

事故容错燃料在大破口事故下的安全分析

武小莉¹, 汪 洋², 张亚培¹, 田文喜¹, 苏光辉^{1,*},

秋穗正¹, 刘 彤², 任啟森², 黄 恒²

(1. 西安交通大学 动力工程多相流国家重点实验室 核科学与技术学院, 陕西 西安 710049;

2. 中核华核电技术研究院有限公司, 四川 成都 610000)

摘要:事故容错燃料(ATF)系统旨在当反应堆失去冷却后, 提高核燃料及包壳的安全特性, 在正常工况下相比现在的 $\text{UO}_2\text{-Zr}$ 系统更好。通过凭借先进材料的特性, ATF 系统会明显延缓事故进程, 为采取缓解措施提供更大的时间裕度。本文通过分析采用 ATF 的典型压水堆系统大破口事故(LBLOCA)设计基准事故以及叠加安注系统失效的极限严重事故, 初步评估 ATF 在事故下的性能。分析结果表明, 相比 $\text{UO}_2\text{-Zr}$, ATF 能降低大破口设计基准事故下的包壳峰值, 延长严重事故下堆芯发生熔化的时间, 具有更好的事故容错性。

关键词:安全分析; 事故容错燃料; 严重事故

中图分类号: TL33

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2016)06-1065-07

doi: 10.7538/yzk.2016.50.06.1065

Safety Analysis of Accident-tolerant Fuel during LBLOCA

WU Xiao-li¹, WANG Yang², ZHANG Ya-pei¹, TIAN Wen-xi¹, SU Guang-hui^{1,*},

QIU Sui-zheng¹, LIU Tong², REN Qi-sen², HUANG Heng²

(1. School of Nuclear Science and Technology, State Key Laboratory of Multiphase Flow in Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

2. China Nuclear Power Technology Research Institute, Chengdu 610000, China)

Abstract: The accident-tolerant fuel (ATF) system is aimed at improving safety characteristics of the nuclear fuel and cladding in a reactor core where active cooling is lost, and is more preferable compared with the current $\text{UO}_2\text{-Zr}$ system when the reactor is in normal operation. By the feature of advanced materials with improved properties, the ATF system will obviously slow down the progression of accidents, allowing larger margin of time for implementing the mitigation measures. Specifically, by simulating and analyzing the large break loss of coolant accident (LBLOCA) for both the design basis case and the severe accident case which involved in LBLOCA with completely failed emergency core cooling system (ECCS) for a typical pressurized water reactor (PWR) loaded with ATF, preliminary assessment on the performance of the ATF under

收稿日期: 2015-06-03; 修回日期: 2015-08-25

作者简介: 武小莉(1988—), 女, 甘肃白银人, 博士研究生, 从事核反应堆数值模拟研究

* 通信作者: 苏光辉, E-mail: ghsu@mail.xjtu.edu.cn

severe accident conditions was performed in this paper. The results show that ATF could decrease the peak cladding temperature in the LBLOCA for the design base case and delay core melting in the LBLOCA severe accident case, compared with $\text{UO}_2\text{-Zr}$, and be of better accident-tolerance characteristics.

Key words: safety analysis; accident-tolerant fuel; severe accident

2011年福岛核事故发生后,设计开发能提高轻水堆在设计基准事故和超设计基准事故下安全性的新型核燃料引起了越来越多的重视。在发生严重的全厂断电事故时核电厂中的能动安全设施失效,非能动的冷却方式在防止燃料棒快速加热、及时带走堆芯衰变余热方面是一项重要的安全设施改进,如目前先进第3代轻水堆 AP1000 就大量采用非能动安全设施以应对严重的全厂断电事故。另外一种有望缓解全厂断电事故的措施是采用更先进的材料如 FCM(全陶瓷密封)、SiC、 U_3Si_2 、FeCrAl 等替代 UO_2 和 Zr,组成事故容错燃料(ATF)系统^[1]。由先进材料组成的这种新型核燃料系统,在堆芯失去有效冷却后,可显著降低事故工况下包壳肿胀、包壳与蒸汽反应速率和维持包壳在高温下的几何结构完整性,延缓堆芯被过快地加热或极大地推迟核燃料大规模失效,为有效实行严重事故缓解措施争取尽可能多的时间,将放射性物质的环境释放降到尽可能低的程度。相比传统的 $\text{UO}_2\text{-Zr}$ 系统,ATF 需要能在堆芯损坏的早期阶段对严重事故起到缓解作用。ATF 在应对核反应堆超设计基准事故以及正常运行工况时满足以下要求:

1) ATF 的包壳相比 Zr 合金包壳改善了与蒸汽之间的反应动力学,具有更低的氧化速率和氧化热产生量以防止堆芯过快加热,更低的氢气产生速率以预防氢气爆炸和包壳吸氢脆化,良好的包壳热-机械物理性质以抵抗包壳碎裂、保持几何稳定性、抗热冲击与熔化;

2) ATF 的燃料芯块相比传统 UO_2 具有更佳的热-机械性能,降低运行温度,减弱或防止与包壳的化学和力学反应、芯块熔化和重定位等,使各种裂变产物(尤其是易挥发的铯和碘)尽可能滞留于芯块中;

3) 在满足正常运行及预期瞬态条件安全性的前提下,ATF 系统相比传统的燃料系统应

具有同等或更好的经济性能,如提高燃料功率密度、增加燃耗、减少每换料批次的燃料组件数、增加燃料循环长度,同时需尽可能地与现有的燃料生产、存储、装卸设备和轻水堆设计准则、操作运行许可兼容。

基于一体化严重事故计算程序 MIDAC^[2],本文针对 ATF 系统分别在大破口设计基准事故和大破口叠加失去所有安注系统的严重事故下进行初步计算:FCM(芯块)-SiC(包壳)、 $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-SiC}$ 、 $\text{UO}_2 + \text{BeO}$ (高热导率芯块)-FeCrAl,其中对 $\text{UO}_2 + \text{BeO-FeCrAl}$ 计算包壳厚度为 0.57 mm ($\text{UO}_2 + \text{BeO-FeCrAl}^a$) 和 0.45 mm ($\text{UO}_2 + \text{BeO-FeCrAl}^b$) 两种情况。通过与 $\text{UO}_2\text{-Zr}$ 燃料系统进行对比,初步评估 ATF 系统在设计基准事故和严重事故下的性能^[3-4]。

1 计算模型及假设

1.1 计算模型

基于 CPR1000 堆型^[5]进行事故模拟。主系统的节点划分方案如图 1 所示。整个三环路系统被划分为 1 个“破损环路”和 2 个“完整环路”,并在输入卡片中将这两个环路整合在一起。固定的主系统节点划分方案体现了其模块化的建模思想。

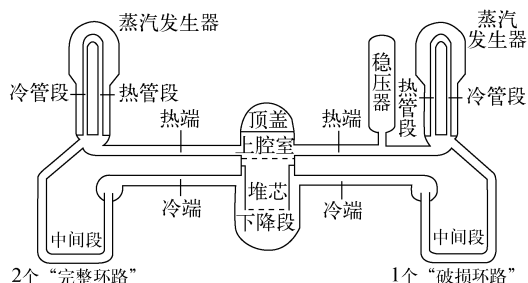


图 1 CPR1000 主系统节点划分方案

Fig. 1 Nodalization of CPR1000 primary system

堆芯节点划分如图 2 所示。整个堆芯径向划分为 7 个“环”,轴向 13 个节点,其中程序考

虑了轴向和径向功率的不均匀分布。CPR1000的堆芯是由157个尺寸相同、截面为正方形的燃料组件排列而成的,其当量直径为304 cm。每个燃料组件共有264根燃料元件棒、24根控制棒导向管和1根中子注量率测量导管,它们按 17×17 排列成正方形栅格,共有289个棒位。整个棒束沿高度方向设有8个定位格架和3个中间搅混格架。264根燃料元件棒插入定位格架内,由定位格架支撑,并保持燃料棒的间距。燃料组件的上、下管座均设有定位销孔,当燃料组件装入堆芯时这些定位销孔与堆芯上、下栅格板上的定位销相配合,使组件在堆芯中按一定间距定位。

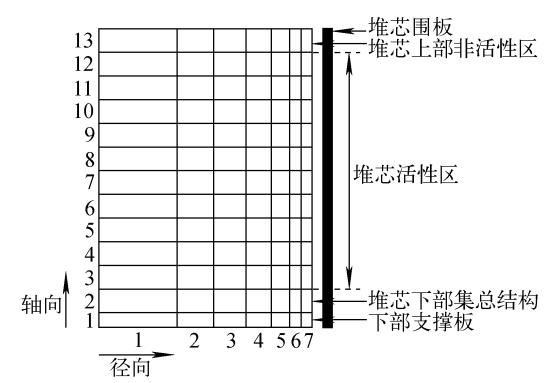


图2 堆芯节点划分方案
Fig. 2 Nodalization of core region

压力容器筒体(圆柱筒体及下封头)壁面及安全壳子舱的节点划分方案如图3所示。压力容器筒体壁面沿壁厚方向划分5个节点,轴向10个节点,其中圆柱筒体与下封头分别为5个节点。安全壳共划分为7个子舱,各子舱之间通过流道连接起来以进行流体及放射性产物的输运计算。压力容器位于1号(即堆腔),冷却剂管道、稳压器、蒸汽发生器、主泵等设备主要位于2号(下部子舱A),3号包含了稳压器卸压箱,4号(上部子舱)模拟安全壳穹顶空间,6号(环形子舱B)包含安全壳地坑,7号子舱则模拟反应堆水池。

1.2 计算假设

假设双端剪切大破口出现在冷管段水平部分,破口面积 0.78 m^2 。出现破口的同时假设出现极端情况,即ECCS(应急堆芯冷却系统)也失效,包括非能动的中压安注箱无法实施注水。在这种极端事故下,反应堆的状态将快速发展进入严重事故阶段。

为便于比较,ATF的堆芯与 $\text{UO}_2\text{-Zr}$ 的堆芯拥有同样的几何结构。由于ATF堆芯与常规的堆芯相比在经济性上也同样需要具备竞争力,并且为了评估ATF堆芯的事故容错能力,文中假设不同的芯块材料对应的反应堆额定功率及衰变热(堆芯衰变热采用ANSI-1979公

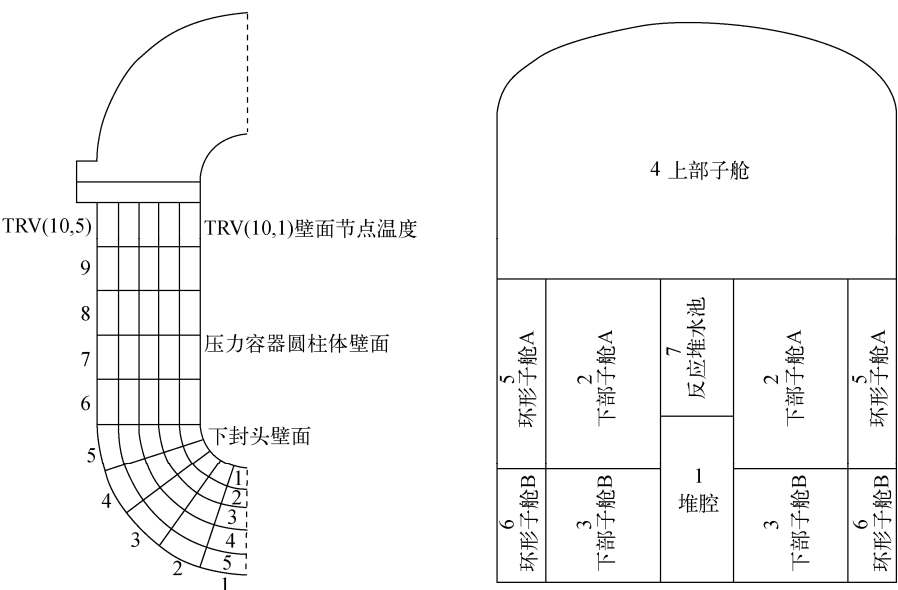


图3 压力容器及安全壳子舱划分方案
Fig. 3 Nodalization of reactor pressure vessel and containment

式)相同,假设材料的改变对流动传热的影响不大。此外,在进行大破口事故分析时,取 Zr 包壳的失效准则为美国 10CFR50.46 附录 K 中规定的温度 1 477 K。对于 ATF 系统,其失效准则目前尚无明确研究结果。由于 SiC 包壳的熔点高达 3 000 K^[6],而 FCM 芯块的熔点为 2 818 K,暂取 FCM-SiC 的失效准则为 FCM 的熔点;由于 U₃Si₂ 芯块的熔点为 1 938 K^[7],暂取 U₃Si₂-SiC 的失效准则为 U₃Si₂ 的熔点;由于 FeCrAl 包壳的熔点为 1 672 K,暂取 UO₂+BeO-FeCrAl 的失效准则为 FeCrAl 的熔点。由于目前尚未见详细的 FCM 物性资料,考虑到 FCM 大部分材料为 SiC,因此合理假设 FCM 的物性与 SiC 一致。

2 计算结果及分析

2.1 大破口极限设计基准事故

事故前期的主要事件与燃料系统的类型关系不大,因此在不同的燃料系统情况下这几种事件发生的时间非常接近。堆芯裸露后在衰变热的作用下快速升温,其热源主要来自于衰变热和包壳的氧化热。堆芯升温速率与芯块和包壳的容积热容量(ρc_p)、热导率有关。热容量越大,升温越慢;热导率越低,正常工况下芯块中心温度越高,径向温度梯度越大,因此发生事故时贮存的热量越多。此外,包壳氧化释放的化学热量也是促进堆芯升温过程不可忽略的因素。随着堆芯再淹没阶段的开始,堆芯骤冷,包壳温度开始下降(图 4)。

从图 4 可看出,ATF 包壳升温较 Zr 包壳慢得多,达到的包壳峰值温度也更低。对于不

同厚度的 FeCrAl,厚度越小,包壳质量越小,其温度上升越快。相对于 Zr 包壳(1 012 K),FCM-SiC 包壳峰值温度(775 K)降低 237 K,U₃Si₂-SiC 包壳峰值温度(822 K)降低 190 K,UO₂+BeO-FeCrAl^a 包壳峰值温度(783 K)降低 229 K,UO₂+BeO-FeCrAl^b 包壳峰值温度(798 K)降低 214 K。由于包壳温度不高,因此事故中 ATF 系统并未产生氢气等可燃气。对于大破口设计基准事故,ATF 系统较 UO₂-Zr 燃料系统具有更大的安全裕度。

2.2 大破口叠加所有安注系统失效严重事故

表 1 列出了大破口严重事故进程中主要事件的时间序列。图 5 为包壳峰值温度和芯块最高温度随时间的变化。由于破口位于冷管段,造成事故初期堆芯内冷却剂流动方向出现相反的趋势,流动和传热能力减弱,包壳温度开始迅速上升。由于破口很大,堆芯内大部分冷却剂一致往破口方向流动,包壳与冷却剂之间的传热能力加强,包壳温度开始下降,直到大部分冷却剂丧失,堆芯内冷却剂流动几乎停滞,包壳温度开始迅速上升。对于 Zr 包壳,在约 1 200 K 时发生显著的锆水反应释放化学热,加快包壳温度的上升。由于 ATF 包壳的抗氧化性更强,产生的氧化热更小,且新的芯块和包壳材料的热容量更大,因此 ATF 包壳的升温速率明显低于 Zr 包壳。当 Zr 包壳温度上升到 2 125 K 以上时,那些未破碎的包壳中的金属锆和氧化锆开始熔化。包壳外表面氧化层承载 UO₂ 芯块与熔融锆合金接触而溶解形成熔融混合物。当氧化层因高温熔化或因熔融混合物质量足够大而破裂时,熔融混合物即沿着包壳外表面向下流,在堆芯内较低位置冻结。当堆芯温度达到 2 893 K 时,低共熔混合物二氧化铀、二氧化锆和陶瓷相(铀-锆-氧)开始熔化。当温度高于 3 113 K 时,二氧化铀芯块熔化,堆芯已处于完全损坏的阶段。对于 SiC 包壳,其熔化温度很高,一般可达 3 000 K,而 SiC 主要氧化物 SiO₂ 的熔点为 1 973 K,因此当包壳温度达到 1 973 K 时,如果 SiO₂ 尚未因完全挥发而脱离燃料元件,则包壳表面将出现熔融 SiO₂。对于 FeCrAl 包壳,其熔化温度为 1 672 K,其氧化物的熔点为 1 870 K,包壳熔点低于其氧化物的熔点。如果包壳外表面的氧化物使包壳的脆性增加,

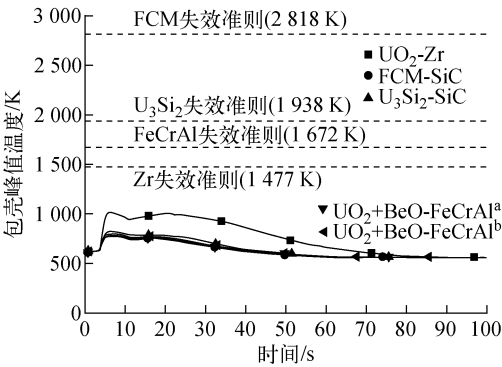


图 4 包壳峰值温度随时间的变化
Fig. 4 Peak cladding temperature vs time

表 1 主要事件的时间序列
Table 1 Time sequence of key event

事件	时间/s				
	UO ₂ -Zr	FCM-SiC	U ₃ Si ₂ -SiC	UO ₂ +BeO-FeCrAl ^a	UO ₂ +BeO-FeCrAl ^b
冷管段出现破口	0	0	0	0	0
反应堆停堆信号	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
辅助给水启动信号	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
主蒸汽隔离阀开启信号	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
安全壳上部喷淋启动信号	3.5	3.5	3.6	3.5	3.6
稳压器排空	6.2	6.2	6.2	6.2	6.2
堆芯开始裸露	9.5	9.3	9.4	9.3	9.3
包壳峰值温度达到 1 477 K	133.0 ¹⁾	272.0	235.0	266.0	241.0
包壳峰值温度达到 1 672 K	158.0	362.0	318.0	348.5 ¹⁾	323.0 ¹⁾
芯块最高温度达到 1 938 K	191.0	497.0	461.0 ¹⁾	495.0	462.0
芯块最高温度达到 2 818 K	880.0	1 188.0 ¹⁾	1 414.0	2 032.0	1 791.0

注:1) 失效时间

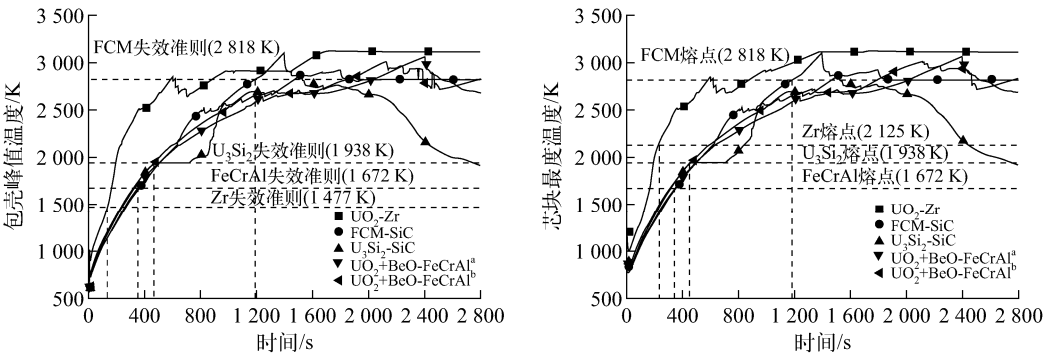


图 5 包壳峰值温度和芯块最高温度随时间的变化

Fig. 5 Peak cladding temperature and peak fuel pellet temperature vs time

加上包壳内部熔化,包壳很容易失效,可能造成大量放射性产物释放。由于 ATF 包壳与水反应的氧化热相比铅水反应的氧化热更小,ATF 包壳升温更慢,其失效时间相比 Zr 包壳失效的时间有所延迟,其中 FCM-SiC 相比 UO₂-Zr 的延长时间接近 1 000 s。

在 UO₂-Zr 的情况下,氢气主要来自 Zr 与不锈钢结构及水蒸气的反应。SiC 包壳与水蒸气发生化学反应同时产生可燃气体氢气和一氧化碳,并通过破口和相关阀门进入安全壳。由于 SiC 包壳在高温水蒸气环境中的氧化速率低^[8-9],而 FeCrAl 包壳的氧化速率同样较低(程序中将 FeCrAl 的氧化速率设置为较 Zr 的氧化速率低 2 个数量级),因此 ATF 包壳产生

的氢气和氧化热也相对较少。累积氢气和一氧化碳产量如图 6 所示。对于一氧化碳,有一段平直曲线,该阶段的起始时间正是发生重定位的时刻。由于 SiC 的熔点高达 3 000 K,理论上尚未因达到熔点而熔化,而此时不论是 FCM 芯块还是 U₃Si₂ 芯块均已熔化。基于计算假设,只考虑重定位以前的现象,整个过程中 FCM-SiC 燃料系统产生一氧化碳约 1 100 kg,而 U₃Si₂-SiC 燃料系统产生一氧化碳约 1 350 kg。

不同燃料系统下 1 000 s 内的衰变热和氧化热随时间的变化如图 7 所示。对比发现,Zr 的氧化热在事故后约 175 s 时与衰变热最接近。ATF 包壳的氧化热达到最大时,较铅水反应释热量约低 1 个数量级,有利于延缓包壳温度上升。

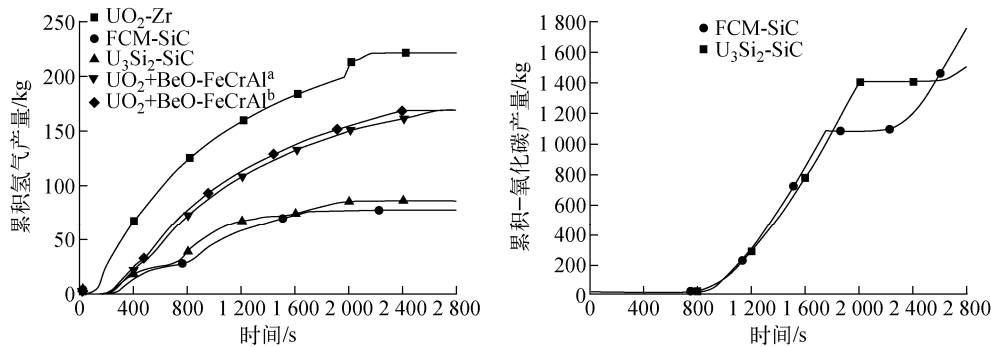


图 6 累积氢气及一氧化碳产量随时间的变化
Fig. 6 Integrated mass of hydrogen and carbon monoxide

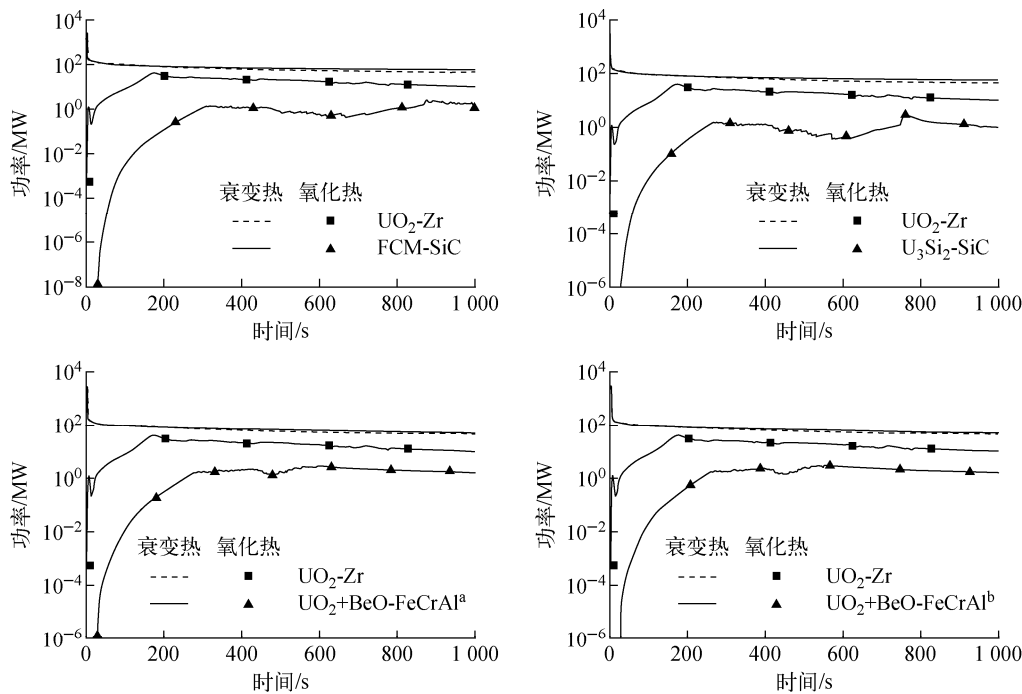


图 7 $\text{UO}_2\text{-Zr}$ 燃料系统的衰变热、氧化热与 ATF 系统的比较
Fig. 7 Decay and oxidation powers of $\text{UO}_2\text{-Zr}$ compared with ATF

3 结论

基于一体化严重事故分析程序 MIDAC, 在设计基准事故下, ATF 系统相比 $\text{UO}_2\text{-Zr}$ 燃料系统具有更高的安全裕度, 其包壳温度上升得更慢, 包壳峰值温度更低。其中 FCM-SiC 燃料系统的峰值温度最低, 从这方面来说, 在大破口设计基准事故下 FCM-SiC 是这几种 ATF 材料中性能最好的组合。

在大破口严重事故下, 相比 $\text{UO}_2\text{-Zr}$, ATF 材料往往具有更大的热容量, 在事故工况下其包壳温度上升得更慢。当 ATF 包壳暴露在高

温水蒸气中时, 其氧化速率也往往更低, 产生的氢气更少, 相比衰变热其氧化热更少, 包壳达到失效准则的时间更长, 有助于降低堆芯加热甚至降解的速率。然而 SiC 包壳与水蒸气的反应也产生额外的可燃气体的氧化碳^[10-11]。

在事故工况的大部分温度范围内, 芯块材料 FCM 相比 UO_2 、 U_3Si_2 以及添加了 BeO 的 UO_2 , 其热容量更高, 而 SiC 包壳的氧化速率低, 因此在本事故中表现最好的是 FCM-SiC 组合。事故前期的性能分析表明, ATF 材料在压水堆中相对于传统的 $\text{UO}_2\text{-Zr}$ 燃料系统表现出

更优秀的事故容错性能,对预防和缓解严重事故具有积极意义。

参考文献:

- [1] ZINKLE S J, TERRANI K A, GEHIN J C, et al. Accident tolerant fuels for LWRs: A perspective[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, 448: 374-379.
- [2] WANG J, TIAN W, ZHANG Y, et al. The development of module in-vessel degraded severe accident analysis code MIDAC and the relevant research for CPR1000 during the station blackout scenario[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2014, 76: 44-54.
- [3] AZEVEDO C R F. Selection of fuel cladding material for nuclear fission reactors[J]. *Engineering Failure Analysis*, 2011, 18: 1 943-1 962.
- [4] OTT L J, ROBB K R, WANG D. Preliminary assessment of accident-tolerant fuels on LWR performance during normal operation and under DB and BDB accident conditions[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2014, 448: 520-533.
- [5] Final safety analysis report (FSAR) for Daya Bay Nuclear Power Station Unit 1 and 2, D-TD/GNPS/001 [R]. Shenzhen, China: CNPRI, 1999.
- [6] SNEAD L L, NOZAWA T, KATOH Y, et al. Handbook of SiC properties for fuel performance modeling [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2007, 371: 329-377.
- [7] SHIMIZU H. The properties and irradiation behavior of U_3Si_2 , Technical Report NAA-SR-10621[R]. Canoga Park, California, United State: Atomics International, 1965.
- [8] CHENG T, KEISER J R, BRADY M P, et al. Oxidation of fuel cladding candidate materials in steam environments at high temperature and pressure[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2012, 427: 396-400.
- [9] TERRANI K A, PINT B A, PARISH C M, et al. Silicon carbide oxidation in steam up to 2 MPa [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2014, 97: 2 331-2 352.
- [10] OPILA E J, HANN R E. Paralinear oxidation of CVD SiC in water vapor [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 1997, 80: 197-205.
- [11] OPILA E J. Oxidation and volatilization of silica formers in water vapor[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2003, 86: 1 238-1 248.