, Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610213, China;
2. Science and Technology on Nuclear Fuel and Materials Laboratory, Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610213, China

Abstract: Increasing neutron fluence rate is the development trend of high flux research reactor, which can greatly accelerate the R&D process of reactor materials. However, if the neutron fluence rate is increased to $10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, the peak power density will be several times higher than that of the existing research reactor, which will bring many challenges to the reactor and nuclear fuel design. For this reason, this paper semi quantitatively analyzes the impact of increasing neutron fluence rate on the performance of nuclear fuel from neutronics, heat transfer, fuel material behavior in the reactor and other aspects, and proposes design measures to meet the challenges of ultra-high flux and power density, providing guidance for the development of ultra-high flux fast neutron research reactor fuel design.

Key words: Ultra-high flux, Research reactor, Nuclear fuel, Heat transfer, Design

0 引言

研发新一代核反应堆和先进核材料都离不开高通量研究堆的支持。高通量研究堆是用于开展材料中子辐照试验、放射性同位素研制、中子散射试验、中子活化分析等科研活动的特殊反应堆。

中子注量率水平是代表高通量研究堆性能的核心指标。由于中子与材料的作用是影响反应堆材料性能的主要因素, 为了评估材料受中子辐照后的性能变化规律, 需要模拟原型工况对材料进行测试。考虑到中子与物质的相互作用机理与带电粒

收稿日期: 2022-07-26; 修回日期: 2022-09-04

基金项目: 中国核动力研究设计院原创基金创新团队项目 (KJCX-2021-TD-02)

作者简介: 李文杰 (1986—), 男, 博士研究生, 现主要从事新燃料设计及性能分析方面的研究, E-mail: lwj04@tsinghua.org.cn

*通讯作者: 余红星, E-mail: yuhong_xing@126.com

子存在显著差异,目前无法通过裂变反应以外的方式获得持续高强度的中子束流,只有高通量研究堆能加速反应堆和核材料的辐照测试进程。中子注量率提高1个数量级,则测试时间可缩短1个数量级,从而显著加速核材料辐照试验进程。此外,提高中子注量率对于研究核燃料的增殖焚烧也是必要的研究条件。目前核电厂的铀资源利用率较低,仅使用了天然铀中0.7%的 ^{235}U ,大量的 ^{238}U 无法被利用而成为了高放射性核废物,核燃料的增殖焚烧可以显著提高铀资源利用率和焚烧长寿命高放射性的核废物。研究核燃料的增殖焚烧,必须有足够高的快中子注量率才能使 ^{238}U 转换为易裂变核素^[1]。

目前美国、俄罗斯、欧盟等都在开发和建设新一代的高通量多功能堆综合研究设施,如美国VTR、俄罗斯MBIR、欧盟JHR等,快中子注量率水平已达到 $5.3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上。我国现有研究试验堆以热中子反应堆为主,缺乏具有辐照考验回路的快中子谱研究堆。为了发展可用于我国先进核能及核材料辐照测试的快中子谱研究堆,中国核工业集团有限公司正开展目标中子注量率不小于 $1.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 的超高通量快中子研究堆概念设计。由于中子产生于核燃料中的裂变反应,因此超高通量快中子研究堆的功率密度和辐照损伤将是现有研究堆最高水平的数倍。核燃料组件作为反应堆包容裂变反应产物的关键部件,其安全性受到超高功率密度和辐照损伤的挑战最明显。

核燃料设计涉及核反应堆系统和核中子学、热工水力、材料等多学科的协同分析,需要经过堆内外试验才能确认设计的合理性。核燃料的工程设计一般需要基于大量试验数据建立较为精确的数值模型,但由于其只能给出特定条件下的结果,很难由此推广或预测更一般的情况^[2]。在概念设计阶段,由于设计参数的不确定性较大,关于燃料行为的试验数据和机理认知不足,利用数值模拟开展设计分析的计算成本较高、周期较长、精度不足。而使用基本物理规律和少量简化假设构成的框架模型,利用解析法可以得到所关心参数的变化趋势,具有易于计算和理解的优点,因此比数值模拟更适合于开展概念设计。本文将基于

中子学、传热学、材料学的基本物理规律(方程)来分析超高中子注量率对核燃料综合性能的影响,为超高通量快中子研究堆的核燃料设计提供技术指导。

1 基本物理方程

第一个基本物理方程是关于反应堆内中子注量率 ϕ 与堆芯平均功率密度 q 的关系,如下:

$$q = E_f \Sigma_f \phi \quad (1)$$

式中, E_f 为一次裂变所产生的能量,约为 $3.2 \times 10^{-11} \text{ J}$; Σ_f 为堆芯宏观裂变截面,与堆芯布置、燃料和冷却剂材料及其类型、堆芯温度有关。

第二个基本物理方程是关于堆芯冷却剂出口温度的能量守恒方程。只考虑堆芯段冷却剂内能变化与裂变能,忽略冷却剂温度在不同通道之间和内部的差异,得到冷却剂平均出口温度 t_{out} 为:

$$t_{\text{out}} = t_{\text{in}} + \frac{qH}{V\rho c_p F_{\text{cool}}} \quad (2)$$

式中, t_{in} 为堆芯冷却剂平均入口温度; H 为堆芯活性段高度; V 为冷却剂流速; ρ 和 c_p 分别为冷却剂密度和定压比热容; F_{cool} 为冷却剂占堆芯截面的份额,对于板型燃料组件 $F_{\text{cool}} \approx \frac{\delta_{\text{cool}}}{2\delta_u + 2\delta_c + \delta_{\text{cool}}}$; δ_u 、 δ_c 、 δ_{cool} 分别为燃料芯体半厚度、包壳厚度、冷却剂通道宽度。

第三个基本物理方程是关于燃料和包壳温度的稳态传热方程。假设燃料元件包壳最高温度 $t_{\text{co}}^{\text{max}}$ 和燃料最高温度 $t_{\text{uo}}^{\text{max}}$ 均出现在堆芯出口位置,并忽略功率密度的空间分布,稳态下板型燃料中心和包壳外表面的解析解(推导过程见OSID附录A)可以用式(3)、式(4)计算。

$$t_{\text{co}}^{\text{max}} = t_{\text{in}} + qP \left(\frac{H}{\delta_{\text{cool}} V \rho c_p} + \frac{\delta_{\text{cool}}}{Nu \cdot \kappa_{\text{cool}}} \right) \quad (3)$$

$$t_{\text{uo}}^{\text{max}} = t_{\text{in}} + qP \left[\frac{H}{\delta_{\text{cool}} V \rho c_p} + \frac{\delta_{\text{cool}}}{Nu \cdot \kappa_{\text{cool}}} + \left(\frac{\delta_c}{2\kappa_c} + \frac{1}{2h_{\text{cu}}} + \frac{\delta_u}{4\kappa_u} \right) \right] \quad (4)$$

$$P = 2\delta_u + 2\delta_c + \delta_{\text{cool}}$$

式中, P 为栅元尺寸; κ_u 、 κ_c 、 κ_{cool} 分别为燃料芯体、包壳、冷却剂的热导率; h_{cu} 为燃料芯体和包壳的间隙换热系数; Nu 为冷却剂的努塞尔数。

第四个基本物理方程是关于液体金属冷却剂中包壳腐蚀/氧化的动力学方程。虽然同一包壳

材料在钠、铅和铅铋合金中的腐蚀/氧化动力学行为不同，但在机理上均包括腐蚀和氧化物迁移，在影响因素上均受冷却剂的氧含量和包壳温度控制。为了尽量减轻包壳腐蚀/氧化，工程设计上需要将氧化量控制在一个合理范围，以使包壳表面形成动态平衡的保护性氧化膜——此时一方面因为液态金属中的氧与金属基体结合生成新的氧化膜，另一方面因为冷却剂冲刷导致部分氧化膜被去除^[3-4]。在这种情况下，可以认为液体金属冷却剂中包壳材料的腐蚀和物质迁移速率相当，得到包壳减薄速率 R_c 遵循关于包壳温度 t_{co} 的 Arrhenius 动力学方程^[4-6]（推导过程见 OSID 附录 B）：

$$R_c \propto \exp\left(\frac{Q}{Rt_{co}}\right) \quad (5)$$

式中， Q 为常数，表示与冷却剂和包壳材料类型有关的激活能； R 为理想气体常数。

金属燃料比陶瓷燃料、弥散燃料具有更高的热导率、铀密度，且易于加工成板型元件。但某些金属燃料（如 U-Zr、U-Pu-Zr）在温度梯度驱动下会发生元素重分布，进而改变燃料的微观结构和辐照行为。因此第五个基本物理方程是关于金属燃料在温度梯度下发生元素重分布的动力学方程。以 U-Zr 燃料板为例，内部 Zr 成分向冷边迁移的互扩散通量^[7]（推导过程见 OSID 附录 C）为：

$$\tilde{J}_{Zr} = -\tilde{D}^* \left(\frac{\partial C_{Zr}}{\partial x} - \frac{q_v \tilde{Q}^* C_{Zr}}{\kappa_u R t_x^2} \right) \quad (6)$$

式中， \tilde{J}_{Zr} 为 Zr 在单位时间、单位面积的互扩散摩尔速率； C_{Zr} 为 Zr 的摩尔浓度； \tilde{D}^* 为 U-Zr 的互扩散系数； \tilde{Q}^* 为热输运参数，表示 1 摩尔 Zr 或 U 发生迁移所需要的热量； q_v 为燃料区的功率密度； x 为一维空间的位置； t_x 为 x 处的燃料温度。

通过与核燃料辐照行为有关的基本方程，忽略堆芯内部中子注量率、功率密度、温度的空间分布，可以直观地得出中子注量率对核燃料性能影响的规律，包括：中子注量率的提高必然导致堆芯平均功率密度的提高 [见式 (1)]；堆芯平均功率密度的提高导致冷却剂出口温度上升 [见式 (2)]；功率密度的提高也导致燃料和包壳温度的提高 [见式 (3)、式 (4)]；包壳温度的提高将导致包壳腐蚀速率的提高，对包壳完整性构

成挑战 [见式 (5)]；堆芯平均功率密度的提高还使得燃料温度梯度更大，燃料成分迁移加快，更可能发生相变，从而影响肿胀和热力学性质 [见式 (6)]。下面将结合具体的堆芯总体和燃料结构参数、燃料与包壳材料参数、燃料辐照经验参数，通过半定量分析得出提高中子注量率对核燃料综合性能的影响。

2 参数分析

2.1 冷却剂出口温度

根据式 (1)，中子注量率的提高将导致堆芯平均功率密度的同比例提高。尽管通过堆芯设计（例如选择中子慢化能力较弱的液态金属作为冷却剂、更紧密的燃料栅格等）可以尽量降低堆芯宏观裂变截面，但堆芯平均功率密度仍不可避免地随中子注量率提高，进而使堆芯传热面临更大挑战。

对于冷却剂出口温度，存在一个使结构材料腐蚀加速的上限温度 t_{max} 。对于不同冷却剂，为了保持冷却剂不凝固，冷却剂入口温度需要高于其熔点一定温度（假设液态金属为 40 K，水为 25 K），因此存在相应的入口温度下限 $t_{in,min}$ 。由式 (2) 可得到冷却剂出口温度的安全余量 t_{margin} ：

$$t_{margin} = t_{max} - t_{in,min} - \frac{qH}{V_{max}\rho c_p F_{cool}} \quad (7)$$

式中， V_{max} 为不引起结构材料腐蚀加速的最大允许流速。

表 1 给出了在 $q=1000 \text{ MW/m}^3$ 、 $H=0.5 \text{ m}$ 和

表 1 研究堆用冷却剂关键参数对比

Tab. 1 Comparison of Key Parameters of Coolant for Research Reactor

冷却剂参数	钠(723 K, 0.1 MPa)	铅铋合金(723 K, 0.1 MPa)	铅(723 K, 0.1 MPa)	水(333 K, 2.0 MPa)
熔点/K	371	398	600	273
沸点/K	1156	1943	2010	618
$\rho/(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})$	0.84	10.15	10.52	0.98
$c_p/(\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$	1.300	0.146	0.147	4.180
$V_{max}/(\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	10.0	4.0	4.0	12.0
$V_{max}\rho c_p/(\text{MW} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{m}^{-2})$	11.0	5.9	6.2	49.3
t_{max}/K	823	723	823	373
$t_{in,min}/\text{K}$	411	438	640	298
t_{margin}/K	336	144	48	58

$F_{\text{cool}} = 0.6$ 下不同冷却剂（钠、铅、铅铋合金和作为参考的轻水）的出口温度安全余量。

可以看出, t_{margin} 从大到小的顺序为钠、铅铋合金、水和铅。考虑钠的化学活性和水对中子的强慢化作用, 铅铋合金是一种较优的冷却剂。一旦确定了冷却剂（即确定了 V_{max} 、 ρ 、 c_p 、 t_{max} 、 $t_{\text{in,min}}$ ），提高 t_{margin} 的方法就是减少 $\frac{qH}{F_{\text{cool}}}$ 。在相同堆芯平均功率密度和活性段高度下, 设计的方向是尽可能增加冷却剂份额, 但会使堆芯燃料份额相应下降, 需要权衡其对反应堆中子学的负面影响。

2.2 包壳和燃料温度

在相同堆芯平均功率密度和冷却剂份额下, 由于板型元件与冷却剂接触面积更大, 板元件的温度更低, 因此研究堆多选择板型元件。之后的分析将按照板型元件来计算和讨论相关设计参数的影响。

为避免包壳在冷却剂中发生加速腐蚀和包壳高温力学性能显著下降, 包壳温度存在限值。根据式(3)得到稳态下板型燃料组件的包壳温度裕量 $t_{\text{co,margin}}$ 为:

$$t_{\text{co,margin}} = t_{\text{co,max}} - t_{\text{in,min}} - q \left(\frac{H}{V_{\text{max}} \rho c_p F_{\text{cool}}} + \frac{P \delta_{\text{cool}}}{Nu \cdot \kappa_{\text{cool}}} \right) \quad (8)$$

式中, $t_{\text{co,max}}$ 为包壳温度上限值。

在相同堆芯参数（ H 、 q 、 F_{cool} 、 V_{max} ）、冷却剂种类（ ρ 、 c_p 、 κ_{cool} ）下, 增大包壳温度裕量的设计措施包括: ①包壳材料应选择具有较高包壳温度上限值的材料; ②燃料组件结构应尽量减少栅元尺寸, 在冷却剂占堆芯截面的份额不变的前提下, 栅元尺寸减小也意味着冷却剂通道宽度减小。

为避免燃料熔化, 燃料温度应当低于熔点 $t_{\text{u0,max}}$ 。根据式(4)得到稳态下板型燃料组件的燃料温度裕量 $t_{\text{u0,margin}}$ 为:

$$t_{\text{u0,margin}} = t_{\text{u0,max}} - t_{\text{in,min}} - qP \left[\frac{H}{V_{\text{max}} \rho c_p F_{\text{cool}}} + \frac{\delta_{\text{cool}}}{Nu \cdot \kappa_{\text{cool}}} + \left(\frac{\delta_c}{2\kappa_c} + \frac{1}{2h_{\text{cu}}} + \frac{\delta_u}{4\kappa_u} \right) \right] \quad (9)$$

在相同堆芯参数、冷却剂下, 考虑瞬态的温度升高, 燃料温度需要留有较大的安全裕量, 根据式(9)可采取以下设计措施: ③选择热导率较高、熔点较高的燃料和包壳材料; ④选择间隙

换热系数较高的燃料和包壳结合方式, 例如通过冶金结合或填充液态金属; ⑤减少燃料芯体和包壳的厚度。另外, 增大包壳温度设计裕量的措施②也适用于增大燃料温度裕量。

2.3 包壳腐蚀/氧化速率

由于腐蚀/氧化使包壳减薄和力学性能下降, 可能威胁燃料元件的结构完整性, 因此包壳氧化膜冲蚀速率应该低于一个限值。虽然中子注量率和堆芯平均功率密度没有出现在腐蚀动力学方程[式(5)]中, 但却可以通过改变式(3)的包壳温度间接影响腐蚀速率。因此, 除了前文提到的合理控氧, 还可以采取以下措施降低包壳腐蚀/氧化速率: ⑥尽量降低包壳表面温度; ⑦选择激活能尽量低的冷却剂和包壳组合; ⑧添加阻氧剂来降低高温高流速冷却剂中的包壳腐蚀/侵蚀速率。

2.4 元素重分布与相变

由于元素重分布会引起相变, 往往带来燃料宏观尺寸变化和内部应力集中, 以及对裂变气体肿胀和释放带来不利影响, 因此设计上希望尽量使燃料在运行期间保持相稳定。根据式(3)、式(4)和概念设计中的反应堆系统参数可以估算出燃料运行温度范围介于450~700 K。这个温度范围在U-10Zr合金^[8]和U-10Mo合金^[9]的相图中都位于两相区——前者处于 α -U和 δ 相的UZr_{2+x}两相区, 后者处于 α -U和U₂Mo两相区。这意味着在辐照条件下2种合金都会发生调幅分解, 导致燃料微观结构和宏观性质发生显著变化, 以及裂变气体肿胀增加。为了抑制组分迁移和相变, 根据式(6)可以采取的措施包括: ⑨选择热导率较高和互扩散系数较低的铀合金成分; ⑩尽量降低燃料温度; ⑪寻找在运行温度区间内具有辐照稳定 γ 相的铀合金成分。

3 结论

本文从反应堆中子学、传热和材料堆内行为的基本规律出发, 半定量分析了中子注量率对燃料综合性能的影响, 并针对堆芯几何尺寸、冷却剂、燃料材料、元件结构等核燃料设计相关参数开展了参数分析, 给出了主参数、材料选择、结

构设计等方面的具体设计措施，有助于设计者理解提高中子注量率对核燃料设计的挑战以及相应的应对措施，也为下一步工程设计阶段建立更加精细的核燃料分析模型提供了基本框架。

参考文献：

- [1] CACUCI D G. Handbook of nuclear engineering[M]. New York: Springer, 2010: 1247.
- [2] 孙博华. 量纲分析与Lie群[M]. 北京：高等教育出版社, 2016: 1.
- [3] ZHANG J S. A review of steel corrosion by liquid lead and lead-bismuth[J]. *Corrosion Science*, 2009, 51(6): 1207-1227.
- [4] YOSHIDA E, FURUKAWA T. Corrosion issues in sodium-cooled fast reactor (SFR) systems[M]. FÉRON D. Nuclear Corrosion Science and Engineering. Amsterdam: Elsevier, 2012: 773-806.
- [5] DAI Y N, ZHENG X T, DING P S. Review on sodium corrosion evolution of nuclear-grade 316 stainless steel for sodium-cooled fast reactor applications[J]. *Nuclear Engineering and Technology*, 2021, 53(11): 3474-3490.
- [6] WANG H, XIAO J, WANG H, et al. Corrosion behavior and surface treatment of cladding materials used in high-temperature lead-bismuth eutectic alloy: A review[J]. *Coatings*, 2021, 11(3): 364.
- [7] OGAWA T, IWAI T, KURATA M. Demixing of U-Zr alloys under a thermal gradient[J]. *Journal of the Less Common Metals*, 1991, 175(1): 59-69.
- [8] LU Y, JIANG Z, LI L Y, et al. Calculation of steady-state dynamical phase diagram in U-Mo binary system under irradiation[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2021, 544: 152698.
- [9] LU Y, JIANG Z, LI L Y, et al. Calculation of dynamical phase diagram in U-Zr binary system under irradiation[J]. *Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science*, 2021, 7(1): 011605.

(责任编辑：邱彦)