

包覆燃料颗粒尺寸及其标准偏差对 失效概率的影响

张永栋^{1,2} 林俊¹ 张海青¹ 朱智勇¹

1 (中国科学院上海应用物理研究所 嘉定园区 上海 201800)

2 (中国科学院大学 北京 100049)

摘要 三结构同向性型(Tristructural isotropic, TRISO)包覆燃料颗粒是目前高温气冷堆和固态燃料熔盐堆采用的燃料元件。TRISO 包覆燃料颗粒破损会导致裂变产物不可接受的释放, 由此影响反应堆的安全运行。基于 TRISO 包覆燃料颗粒压力壳式破损模型, 分析了 TRISO 包覆燃料颗粒核芯和各包覆层的尺寸对失效概率的影响, 研究了 TRISO 包覆燃料颗粒核芯半径、疏松热解碳(Buffer)层厚度和碳化硅(SiC)层厚度的合理设计范围。同时, 利用随机抽样统计的方法分析了 TRISO 包覆燃料颗粒核芯半径分布和各包覆层厚度分布对颗粒失效概率的影响。研究发现, 降低 Buffer 层厚度分布的标准差至 16 μm 可以使 TRISO 包覆燃料颗粒的失效概率降低一个数量级。

关键词 TRISO 包覆燃料颗粒, 压力壳破损, TRISO 包覆燃料颗粒尺寸, 标准偏差

中图分类号 TL352

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.120603

Influence of particle size and its standard deviation on failure probability of coated fuel particles

ZHANG Yongdong^{1,2} LIN Jun¹ ZHANG Haiqing¹ ZHU Zhiyong¹

1(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Jiading Campus, Shanghai 201800, China)

2(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract Background: Tristructural isotropic (TRISO) coated fuel particles are used as fuel carrier for high-temperature gas-cooled reactors and solid-fuel-molten-salt reactors. The failure of the TRISO coated fuel particles can result in unacceptable release of fission products. **Purpose:** The distribution of the kernel radius and coating layer thickness could impact the failure probability of the TRISO particles. **Methods:** The influence of the distribution of the kernel radius and coating layer thickness on the failure probability was also analyzed by random sampling. **Results:** The design of the kernel radius, Buffer PyC layer thickness as well as the SiC thickness affect the TRISO coated fuel particles failure probability much heavier. **Conclusion:** It is found that the failure probability of the TRISO coated fuel particles can be reduced by one order of magnitude when the standard deviation of the distribution of the Buffer PyC layer thickness is reduced to 16 μm .

Key words TRISO coated fuel particles, Pressure vessel failure, TRISO coated fuel particle size, Standard deviation

中国科学院战略先导科技专项(No.XDA02030200)资助

第一作者: 张永栋, 男, 1991 年出生, 2013 年毕业于广西大学, 现为硕士研究生, 研究领域为核技术及应用

通信作者: 朱智勇, E-mail: zhuzhiyong@sinap.ac.cn; 林俊, E-mail: linjun@sinap.ac.cn

Supported by Strategic Priority Program of Chinese Academy of Sciences (No.XDA02030200)

First author: ZHANG Yongdong, male, born in 1991, graduated from Guangxi University in 2013, master student, focusing on nuclear technology and application

Corresponding author: ZHU Zhiyong, E-mail: zhuzhiyong@sinap.ac.cn; LIN Jun, E-mail: linjun@sinap.ac.cn

收稿日期: 2016-09-01, 修回日期: 2016-11-07

自 20 世纪 50 年代以来, 与高温气冷堆相关的包覆颗粒燃料的设计和研发一直是人们关注的重点领域。德国于 20 世纪 70 年代末, 率先成功研制三结构同向性型(Tristructural isotropic, TRISO)包覆燃料颗粒并实现其工业化应用, 极大地促进了高温气冷堆的发展。TRISO 包覆燃料颗粒由中心燃料核芯外面包覆 4 层包覆层构成, 包覆层物质分别为热解碳和 SiC, 其中 SiC 层对燃料的安全起到至关重要的作用。21 世纪以来, 随着安全、高效、核废料最小化、防核扩散等四代核能概念的提出, 人们对包覆颗粒燃料提出了新的更高的要求, 因此对包覆颗粒结构和性能的研究成为研究的热点。

导致 TRISO 颗粒破损的可能机制有多种, 如制造产生的破损、压力壳式破损、阿米巴效应、Pd 对碳化硅层的腐蚀、SiC 层的热分解等^[1-2]。前期大量的研究发现, 在现有反应堆的工况下, TRISO 颗粒破损的机制主要是压力壳式破损, 其中燃料和温度是影响包覆颗粒燃料压力壳式破损的主要因素。在燃料和温度确定的情况下, 破损率直接与 TRISO 颗粒的结构和几何参数相关。

曹建主等^[3]通过分析发现核芯半径、Buffer 层厚度和 SiC 层厚度对失效概率的影响较为显著。由于制造工艺的原因, TRISO 颗粒核芯半径和包覆层厚度围绕设计尺寸存在一定的分布^[4], 这同样可能对颗粒破损产生影响。

为了定量分析 TRISO 颗粒尺寸及其分布对失效概率的影响, 本文利用气体内压为主并考虑致密热解碳蠕变和收缩作用的压力壳式失效模型, 计算分析了 TRISO 颗粒核芯尺寸、Buffer 层厚度、SiC 层厚度的变化对失效概率的影响, 由此得到失效概率安全限值为 5×10^{-4} 时, 一定工况下 TRISO 颗粒核芯尺寸、Buffer 层厚度、SiC 层厚度合理的设计范围; 同时计算分析了 TRISO 颗粒核芯半径和包覆层厚度的分布对失效概率的影响。

1 TRISO 颗粒模型参数

TRISO 颗粒结构如图 1 所示, 其中心为燃料核芯, 是裂变发生区域, 在反应堆运行过程中会产生裂变气体以及 CO 等气体; 第一包覆层为疏松热解碳层(即 Buffer 层), 其为多孔结构, 能够储存裂变气体和 CO、CO₂; 第二层为内致密热解碳层(IPyC 层), 其主要为 SiC 层提供沉积基面; 第三层为碳化硅层(SiC 层), 起到阻挡裂变产物释放以及保持颗粒完整性的关键作用; 第四层为外致密热解碳层(OPyC 层), 其能够对 SiC 层起到保护作用^[1]。

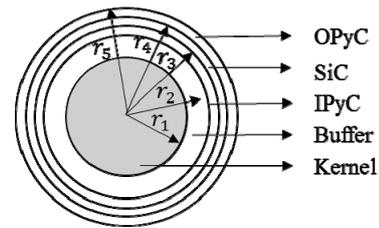


图 1 TRISO 颗粒结构示意图

Fig.1 Schematic view of TRISO coated fuel particle structure.

TRISO 颗粒的核芯和包覆层分别通过溶胶-凝胶法和化学气相沉积法制得。由于制造工艺的原因, 导致核芯和包覆层的尺寸与设计尺寸存在一定的偏差, 这种偏离服从正态分布, 如图 2 所示。经计算得, 核芯半径、Buffer 层、IPyC/OPyC 层以及 SiC 层厚度分布的标准差分别为 12.76 μm 、22.96 μm 、10.20 μm 、5.10 μm 。

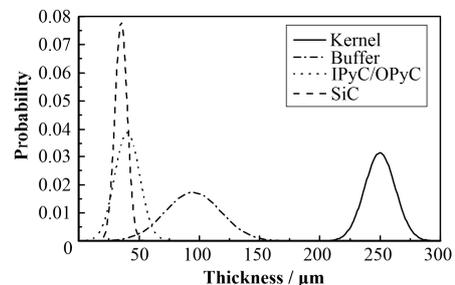


图 2 TRISO 颗粒核芯半径和包覆层厚度分布

Fig.2 Distribution of TRISO coated fuel particles kernel radius and coating layer thickness.

2 TRISO 颗粒破损分析模型和方法

2.1 压力壳式破损模型

TRISO 颗粒的压力壳模型把包覆燃料颗粒当作一个微小的压力容器, 同时假设 SiC 层是唯一的承载层。随着燃料的不断消耗, SiC 层受到的应力不断增加, 同时 SiC 层在热和中子辐照的作用下性能不断降低。当 SiC 层受到的应力超过了其拉伸强度时, SiC 层破裂, 包覆燃料颗粒失效^[2]。影响包覆颗粒压力壳式破损的因素包括辐照时间(燃料)、辐照温度、快中子注量、包覆颗粒材料性能及结构尺寸等。包覆燃料颗粒失效概率与辐照时间以及辐照温度的关系如式(1)^[1,5]:

$$f(t, T) = 1 - \exp[-\ln 2 \times (\sigma_t / \sigma_o)^m] \quad (1)$$

式中: σ_o 表示辐照 t 时间后 SiC 层的抗拉强度; m 为 SiC 层的 weibull 参数; σ_t 为 SiC 层受到的切向应力。这些参量均是温度以及快中子注量的函数, 可以通过 PANAMA 程序计算得到^[1]。PANAMA 模型

在计算 σ_t 时仅考虑了气体内压的作用，实际情况下 SiC 层受到的应力如图 3 所示，即除气体内压外，内外致密热解碳的蠕变和收缩也会对 SiC 层产生影响，因此本文在计算 SiC 层受到的切向应力 σ_t 时采用式(2)进行^[4]：

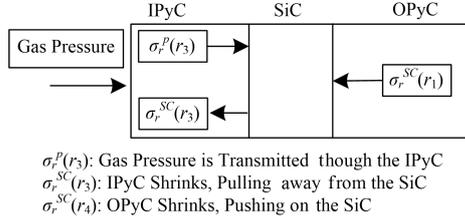


图 3 SiC 层受到的应力示意图^[6]
 Fig.3 Schematic view of stress in the SiC layer^[6].

$$\sigma_t = \frac{1}{r_4^3 - r_3^3} [\sigma_r^b r_4^3 - \sigma_r^a r_3^3 + \frac{1}{2} (\sigma_r^b - \sigma_r^a) r_4^3] \quad (2)$$

其中：

$$\sigma_r^a = \sigma_r^p(r_3) + \sigma_r^{SC}(r_3); \quad \sigma_r^b = \sigma_r^{SC}(r_4)$$

式中： r_3 、 r_4 为 SiC 层的内外表面所对应的半径（图 1）； $\sigma_r^p(r_3)$ 、 $\sigma_r^{SC}(r_3)$ 、 $\sigma_r^{SC}(r_4)$ 物理含义如图 3 所示，计算公式如下：

$$\sigma_r^p(r_3) = \frac{-3(1-\mu)P}{1+\mu+2(1-2\mu)(r_3/r_2)^3} \quad (3)$$

$$\sigma_r^{SC}(r_j) = \frac{2(W_j-1)(\dot{S}_r + 2\dot{S}_t) + 3G_j(\dot{S}_r - \dot{S}_t)}{3C(2W_j(1-\nu) - (1+\nu))} \quad (4)$$

式中： P 为 TRISO 颗粒内部的气体内压； μ 为致密

热解碳的泊松因子（约 0.33）； \dot{S}_r 和 \dot{S}_t 为致密热解碳在辐照作用下沿径向和切向尺寸的变化率； C 为蠕变系数； $\nu=0.5$ 为蠕变泊松比；关于 W_j 和 G_j 的计算：当 $j=3$ 、 $r_i=r_3$ 时， $W_3=(r_3/r_2)^3$ ， $G_3=\ln(r_2/r_3)$ ；当 $j=4$ 、 $r_i=r_4$ 时， $W_4=(r_4/r_5)^3$ ， $G_4=\ln(r_5/r_4)$ 。

2.2 随机抽样法

制造工艺导致 TRISO 颗粒核芯半径和包覆层厚度与设计尺寸存在偏差，这种偏差服从如图 2 所示的正态分布。为了研究 TRISO 颗粒核芯半径和包覆层厚度分布对失效概率的影响，采用随机抽样的方法进行计算。

若同时考虑核芯半径以及包覆层厚度分布对失效概率的影响，采用全随机抽样法，即分别随机产生 10 000 个服从图 2 分布的核芯半径、Buffer 层厚度、IPyC 层厚度、SiC 层厚度、OPyC 层厚度，由此产生 10 000 个尺寸各异的 TRISO 颗粒。通过 TRISO 颗粒压力壳破损模型计算该 10 000 个颗粒的失效概率，并对失效概率进行统计平均。该方法流程如图 4(a)所示。

若仅考虑某一包覆层（核芯半径）尺寸分布的影响时，则采用部分随机抽样法，即随机产生 10 000 个服从某一包覆层厚度（或核芯半径）分布的尺寸，其它包覆层厚度（或核芯半径）采用设计尺寸，由此组成 10 000 个某一层（或核芯）尺寸不同的 TRISO 颗粒。通过利用 TRISO 颗粒压力壳破损模型计算该 10 000 个颗粒的失效概率，并对失效概率进行统计平均。该方法流程如图 4(b)所示。

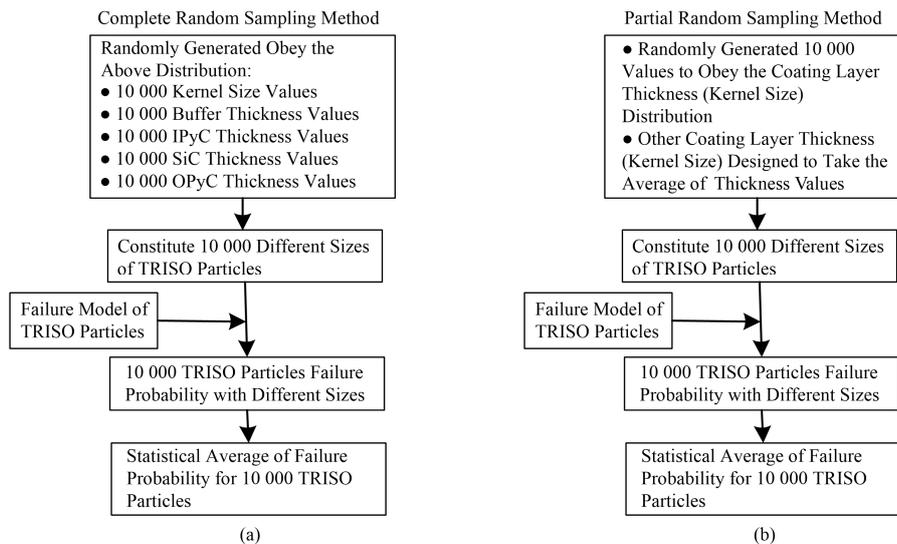


图 4 全随机抽样法(a)和部分随机抽样法(b)
 Fig.4 Complete random sampling method (a) and partial random sampling method (b).

3 计算结果与分析

3.1 计算参数

德国建造的电功率为 300 MW 的高温钍堆原型核电站 THTR-300 是最早采用 TRISO 颗粒的反应堆之一, 其正常运行工况下燃料的最高温度为 1250 °C。本工作计算中取辐照时间 1000 d, 快中子注量达到 $3.02 \times 10^{25} \text{ n} \cdot \text{m}^{-2} (E > 0.1 \text{ MeV})$, 燃料燃料达到约 9% FIMA (Fission per initial metal atom), 利用 TRISO 颗粒压力壳式失效模型计算分析了核心半径、Buffer 层和 SiC 层厚度及其分布对包覆颗粒失效概率的影响^[1,7-8]。

3.2 包覆燃料颗粒尺寸对失效概率的影响

包覆颗粒失效概率随核心半径的变化规律如图 5 所示。由于核心是裂变气体 Xe 和 Kr 以及 CO 等的产生区域, 核心尺寸越小, 在同等燃料下气体的产生量就越少, 相应 SiC 层承受的气体压力越小, 从而 TRISO 颗粒的失效概率就越小。由图 5 可见, 当核心半径减小至 200 μm 以下时, 失效概率趋于 0, 而当核心半径大于 500 μm 时失效概率趋于 1。对失效概率随核心半径变化的曲线求一阶导数, 得到失效概率变化率的变化曲线如图 5 所示。当核心半径减小至 250 μm 以下时, 失效概率的变化率趋缓, 同时失效概率降至 2.78×10^{-4} 以下, 满足 THTR-300 反应堆设计对包覆颗粒失效概率的要求。

可见, 从安全角度考虑核心半径可以设计为 250 μm 或更小的尺寸。朱贵凤^[9]通过研究发现, 对于 UO_2 核芯的 TRISO 颗粒而言, 当半径小于 200 μm 时, 由于空间自屏蔽效应, 燃料的有效燃耗深度将明显减少; Maki 等^[8]也提到, 若核芯的半径过小, 由于减小了裂变产物向外扩散的距离, 不利于裂变产物在核芯中的滞留。综合考虑上述各种因素, 我们认为核心半径可以设计在 200–250 μm 范围内, 目前设计中将核心半径设为 250 μm 是合理的。

包覆颗粒失效概率随 Buffer 层厚度的变化规律如图 6 所示。Buffer 层为裂变气体和 CO 等气体提供了存储空间, 减小 Buffer 层厚度会导致用于储存气体的空间减小, 这会使气体压力增大, 失效概率相应增加。由图 6 可见, 在本文的计算条件下, 当 Buffer 层厚度小于 20 μm 时失效概率趋于 1, 而当 Buffer 层厚度大于 120 μm 时失效概率会降至 5×10^{-4} 以下。对失效概率曲线求一阶导数, 得到失效概率变化率的变化曲线, 结果显示, Buffer 层厚度大于 90 μm 时, 失效概率的变化率随 Buffer 层厚度的变

化趋于平缓, 同时失效概率满足安全限值。因此, Buffer 层厚度可以设计在大于 90 μm 的范围, 目前 Buffer 层厚度设计为 95 μm 是合理的。

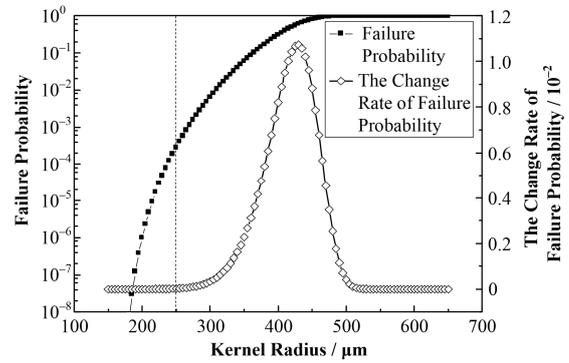


图 5 失效概率及失效概率变化率随核心半径的变化
Fig.5 Failure probability and its change rate as a function of kernel radius.

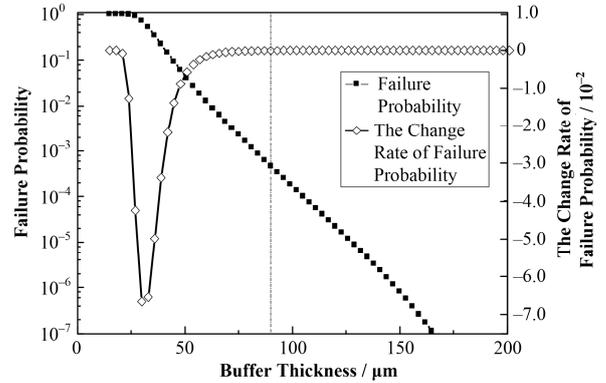


图 6 失效概率及失效概率变化率随 Buffer 层厚度的变化
Fig.6 Failure probability and its change rate as a function of Buffer thickness.

包覆颗粒失效概率随 SiC 层厚度的变化规律如图 7 所示。SiC 层是 TRISO 颗粒主要的承压层, 减小 SiC 层厚度使其强度降低, 从而使得 TRISO 颗粒的安全性降低。由图 7 可见, 在本文的计算条件下, 当 SiC 层厚度小于 4 μm 以下时包覆颗粒的失效概率趋于 1, 而当 SiC 层厚度大于 100 μm 时失效概率降至 10^{-6} 以下。对失效概率随 SiC 层厚度的变化曲线求一阶导数, 得到失效概率变化率的变化曲线如图 7 所示, 结果显示, 当 SiC 层厚度大于 32 μm 后, 失效概率随 SiC 层厚度的变化趋于平缓, 同时失效概率也满足安全限值。可见, SiC 层厚度可以设计在大于 32 μm 的范围。虽然进一步增加 SiC 层厚度会改善包覆颗粒燃料的安全性, 但考虑到制造成本和工艺要求, 目前将 SiC 层的厚度设计为 35 μm 是比较合理的。

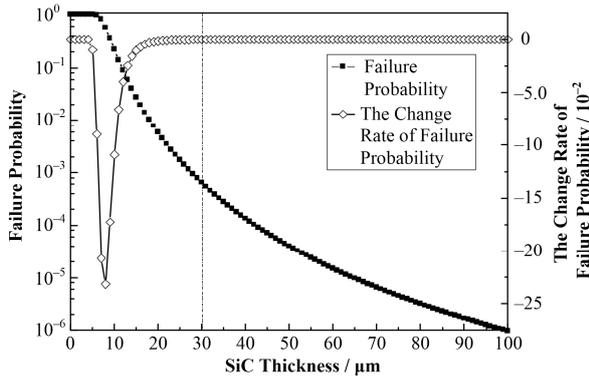


图7 失效概率及失效概率变化率随 SiC 层厚度的变化
Fig.7 Failure probability and its change rate as a function of SiC thickness.

3.3 包覆燃料颗粒制造工艺对失效概率的影响

由于制造工艺的原因导致 TRISO 颗粒核芯半径和包覆层厚度在最可几值附近存在一定的分布，

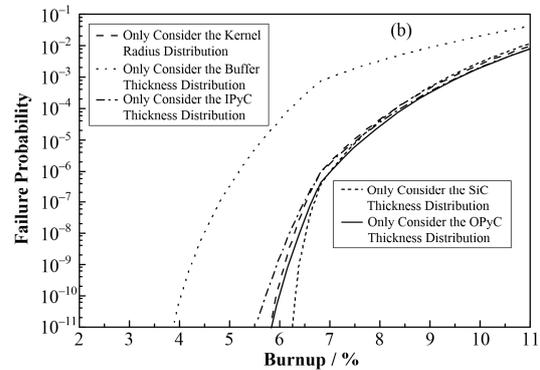
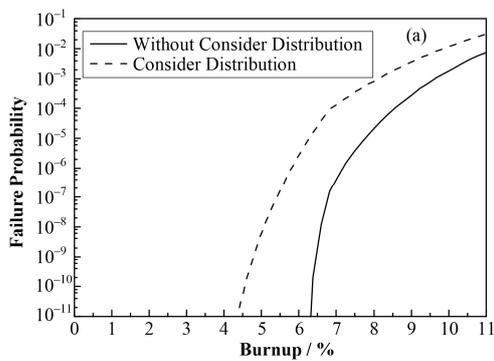


图8 核芯半径和包覆层厚度分布对失效概率的影响随燃耗的变化 (a) 全随机抽样法, (b) 部分随机抽样法
Fig.8 Influence of the distribution of kernel radius and coating layer thickness on the failure probability as a function of burnups. (a) Complete random sampling method, (b) Partial random sampling method

目前的制造工艺下，Buffer 层厚度分布的标准偏差为 22.96 μm ，对 TRISO 颗粒失效概率的影响较为显著。利用部分随机抽样的方法，计算了 Buffer 层厚度分布标准偏差与失效概率之间关系，结果如图 9 所示。

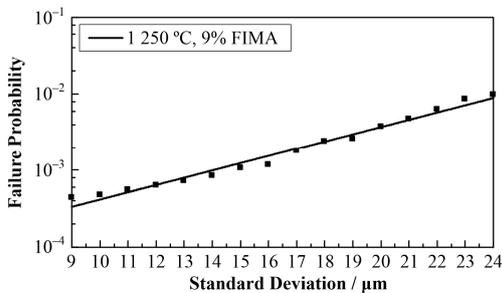


图9 Buffer 层厚度分布标准偏差对失效概率的影响
Fig.9 Effect of the standard deviation of Buffer PyC layer thickness distribution on the failure probability.

这会影响到 TRISO 颗粒失效概率的计算^[10]。目前由 TRISO 颗粒制造工艺导致的核芯半径和包覆层厚度分布如图 2 所示。在 §3.1 所述的堆参数条件下，利用全随机抽样的方法，计算了 TRISO 核芯半径和包覆层厚度分布对失效概率的影响，结果如图 8(a) 所示。由图 8(a) 可见，考虑分布的影响后计算的失效概率要相比不考虑分布计算得到的失效概率高 1-2 个数量级，这种差异在低燃耗时更为突出。

为了比较 TRISO 颗粒核芯半径和各包覆层厚度分布对失效概率影响程度，采用部分随机抽样的方法计算了单独考虑核芯半径和各包覆层厚度分布时失效概率的变化规律 (图 8(b))。计算结果显示，Buffer 层厚度分布远比核芯半径分布和其它包覆层厚度分布对失效概率的影响要大。图 8(a) 中失效概率的差异应主要来源于 Buffer 层厚度的分布。

可见，若 Buffer 层厚度分布的标准偏差降低至 16 μm 以下时，包覆颗粒的失效概率能够降低一个数量级。因此，可以通过提高 TRISO 颗粒的制造工艺，降低 Buffer 层厚度分布的标准差来达到降低 TRISO 颗粒失效概率的目的。

4 结语

在反应堆运行环境中，TRISO 颗粒的安全性是人们关注的问题之一。本文基于 TRISO 颗粒的压力壳式破损机制，同时考虑致密热解碳蠕变和收缩作用，分析了燃料核芯、Buffer 层以及 SiC 层尺寸变化对失效概率的影响，同时利用随机抽样的方法计算了 TRISO 颗粒核芯和包覆层尺寸分布对失效概率的影响。研究发现，TRISO 颗粒核芯及各包覆层尺寸的设计与燃料使用中允许的失效限值紧密相关，通过提高制造工艺降低 Buffer 层厚度分布的标

准偏差至 16 μm 以下,可以使现有 TRISO 颗粒的失效概率降低一个数量级。

参考文献

- 1 唐春和. 高温气冷堆燃料元件[M]. 北京: 化学工业出版社, 2007
TANG Chunhe. High temperature gas cooled reactor fuel element[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2007
- 2 杨林, 刘兵, 邵友林, 等. 高温气冷堆包覆燃料颗粒破损机制及失效模型[J]. 核科学与工程, 2010, 30(3): 210–215
YANG Lin, LIU Bing, SHAO Youlin, *et al.* Failure mechanism and failure model of high temperature gas cooled reactor[J]. Nuclear Science and Engineering, 2010, 30(3): 210–215
- 3 曹建主, 奚树人. PANAMA 程序及其在 10 MW 高温气冷实验堆安全分析中的应用[J]. 核动力工程, 1998, 19(2): 162–167
CAO Jianzhu, XI Shuren. PANAMA program and its application in the safety analysis of 10 MW high temperature gas cooled reactor[J]. Nuclear Power Engineering, 1998, 19(2): 162–167
- 4 Verfondern K. Advances in HTGR fuel technology[R]. IAEA-TECDOC-1674, Vienna, 2012
- 5 Sawa K, Shiozawa S, Minato K, *et al.* Development of a coated fuel particle failure model under high burnup irradiation[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 1996, 33(9): 712–720
- 6 Powers J J, Wirth B D. A review of TRISO fuel performance models[J]. Journal of Nuclear Materials, 2010, 405(1): 74–82. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2010.07.030
- 7 Petti D A, Buongiorno J, Maki J T, *et al.* Key differences in the fabrication, irradiation and high temperature accident testing of US and German TRISO-coated particle fuel, and their implications on fuel performance[J]. Nuclear Engineering and Design, 2003, 222(2): 281–297. DOI: 10.1016/S0029-5493(03)00033-5
- 8 Maki J T, Petti D A, Knudson D L, *et al.* The challenges associated with high burnup, high temperature and accelerated irradiation for TRISO-coated particle fuel[J]. Journal of Nuclear Materials, 2007, 371(1): 270–280. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2007.05.019
- 9 朱贵凤. 氟盐冷却球床高温堆钍利用研究[D]. 上海: 中国科学院上海应用物理研究所, 2015
ZHU Guifeng. Investigation on thorium used in pebble-bed fluoride salt-cooled high temperature reactor[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, 2015
- 10 张永栋, 林俊, 朱天宝, 等. 球形燃料元件温度分布对包覆燃料颗粒失效概率的影响[J]. 核技术, 2016, 39(1): 010603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.010603
ZHANG Yongdong, LIN Jun, ZHU Tianbao, *et al.* Effects of temperature distribution on failure probability of coated particles in spherical fuel elements[J]. Nuclear Techniques, 2016, 39(1): 010603. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.010603