

基于氧化腐蚀行为的铅铋堆燃料组件 多物理耦合特性研究

季旭, 柴翔, 张乐福, 刘晓晶*

(上海交通大学核科学与工程学院, 上海, 200240)

摘要: 氧是铅铋堆中最具应用潜力的非金属缓蚀剂, 在冷却剂中添加一定浓度的氧, 可在结构材料表面生成保护性氧化膜, 可以极大程度上缓解液态铅铋对结构材料的腐蚀。在铅铋堆中, 氧化层的生长-去除行为受温度、氧浓度、冷却剂流速、时间等多种因素影响, 同时氧化层的生长也改变了堆芯的热工水力特性和中子物理参数, 因此, 研究铅铋堆的氧化腐蚀场、热工水力场和中子物理场的耦合作用对铅铋堆应用有重要意义。本文基于 MOOSE(面向对象的多物理场仿真环境)平台搭建了核-热-材多物理场耦合框架, 开展了铅铋堆在基准工况下的核-热-材耦合分析, 并研究了氧浓度和冷却剂入口温度对关键耦合参数时序变化规律和氧化层分布的影响。结果表明, 基准工况下氧化腐蚀 10 000 h 后, 燃料组件包壳表面的氧化层平均厚度约为 9.86 μm , 燃料最大温升为 13.36 K, k_{eff} 下降 7 pcm; 氧浓度升高可以极有效地抑制磁铁矿溶解, 但达到一定浓度后氧浓度的升高对 Fe-Cr 尖晶石的生长促进作用较小; 冷却剂入口温度的升高会导致组件中心处包壳壁面的磁铁矿去除速率增大, 并且可以大幅促进 Fe-Cr 尖晶石的生长。

关键词: 核-热-材耦合; 氧化腐蚀; 铅铋堆; 燃料组件; 面向对象的多物理场仿真环境

中图分类号: TL99

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2024)10-2139-14

doi: 10.7538/yzk.2023.youxian.0810

Multi-physics Coupling Characteristics of Lead-bismuth Reactor Fuel Assembly Based on Oxidative Corrosion Behaviors

Ji Xu, CHAI Xiang, ZHANG Lefu, LIU Xiaojing*

(School of Nuclear Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: Oxygen is the most promising non-metallic inhibitor in lead-bismuth cooled fast reactors (LFRs). The addition of oxygen to the coolant can form a protective oxide layer on the surface of structural materials, which will effectively alleviate the corrosion of structural materials by the liquid lead-bismuth eutectic (LBE). LFR is a complex environment characterized by the interaction of multiple physical fields. For instance, the growth and removal behaviors of the oxide layer are influenced by various factors such as temperature, oxygen concentration, coolant velocity, and time. Moreover, the formation of the oxide layer changes the thermal-hydraulic characteristics and neutronics parameters of the reactor core. Therefore, studying the coupled effects of oxidation corrosion, thermal-hydraulics, and

收稿日期: 2023-11-17; 修回日期: 2024-01-08

基金项目: 上海市 2020 年度“科技创新行动计划”技术带头人项目(20XD1434100)

* 通信作者: 刘晓晶

neutronics is of paramount importance for the development, design, and safety assessment of LFRs. A multi-physics framework that couples neutron physics, thermal-hydraulics, and material corrosion was proposed to investigate the multi-physics coupling characteristics of the fuel assembly in LFRs. Within the coupling framework, neutronics calculations were performed using the open-source neutron diffusion equation solver Moltres, thermal-hydraulic calculations were conducted using the Navier-Stokes module included in the multi-physics object-oriented simulation environment (MOOSE) platform, and corrosion calculations were carried out using the Seal module developed based on the MOOSE. The coupling framework involves two types of coupling parameter transfer relationships: 1) The oxidation corrosion field obtains coolant temperature and flow velocity from the thermal-hydraulic field to compute the oxide layer thickness and transfers the oxide layer thickness to the thermal-hydraulic field to calculate the convective heat transfer coefficient; 2) The neutron physics field receives temperature distribution from the thermal-hydraulic field to compute k_{eff} , neutron flux distribution and power distribution, and transfers the power distribution to the thermal-hydraulic field for thermal-hydraulic calculations. In terms of numerical system solving, the coupling framework employs the concept of directly coupled equations of the three physical fields and solves them using the Newton-Krylov iteration method. A neutronics-thermal-hydraulics-material coupling problem of a 19-rod bundle fuel assembly in an LFR was computed using the coupling framework, and the effects of oxygen concentration and coolant inlet temperature on the temporal variations of key coupling parameters and the distribution of oxide layers were investigated. The results indicate that under the benchmark condition, after 10 000 hours of oxidation corrosion, the average thickness of the oxide layer on the fuel assembly cladding surface is approximately 9.86 μm . The maximum temperature rises of the fuel and cladding are 13.36 K and 5.63 K, respectively, with a decrease in k_{eff} of 7 pcm. Increasing oxygen concentration is beneficial for inhibiting magnetite dissolution and enhancing the self-repair ability of the oxide layer, but the promotion effect of increasing oxygen concentration on the growth of Fe-Cr spinel is limited after reaching a certain concentration. Although raising the coolant inlet temperature leads to an increase removal rate of magnetite on the inner surface of the cladding at the center of the assembly, it significantly promotes the growth of Fe-Cr spinel.

Key words: neutronics-thermal-hydraulics-material coupling; oxidation corrosion; lead-bismuth cooled fast reactor; fuel assembly; multi-physics object-oriented simulation environment

作为第四代核能系统国际论坛(GIF)提出的第四代核能系统6种候选堆型之一^[1],以液态铅(Pb)或铅铋共晶合金(LBE)为冷却剂的铅冷快堆(LFR)在经济性、系统安全性和燃料循环方面都有突出的优势^[2]。核反应堆是一个多物理场相互作用、紧密耦合的复杂系统^[3],研究LFR的多物理场耦合作用特性对LFR的堆芯设计和安全分析有重要意义。

近年来,已有许多学者对LFR的核热耦合问题开展了研究。Bonifetto等^[4]开发了FRENET-IC软件,实现了LFR全堆芯核热耦合;Yang等^[5]

基于PVM平台耦合了中子学代码SKETCH-N和中子通道代码COBRA-YT,并进行了LFR反应性插入事故安全分析;Zhang等^[6]利用FLUENT软件的UDF和UDS功能开发了中子扩散方程求解器,并使用耦合方法计算了模块化铅冷快堆的热组件;Yang等^[7]基于蒙特卡罗代码RMC和计算流体力学(CFD)软件STAR-CCM+开发了一种高精度三维核热耦合平台,研究了反射层材料、反射层尺寸、裂变材料等参数对LBE冷却固体反应堆的中子特性和热工水力参数的影响;Xie等^[8]基于OpenFOAM开发了一种三维核热耦合平台,可

以实现中子问题和热工水力问题在相同时间步长和网格集下的统一求解。

需要注意的是, 由于高温 LBE 对结构钢有严重的腐蚀溶解作用, 所以铅铋堆运行过程中需要包壳上一直存在保护性氧化层^[9]。一方面, 保护性氧化层的生长-去除行为受到堆内温度、流速、氧浓度、时间等诸多物理因素的影响^[10]。另一方面, 保护性氧化层的形成也恶化了包壳与冷却剂之间的传热, 进而影响堆芯的热工水力场和中子物理场参数^[4,11], 相应的温度变化又会进一步反馈到氧化层上, 形成耦合作用。关于铅铋堆运行过程中结构材料表面的氧化腐蚀产物的生长-去除规律, 已有学者进行了研究: Feng 等^[12]利用子通道方法研究了铅铋堆堆芯中氧与腐蚀产物的分布问题; Lu 等^[13]利用 CFD 方法研究了控氧环境下卧式铅铋反应堆堆芯氧化腐蚀特征, 但以上研究均未考虑氧化腐蚀层与铅铋堆热工水力和中子物理的耦合作用。

利用现代并行计算资源进行多物理场仿真是一项艰巨的任务, 面向对象的多物理场仿真环境 (MOOSE)^[14] 是一个高效的开源多物理场耦合平台, 通过使用接口和继承类, 基于 MOOSE 开发的每个仿真程序都可以复用和相互耦合。近年来, 国内许多学者在 MOOSE 平台上开发了大量应用于反应堆数值模拟领域的单物理场求解器。Li 等基于 MOOSE 平台开发了中子扩散问题求解程序^[15], Su 等基于 MOOSE 平台开发了高阶全隐式核反应堆一回路系统分析程序 ZEBRA^[16] 和棒状燃料元件性能分析程序 BEEs^[17]。本文基于 MOOSE 开发拥有铅堆氧化腐蚀模拟能力的先进铅冷快堆仿真环境 (Seal) 模块, 结合开源中子物理计算模块 Moltres^[18-20] 和 MOOSE 中的基本流动传热模块 Navier Stokes^[21], 建立铅铋快堆中子物理-热工水力-氧化腐蚀耦合计算框架, 以研究氧化腐蚀行为下的关键耦合参数时序演变规律和氧化层分布特征。

1 数值模型

1.1 氧化腐蚀模型

目前, 学者们针对 T91 铁素体/马氏体钢在 LBE 中的氧化腐蚀已进行了大量研究, 广泛认为 LBE 对钢的氧化腐蚀包含生长过程和去除过程两部

分^[10]: 1) 溶解在 LBE 中的氧会与结构钢发生氧化反应, 生成双相氧化层 (简称氧化层), 氧化层的成分是磁铁矿和 Fe-Cr 尖晶石, Fe-Cr 尖晶石成分主要为 $\text{Fe}_{3-x}\text{Cr}_x\text{O}_3$; 2) 在流动和铁浓度梯度的作用下, 氧化层会逐渐溶解在 LBE 中, 氧化层的总厚度由以上两个过程综合决定。用来描述氧化层生长与去除的模型有很多, 本文主要介绍 3 种 LBE 对 T91 钢的氧化腐蚀模型, 并将计算值与实验数据比较, 选择相对合适的模型用于核-热-材耦合框架。

1.1.1 Zhang 模型 美国洛斯阿拉莫斯国家实验室 (LANL) 的 Zhang^[22-23] 从质量守恒出发, 建立了铁元素在 LBE-磁铁矿-铁铬尖晶石-钢基体中的质量平衡, 得到:

$$\frac{d\delta_{\text{Fe}_3\text{O}_4}}{dt} = \frac{\rho_{\text{st}}F_{\text{Fe,st}} - \rho_{\text{sp}}F_{\text{Fe,sp}}}{\rho_{\text{Fe}_3\text{O}_4}F_{\text{Fe,Fe}_3\text{O}_4}} \frac{d\delta_{\text{sp}}}{dt} - \frac{\rho_{\text{LBE}}}{\rho_{\text{Fe}_3\text{O}_4}F_{\text{Fe,Fe}_3\text{O}_4}} R_m \quad (1)$$

式中: $\delta_{\text{Fe}_3\text{O}_4}$ 为 Fe_3O_4 磁铁矿的厚度; t 为时间; δ_{sp} 为 Fe-Cr 尖晶石的厚度; R_m 为铁的质量传输率; ρ_{st} 、 ρ_{sp} 、 $\rho_{\text{Fe}_3\text{O}_4}$ 和 ρ_{LBE} 分别为 T91 钢、Fe-Cr 尖晶石、 Fe_3O_4 和 LBE 的密度; $F_{\text{Fe,st}}$ 、 $F_{\text{Fe,sp}}$ 和 $F_{\text{Fe,Fe}_3\text{O}_4}$ 分别为铁在 T91 钢、Fe-Cr 尖晶石和 Fe_3O_4 中的质量分数。

当外部 Fe_3O_4 磁铁矿没有完全去除时, 内部 Fe-Cr 尖晶石不会与 LBE 接触, 因此不会受到腐蚀, 它的生长遵循抛物线定律^[24]:

$$\delta_{\text{sp}}(t) = \frac{1}{2} \sqrt{k_p t} \quad (2)$$

式中, k_p 为抛物线氧化速率。

当外部 Fe_3O_4 磁铁矿完全去除时, 内部 Fe-Cr 尖晶石会与 LBE 直接接触, 此时 Fe-Cr 尖晶石的厚度受到 Fe 腐蚀速率和扩散速率的综合控制。Fe-Cr 尖晶石的厚度变化也与临界厚度相关: 当 Fe-Cr 尖晶石厚度小于临界厚度时, 认为 Fe-Cr 尖晶石不被 LBE 腐蚀, Fe-Cr 尖晶石的厚度变化遵循线性生长率; 当 Fe-Cr 尖晶石厚度大于临界厚度时, 认为 Fe-Cr 尖晶石厚度变化遵循 Tedmon 模型。尖晶石临界厚度 δ_{sp}^c 为:

$$\delta_{\text{sp}}^c = (\rho_{\text{st}}F_{\text{Fe,st}} - \rho_{\text{sp}}F_{\text{Fe,sp}}) \frac{k_p}{8\rho_{\text{LBE}}R_m} \quad (3)$$

线性生长率和 Tedmon 模型分别为:

$$\frac{d\delta_{\text{sp}}}{dt} = \frac{\rho_{\text{LBE}}R_m}{\rho_{\text{st}}F_{\text{Fe,st}} - \rho_{\text{sp}}F_{\text{Fe,sp}}} \quad (4)$$

$$\frac{d\delta_{sp}}{dt} = \frac{\rho_{st} F_{Fe,st}}{\rho_{sp} F_{Fe,sp}} \frac{k_p}{8\delta_{sp}} - \frac{\rho_{LBE}}{\rho_{sp} F_{Fe,sp}} R_m \quad (5)$$

使用 Zhang 模型计算氧化层时, 需要求解抛物线氧化速率 k_p 和铁的质量传输率 R_m , 具体计算方法参见文献 [22]。值得一提的是, Zhang 认为, 在非等温回路中, 局部腐蚀速率不仅取决于局部参数, 还取决于全局参数, 如回路长度和回路温差, 回路长度和回路温差对氧化腐蚀行为的影响体现在 R_m 的计算公式中。

1.1.2 Steiner 模型 Steiner 等 [25] 认为氧化层的厚度受 Tedmon 方程 [26] 控制:

$$\frac{d\delta}{dt} = \frac{K}{2\delta} - R_m \quad (6)$$

式中: δ 为氧化层厚度; K 为抛物线氧化速率; R_m 为氧化层去除速率。

Steiner 推导的抛物线氧化速率 K 可从文献 [25] 中获得, 氧化物去除速率 R_m 的计算使用 Zhang 等 [27] 开发的传质模型:

$$R_m = 0.013 \, 3V^{0.875} d^{-0.125} \nu^{-0.542} D_{Fe}^{0.667} (c_{w,Fe} - c_{b,Fe}) \quad (7)$$

式中: V 为 LBE 流速; d 为水力直径; ν 为运动黏度; D_{Fe} 为 Fe 在 LBE 中的扩散系数; $c_{w,Fe}$ 和 $c_{b,Fe}$ 为 Fe 在 LBE/氧化层界面和 LBE 主流中的浓度。由于 Fe 在 LBE 中的溶解量很少, 故可以认为 $c_{b,Fe} = 0$, 铁的表面浓度、扩散系数等参数同样可从文献 [25] 中获得。

1.1.3 Martinelli 模型 Martinelli 等 [28-31] 基于可用空间理论提出了 T91 钢在 Pb/LBE 环境下的氧化腐蚀机理模型, 进而推导出 T91 在 Pb/LBE 中的抛物线氧化速率公式。经过大量静态实验和观测, Martinelli 等发现 Fe_3O_4 磁铁矿厚度与 Fe-Cr 尖晶石厚度的比值接近一个定值:

$$\delta_{sp}^{growth} = \frac{C_{Fe}^{mag}}{C_{Fe}^{T91} - C_{Fe}^{sp}} \delta_{mag}^{growth} \quad (8)$$

式中: δ_{sp}^{growth} 为 Fe-Cr 尖晶石生长厚度; δ_{mag}^{growth} 为磁铁矿生长厚度; C_{Fe}^{mag} 、 C_{Fe}^{T91} 、 C_{Fe}^{sp} 为铁在磁铁矿、T91 钢和 Fe-Cr 尖晶石中的摩尔浓度, 分别为 0.067、0.13、 $(3-x)/44.6$, 其中 x 是 $Fe_{3-x}Cr_xO_4$ 中 Cr 的化学计量数, 取 0.4。

Martinelli 将 Fick 第一定律应用于铁通量在尖晶石中的扩散过程, 结合式 (8), 得到磁铁矿生长厚度 δ_{mag}^{growth} 随时间的变化, 并满足以下关系式:

$$(\delta_{mag}^{growth})^2 = \frac{4}{3-x} \frac{C_{Fe}^{sp} (C_{Fe}^{T91} - C_{Fe}^{sp})}{(C_{Fe}^{mag})^2} \cdot$$

$$\left(\frac{D_{sp}^{Topfer}(V)}{D_{mag}^{Topfer}(V)} \frac{D_v}{8} \ln \left(\frac{1 + 2K_v (a_{O_2}^{mag/sp})^{2/3}}{1 + 2K_v (a_{O_2}^{sp/T91})^{2/3}} \right) - 4 \frac{D_{sp}^{Topfer}(I)}{D_{mag}^{Topfer}(I)} D_1 K_1 \left((a_{O_2}^{mag/sp})^{-2/3} - (a_{O_2}^{sp/T91})^{-2/3} \right) \right) t \quad (9)$$

式中: D_v 为铁的空腔扩散系数; D_1 为铁的空隙扩散系数; K_v 为导致空腔形成的平衡常数; K_1 为导致空腔形成的平衡常数; $a_{O_2}^{mag/sp}$ 为 Fe-Cr 尖晶石/磁铁矿交界面的氧活度; $a_{O_2}^{sp/T91}$ 为 Fe-Cr 尖晶石/T91 钢交界面的氧活度。

$$a_{O_2}^{sp/T91} = a_{Fe}^{-3/2} \exp \left(\frac{\Delta G^0}{RT} \right) \quad (10)$$

式中, a_{Fe} 为 T91 钢中铁的活度, 取 0.9。

同样, 根据铁通量在磁铁矿中的扩散过程, 可以得到磁铁矿生长厚度 δ_{mag}^{growth} 随时间的变化, 并满足以下关系式:

$$(\delta_{mag}^{growth})^2 = \left[\frac{D_v}{12} \ln \frac{1 + 2K_v (a_{O_2}^{LBE/mag})^{2/3}}{1 + 2K_v (a_{O_2}^{mag/sp})^{2/3}} - \frac{8}{3} \left(D_1 K_1 (a_{O_2}^{LBE/mag})^{-2/3} - (a_{O_2}^{mag/sp})^{-2/3} \right) \right] t \quad (11)$$

式中, $a_{O_2}^{LBE/mag}$ 为 LBE/磁铁矿交界面的氧活度, 氧活度的计算分为饱和氧和不饱和氧两种情况, 具体经验公式参见文献 [12]。

联立式 (9) 和式 (11) 可求得 $a_{O_2}^{mag/sp}$, 进而计算得 δ_{mag}^{growth} 。磁铁矿、Fe-Cr 尖晶石的抛物线氧化速率 K_p^{mag} 、 K_p^{sp} 按下式计算:

$$K_p^{mag} = \frac{(\delta_{mag}^{growth})^2}{t} \quad (12)$$

$$K_p^{sp} = \left(\frac{C_{Fe}^{mag}}{C_{Fe}^{T91} - C_{Fe}^{sp}} \right)^2 K_p^{mag} \quad (13)$$

除了考虑氧化层的生长, 也要考虑氧化层的溶解, Feng 等 [12] 在 Martinelli 氧化层生长模型的基础上添加了传质腐蚀部分以综合描述氧化层生长-去除行为。由于 LBE 流速较低, 所以氧化层去除过程主要由传质过程控制 [32]。氧化层去除速率 K_r 由 Silvermann 传质系数 [33] 和壁面铁浓度与主流铁浓度之差控制:

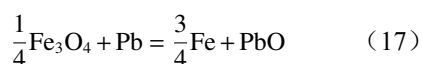
$$K_r = j_{Fe} \frac{\rho_L}{\rho_{ox} F_{Fe}} \quad (14)$$

$$j_{Fe} = 0.017 \, 7V^{0.875} d^{-0.125} \nu^{-0.579} D_{Fe}^{0.704} (c_{w,Fe} - c_{b,Fe}) \quad (15)$$

$$c_{w,Fe} = \min(c_{eq,Fe}, c_{s,Fe}) \quad (16)$$

式中: j_{Fe} 为铁通量; $c_{w,Fe}$ 为铁的壁面浓度; $c_{eq,Fe}$ 为铁的平衡浓度; $c_{s,Fe}$ 为铁的饱和浓度。由于 Fe 在 LBE 中的溶解量很小, 可以认为铁在 LBE 主流中的浓度 $c_{b,Fe}$ 等于 0。

当磁铁矿与 LBE 接触时, 会发生以下反应:



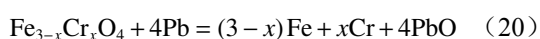
该反应的平衡常数为:

$$K_{eq}^{mag} = \frac{a_{PbO} a_{Fe}^{3/4}}{a_{Pb}} = \frac{1}{a_{Pb}} \frac{c_O}{c_{s,O}} \left(\frac{c_{eq,Fe}}{c_{s,Fe}} \right)^{3/4} = \exp \left(-\frac{\Delta G_{PbO}^0 - \Delta G_{Fe_3O_4}^0 / 4}{RT} \right) \quad (18)$$

磁铁矿的厚度为:

$$\delta_{mag} = \sqrt{K_p^{mag} t} - K_r^{mag} t \quad (19)$$

当磁铁矿完全去除后, Fe-Cr 尖晶石与 LBE 接触, 会发生以下反应:



该反应的平衡常数为:

$$K_{eq}^{sp} = \frac{a_{PbO}^4 a_{Fe}^{3-x} a_{Cr}^x}{a_{Pb}^4} = \frac{1}{a_{Pb}^4} \left(\frac{c_O}{c_{s,O}} \right)^4 \left(\frac{c_{eq,Fe}}{c_{s,Fe}} \right)^{3-x} \cdot \left(\frac{c_{eq,Cr}}{c_{s,Cr}} \right)^x = \exp \left(-\frac{4\Delta G_{PbO}^0 - \Delta G_{sp}^0}{4RT} \right) \quad (21)$$

$$c_{eq,Cr} = \frac{(3-x)M_{Fe}}{xM_{Cr}} c_{eq,Fe} \quad (22)$$

得到 Fe-Cr 尖晶石移除速率后, 根据金属高温氧化动力学, 认为 Fe-Cr 尖晶石的生长-去除过程遵循 Tedmon 方程, 则 Fe-Cr 尖晶石的厚度变化为:

$$\frac{d\delta_{sp}}{dt} = \frac{K_p^{sp}}{2\delta_{sp}} - K_r^{sp} \quad (23)$$

Martinelli 模型计算中所涉及的吉布斯自由能、磁铁矿中的铁扩散系数和各元素的饱和浓度可从文献 [12] 获得。

1.1.4 氧化腐蚀模型验证与比较 本文选择不同温度、氧浓度、流速条件下的多种实验工况来评估上述 3 种氧化腐蚀模型, 实验数据来自 IPPE^[34]、COLIMESTA^[35]、CORRIDA^[36-37]、LINCE^[38]、KYLIN II^[39] 等多个实验回路。实验数据与模拟值的对比如图 1 所示。

静态实验值可以用来评估各模型的抛物线氧化速率预测能力。如图 1a 所示, 在饱和氧浓度情

况下, 当温度为 470 °C 或 550 °C 时, Steiner 模型和 Martinelli 模型预测的氧化层总厚度与实验值吻合较好, Zhang 模型在氧化腐蚀时间较短时比较贴近实验值。温度较高 (600 °C 和 620 °C) 时, 相较于 Steiner 模型, Martinelli 模型的预测值更贴近实验值, 并且在氧化腐蚀时间较短 (<400 h) 时, Martinelli 模型的模拟值与实验值吻合得很好, 最大相对误差不超过 15%。由图 1b 可知, 低氧浓度情况下 Martinelli 模型的预测值与 COLIMESTA 实验的大部分实验值非常接近, 此时 Steiner 模型的预测值偏小, Zhang 模型的预测值偏大。而在 LINCE 实验中, 氧化腐蚀 2 000 h 后的 Fe-Cr 尖晶石厚度实验值与 Martinelli 模型的预测值几乎完全相同, 氧化腐蚀 10 000 h 后的实验值与 Zhang 模型更接近。以上对比表明, 3 个模型均能在一定程度上预测氧化层生长厚度, 综合表现上 Martinelli 模型的预测值更贴近实验值。

动态实验值可以用来比较各模型的氧化层生长-去除过程综合模拟能力。图 1c 表明, Martinelli 模型与 Steiner 模型针对动态低氧实验工况下 Fe-Cr 尖晶石厚度的预测值相近, 均可以较好地反映 Fe-Cr 尖晶石的生长-去除变化趋势, 而 Zhang 模型的尖晶石厚度预测值往往偏大。如图 1d 所示, 疏松的磁铁矿在氧浓度较低 (1×10^{-7} wt%) 时很容易完全去除, 并且去除速率随着温度的升高而增大, Martinelli 模型可以很好地模拟 550 °C- 1×10^{-7} wt%-2 m/s 工况下磁铁矿完全去除的行为, 而 Steiner 模型和 Zhang 模型的预测值都偏大。由图 1d 可知, 对于 450 °C- 1×10^{-6} wt%-2 m/s 工况和 500 °C- 1×10^{-6} wt%-1 m/s 工况, 氧化腐蚀早期, Zhang 模型预测值与实验值相近, 而 Martinelli 模型和 Steiner 模型较高估计了氧化层去除厚度, 导致磁铁矿预测值普遍小于实验值, 最大相对误差达到 33% 左右。这是因为 Martinelli 模型和 Steiner 模型计算传质腐蚀时都假设 LBE 主流中的铁浓度 $c_{b,Fe}$ 等于 0, 相当于高估了氧化层去除速率。

考虑到数据测量的误差、实验条件的波动和实验数据的分散性, 认为 Martinelli 模型预测值与实验结果之间的差异是可以接受的, 即 Martinelli 模型仍能有效模拟双相氧化层的生长-腐蚀过程。因此, 本文选择 Martinelli 模型作为核-热-材耦合框架的氧化腐蚀场计算模型。

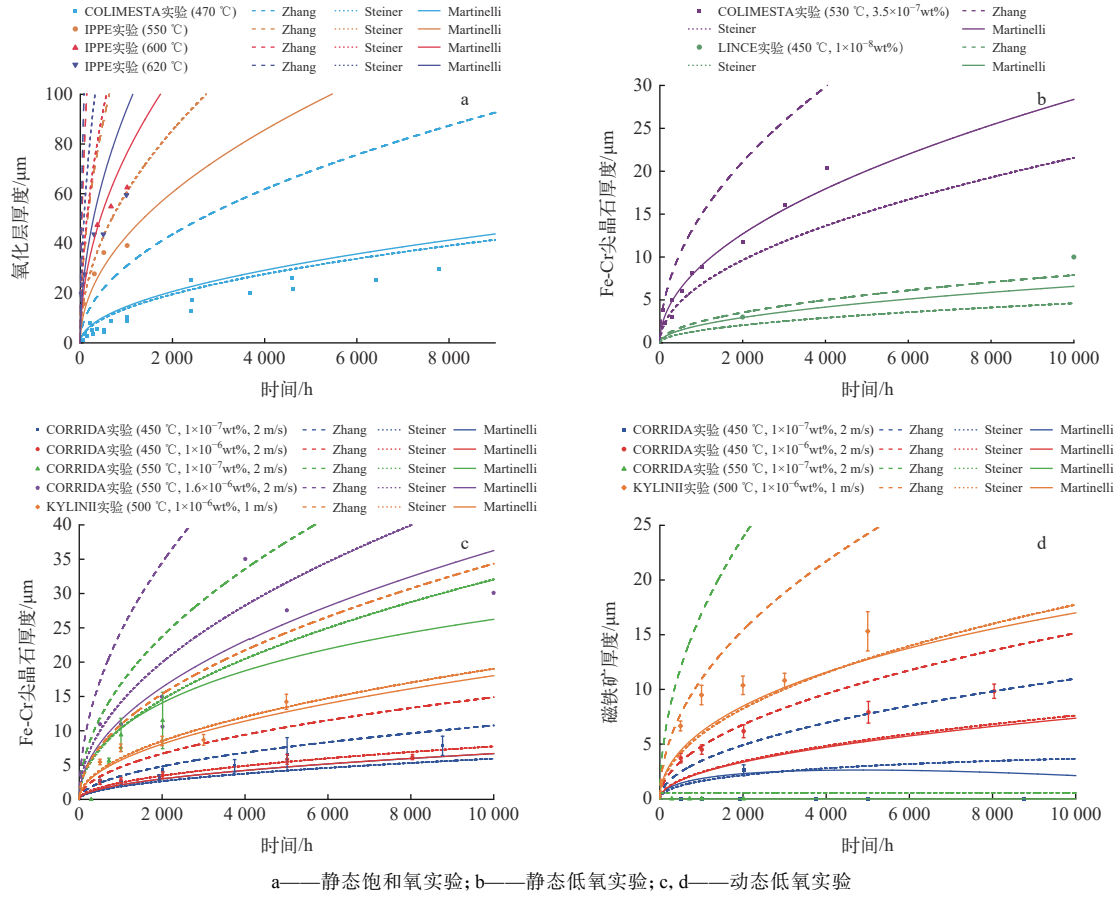


图1 不同工况下实验值与模拟值的比较

Fig. 1 Comparison of experiment values and simulation values under different working conditions

1.2 热工水力模型

热工水力模型的流体区域的控制方程是稳态不可压缩流体质量、动量、能量守恒方程:

$$\nabla \mathbf{u} = 0 \quad (24)$$

$$\rho \nabla \mathbf{u} + \nabla p - \mu \nabla^2 \mathbf{u} - \rho \mathbf{g} = 0 \quad (25)$$

$$\rho c_p \mathbf{u} T + \nabla (k \nabla T) = 0 \quad (26)$$

式中: \mathbf{u} 为流体速度; ρ 为流体密度; p 为压力; μ 为动力黏度; \mathbf{g} 为重力加速度; T 为温度; k 为热导率。

固体区域基于稳态热传导方程, 在燃料区域需要在导热方程右侧加上热源项 Q_f 。

$$-\nabla (k \nabla T) = 0 \quad (27)$$

$$Q_f = \sum_{g=1}^G \delta_g^f \Sigma_g^f \phi_g \quad (28)$$

式中: G 为中子能群数; δ_g^f 为 g 群中子平均一次裂变释放的能量; Σ_g^f 为 g 群中子宏观裂变截面; ϕ_g 为 g 群中子通量。

冷却剂与包壳交界面的传热依赖对流换热系

数来计算:

$$-k \nabla T_s = h(T_s - T_f) \quad (29)$$

式中: T_s 为固体温度; T_f 为流体温度; h 为对流换热系数。

1.3 中子物理模型

中子物理场的计算依赖于稳态中子扩散方程^[20]:

$$-\nabla \cdot D_g \nabla \phi_g + \Sigma_g^r \phi_g = \sum_{g' \neq g} \Sigma_{g' \rightarrow g}^s \phi_{g'} + \frac{1}{k_{\text{eff}}} \left[\chi_g^p \sum_{g'=1}^G (1-\beta) \nu \Sigma_{g'}^f \phi_{g'} + \chi_g^d \sum_{i=1}^I \lambda_i C_i \right] \quad (30)$$

$$0 = \beta_i \sum_{g'=1}^G \nu \Sigma_{g'}^f \phi_{g'} - \lambda_i C_i \quad (31)$$

$$k_{\text{eff}}^{(n)} = \frac{\int_V \sum_{g=1}^G \nu \Sigma_g^f \phi_g^{(n)} dV}{\int_V \sum_{g=1}^G \nu \Sigma_g^f \phi_g^{(n-1)} dV / k_{\text{eff}}^{(n-1)}} \quad (32)$$

式中: D_g 为 g 群中子扩散系数; Σ_g^r 为 g 群中子宏观移出截面; $\Sigma_{g' \rightarrow g}^s$ 为中子从 g' 群碰撞进入 g 群的宏观截面; χ_g^p 为 g 群中子瞬发裂变能谱; G 为中子能群数; k_{eff} 为有效增殖因数; ν 为平均裂变释放中子数; Σ_g^f 为 g 群中子宏观裂变截面; β 为总缓发中子份额; χ_g^d 为 g 群中子缓发裂变能谱; I 为缓发中子先驱核组数; β_i 为 i 组先驱核的缓发中子份额; λ_i 为第 i 组缓发中子先驱核平均衰变常数; C_i 为第 i 组缓发中子先驱核浓度。

1.4 耦合方法

MOOSE 是由美国爱达荷国家实验室(INL)开发的基于 C++ 和有限元的开源并行计算框架^[14]。本研究利用 MOOSE 的面向对象编程的优点开发了液态 LBE 对结构钢氧化腐蚀的求解模块 SEAL。根据 1.1.4 节的讨论, 选择 SEAL 模块中的 Martinelli 模型进行包壳壁面上氧化腐蚀层厚度的计算。核-热-材耦合框架中的中子物理场计算由 Lindsay 等^[18] 开发的开源中子扩散方程求解器 Moltres 完成, Lindsay 和 Park 等^[18-20] 通过 CNRS 快堆基准题计算证明了 Moltres 拥有良好的单物理场和多物理场耦合求解能力。热工水力场的计算由 MOOSE 的基本模块 Navier Stokes 和 Heat Conduction^[21] 完成。本文开发的基于 MOOSE 的核-热-材耦合框架如图 2 所示。

本文考虑反应堆中存在的两种耦合关系: 1) 堆内温度场的分布会影响中子通量场和功率场, 功率场也会反过来作用于温度场和流场; 2) 堆内的温度场和流场会影响钢材上氧化腐蚀层的生长-去除过程, 而氧化腐蚀层的形成也会在包壳与冷却剂交界处增加一层热阻。本文将双相氧化层热阻整合到包壳-冷却剂对流换热系数中以表征传热恶化的影响, 修正后的对流换热系数为:

$$\frac{1}{h_{\text{corrosion}}} = \frac{1}{h_{\text{original}}} + \frac{\delta_{\text{mag}}}{k_{\text{mag}}} + \frac{\delta_{\text{sp}}}{k_{\text{sp}}} \quad (33)$$

式中: $h_{\text{corrosion}}$ 为氧化腐蚀后的对流换热系数; h_{original} 为原始的对流换热系数; δ_{mag} 和 δ_{sp} 为磁铁矿与尖晶石的厚度; k_{mag} 和 k_{sp} 为磁铁矿和尖晶石的热导率。

整个核-热-材耦合计算流程分为前处理、迭代求解、后处理 3 个部分。先通过 OpenMC 和 Gmsh 预先生成燃料、包壳与冷却剂的截面库和网格, 以供后续的中子扩散方程求解和有限元计算。耦



图 2 核-热-材耦合框架

Fig. 2 Framework of neutronics-thermal-hydraulics-material coupling

合计算过程中使用“全耦合”方法^[14] 进行多物理场求解, 即把各个物理场的控制方程联立为 1 个大方程组, 使用 Newton-Krylov 方法让整个方程组同步迭代和收敛, 在每次非线性迭代后都会同步更新物性以及计算中间量。最终使用 ParaView 等软件对计算结果进行后处理。

2 数值计算设置

本文使用一个简易的铅铋堆 19 棒束燃料组件作为计算模型, 组件中存在燃料、包壳和冷却剂区域, 包壳与燃料之间不考虑气隙, 组件的参数列于表 1, 几何布置如图 3 所示。

使用 OpenMC 生成用于中子扩散方程计算的宏观截面, 将能量划分为如下 6 群: $2.0 \times 10^7 \text{ eV} > 1 \text{ 群} > 1.36 \times 10^6 \text{ eV} > 2 \text{ 群} > 6.74 \times 10^4 \text{ eV} > 3 \text{ 群} > 9.12 \times 10^3 \text{ eV} > 4 \text{ 群} > 2.035 \times 10^3 \text{ eV} > 5 \text{ 群} > 3.043 \times 10^2 \text{ eV} > 6 \text{ 群} > 1 \times 10^{-5} \text{ eV}$, 缓发中子设置为 6 组。令冷却剂和包壳分别在 600、750、900 K 3 个温度节点上生成宏观截面, 燃料在 600、850、1 100、1 350、1 600、1 800 K 6 个温度节点上生成宏观截面, 宏观截面随温度变化的函数由 Moltres 根据温度节点的数值拟合。

表 1 燃料组件的主要参数
Table 1 Main parameter of fuel assembly

参数	数值
燃料芯块直径 D , mm	8.5
包壳厚度, mm	0.5
栅距 P , mm	11.4
边心距 A , mm	26.66
燃料高度 H , mm	900
燃料材料	MOX(24%PuO ₂ +76%UO ₂)
包壳材料	T91 钢
冷却剂材料	LBE
功率, W	320 000

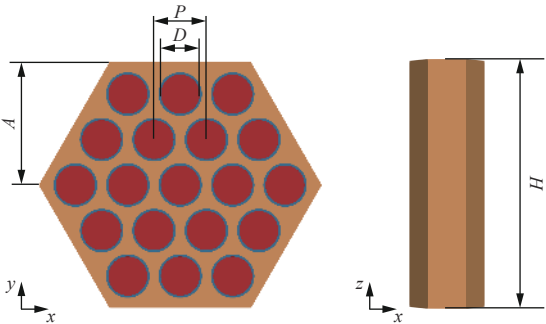


图 3 燃料组件的几何布置
Fig. 3 Geometry configuration of fuel assembly

热工水力场和中子物理场基准工况的边界条件列于表 2。

表 2 基准工况的边界条件
Table 2 Boundary conditions of standard operating condition

物理场	边界	类型	数值
压力, Pa	出口	Dirichlet	0
	出口	Dirichlet	1.5
速度, m/s	冷却剂壁面	Symmetry	
	包壳壁面	Dirichlet	0
温度, K	入口	Dirichlet	593
中子	上、下端	Vacuum	

选择氧浓度 $1\times10^{-6}\text{wt}\%$ 、氧化腐蚀时间 100 h 的工况为网格敏感性分析工况,选取氧化层平均厚度、燃料最高温度和 k_{eff} 为网格敏感性验证参数。选取 4 种不同疏密程度的网格进行网格敏感性分析,如表 3 所列。结果表明,网格 3 能较好地兼顾计算精确度与计算量,最终选取网格 3 为后

表 3 网格划分方案
Table 3 Meshing scheme

序号	节点数	氧化层平均厚度/ μm	燃料最高温度/K	k_{eff}
网格 1	53 949	1.512	1 453.24	1.326 503
网格 2	90 069	1.455	1 423.65	1.328 103
网格 3	124 635	1.424	1 416.96	1.328 896
网格 4	161 763	1.409	1 414.11	1.329 055

续计算的网格划分方案。

3 计算结果

3.1 基准工况分析

选择氧浓度为 $1\times10^{-6}\text{wt}\%$ 、冷却剂入口速度为 1.5 m/s、冷却剂入口温度为 320 ℃ 的基准工况分析耦合参数和氧化层生长-去除过程随时间的变化。图 4 展示了氧化层平均厚度、最大厚度、移除厚度、 k_{eff} 、燃料和包壳的平均温度和最高温度等关键耦合参数随时间的变化。

图 4a 表明,在氧化反应的作用下,双相氧化层的平均厚度一直在随时间增长,在氧化腐蚀初期增大速度较快,2 000 h 后增大速度明显减缓。基准工况下氧化腐蚀 10 000 h 后,氧化层平均厚度达到 9.86 μm ,其中磁铁矿的平均厚度为 2.35 μm ,占比约 24%;Fe-Cr 尖晶石的厚度为 7.51 μm ,占比约 76%。图 4b 显示,2 000 h 时,氧化层最大厚度等于 Fe-Cr 尖晶石最大厚度,说明氧化层最厚处的磁铁矿已被腐蚀殆尽,只保留了单层 Fe-Cr 尖晶石结构。氧化腐蚀 10 000 h 后,包壳壁上的氧化层最大厚度可达 48.82 μm 。如图 4c 所示,在还原反应和传质腐蚀的作用下,氧化层同时被去除,氧化层的平均去除厚度曲线几乎与磁铁矿的重合,Fe-Cr 尖晶石的平均去除厚度接近于 0 μm ,说明疏松的磁铁矿非常容易被 LBE 腐蚀并且丧失保护作用,而致密的尖晶石更耐腐蚀。

如图 4d、e 所示,随着氧化层逐渐增厚,氧化层产生的热阻对热工水力场的影响越来越大,燃料和包壳区域的平均温度分别升高了 3.66 K 和 2 K,最高温度分别升高了 13.36 K 和 5.63 K。相应地,燃料温度的升高会给中子物理场带来负反馈效应,导致组件的 k_{eff} 降低 7 pcm。

基准工况下磁铁矿和 Fe-Cr 尖晶石厚度随时间变化的云图示于图 5。如图 5a 所示,从径向看,

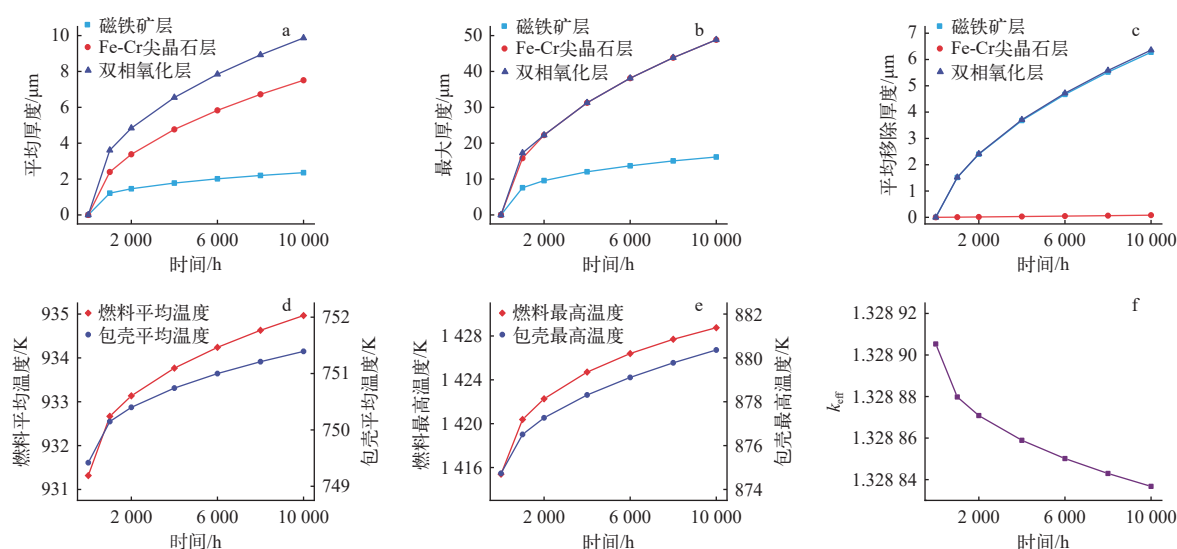


图4 基准工况下关键耦合参数随时间的变化

Fig. 4 Dynamic changes of key coupling parameters over time under standard operating condition

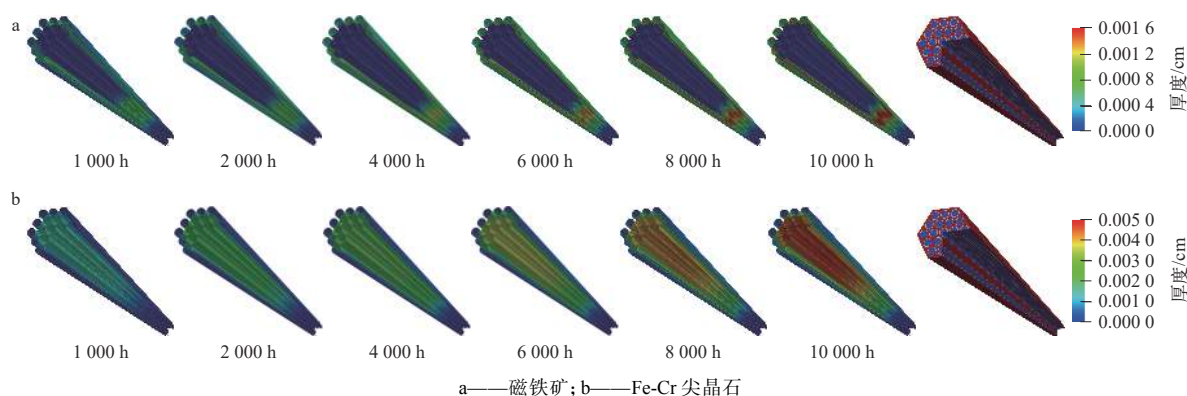


图5 基准工况下双相氧化层厚度分布云图

Fig. 5 Cloud diagram of thickness distribution of oxide layers under standard operating condition

3根燃料棒相邻形成冷却剂流道处的冷却剂流量较低,温度较高。在高温作用下,与LBE接触的磁铁矿会发生严重的溶解,因此3根燃料棒相邻处的磁铁矿溶解程度高于其他区域。燃料组件最外层包壳附近冷却剂流量高、温度低,所以其表面的磁铁矿始终存在。从轴向看,燃料组件中下部的冷却剂温度低于上部,所以其包壳壁面的磁铁矿的溶解程度也低于上部。整体上看,燃料组件中下部及外围的包壳在10 000 h后仍能保持双氧化层结构,而接近冷却剂出口并且3根燃料棒相邻形成区域的包壳壁面上的双相氧化层很早就被溶解为单相氧化层。靠近进口处的冷却剂温度较低,所以磁铁矿和Fe-Cr尖晶石氧化层生长得较薄。

图5b表明,Fe-Cr尖晶石在磁铁矿完全溶解

的地方会随时间长得很厚,这种现象源于两方面原因。一方面,与磁铁矿相比,Fe-Cr尖晶石更耐腐蚀,当Fe-Cr尖晶石与液态LBE直接接触时,Fe-Cr尖晶石的腐蚀量很小。另一方面,冷却剂在磁铁矿完全溶解区域的温度往往较高,尽管在这些区域Fe-Cr尖晶石也会发生溶解,但当氧浓度足够发生氧化反应时,高温导致的尖晶石生长收益往往大于溶解损失,因此Fe-Cr尖晶石在包壳壁面没有磁铁矿的地方往往会生长得较厚。

3.2 氧浓度对耦合参数的影响

氧浓度是影响双相氧化层生长-去除过程和核-热-材耦合参数的关键因素之一。选取不同的氧浓度进行参数敏感性分析,氧浓度(wt%)从低到高分别为 1×10^{-7} 、 5×10^{-7} 、 1×10^{-6} 、 5×10^{-6} 。值得一提的是,本文选择的氧浓度均高于运行温度范

围下氧化反应所需要的最低氧浓度并且低于生成 PbO 沉淀的最低氧浓度,即保证包壳壁上的任何位置都能发生氧化反应以产生 Fe_3O_4 氧化膜并且任何位置都不会产生 PbO 沉淀。图 6 为不同氧浓度下核-热-材耦合关键参数的时序变化。

图 6a~c 展示了氧化层的整体生长和去除情况。如图 6a 所示,磁铁矿平均厚度随着氧浓度的升高而明显增大,当氧浓度从 $1 \times 10^{-7} \text{wt}\%$ 增大到 $5 \times 10^{-6} \text{wt}\%$ 时,磁铁矿平均厚度从 $0.55 \mu\text{m}$ 增大到 $6.43 \mu\text{m}$ 。这种现象源于两个因素的共同作用。一方面是磁铁矿的抛物线氧化速率与氧浓度呈正相关,氧浓度升高会增加磁铁矿的生长量,然而这个因素的影响较小。从图 6c 可以看出,更重要的一个因素是 LBE 中溶解氧浓度的增大会大幅抑制式(17)中铅对 Fe_3O_4 的还原反应,即溶解氧浓度与磁铁矿的去除速率呈负相关,进而氧浓度的升高导致磁铁矿的去除量大幅减少。

从图 6a、b 可以看出,与磁铁矿相比,Fe-Cr 尖晶石的生长曲线受到氧浓度影响较小,仅在氧浓度从 $1 \times 10^{-7} \text{wt}\%$ 提高到 $5 \times 10^{-7} \text{wt}\%$ 时有明显增长。氧浓度从 $5 \times 10^{-7} \text{wt}\%$ 提高到 $5 \times 10^{-6} \text{wt}\%$ 后,Fe-Cr 尖晶石平均厚度与最大厚度并未发生明显变化,说明氧浓度达到一定程度后不再是 Fe-Cr 尖晶石生长的制约因素。

随着氧浓度的升高,氧化层厚度增大,氧化层导致的壁面热阻也逐渐增加,对冷却剂与包壳的

换热产生的不利影响也增大。如图 6d~f 所示,氧浓度与包壳和燃料的温升呈正相关,在 $5 \times 10^{-6} \text{wt}\%$ 的高氧浓度下,燃料和包壳的最高温升分别为 17.51 K 和 10.04 K,平均温升分别为 5.39 K 和 2.93 K,并且在温度负反馈的作用下, k_{eff} 降低了 10 pcm。

图 7 为不同氧浓度下氧化腐蚀 10 000 h 后的磁铁矿和 Fe-Cr 尖晶石厚度云图。从径向看,在氧浓度不太高 ($\leq 1 \times 10^{-6} \text{wt}\%$) 时,3 根燃料棒相邻区域的相对较高的温度尽管有利于磁铁矿生长,但同样会使该处的磁铁矿更容易溶解和变薄。当氧浓度足够高 ($5 \times 10^{-6} \text{wt}\%$) 时,3 根燃料棒相邻处的较高温度带来的氧化层生长促进作用和高氧浓度带来的氧化层溶解抑制作用使得磁铁矿厚度大幅增加。从图 7a 可以看出,包壳上磁铁矿完全去除的面积随氧浓度的升高而减小。在 $5 \times 10^{-6} \text{wt}\%$ 氧浓度下氧化腐蚀 10 000 h 后,磁铁矿依然能完整地覆盖在包壳上,并且 Fe-Cr 尖晶石未发生溶解,包壳壁面仍保持双相氧化层结构,对包壳能起到良好的保护作用。如图 7b 所示,与磁铁矿相比,除了 $1 \times 10^{-7} \text{wt}\%$,其余氧浓度下氧化腐蚀 10 000 h 后 Fe-Cr 尖晶石的厚度分布区别不大,具体原因已在前文阐述。

总体上,磁铁矿的厚度由温度和氧浓度综合决定,温度升高一方面使得抛物线氧化速率增大,另一方面会导致传质腐蚀增强,而氧浓度的升高可以有效抑制磁铁矿被 Pb 还原。当氧浓度不太

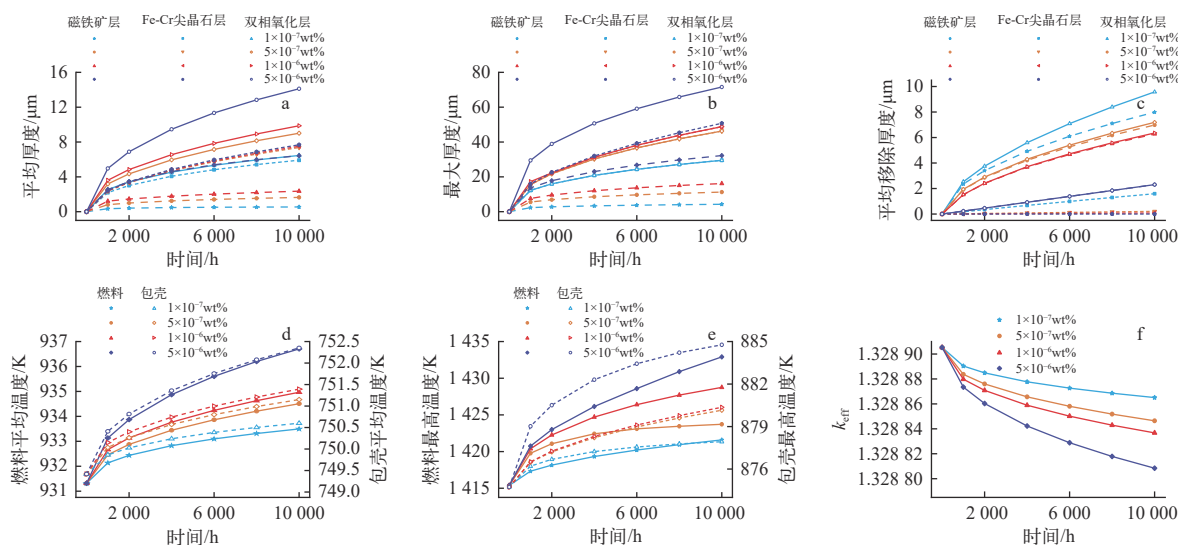


图 6 不同氧浓度下关键耦合参数随时间的变化

Fig. 6 Dynamic change of key coupling parameters over time under different oxygen concentrations

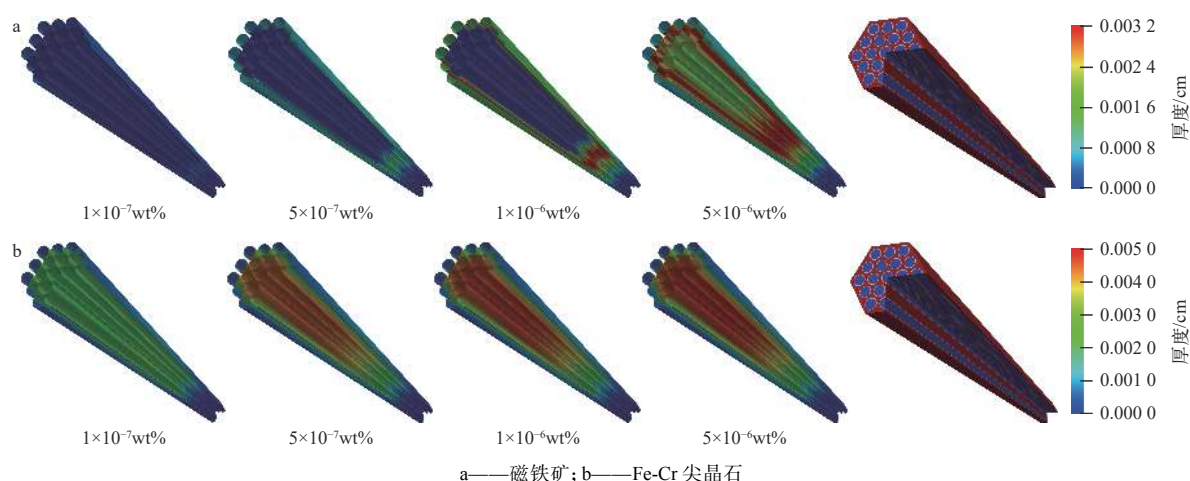


图7 不同氧浓度下氧化腐蚀 10 000 h 后的双相氧化层厚度分布云图

Fig. 7 Cloud diagram of thickness distribution of oxide layers oxidation corroded for 10 000 h under different oxygen concentrations

低($\geq 5 \times 10^{-7}$ wt%)时, Fe-Cr 尖晶石的厚度主要受温度影响, 氧浓度升高带来的影响较小。

3.3 冷却剂入口温度对耦合参数的影响

温度对双相氧化层的生长起重要作用, 它不仅决定 Fe 向 LBE 中扩散的速率, 还极大程度上影响磁铁矿的溶解速率。为了研究冷却剂入口温度对双相氧化层生长和关键耦合参数的影响, 本文计算了 6 种入口温度工况, 温度范围为 320~420 °C。为了避免出现氧浓度过低导致磁铁矿大量溶解的情况, 选择氧浓度为 5×10^{-6} wt%, 结果如图 8 所示。

入口温度升高时, Fe 从钢材中扩散到 LBE 中的速率增大, 同时 Fe_3O_4 与铅发生还原反应的速率也增大。如图 8a 所示, 入口温度为 360~420 °C 的磁铁矿平均厚度均小于 320 °C, 说明在氧浓度一定的情况下, 温度升高导致的磁铁矿溶解量远大于铁扩散速率增大带来的生长量。尽管入口温度升高会导致磁铁矿去除量增大和厚度减小, 但是也促进了 Fe-Cr 尖晶石的生长, 并且 Fe-Cr 尖晶石的生长量比磁铁矿去除量更大。因此, 氧化层的生长量主要由 Fe-Cr 尖晶石贡献, 冷却剂入口温度每升高 20 °C, 氧化层平均厚度约增加 3 μm 。由

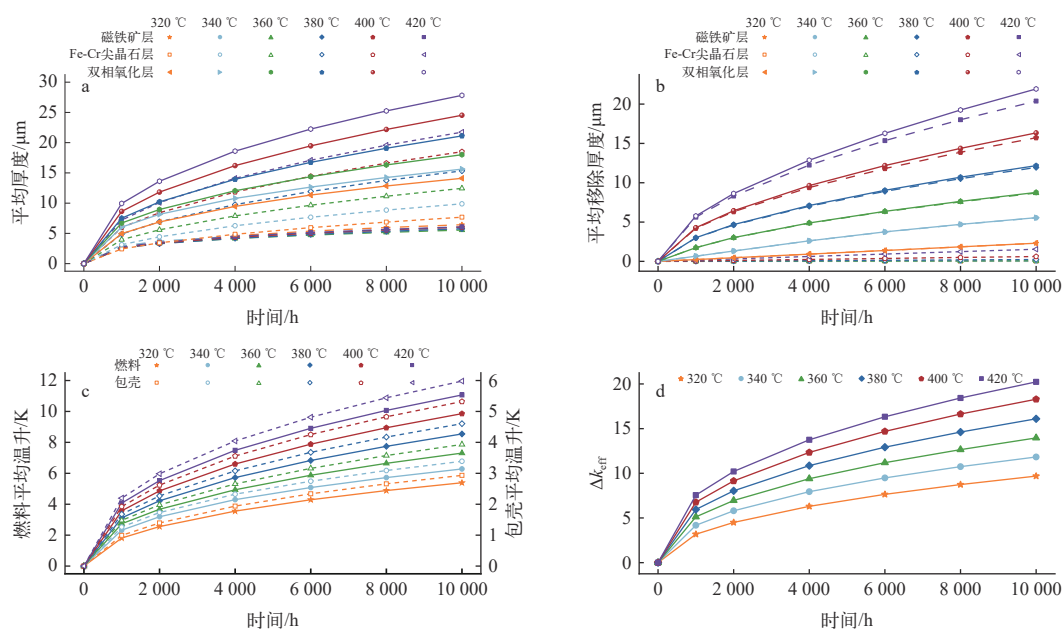


图8 不同冷却剂入口温度下关键耦合参数随时间的变化

Fig. 8 Dynamic changes of key coupling parameters over time under different inlet temperatures of coolant

图 8b 可知,氧化层的去除量与冷却剂入口温度呈正相关,氧化腐蚀 10 000 h 后,入口温度为 420 ℃ 的磁铁矿平均去除量约为 320 ℃ 的 9 倍。氧化层的溶解量绝大部分由磁铁矿贡献,一方面是因为 Fe-Cr 尖晶石外层有磁铁矿的保护,只有磁铁矿完全被去除的区域 Fe-Cr 尖晶石才被 LBE 溶解,另一方面是因为致密的 Fe-Cr 尖晶石比磁铁矿更耐腐蚀。

由于氧化层整体厚度随入口温度的升高而增大,包壳壁面整体的传热热阻也随入口温度的升高而增大。如图 8c 所示,在 420 ℃ 的进口温度下氧化腐蚀 10 000 h 后,燃料和包壳的平均温升分别为 11 K 和 6 K。图 8d 显示,在温度负反馈的作用下, k_{eff} 降低了 20 pcm。入口温度每升高 20 K,

燃料平均温升的增加量约为 1.1 K,包壳平均温升的增加量约为 0.6 K, k_{eff} 的降低量约增加 2.1 pcm。

图 9 展示了不同冷却剂入口温度下氧化腐蚀 10 000 h 后的双相氧化层厚度分布云图。当入口温度为 360 ℃ 时,位于组件中心的燃料棒包壳壁出现磁铁矿完全溶解的区域,并且磁铁矿完全溶解区域的面积随入口温度的升高而增大。同时,随着冷却剂入口温度的升高,最外层的包壳壁面逐渐进入到适合磁铁矿生长又不导致过度溶解的温度区间,其表面磁铁矿厚度增大,最大可达 32 μm 。由于前文提到的 Fe-Cr 尖晶石耐腐蚀的特性,包壳壁面上的 Fe-Cr 尖晶石的厚度随着入口温度的升高而增大,未出现局部区域完全溶解的现象,并且最厚处可达 90 μm 。

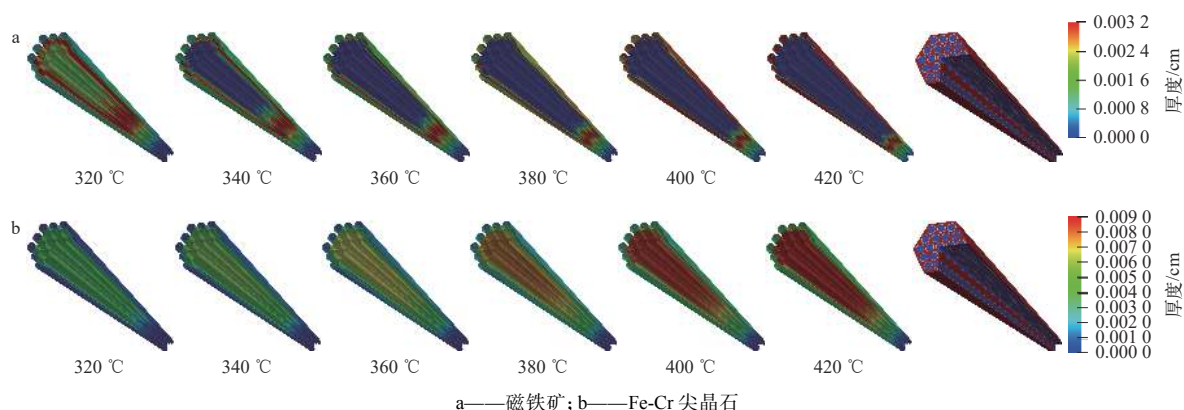


图 9 不同冷却剂入口温度下氧化腐蚀 10 000 h 后的双相氧化层厚度分布云图
Fig. 9 Cloud diagrams of thickness distribution of oxide layers oxidation corroded for 10 000 h under different inlet temperatures of coolant

4 结论

本文基于 MOOSE 开发了铅铋堆氧化腐蚀模块 Seal, 结合开源中子物理求解器 Moltres 和 MOOSE 中的基本模块, 完成了铅铋堆核-热-材多物理场耦合框架的搭建, 进行了基准工况的耦合计算, 并分析了氧浓度和冷却剂入口温度对核-热-材耦合关键参数的影响。铅铋堆单棒的核-热-材耦合规律如下。

1) 基准工况下氧化腐蚀 10 000 h 后, 氧化层平均厚度为 9.86 μm , 最厚处达到 48.82 μm 。由于氧化层生长带来的传热恶化, 燃料和包壳区域的最高温度分别升高了 13.36 K 和 5.63 K, 平均温度分别升高了 3.66 K 和 2 K, 同时 k_{eff} 下降 7 pcm。临近冷却剂壁面处的磁铁矿最先溶解, 在燃料组

件上半部出现大量磁铁矿完全溶解的区域。相比之下, Fe-Cr 尖晶石更耐铅铋的腐蚀。

2) 氧浓度升高可以极有效地抑制磁铁矿溶解, 在 $5 \times 10^{-6} \text{wt}\%$ 的高氧浓度下腐蚀 10 000 h 后, 磁铁矿仍能完整地覆盖在包壳上。当氧浓度达到一定程度时, 对 Fe-Cr 尖晶石的生长促进作用并不明显。较高氧浓度导致氧化层整体变厚的同时, 包壳与冷却剂的传热也随着氧浓度的升高而恶化, 燃料与包壳的最高温度分别升高了 17.51 K 和 10.04 K, 相应地 k_{eff} 降低 10 pcm。

3) 冷却剂入口温度的升高会导致组件中心处的包壳壁面的磁铁矿去除速率增大, 在高氧浓度 ($5 \times 10^{-6} \text{wt}\%$) 下仍会出现局部区域磁铁矿完全溶解的现象。同时, 入口温度的升高有利于组件最

外层包壳壁面进入到适合磁铁矿生长又不导致过度溶解的温度区间,并且能大幅促进 Fe-Cr 尖晶石的生长。

参考文献:

- [1] LAKE J A. The fourth generation of nuclear power[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2002, 40(3): 301-307.
- [2] PETERSON P, DELPECH M, PICKARD P, et al. Generation 4 initiative: Safety and reliability goals and related R and D[R]. Paris: Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, 2002.
- [3] MYLONAKIS A G, VARVAYANNI M, CATSAROS N, et al. Multi-physics and multi-scale methods used in nuclear reactor analysis[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2014, 72: 104-119.
- [4] BONIFETTO R, DULLA S, RAVETTO P, et al. A full-core coupled neutronic/thermal-hydraulic code for the modeling of lead-cooled nuclear fast reactors[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2013, 261: 85-94.
- [5] YANG D, LIU X, XIONG J, et al. Coupling of neutronics and thermal-hydraulics codes for the simulation of reactivity insertion accident for LFR[J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2018, 106: 20-26.
- [6] ZHANG X, ZENG Q, CHEN H. Development and validation of a coupled neutron diffusion-thermal hydraulic calculation procedure for fast reactor applications[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2020, 139: 107243.
- [7] YANG Q, PAN Q, HE H, et al. Improved design of LBE cooled solid reactor using 3D neutronics thermal-hydraulics coupling method[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2022, 179: 109441.
- [8] XIE Q, LI W, GUAN C, et al. Development of 3D transient neutronics and thermal-hydraulics coupling procedure and its application to a fuel pin analysis[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2023, 404: 112164.
- [9] LI N. Active control of oxygen in molten lead-bismuth eutectic systems to prevent steel corrosion and coolant contamination[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2002, 300(1): 73-81.
- [10] ZHANG J, LI N. Review of the studies on fundamental issues in LBE corrosion[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2008, 373(1-3): 351-377.
- [11] SHEN Y, PENG S, YAN M, et al. Analytical study of heat transfer for liquid metals in a turbulent tube flow[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2021, 373: 111030.
- [12] FENG W, ZHANG X, CAO L, et al. Development of oxygen/corrosion product mass transfer model and oxidation-corrosion model in the lead-alloy cooled reactor core[J]. *Corrosion Science*, 2021, 190: 109708.
- [13] LU D, WANG C, WANG C, et al. Numerical simulation of corrosion phenomena in oxygen-controlled environment for a horizontal lead-bismuth reactor core[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2023, 574: 154195.
- [14] GASTON D, NEWMAN C, HANSEN G, et al. MOOSE: A parallel computational framework for coupled systems of nonlinear equations[J]. *Nuclear Engineering and Design*, 2009, 239(10): 1768-1778.
- [15] 牛进林, 邬颖杰, 郭炯, 等. 基于 MOOSE 开发的中子扩散问题求解程序[J]. *原子能科学技术*, 2020, 54(1): 87-94.
- NIU Jinlin, WU Yingjie, GUO Jiong, et al. Neutron diffusion program developed based on MOOSE[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2020, 54(1): 87-94(in Chinese).
- [16] 牛钰航, 贺亚男, 巫英伟, 等. 基于 MOOSE 平台的高阶全隐式核反应堆一回路系统分析[J]. *核动力工程*, 2021, 42(6): 50-57.
- NIU Yuhang, HE Yanan, WU Yingwei, et al. Analysis of primary loop system of high-order fully-implicit nuclear reactor based on MOOSE platform[J]. *Nuclear Power Engineering*, 2021, 42(6): 50-57(in Chinese).
- [17] 邓超群, 向烽瑞, 贺亚男, 等. 基于 MOOSE 平台的棒状燃料元件性能分析程序开发与验证[J]. *原子能科学技术*, 2021, 55(7): 1296-1303.
- DENG Chaoqun, XIANG Fengrui, HE Yanan, et al. Development and validation of fuel rod performance analysis code based on MOOSE platform[J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2021, 55(7): 1296-1303(in Chinese).
- [18] LINDSAY A, RIDLEY G, RYKHEVSKII A, et al. Introduction to Moltres: An application for simulation of molten salt reactors[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2018, 114: 530-540.
- [19] PARK S M, HUFF K D. Multiphysics benchmark results from Moltres[J]. *Transactions of the American Nuclear Society*, 2021, 124(1): 536-539.
- [20] PARK S M, MUNK M. Verification of Moltres for multiphysics simulations of fast-spectrum molten salt reactors[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2022, 173: 109111.
- [21] PETERSON J W, LINDSAY A D, KONG F. Overview of the incompressible Navier-Stokes simulation capabilities in the MOOSE framework[J]. *Advances in Engineering Software*, 2018, 119: 68-92.

- [22] ZHANG J. Long-term behaviors of oxide layer in liquid lead-bismuth eutectic (LBE), Part I: Model development and validation[J]. *Oxidation of Metals*, 2013, 80 (5-6): 669-685.
- [23] ZHANG J. Long-term behaviors of oxide layer in liquid lead-bismuth eutectic (LBE), Part II: Model applications[J]. *Oxidation of Metals*, 2014, 81(5-6): 597-615.
- [24] YOUNG D J. The nature of high temperature oxidation[M]/High Temperature Oxidation and Corrosion of Metals. Sydney: Elsevier, 2016.
- [25] STEINER H, SCHROER C, VOSS Z, et al. Modeling of oxidation of structural materials in LBE systems[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2008, 374(1-2): 211-219.
- [26] TEDMON C S. The effect of oxide volatilization on the oxidation kinetics of Cr and Fe-Cr alloys[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 1966, 113(8): 766-768.
- [27] ZHANG J, LI N. Oxidation mechanism of steels in liquid-lead alloys[J]. *Oxidation of Metals*, 2005, 63(5-6): 353-381.
- [28] MARTINELLI L, BALBAUD-CÉLÉRIER F, TERLAIN A, et al. Oxidation mechanism of a Fe-9Cr-1Mo steel by liquid Pb-Bi eutectic alloy (Part I)[J]. *Corrosion Science*, 2008, 50(9): 2523-2536.
- [29] MARTINELLI L, BALBAUD-CÉLÉRIER F, TERLAIN A, et al. Oxidation mechanism of an Fe-9Cr-1Mo steel by liquid Pb-Bi eutectic alloy at 470 °C (Part II)[J]. *Corrosion Science*, 2008, 50(9): 2537-2548.
- [30] MARTINELLI L, BALBAUD-CÉLÉRIER F, PICARD G, et al. Oxidation mechanism of a Fe-9Cr-1Mo steel by liquid Pb-Bi eutectic alloy (Part III)[J]. *Corrosion Science*, 2008, 50(9): 2549-2559.
- [31] MARTINELLI L, BALBAUD-CÉLÉRIER F. Modelling of the oxide scale formation on Fe-Cr steel during exposure in liquid lead-bismuth eutectic in the 450-600 °C temperature range[J]. *Materials and Corrosion*, 2011, 62(6): 531-542.
- [32] CHEN T Y, MOCCARI A, MACDONALD D D. Development of controlled hydrodynamic techniques for corrosion testing[J]. *Corrosion*, 1992, 48: 239-255.
- [33] BALBAUD-CÉLÉRIER F, BARBIER F. Investigation of models to predict the corrosion of steels in flowing liquid lead alloys[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2001, 289(3): 227-242.
- [34] WEISENBURGER A, HEINZEL A, MÜLLER G, et al. T91 cladding tubes with and without modified FeCrAlY coatings exposed in LBE at different flow, stress and temperature conditions[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2008, 376(3): 274-281.
- [35] WEISENBURGER A, SCHROER C, JIANU A, et al. Long term corrosion on T91 and AISI1 316L steel in flowing lead alloy and corrosion protection barrier development: Experiments and models[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, 415(3): 260-269.
- [36] TSISAR V, SCHROER C, WEDEMEYER O, et al. Characterization of corrosion phenomena and kinetics on T91 ferritic/martensitic steel exposed at 450 and 550 °C to flowing Pb-Bi eutectic with 10^{-7} mass% dissolved oxygen[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2017, 494: 422-438.
- [37] SCHROER C, VOSS Z, WEDEMEYER O, et al. Oxidation of steel T91 in flowing lead-bismuth eutectic (LBE) at 550 °C[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2006, 356 (1-3): 189-197.
- [38] MARTÍN-MUÑOZ F J, SOLER-CRESPO L, GÓMEZ-BRICEÑO D. Corrosion behaviour of martensitic and austenitic steels in flowing lead-bismuth eutectic[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, 416(1-2): 87-93.
- [39] TIAN S J, JIANG Z Z, LUO L. Oxidation behavior of T91 steel in flowing oxygen-containing lead-bismuth eutectic at 500 °C: Oxidation behavior of T91 steel[J]. *Materials and Corrosion*, 2016, 67(12): 1274-1285.