

文章编号: 1000-6931(2001)01-0015-05

U_3Si_2 -Al 弥散型燃料的辐照肿胀研究

邢忠虎, 应诗浩

(中国核动力研究设计院 核燃料及材料国家级重点实验室, 四川 成都 610041)

摘要:介绍了 U_3Si_2 -Al 弥散型燃料的辐照肿胀机理。将弥散型燃料的芯体视为连续基体中的微型燃料元件,应用裂变气体的行为机理描述燃料相中的气泡形成过程。研究表明:燃料相的肿胀引起燃料颗粒和金属基体之间的力学相互作用,金属基体能抑制燃料颗粒的辐照肿胀。在一定辐照条件下,本模型对燃料元件辐照肿胀的预测值与测量值相符。

关键词:亚晶化;界面反应;蠕变;肿胀

中图分类号: TL352.2⁺5; TL271⁺.91 **文献标识码:** A

弥散型燃料具有高热导、高燃耗和刚度好等特点,广泛用于各种研究试验堆和高通量同位素生产堆中。由于弥散型燃料的高燃耗特点,辐照肿胀成为该燃料十分重要的使用性能。根据燃料元件的基本原理和辐照效应理论,结合 20 多年来研究试验堆降浓计划(RERTR)关于 U_3Si_2 -Al 弥散型燃料的实验数据和理论^[1,2],探讨弥散型燃料的辐照肿胀机理。

1 弥散型燃料的辐照肿胀机理

弥散型燃料的辐照肿胀模型包括以下 5 个方面的内容。

1.1 连续基体中的微型燃料元件模型

弥散型燃料芯体中的燃料相颗粒随机分布在连续铝基体中,连续金属基体包围着燃料相颗粒组成微球燃料元件^[3],能够阻止裂变气体的泄漏,同时将裂变热传导到燃料元件的表面。在辐照过程中,随着裂变产物(主要是裂变气体)的积累,燃料相颗粒发生肿胀并引起基体包壳的形变,基体包壳形变时产生的内压将抑制裂变气体引起的肿胀,尤其是高燃耗下气泡直径较大时,形变内压可有效地抑制燃料相肿胀。

1.2 燃料相中的裂变产物行为机理^[4]

裂变产物的积累是引起燃料相辐照肿胀的根本原因。铀原子的固体裂变产物以金属、氧化物、盐类等形态与燃料相形成固溶体或作为夹杂物存在于燃料相中。由此引起的辐照肿胀

收稿日期:2000-03-20;修回日期:2000-05-26

作者简介:邢忠虎(1962—),男,江苏南京人,副研究员,在读博士生,核材料专业

量较小。气体裂变产物在燃料相中的行为比较复杂。裂变气体原子不溶于燃料相,当裂变密度较低时,裂变气体原子作为间隙原子存在于燃料晶格间隙中或被各种天然缺陷和辐照缺陷捕获。随着裂变密度增加,裂变气体原子通过热运动而迁移,通过相互碰撞,被点缺陷、位错、晶界和空洞等捕获形成气泡核。气泡核不断吸收游离气体原子而长大。当裂变密度较高时,燃料相的亚晶化过程产生大尺寸气泡,气泡密度随气泡增大而降低。气泡密度亦与燃料相的物理条件和外界约束有关。气体裂变产物引起的辐照肿胀量较大,它在燃料相中的行为是决定辐照肿胀随燃耗变化的主要因素。

1.3 燃料相晶粒的辐照亚晶化^[5]

硅化铀弥散型燃料的低温辐照肿胀观察显示:气泡的生长与原始燃料晶粒的亚晶化所形成的亚晶界结构有关。一定辐照条件下的肿胀~燃耗关系曲线存在明显的“拐点”。样品裂变密度低于拐点时,扫描电子显微镜观察不到气泡;裂变密度等于拐点时,可观察到气泡以不同的方式形成;裂变密度高于拐点时,气泡的尺寸和浓度随裂变密度快速增加。燃料相中储存的能量主要集中在尾间核心网络中,尾间核心的浓度与辐照产生的缺陷之间的相互作用随辐照注量而降低。核心的能量足够高时,为了释放内部应力而产生新的晶界面,产生晶界表面所需的能量被产生无应力体积所释放的能量抵消,由此引起燃料相的亚晶化过程,它所需要的辐照裂变密度称为亚晶化裂变密度(FDX)。由于亚晶化过程加速了燃料相的辐照肿胀,在辐照肿胀曲线中,FDX成为稳态肿胀和加速肿胀的分界点,因此,FDX在工程上又称为拐点燃耗。

1.4 燃料相与基体的界面反应^[6]

在堆内工作条件下,U₃Si₂-Al弥散型燃料的燃料相和基体通过界面相互扩散发生放热反应,生成铀铝硅化合物U₃Al₇Si₂。该界面反应层的生成引起燃料颗粒尺寸增大和铝基体体积消耗,从而导致燃料板芯体结构演化、燃料元件力学性能(塑性、强度和蠕变性能)降低。界面对U₃Si₂-Al弥散型燃料的辐照肿胀率有重要的影响,是限制U₃Si₂-Al弥散型燃料使用温度和燃耗的主要因素。

1.5 燃料相辐照肿胀引起的基体形变

根据连续基体中的微型燃料元件模型,金属基体球形薄壳中材料的拉伸应力与球壳内压的关系如下^[7]:

$$\sigma = \frac{rp}{2} \quad (1)$$

式中: σ 为球壳中材料的拉伸应力; p 为球壳内压; r 为球壳平均半径; t 为球形薄壳的厚度。

燃料相颗粒肿胀时,球形壳在内压作用下,受到三向切应力拉伸。根据广义Hook定律,基体球形包壳中任意一点的应变与应力的关系如下:

$$\epsilon_x = \frac{1}{E} [\sigma_x - \nu(\sigma_y + \sigma_z)] \quad (2)$$

$$\epsilon_y = \frac{1}{E} [\sigma_y - \nu(\sigma_z + \sigma_x)] \quad (3)$$

$$\epsilon_z = \frac{1}{E} [\sigma_z - \nu(\sigma_x + \sigma_y)] \quad (4)$$

式中: σ_x 、 σ_y 和 σ_z 分别为球壳中材料的拉伸应力在3个相互垂直方向上的分量; ϵ_x 、 ϵ_y 和 ϵ_z 分别为球壳中材料的拉伸应变在3个相互垂直方向上的分量; ν 为材料的泊松比; E 为材料的杨氏模量,不同应力和应变状态下的值可通过拉伸实验来确定^[8]。

假设基体球形包壳满足球形薄壳条件,则拉伸应力的径向分量为0,切向分量相等,球壳的拉伸应变与球壳半径增量成正比,即:

$$x = y = \quad (5)$$

$$z = 0 \quad (6)$$

$$x = y = \frac{r - r_0}{r_0} \quad (7)$$

因此,考虑球形薄壳在二维作用力下应变与应力关系的一阶近似,则有:

$$d = (1 - \nu) \frac{d}{E} \quad (8)$$

燃料相颗粒肿胀产生的内压在基体中引起应力和应变,导致基体的弹性形变和塑性形变,使球形薄壳的半径增加,基体形变容纳燃料相颗粒的体积肿胀。在一定应力的长期作用下,基体将发生蠕变。蠕变降低了基体对燃料颗粒的约束作用,长期蠕变是引起弥散型燃料芯体肿胀的主要原因。一定辐照条件下材料的蠕变可表示为:

$$d_c = c_0 \int^n \exp(c_1 F) \exp(-E_c/kT) dt \quad (9)$$

式中: d_c 为材料的蠕变; c_0 和 n 为通过蠕变实验确定的材料常数; c_1 为材料的辐照注量损伤与裂变密度之间的比例因子; F 为燃料颗粒的裂变密度; E_c 为材料的蠕变激活能; T 为蠕变温度; t 为时间。

在辐照肿胀过程中,内压随裂变气体的积累而增加。在内压作用下,球形包壳发生三维拉伸形变和蠕变,引起球壳半径增加和内压降低。在拉伸形变条件下,球壳的拉伸形变量越大,球壳对燃料颗粒的约束力亦越大。当球壳约束力等于燃料颗粒的内压时,球壳半径不再增加。球壳中应力引起的蠕变是时间的函数,使球壳半径既是辐照状态的函数,又是辐照过程的函数。与三维拉伸形变不同的是,蠕变引起球壳半径增加的同时,不仅不会引起球壳应力的增加,反而引起应力松弛。所以,蠕变引起的球壳半径增加可随时间而减少,但始终不会停止。根据上述分析,在辐照开始时,球壳内半径 $r(0)$ 等于燃料颗粒的原始半径,在辐照后 t 时刻,球壳内半径 $r(t)$ 的变化关系为:

$$dr(t)/r(t) = (1 - \nu) \frac{d}{E} + c_0 \int^n \exp(c_1 F - E_c/kT) dt \quad (10)$$

2 结果与讨论

用上述模型可预测U₃Si₂-Al弥散型燃料元件在一定辐照条件下的辐照肿胀值。其中,燃料元件参数包括:燃料相成份、燃料相颗粒大小分布、芯体中的燃料相体积分数、燃料相颗粒中的孔隙率、基体的拉伸性能和蠕变性能;辐照条件包括:辐照温度、裂变率、辐照时间和裂变密度。图1示出高通量堆辐照条件下用本模型得到的燃料相颗粒的辐照肿胀计算曲线,其中数据点为实验测量值^[9]。计算曲线所显示的辐照肿胀变化趋势与实验测量值符合得很好。

在高通量堆辐照条件下,U₃Si₂燃料相的FDX约为 $3.3 \times 10^{27} \text{ m}^{-3}$ 。在低燃耗条件下(裂变密度<FDX时),裂变气泡的曲率半径小,燃料相表面张力对气体的约束作用大,裂变气体的密度高(近似于固体密度),引起的燃料相肿胀率较低,与非裂变气体产物引起的燃料相肿胀相似;在高燃耗条件下(裂变密度>FDX时),裂变气泡的曲率半径大,燃料相表面张力对气体的约束作用小,裂变气体的密度主要由基体微球包壳的约束来决定。对于图1中燃料相体积

分数为 45 % 的辐照肿胀曲线,燃料相体积分数较大,基体微球包壳的厚度小,燃料相和基体对气体的界面反应对基体的消耗所造成的影响大,基体对气体的约束作用小,燃料相的辐照肿胀随燃耗快速增加。当裂变密度达到约 $5.5 \times 10^{27} \text{ m}^{-3}$ 时,基体对气体的约束作用基本消失,燃料元件出现严重的枕状肿胀。对于图 1 中燃料相体积分数为 14 % 的辐照肿胀曲线,燃料相体积分数较小,基体微球包壳的厚度大,燃料相和基体的界面反应对基体的消耗所造成的影响小,基体对气体的约束作用大,燃料相的辐照肿胀随燃耗增加的速率较小。

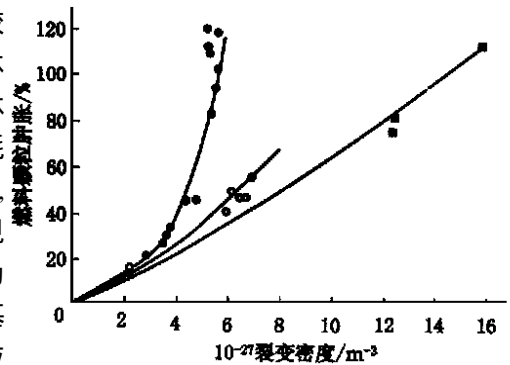


图 1 辐照肿胀的计算值与实验数据的比较

Fig. 1 Comparison of irradiation swelling between calculated and experimental data

燃料相体积分数: —45 %;
—33 %; —14 %

3 结论

根据上述关于弥散型燃料辐照肿胀的主要模型机理、计算结果和实验对照,可得到以下结论:

- 1) 拐点燃耗将辐照肿胀随燃耗的变化分为稳定肿胀阶段和加速肿胀阶段,而它随裂变率的增加而提高,随温度的升高而降低,因此,辐照肿胀亦随裂变率的增加而减少、随温度升高而增加;
- 2) 燃料相和基体之间的界面反应导致基体的消耗和辐照肿胀的增加,温度和裂变密度是增大界面反应速度的重要影响因素;
- 3) 当燃料相体积分数较大时,大气泡的形成和界面反应引起的基体消耗导致了辐照肿胀快速增加;
- 4) 当燃料相体积分数较小时,基体能有效地约束裂变气体,确保在高燃耗下不会出现辐照肿胀快速增加。

参考文献:

- [1] Rest J. The DART Dispersion Analysis Research Tool: A Mechanistic Model for Predicting Fission-product-induced Swelling of Aluminum Dispersion Fuels: ANL-95/36[R]. USA: ANL, 1995.
- [2] Rest J, Snelgrove JL, Hofman GL. DART Model for Thermal Conductivity of U_3Si_2 Aluminum Dispersion Fuel: ANL-MSD/CP-84938[R]. USA: ANL, 1995.
- [3] White DW, Beard AP, Willis AH. Irradiation Behavior of Dispersion Fuels: KAPL-1909[R]. USA: General Electric Company, 1957.
- [4] 唐纳德·奥兰德. 核反应堆燃料元件基本问题(上册)[M]. 北京:原子能出版社,1983. 295~387.
- [5] Rest J, Hofman GL. Dynamics of Irradiation-induced Grain Subdivision and Swelling in U_3Si_2 and UO_2 Fuels [J]. J Nucl Mater, 1994, 210: 187~202.
- [6] Hofman GL, Rest J, Snelgrove JL, et al. Aluminum- U_3Si_2 Interdiffusion and Its Implications for the Performance of Highly Loaded Fuel Operating at Higher Temperatures and Fission Rates: CONF-9610205-5[R]. USA:ANL, 1996.
- [7] 阿加雷 AC. 板壳应力[M]. 北京:中国建筑工业出版社,1986. 165~166.

- [8] 武 恭. 铝及铝合金材料手册[M]. 北京:科学出版社,1994. 193 ~ 205.
- [9] Cahn RW, Haasen P, Kramer EJ. Materials Science and Technology, Vol 10A[M]. New York: Science Press, 1994. 97 ~ 109.

Study on the Irradiation Swelling of U₃Si₂-Al Dispersion Fuel

XIN G Zhong-hu , YIN G Shi-hao

(Key Lab of Nuclear Fuel and Material , Nuclear Power Institute of China , Chengdu 610041 , China)

Abstract :The dominant modeling mechanisms on irradiation swelling of U₃Si₂-Al dispersion fuel are introduced. The core of dispersion fuel is looked to as micro-fuel elements of continuous matrix. The formation processes of gas bubbles in the fuel phase are described through the behavior mechanisms of fission gases. The swelling in the fuel phase causes the interaction between fuel particles and metal matrix , and the metal matrix can restrain the irradiation swelling of fuel particles. The developed code can predict irradiation-swelling values according to the parameters of fuel elements and irradiation conditions , and the predicted values are in agreement with the measured results.

Key words :grain subdivision ; interface reaction ; creep ; swelling

原子、分子和光物理学进展

Advances in Atoms , Molecular and Optical Physics

编者 :Benjamin Bederson。1999 年科学出版社出版。

本书内容如下 :

1. 轻子的电偶极矩。介绍了 EDMS 的理论模型、 μ 子 EDM、电子 EDM 以及中微子的磁电偶极矩。
2. 锂原子的基态和激发态的高精确计算。介绍了非相对论性能量和超精细耦合常数。
3. 存储环激光光谱。介绍了重离子存储的特性和电子冷却器中的激光实验。
4. 固体的激光冷却。介绍了掺杂镱的 ZBLANP 玻璃的激光冷却和荧光冷却的工作物质。
5. 光图样形成。介绍了有关 OPF 的一般特性、量子涨落以及空穴中的 DPF 和孤子结构。

摘自中国原子能科学研究院《科技信息》