

快堆金属燃料的发展

胡 贇¹, 徐 铎²

(1. 清华大学 工程物理系, 北京 100084; 2. 中国原子能科学研究院 中国实验快堆工程部, 北京 102413)

摘要: 国外早期快堆发展的燃料集中在金属燃料上, 但金属燃料辐照肿胀严重, 只能实现较低的燃耗深度, 且较低的固相线温度和与包壳间的共晶温度又制约了金属燃料的实际应用。文章回顾国外金属燃料的发展和主要问题的解决方法, 并总结金属燃料改进后可行的设计方案。随后整理早期、后期金属燃料的辐照经验, 给出已验证的最大燃耗深度。

关键词: 快堆; 金属燃料; 燃耗深度; 肿胀; 固相线温度; 共晶温度

中图分类号: TL349 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-6931(2008)09-0810-06

Development of Metallic Fuel for Fast Reactor

HU Yun¹, XU Mi²

(1. *Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China;*

2. China Experimental Fast Reactor, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: Most fuel types of the earliest fast breeder reactors were focused on metallic fuels composed of U, Pu or U-Pu alloys. Experiences in-core indicate that the swelling of metallic fuels is so severe that the cladding begins to fail at a low burnup, moreover the solidus temperature of uranium or uranium-plutonium fuel and eutectic temperature with stainless steel cladding materials are low and made it impractical to use metallic fuels in a commercial reactor. The paper reviews development of metallic fuels of fast reactors and ways to solve main problems of it, and then gives the improved and feasible design options for metallic fuels. Meanwhile the early and later irradiation experiences of metallic fuels were summarized, including the limits of burnup which had been demonstrated.

Key words: fast reactor; metallic fuel; burnup; swelling; solidus temperature; eutectic temperature

国外最早的液态金属冷却快堆使用金属燃料, 主要是考虑到金属燃料有较大的热导率、重金属核素密度以及热膨胀系数, 且有冶金学加工、处理的经验, 后处理方便。但金属燃料并未

成为 20 世纪 60 年代以后快堆燃料发展的主线, 主要原因是早期金属燃料的设计不能够实现较大的燃耗深度。其设计是为了追求较大的增殖比, 力求达到较大的燃料体积份额; 通常,

有效密度均较大,在 85% T. D. (理论密度) 以上;燃料芯块与包壳之间的间隙较小,无收集裂变气体的气腔或气腔非常小;在较高运行温度下的包壳能力未得到验证。在这种情况下,随着燃耗的加深,燃料中的裂变产物开始积累并释放出大量的裂变气体,包壳内压增加且燃料芯块的膨胀直接作用到包壳上,导致包壳很快失效,不能达到较大的燃耗深度。直到 20 世纪 60 年代末,依辐照经验看,使用金属燃料的燃耗深度不超过 3% (原子百分数,下同),在世界范围内金属燃料发展计划停止之前,只有 18 根使用 Pu-U-Zr 三元合金的燃料棒的燃耗达到了 4%^[1]。

不过,在 ANL 的 EBR-II 上,使用 U-Fs 合金金属燃料的研究持续到 80 年代初。在这一段时间,动力堆用的金属燃料的性能在 EBR-II 上得到令人满意的验证,同时也发现了一些新的金属燃料的附加特点^[1]。

使用金属燃料的堆芯由于能谱较硬以及较大的燃料密度而展现出较大的转换比,这些优势显示出金属燃料在快堆发展应用中的潜力。

1 金属燃料的主要问题

国外早期金属燃料的设计在辐照时主要面临两方面问题:

1) 辐照肿胀严重,不能实现比较高的燃耗深度;

2) 纯 Pu 或 Pu-U 合金的熔点较低,难于实际应用。

若要发挥快堆的优点,用²³⁸U 作增殖材料时最好使用 Pu 作驱动材料,这样,上述两个问题必须得到解决。

2 金属燃料肿胀及其解决方案

早期金属燃料的设计有效密度通常较大,且无裂变气体收集腔,在较低燃耗下,包壳因燃料肿胀而导致变形和失效。初期的注意力集中在如何限制燃料的辐照各向异性肿胀上,包括寻找一些抗肿胀能力更强的包壳材料上,但效果不佳,最大燃耗仅能达到 3%。

不考虑加工的因素,燃料的肿胀主要是因气体裂变产物 Kr 和 Xe 气泡积累并引起燃料晶格膨胀。在研究金属燃料的过程中揭示了裂

变气体的释放规律,即在辐照过程中,当燃料体积增长达到 30% 以后,内部的气泡开始相互连接并大量从芯块中排出,这一过程与气泡大小和气泡密度无关,也与合金的种类无关^[1]。图 1 所示为裂变气体释放率与燃料体积肿胀率的关系。

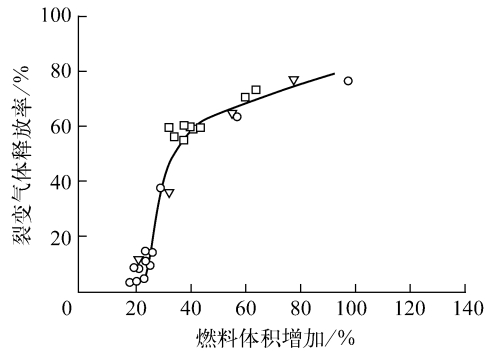


图 1 裂变气体释放率与燃料体积肿胀率的关系^[1]

Fig. 1 Fission gas release vs fuel volume increase^[1]

▽——U-Fs; ○——U-Pu-Fs; □——U-Pu-Zr

为提高金属燃料的燃耗深度,有两种技术路线:1) 在燃料的中心开轴向孔,以贮存裂变气体,但这对改善辐照肿胀的效果不大;2) 增加燃料与包壳间的初始间隙,为燃料膨胀提供预留空间,同时在间隙内充 Na,以改善传热^[2-3]。第 2 种方案随着 EBR-II 的金属燃料计划发展而来,它将燃料的冷态有效密度降到 75% T. D. 以下,预留出约 30% 的燃料自由膨胀空间。这一方案取得了相当大的成功。

图 2 示出第 2 种方案改进设计后燃料体积膨胀的两个阶段,不同合金燃料的初始有效密度均相似,约为 75% T. D.。辐照的第 1 阶段是自由膨胀阶段,此时的芯块体积膨胀率较大,该阶段时间很短,在 1%~2% 燃耗下业已完成,此阶段结束时,燃料已开始接触到包壳。此后的膨胀属于第 2 阶段。在这一阶段,由于体积膨胀到约 30% 后内部气泡开始互相连接,裂变气体大量排出,燃料体积膨胀速率已大幅减小,主要是由一些非气态裂变产物引起的膨胀。同时,再辅以裂变气体收集腔,便可保持包壳内压力处在较低水平,从而实现了较高的燃耗深度。

从图 2 可看到,金属燃料在辐照时的膨胀

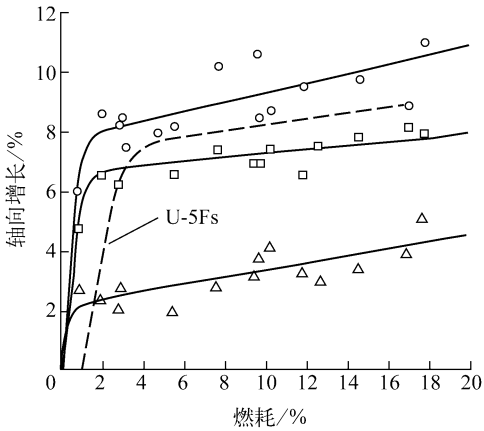


图2 燃料肿胀轴向增长与燃耗的关系^[1]

Fig. 2 Fuel length increases in various metallic fuels as a function of burnup^[1]

○—U-10Zr; □—U-8Pu-10Zr; △—U-19Pu-10Zr

是各向异性的,径向比轴向大,高Pu含量的燃料比低Pu含量燃料膨胀的各向异性更大^[2]。由于几种不同合金燃料的初始有效密度均约为75% T. D.,在燃料接触到包壳(曲线拐点处,径向或轴向的肿胀均大幅减小)时,不同合金的直径增长均约为13%,而轴向长度的增长相差较大,从2%到8%不等。

一般,在使用导热系数很高的Na作接合层的设计中,其间隙传热将不必担心^[4],但燃料热导率将随着辐照形成的孔洞和裂变产物的积累而有所下降。文献^[2]指出,随着间隙的闭合,燃料中心温度上升20~70℃,归因于部分局部区域的接合Na被裂变气体取代。不过,在第2阶段,燃料中心温度会逐步恢复到初始值,甚至是更低水平,这主要是因燃料中相互连接的孔洞开始形成,且接合层Na开始进入这些孔洞。

在20世纪60年代末,已观察到在有效密度小于75% T. D.的一系列金属燃料中气泡的相互连接和随后的大量的裂变气体的释放,也验证了解决金属燃料肿胀方法的有效性。然而,世界范围内的注意力已被吸引到陶瓷燃料上,金属燃料到20世纪60年代末仍没有大量辐照至较高燃耗的燃料棒的验证^[1]。

非气态裂变产物主要从3个方面影响燃料体积的改变^[1]:1) U和Pu的不断裂变导致体积的减小;2) 可溶解在燃料中的裂变产物积累

引起的体积增加;3) 不溶性裂变产物引起的体积的增加。前两项总的效应是燃耗每加深1%,体积变化为-0.2%,第3项总的效应是+1.18%。此外,辐照过程中生成的一部分Xe和Kr不进入孔洞而留在燃料晶格中。这些残留气体的状态可能与燃料的晶体结构有关,但尚不能被很好地描述。据估计,裂变气体的10%遗留在燃料中,由此引起的燃料体积变化约为+0.2%。综上述,由非气态裂变产物的积累而导致的燃料肿胀速率(燃耗加深1%时燃料的体积变化)约为+1.18%。

由EBR-II上的辐照经验看,燃耗深度在16%~18%下,使用奥氏体不锈钢作包壳的元件的包壳直径最多增加8%,使用马氏体不锈钢作包壳的元件的直径最多增加1%^[2]。

3 金属燃料固相线温度和与包壳之间的共晶温度的提高

金属燃料肿胀的解决只解决了金属燃料发展的一个方面的问题,另一方面便是如何提高合金的固相线温度和与包壳之间的共晶温度,这需通过掺杂其它元素的方法予以解决。Cr、Mo、Ti和Zr的加入均能使Pu-U合金的固相线温度得到一定的提高,其中,以Zr元素为最好。

Zr基金属燃料在辐照时会发生Zr元素的快速重分布现象。Zr迁移的主要驱动力是Zr的溶解性的不同,究其本质却是由燃料径向的温度梯度和不同的相结构所引起。在燃料的中心区和外区观察到Zr的富集,其浓度皆比中间区域高,即中间层形成了Zr的耗散区(图3)。

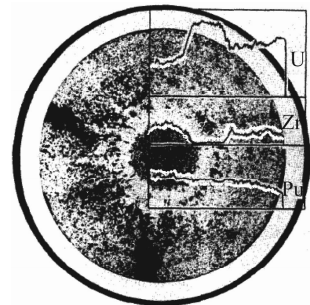


图3 U-19Pu-10Zr(3%燃耗深度)组分的迁移^[1]

Fig. 3 Redistribution of compositions in metallic fuel U-19Pu-10Zr (3% burnup)^[1]

Zr 的重分布速率在低 Pu 含量的燃料中与 U-Zr 合金的类似,但在高 Pu 含量(如 19%Pu)的燃料中却要迅速得多。燃料芯块外围区域 Zr 的富集现象正是 Zr 之所以在 Pu-U 合金中起到保护作用的原因,它可抑制燃料与包壳之间组分的迁移,从而加强了燃料与包壳之间的相容性。若无 Zr 元素,包壳中的 Ni 和 Fe 很易向燃料中扩散,在邻近包壳的燃料中形成一固相线温度较低的合金区域。显著的 Pu 重分布现象在燃料辐照过程中未被观察到。

根据文献[5]中的拟合结果,对于 $U-xPu-yZr$ (x, y 为 Pu、Zr 质量百分数)组成的合金,固相线温度与组分的关系可表示如下:

$$T_s = \alpha_0 + \alpha_1 x + \alpha_2 x^2$$

其中: T_s 为固相线温度,K; $\alpha_0 = 1\ 041 + 1\ 037y + 129.6y^2$; $\alpha_1 = -691.1 + 7\ 624y - 30\ 363y^2$; $\alpha_2 = -1\ 779y + 3\ 630y^2$ 。

该拟合关系的总不确定度为 5.7%。Zr 含量上限确定为 10%,更高的 Zr 含量将会提高合金的液相线温度,给制造带来不便。 $U-xPu-yZr$ 合金的固相线温度随 Zr 含量的增加而升高,随 Pu 含量的增加而降低,变化规律示于图 4、5。 $U-20Pu-10Zr$ 的固相线温度为 1 400 K,与不锈钢包壳的共晶温度为 1 083 K; $U-Fs$ 合金的固相线温度为 1 273 K,共晶温度为 978 K。

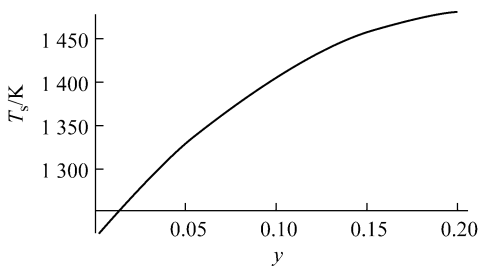


图 4 $U-19Pu-yZr$ 固相线温度与 Zr 组分的关系
Fig. 4 Solidus temperature of $U-19Pu-yZr$ fuel

更多 Pu-U-Zr 合金的物性可参考文献[5]。在文献中,有密度、固相线和液相线温度、膨胀率、比热容以及热导率等各种物性较为全面的拟合关系式。

综上所述,通过减小燃料有效密度和在元件内设计较大的上部气腔可解决金属燃料的肿胀问题;掺杂 Zr 元素可有效提高 Pu-U 合金的

固相线温度和与包壳之间的共晶温度。

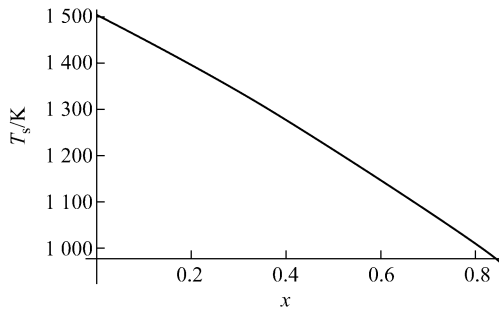


图 5 $U-xPu-10Zr$ 固相线温度与 Pu 组分的关系
Fig. 5 Solidus temperature of $U-xPu-10Zr$ fuel

4 辐照经验

4.1 早期经验

在 20 世纪 50—60 年代,世界范围内的快堆设计较倾向于使用金属燃料,主要的原因是追求较大的增殖比。在这一时期建成运行的快堆列于表 1。然而,最初的设计都是不成熟的,所有的辐照实验均表明,金属燃料的肿胀十分严重,很难达到比较高的燃耗深度。

研究人员从一开始就已认识到金属燃料在辐照下难以维持燃料的体积稳定性,主要原因是各向异性肿胀严重。因此,早期致力于如何减小金属燃料的各向异性肿胀,但效果并不佳。根据文献[6]总结的能够实现的各种燃料类型的最大燃耗深度列于表 1。早期金属燃料辐照实践得到的最大燃耗深度仅为 3.0%,可见,燃料肿胀严重限制了深燃耗的潜力。

4.2 后期经验

在早期,尽管想尽多种方法来限制减小金属燃料芯块的辐照肿胀,但结果仅能实现最大 3%的燃耗深度,与实际应用相差甚远。为此,快堆燃料发展主要的注意力开始集中于陶瓷燃料上,并取得了相当成功。到 20 世纪 60 年代末期,世界上唯一有金属燃料发展研究计划的只有 ANL。它们的设计人员提出新的燃料元件设计方案:不采用限制芯块初始膨胀的方法,减小燃料有效密度来提供较大的燃料-包壳间隙,以允许芯块自由膨胀约 30%,同时设计较大的气腔,以容纳裂变气体。

1973 年,EBR-II 开始辐照 MK-II 型燃料,以准备替换燃耗深度较浅的 MK-IA 型燃料。

表 1 早期快堆使用的金属燃料的组成及所达到的燃耗

Table 1 Compositions of metallic fuels used for early fast reactors and achieved burnup

快堆名称	燃料类型	组成	设计参数	初始运行时间	最大燃耗深度/%
Clementine	金属	Pu		1949	
EBR-I	金属				
MK-I		U		1951	
MK-II		U-2%Zr		1954	
MK-III		U-2%Zr		1957	
MK-IV		Pu-1.25%Al		1962	
LAMPRE-I	熔融金属	熔融 Pu-2.3%Fe		1959	
LAMPRE-II	熔融金属	熔融 Pu-2.3%Fe		1962	
DFR	金属				
MK-II		U-0.1%Cr		1963	<0.1
MK-II A,B,C		U-9.1%Mo		1963	2.5~3.0
MK-III A,B,C		U-9.1%Mo		1964	2.5~3.0
EBR-II	金属				
MK-I, MK-IA		U-5%Fs	85%, 0.15 ¹⁾	1964	MK-I, 1.2; MK-IA, 2.6
MK-II		U-5%Fs	75%, 0.6 ¹⁾	1973	
FEIMI	金属	U-10%Mo		1966	0.4 ²⁾

注:1) 85%、75%为燃料有效密度;0.15、0.6为气腔/燃料体积比

2) 堆停运前实现的最大燃耗深度

MK-IA型(燃料设计参数列于表1)使用奥氏体不锈钢包壳,达到的最大燃耗深度仅为2.6%;MK-II同样使用奥氏体不锈钢(开始为304型,后更换成316型)包壳。到1974年,辐照实践显示新的设计是成功的,达到10%燃耗时才发生包壳破损。考虑到组件外套管的辐照肿胀和提供一定的安全裕度,将8%设定为燃耗深度的限制。超过30000根MK-II型燃料棒在EBR-II上作为标准驱动燃料被辐照,得到稳定的比较好的结果,这展示了金属燃料的高燃耗潜力^[7]。

1984年开始,ANL开始IFR的概念设计,研究更让人期望的Pu驱动U增殖型燃料Pu-U-Zr三元合金,与此相关的Pu-U-Zr三元合金的制造能力也开始建立。1985年,在EBR-II上开始辐照Pu-U-Zr金属燃料实验,分3种成分,即U-10Zr、U-8Pu-10Zr、U-19Pu-10Zr。开始时使用奥氏体钢D9作包壳,后改用马氏体钢HT-9,燃料有效密度为75%T.D.,气腔/燃料体积比为0.8。使用D-9包壳的燃料元件最大实现18.4%燃耗深度,使用HT-9包壳的燃料元件最大实现19.9%的燃耗深度^[7]。

Pu-U-Zr型金属燃料在EBR-II上进行了广泛研究,15000根燃料棒辐照超过7%(约70 MW·d/kg),显示出金属燃料的应用前景。实验也验证了尽管不同合金的微观结构不同,但裂变气体的释放规律和与燃耗的关系是一致的(图6)。同时也观察到U、Zr组分的迁移和Pu组分的基本不变(图3)。

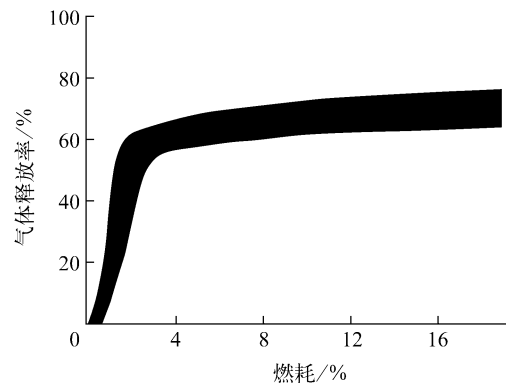


图6 不同合金燃料气体释放率与燃耗的关系^[2]

Fig. 6 Fission gas released to fuel rod plenum for U-10Zr, U-8Pu-10Zr and U-19Pu-10Zr fuels as a function of burnup^[2]

5 小结

金属燃料具有重金属元素核密度大的特点,一开始就成为追求大增殖比的快堆设计的燃料首选。然而,随后的辐照实践表明,金属燃料的辐照肿胀十分严重,不能实现高燃耗深度。经 ANL 研究人员的不断努力,同时改进传统设计方法,减小一部分增殖的优势,以解决燃料肿胀问题,使得金属燃料的肿胀得到较好改善。在 EBR-II 上的辐照经验表明:使用改进后的设计参数,同时使用强度更高的包壳材料,燃料的燃耗深度能大幅提高,最高能达到 19.9%,尚未发生包壳破损。在掺杂 Zr 元素后, Pu-U 合金的固相线温度和与包壳材料之间的共晶温度得到大幅提高,为金属燃料的高燃耗应用奠定了基础。最终, U-Pu-Zr 合金燃料设计参数为:燃料有效密度不大于 75% T. D., 气腔/燃料体积比不小于 0.6;掺杂 Zr 元素上限为 10%。这种 Pu 驱动 U 增殖金属型燃料将是未来高增殖快中子堆发展的重要的燃料选择。

参考文献:

- [1] HOFMAN G L, WALTERS L C, BAUER T H. Metallic fast reactor fuels[J]. Progress in Nuclear Energy, 1997, 31(1/2): 83-110.

- [2] IAEA. Development status of metallic, dispersion and non-oxide advanced and alternative fuels for power and research reactors, IAEA-TEC-DOC-1374[R]. Vienna: IAEA, 2003.
- [3] 苏著亭, 叶长源, 阎凤文, 等. 钠冷快增殖堆[M]. 北京:原子能出版社, 1991.
- [4] 韩一洽. 快堆金属燃料组件概念设计[J]. 核科学与工程, 1993, 13(3):47-58.
HAN Yiqia. Conceptual design of metallic fuel assemble for LMFBR[J]. Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering, 1993, 13(3): 47-58(in Chinese).
- [5] 李文焱, 谢国强. 铀-钚-锆燃料合金物性模型[J]. 原子能科学技术, 1991, 25(5):66-72.
LI Wendan, XIE Guoqiang. Modeling of physical properties for U-Pu-Zr fuel alloys[J]. Atomic Energy Science and Technology, 1991, 25(5): 66-72(in Chinese).
- [6] KITTEL J H, FROST B R T, MUSTELIER J P, et al. History of fast reactor fuel development[J]. Journal of Nuclear Materials, 1993, 204: 1-13.
- [7] WALTERS L C. Thirty years of fuels and materials information from EBR-II [J]. Journal of Nuclear Materials, 1999, 270: 39-48.