

失水事故工况自主化新型锆合金包壳高温热-机械行为特性试验研究

郭晓明^{1,2}, 钱立波², 罗跃进²

(1. 西安交通大学, 陕西 西安 710049)

(2. 中国核动力研究设计院 核反应堆技术全国重点实验室, 四川 成都 610041)

摘要: 针对自主化新型锆合金包壳开展了失水事故工况高温热-机械行为特性试验, 包括高温氧化、高温塑性变形、高温爆破以及脆化失效等, 获得了自主化锆合金包壳失水事故关键行为特性。自主化新型锆合金包壳高温氧化试验结果表明, 在氧化温度高于1000℃工况下, 自主化锆合金包壳高温氧化速率与ZIRLO、M5及Zr-4包壳相当, 且可采用Cathcart-Pawel氧化模型估算; 自主化新型锆合金包壳高温塑性变形试验和高温爆破试验结果表明, 自主化锆合金包壳高温爆破温度略低于高温塑性变形爆破温度, 自主化新型锆合金包壳高温爆破应变显著低于M5及Zr-4包壳, 这大大降低了失水事故过程中燃料组件阻塞率, 有利于缓解失水事故后果; 自主化新型锆合金包壳脆化失效试验结果表明, 自主化锆合金包壳脆化失效准则满足“峰值包壳温度 $\leq 1204^{\circ}\text{C}$ 并且最大包壳氧化率 $\leq 17\%$ ”要求。

关键词: 自主化新型锆合金包壳; 失水事故; 高温热-机械特性; 安全特性评估

中图分类号: TL341; TG146.4⁺14

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2025)07-1802-08

1 引言

锆合金具有中子吸收截面低、良好的耐高温高压水腐蚀性能、良好的综合力学性能和较高的导热性能等优点^[1], 广泛应用于压水反应堆核燃料元件包壳材料。作为反应堆第1道安全屏障, 锆合金包壳事故工况的行为特性是确保堆芯可冷却几何的关键影响因素。影响燃料包壳安全特性的假想事故包括失水事故及功率-冷却失配事故^[2], 其中大破口失水事故是影响燃料元件事故安全特性的最重要的设计基准事故之一。

失水事故过程中锆包壳会经历极其复杂的热-机械条件^[2], 主要包括: (1) 包壳高温氧化。锆包壳与水蒸汽发生高温氧化反应, 产生大量氧化热, 并释放氢气。(2) 包壳高温蠕变鼓胀。失水事故工况下一回路系统快速卸压, 包壳内外压差会导致包壳高温蠕变、鼓胀甚至爆破。(3) 包壳高温爆破。当包壳内外压差导致的包壳应变或应力超过爆破限值时, 包壳爆破。(4) 包壳脆化失效。包壳氧化会显著影响包壳机械性能, 骤冷过程中的热冲击可能导致包壳脆化失效。

失水事故工况下锆包壳瞬态行为特性会影响反应堆事故安全特性, 目前, 国内外广泛应用的锆合金包壳, 如Zr-4包壳^[3-4]、M5包壳^[5-6]及ZIRLO包壳^[7]等也均系统的开

展了LOCA工况行为特性试验, 为失水事故分析提供了关键基础模型。此外, 失水事故关键行为特性试验研究是自主化燃料工程应用必须开展的堆外试验之一。基于此, 本研究主要针对自主化新型锆合金包壳开展高温氧化、高温塑性变形、高温爆破和脆化失效试验研究, 以获得其失水事故工况关键行为特性, 支撑自主化新型锆合金包壳的工程应用。

2 锆合金包壳高温氧化试验

2.1 实验

自主化新型锆合金包壳高温氧化试验采用名义尺寸为 $\Phi 9.5\text{ mm} \times 0.57\text{ mm}$ 的包壳管试样。试验采用电阻加热, 试验时将蒸汽发生器产生的水蒸汽导入加热腔, 使试样快速升温至氧化温度, 经氧化特定时间后, 使试样按照设定的降温速率冷却至 800°C , 随后淬火。图1给出了高温氧化试验装置示意图。试验中水蒸气流速范围 $0.8 \sim 30.0\text{ mg} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 满足避免“蒸汽缺乏”的试验条件要求^[8]。

2.2 结果及评估

图2为自主化新型锆合金包壳高温氧化试验结果。可见, 除 1000°C 温度工况高温氧化速率略低于Cathcart-Pawel模型^[9]计算结果外, 其余温度工况下自主化新型锆

收稿日期: 2024-11-01

基金项目: 国家重点研发计划(2022YFB1902400)

作者简介: 郭晓明, 男, 1984年生, 硕士, 教授级高级工程师, 西安交通大学, 陕西 西安 710049, E-mail: guoxiaoming@npic.ac.cn

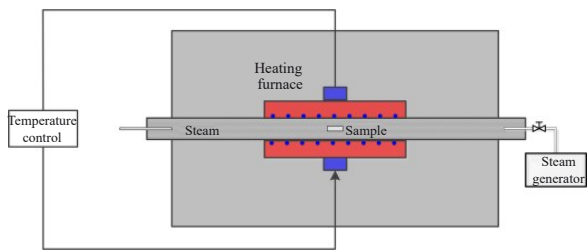


图1 高温氧化试验装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of high-temperature oxidation test device

合金包壳高温氧化速率与 Cathcart-Pawel 模型计算结果相近,均显著低于 Baker-Jus 模型^[10]计算结果。因此,自主化新型锆合金包壳工程化应用时,可采用 Cathcart-Pawel 模型估算不同温度下自主化新型锆合金包壳氧化率,可采用 Baker-Just 模型计算的包壳氧化率作为包络结果。

图2为自主化新型锆合金包壳高温氧化试验结果与 Zr-4 包壳^[11]、ZIRLO 包壳^[11]、M5 包壳^[11]等对比。可见,对 1000 °C 工况,自主化新型锆合金包壳高温氧化速率显著低于 Zr-4 包壳^[12],略高于 M5 包壳,但与 ZIRLO 包壳基本相当;对其余氧化温度(>1000 °C)工况,自主化新型锆合金包壳高温氧化速率略优于 Zr-4 包壳^[12]、与 ZIRLO 包壳和 M5 包壳均基本相当。

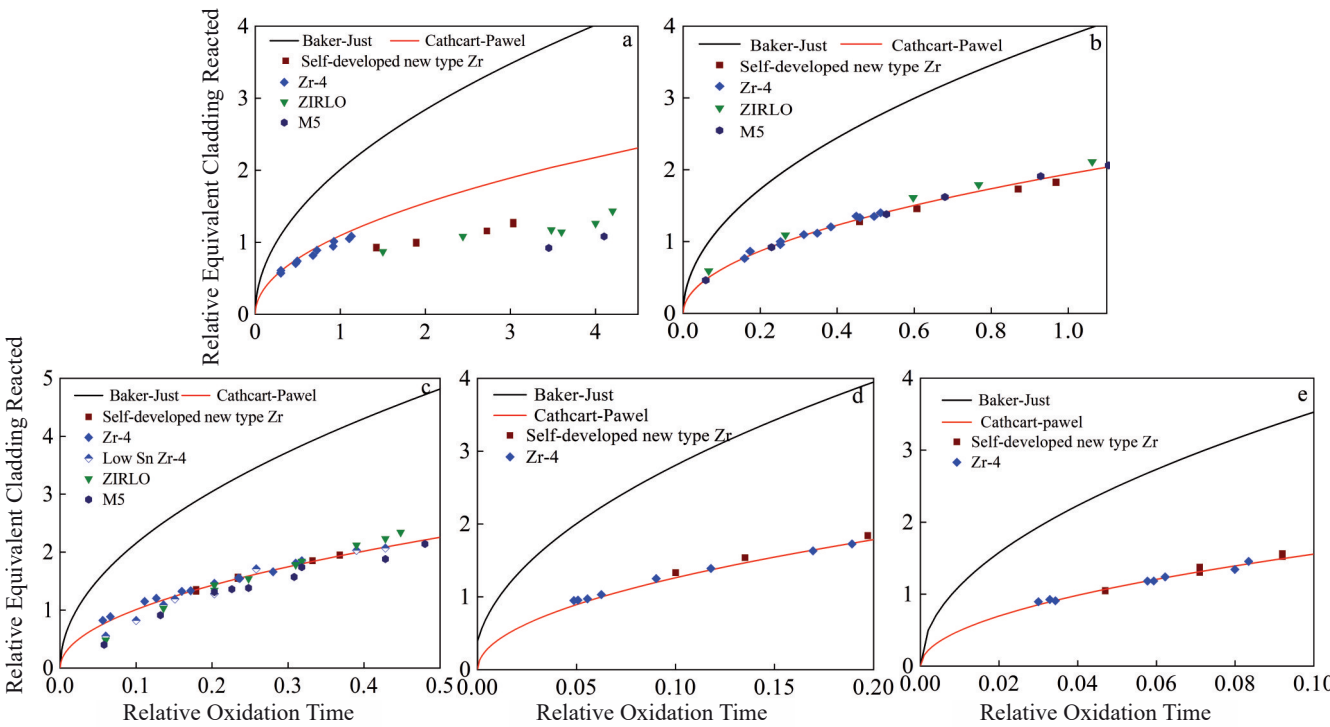


图2 自主化新型锆合金包壳高温氧化试验结果

Fig.2 High-temperature oxidation test results of self-developed new type zirconium cladding at different temperatures: (a) 1000 °C, (b) 1100 °C, (c) 1200 °C, (d) 1250 °C, and (e) 1300 °C

3 锆合金包壳高温塑性变形试验

3.1 实验

自主化新型锆合金包壳高温塑性变形试验采用名义尺寸为 $\Phi 9.5\text{ mm}\times 0.57\text{ mm}$ 的包壳管试样。试验时蒸汽发生器产生的蒸汽使试样处于水蒸气环境中,试样采用电流直接加热使试样升温并保温;包壳管试样内通惰性气体,并连接稳压装置实现恒定压力;采用红外测温仪测控试样温度,并采用激光测径仪实时在线测量包壳试样外径,直至包壳爆破。图3给出了锆合金包壳高温塑性变形试验装置示意图。

图4给出了典型高温塑性变形工况下自主化新型锆合金包壳直径、温度及内压变化曲线。图5给出了试样高温塑性变形(蠕变)试验前后对比。

3.2 实验结果

3.2.1 自主化新型锆合金包壳高温塑性变形速率

锆合金包壳高温塑性变形遵循 Norton 蠕变方程^[5]:

$$\dot{\epsilon}_s = A\sigma^n e^{-Q/RT} \quad (1)$$

式中, $\dot{\epsilon}_s$ 为稳态蠕变速率, s^{-1} ; σ 为环向应力,MPa; A 为 Norton 蠕变方程系数, n 为应力指数; Q 为名义蠕变激活能,J/mol; R 为理想气体常数,J/(mol·K); T 为包壳温度,K。特定温度下,式(1)可改写为:

$$\dot{\epsilon}_s = A'\sigma^n \quad (2)$$

式中, A' 及应力指数 n 可通过试验数据拟合获得。

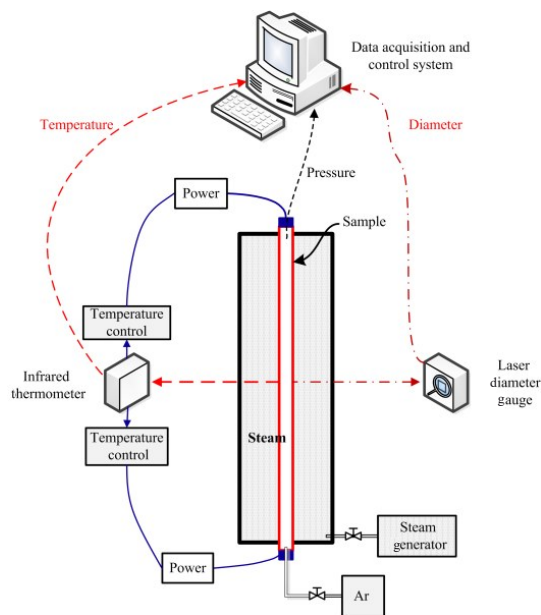


图3 锆合金包壳高温塑性变形试验装置示意图

Fig.3 Schematic diagram of high-temperature plastic deformation test device for zirconium cladding

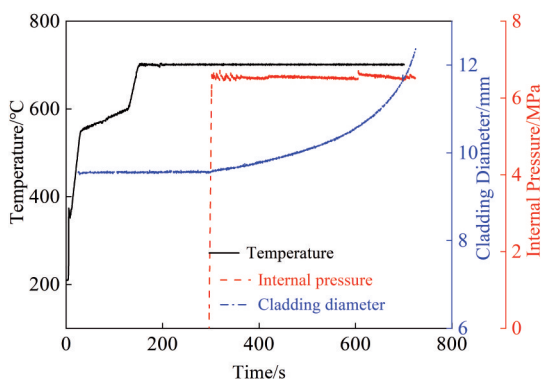


图4 典型工况下自主化新型锆合金包壳高温塑性变形试验曲线

Fig.4 High-temperature plastic deformation curves of self-developed new type zirconium cladding under typical working conditions



图5 自主化新型锆合金包壳高温塑性变形前后样品

Fig.5 Samples before (a) and after (b) high-temperature plastic deformation experiment

图6给出了包壳温度为700℃、包壳内压为6.5 MPa下的包壳高温塑性变形速率曲线及拟合结果,图中红色实线斜率即为该工况下直径变化速率。

图7给出了典型温度工况(600~900℃)下自主化新型锆合金包壳高温塑性变形速率模型。

与目前商用锆合金包壳高温塑性变形特性一致,随着温度增加,自主化锆合金包壳高温塑性变形速率增加,且自主化锆合金包壳高温塑性变形速率小于M5包壳^[5]和Zr-4包壳^[5]。

3.2.2 锆合金包壳高温塑性变形爆破应变对比分析

图8给出了自主化新型锆合金包壳高温塑性变形爆破应变。可见,当包壳温度约为800℃时,高温塑性变形爆破周向应变出现峰值,该温度对应锆合金由 α 相向 β 相开始转变温度,包壳延性开始降低直至完全转化为 β 相,此时,高温塑性变形爆破应变降至最低。图8同时给出了高温塑性变形爆破应变与M5包壳^[5]和Zr-4包壳^[5]对比。可见,自主化新型锆合金包壳高温塑性变形爆破应变值显著低于M5包壳和Zr-4包壳,这与自主化锆合金包壳高温塑性变形速率低于M5包壳和Zr-4包壳的试验结果一致,这有助于降低失水事故过程中组件流动堵塞,有助于缓解失水事故后果。

4 锆合金包壳高温爆破试验

4.1 实验

自主化锆合金包壳高温爆破试样由包壳管加工成一定长度,内部填充模拟燃料芯块,试验采用加热炉加热,图9给出了高温爆破试验装置示意图。自主化锆合金包壳试样爆破前后的实物图如图10所示。爆破试验完成后,采用三维扫描方法测量包壳高温爆破最大周长、破口面积、破口长度等数据,如图11所示。

4.2 实验结果

4.2.1 高温爆破温度实验结果

图12给出了自主化新型锆合金包壳高温蠕变爆破

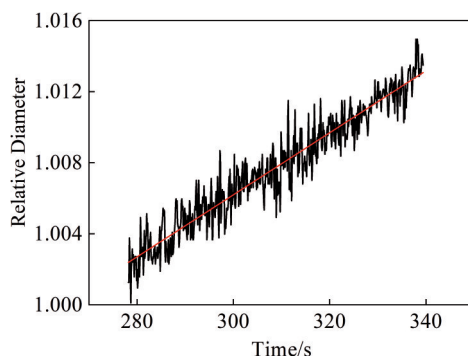


图6 自主化新型锆合金包壳高温塑性变形速率示意图

Fig.6 Schematic diagram of high-temperature plastic deformation rate of self-developed new type zirconium cladding

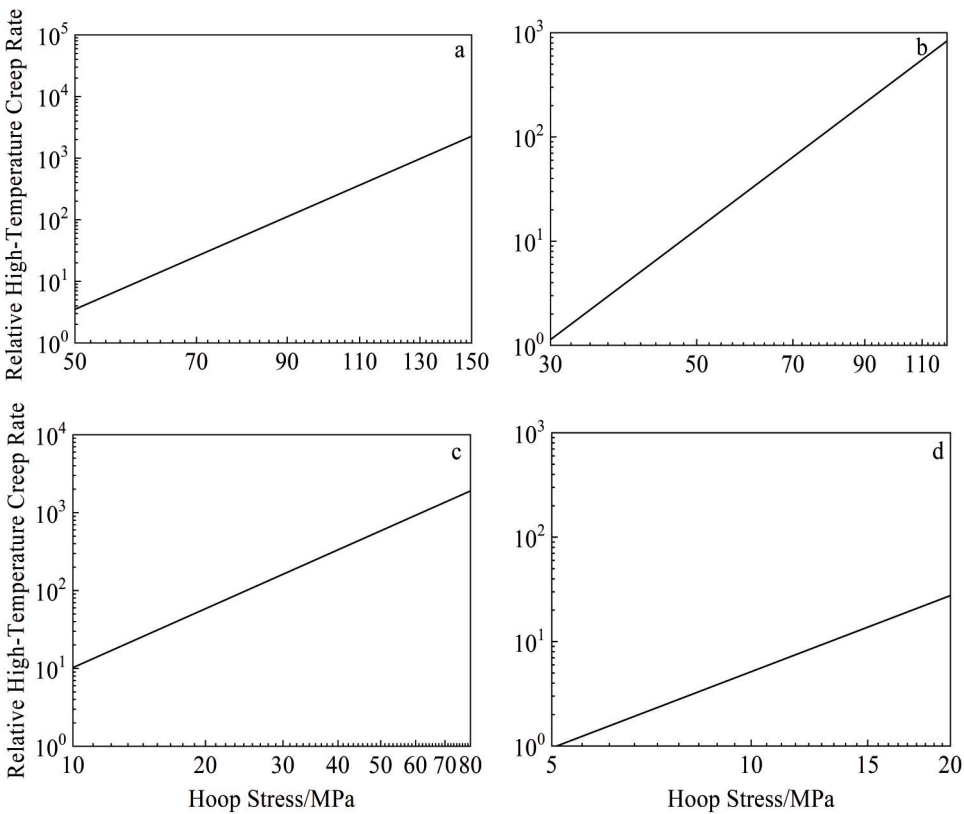


图 7 典型温度工况下自主化新型锆合金包壳高温塑性蠕变速率与爆破应力的关系

Fig.7 Relationship between high-temperature plastic creep rate and hoop stress of self-developed new type zirconium cladding at different temperatures: (a) 600 °C, (b) 700 °C, (c) 800 °C, and (d) 900 °C

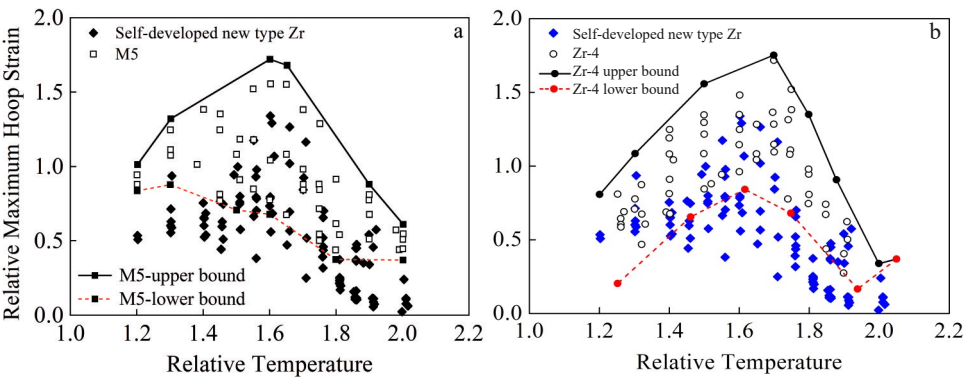


图 8 自主化新型锆合金包壳高温蠕变爆破应变与 M5 包壳和 Zr-4 包壳对比

Fig.8 Comparisons of high-temperature creep and burst strain of self-developed new type zirconium cladding with M5 cladding (a) and Zr-4 cladding (b)

特性和升温爆破特性对比。可见，相同的包壳环向应力下包壳爆破温度略低于高温蠕变爆破试验工况，这与 M5 包壳的试验结论^[5]略有差异，原因在于 M5 包壳 LOCA 特性试验中采用相同的试验装置开展高温塑性变形试验和高温爆破试验，本试验中自主化新型锆合金包壳高温塑性变形试验和高温爆破试验采用了不同的试验方法，但总体来说，二者差异不大。

4.2.2 高温爆破尺寸试验结果

图 13 给出了自主化新型锆合金包壳高温爆破最大周向应变试验结果。与 Zr-4 包壳爆破应变特性相似^[13]，自主化锆合金包壳爆破应变第 1 个峰值位置在相变开始温度附近，另一个峰值在 β 相区，且在 $\alpha+\beta$ 相区域包壳爆破应变随爆破温度增加而减小，表明在此区域内自主化锆合金包壳塑性降低，因此爆破应变相对较小。同时自

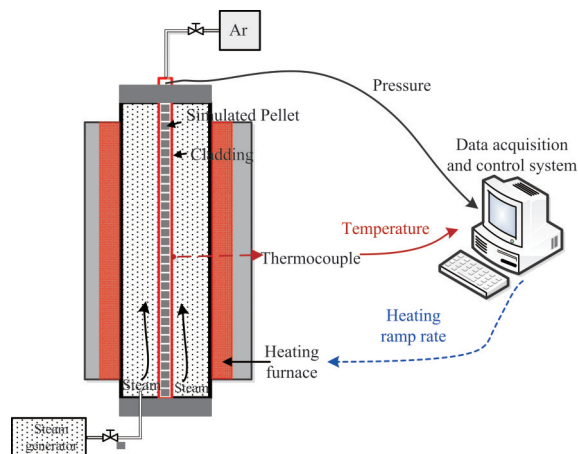


图9 锆合金包壳高温爆破试验装置示意图

Fig.9 Schematic diagram of high-temperature burst test device for zirconium cladding



图10 自主化新型锆合金包壳高温爆破试验件

Fig.10 High-temperature burst test specimen of new developed zirconium cladding before (a) and after (b) burst

自主化新型锆合金包壳高温爆破应变显著小于相同工况下 Zr-4 包壳^[14-15]和 M5 包壳^[16-19]。

虽然自主化新型锆合金包壳高温爆破应变峰值和谷值位置与 Zr-4 包壳有所差异,但自主化锆合金包壳高温爆破应变仍可被 NUREG 0630^[20]中 Zr-4 包壳高温爆破应变包络值包络,即目前工程中广泛应用的包壳高温爆破

应变模型仍适用于自主化新型锆合金包壳。

图 14 分别给出了破口面积和破口长度随爆破温度变化特性。可见,破口面积和爆破尺寸呈现出与爆破应变相类似的规律,即自主化锆合金包壳破口面积/长度第 1 个峰值位置在相变开始温度附近,另 1 个峰值在 β 相区,且在 α 区,相区域包壳破口面积/长度随爆破温度增加而减小,证明了此区域内自主化新型锆合金包壳塑性降低。

5 锆合金包壳脆化失效试验

5.1 实验

参考 RG 1.223 导则(草案)要求^[8],开展了自主化新型锆合金包壳脆化失效试验。试验包括 2 个阶段:

(1)高温氧化淬火阶段。试样尺寸为 $\Phi 9.5 \text{ mm} \times 0.57 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 。试样采用双面氧化,在达到特定氧化率后,使试样按照规定降温速率($>2 \text{ }^\circ\text{C/s}$)^[19]冷却至 $800 \text{ }^\circ\text{C}$ 淬火。

(2)环压阶段。采用万能力学试验机压缩试样,环压速率为 2 mm/min 。试验过程中包壳环压载荷-位移曲线示意图如图 15 所示。

5.2 脆化失效试验结果

图 16 给出了自主化锆合金包壳不同氧化温度工况下偏移位移与等效氧化率试验结果,图中空心标识代表塑性,实心标识代表脆性。可见,目前广泛采用的锆合金包壳脆化失效准则^[21](峰值包壳温度 $\leq 1204 \text{ }^\circ\text{C}$ 且包壳等效氧化率 $\leq 17\%$)适用于自主化新型锆合金包壳。

5.3 自主化新型锆合金包壳残余塑性对比评价

包壳环压试验获得的偏移应变是表征包壳残余塑性的关键参数,图 17 给出了不同氧化温度下不同包壳类型环压试验偏移应变。

对氧化温度 $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ 工况,自主化新型包壳偏移应变略小于 M5 包壳^[11,22],与 ZIRLO 包壳^[11,22]相当,但显著优于 Zr-4 包壳^[11,22];对氧化温度 $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ 工况,自主化新型锆合金包壳偏移应变显著大于 M5 包壳^[11]^[22]、ZIRLO 包

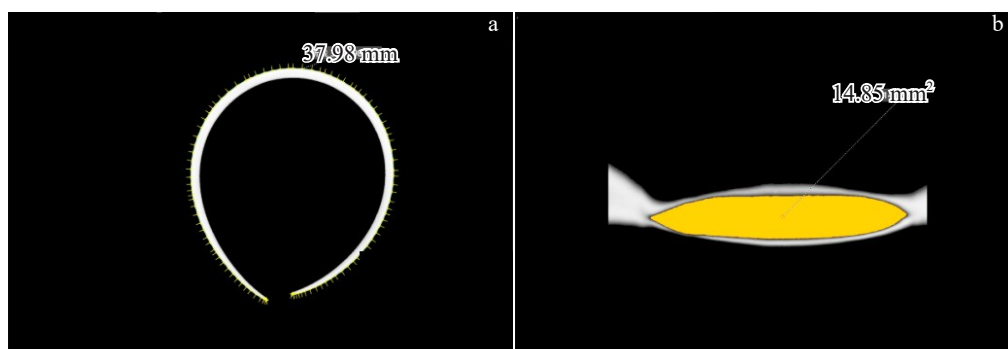


图 11 高温爆破周长和爆破面积测量

Fig.11 Measurements of high-temperature burst perimeter (a) and burst area (b)

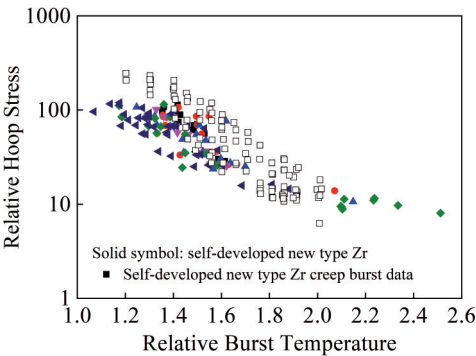


图 12 自主化新型锆合金包壳高温爆破应力试验结果
Fig.12 High-temperature burst stress test results of self-developed new type zirconium cladding

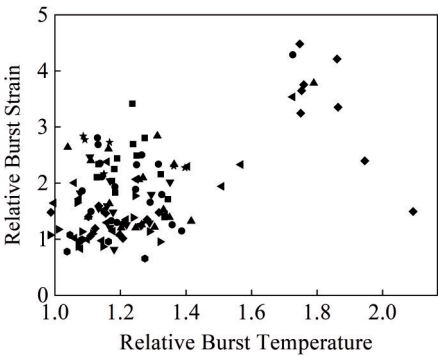


图 13 自主化锆合金包壳高温爆破应变试验结果
Fig.13 High-temperature burst strain test results of self-developed new type zirconium cladding

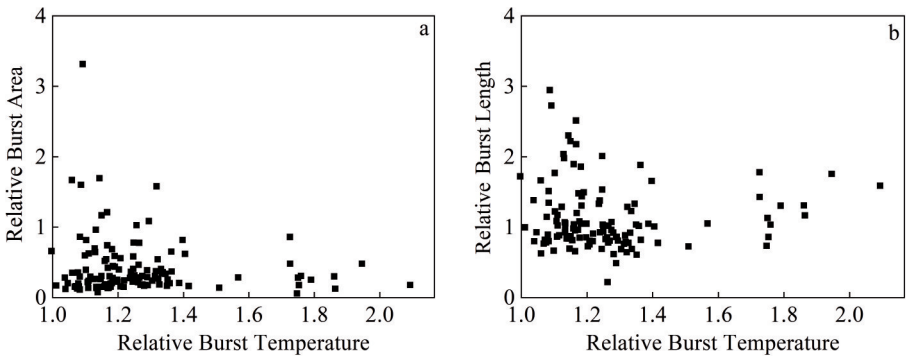


图 14 自主化锆合金包壳爆破尺寸特性
Fig.14 Characteristics of burst size of self-developed new type zirconium cladding: (a) burst area and (b) burst length

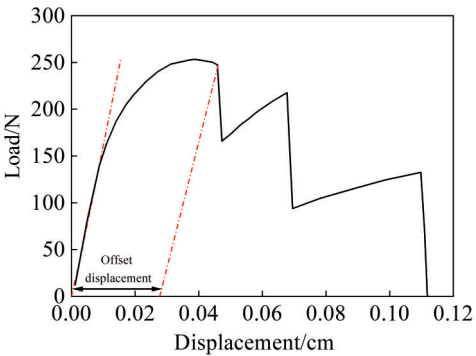


图 15 包壳环压载荷-偏移位移示意图
Fig.15 Schematic diagram of load and displacement of cladding ring compression

壳^[11,22]和 Zr-4 包壳^[11,22],即使考虑降温速率的有利影响,自主化新型锆合金包壳残余塑性也应略优于与 M5 及 ZIRLO 包壳;对氧化温度 1200℃ 工况,自主化新型锆合金包壳残余塑性显著大于 Zr-4 包壳,略小于 ZIRLO 包壳,与 M5 包壳相当。

综合来看,相同工况下自主化新型锆合金包壳残余塑性优于 ZIRLO 包壳和 Zr-4 包壳,与 M5 包壳基本相当。

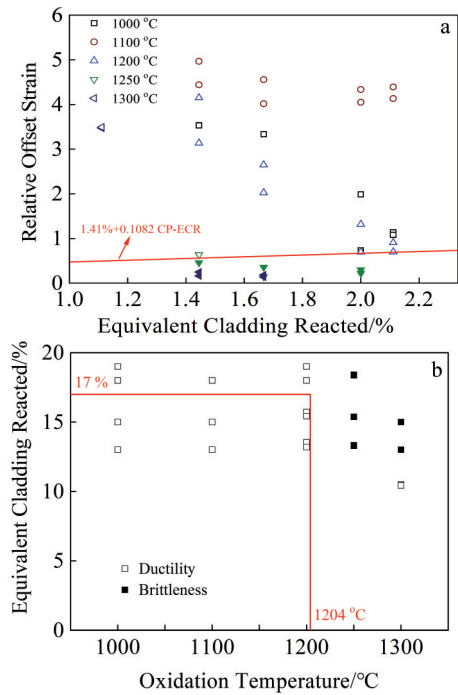


图 16 自主化锆合金包壳脆化失效试验结果
Fig.16 Results of brittleness experiment of self-developed new type zirconium alloy: (a) residual ductility and (b) embrittlement threshold

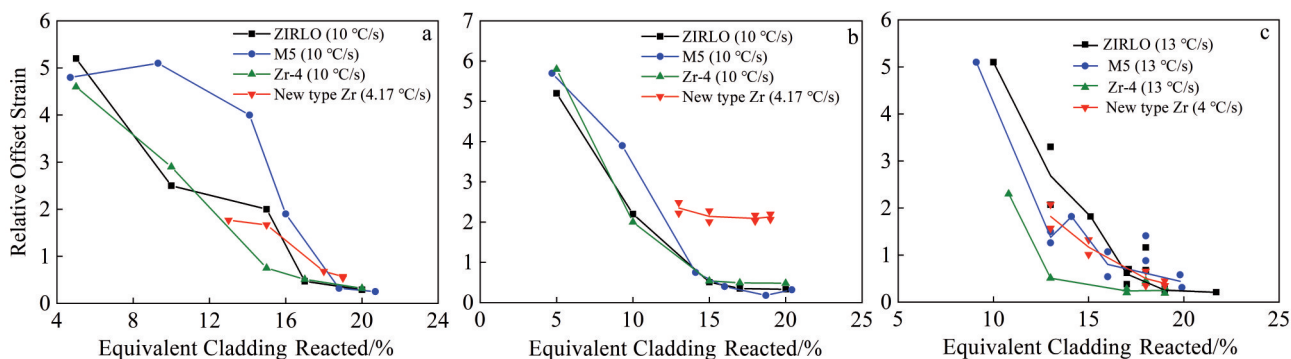


图 17 不同氧化温度下自主化包壳偏移应变

Fig.17 Offset strain of cladding at different oxidation temperatures: (a) 1000 °C, (b) 1100 °C, and (c) 1200 °C

6 结论

1) 自主化新型锆合金包壳高温氧化速率与 ZIRLO 包壳、M5 包壳以及 Zr-4 包壳 (>1000 °C) 基本相当, 可采用 Cathcart-Pawel 氧化模型计算自主化新型锆合金包壳高温氧化速率, 可采用 Baker-Just 氧化模型包络计算自主化新型锆合金包壳高温氧化速率。

2) 自主化新型锆合金高温塑性变形爆破应变低于 M5 包壳及 Zr-4 包壳, 有助于降低组件阻塞率, 有利于缓解失水事故后果。

3) 自主化新型锆合金包壳高温爆破温度略低于高温塑性变形爆破温度, 高温爆破应变第 1 个峰值位置在相变开始温度附近, 另 1 个峰值在 β 相区, 且在 α 区, 相区域包壳爆破应变随爆破温度增加而减小; 自主化新型锆合金包壳高温爆破应变显著低于相同工况下 M5 包壳和 Zr-4 包壳。

4) 自主化锆合金包壳脆化失效试验结果显示, 目前广泛应用的锆合金包壳脆化失效边界 (峰值包壳温度 ≤ 1204 °C 且最大包壳氧化率 $\leq 17\%$) 仍适用于自主化新型锆合金包壳, 且相同工况下自主化新型锆合金包壳残余塑性优于 ZIRLO 包壳和 Zr-4 包壳, 与 M5 包壳基本相当。

参考文献 References

- [1] Zhou Bangxin(周邦新). *Nuclear Reactor Materials*(核反应堆材料)[M]. Shanghai: Shanghai Jiaotong University Press, 2021: 459
- [2] Tang Liangsun(汤良孙). *Development and Thermal-Hydraulic Design of Light Water Reactors*(轻水反应堆发展趋势与热工水力设计)[M]. Beijing: Atomic Energy Press, 1986: 98
- [3] Erbacher F J, Leistikow S. *A Review of Zircaloy Fuel Cladding Behavior in a Loss-of-Coolant Accident*[R]. Karlsruhe: KFK, 1985
- [4] Pettersson K. *Nuclear Fuel Behaviour in Loss-of-coolant Accident (LOCA) Conditions*[R]. Paris: Nuclear Energy Agency, 2009
- [5] Brachet J H, Forgeron T, Barcelo F et al. *Experiment and*

Modeling of Advanced Fuel Rod Cladding Behavior under LOCA Conditions: Alpha-Beta Phase Transformation Kinetics and EDGAR Methodology[C]. Paris: ASTM, 2000

- [6] Massih A R. *Review of Experimental Data for Modeling LWR Fuel Cladding Behaviour Under Loss of Coolant Accident Conditions*[R]. Uppsala: Quantum Technologies A B, 2007
- [7] Strasser A, Garzarolli F, Rudling P. *Process Going on in Nonfailed Rod During Accident Conditions (LOCA and RIA), Volume II*[R]. Skultuna: Advanced Nuclear Technology International, 2010
- [8] Bales M. *Determining Post Quench Ductility*[R]. Rockville: Nuclear Regulatory Commission, 2016
- [9] Cathcart J V, Pawel R E, McKee R A et al. *Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics IV. Reaction Rate Studies*[R]. Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory, 1977
- [10] Baker J L, Warchal R L, Vogel R C et al. *Studies of Metal-Water Reactions at High Temperatures*[R]. Chicago: Argon National Laboratory, 1962
- [11] Billone M, Yan Y, Burtseva T et al. *Cladding Embrittlement During Postulated Loss-of-Coolant Accidents*[R]. Washington: Nuclear Regulatory Commission, 2008
- [12] Zhang Feng(张 锋), Zhang Chengyu(张程煜), Zhao Wanqian(赵婉倩). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2021, 50(10): 255
- [13] Huang Yucui(黄玉才), Zhang Shucheng(张述诚), Shang Chengyu(尚成宇). *Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering*(核科学与工程)[J], 1997, 17(1): 45
- [14] Varty R L, Rosiger H E. *Comparison of a Fuel Sheath Failure Model with Published Experimental Data*[R]. Manitoba: AECL, 1982
- [15] Massih A R. *Assessment of Data and Criteria for Cladding Burst in Loss-of-Coolant Accidents*[R]. Uppsala: Quantum Technologies AB, 2015
- [16] Grandjean C. *A State-of-the-Art Review of Past Programs Devoted to Fuel Behavior Under LOCA Conditions, Part one, Clad Swelling and Rupture Assembly Flow Blockage*[R]. Saint Paul: IRSN, 2015

- [17] Grandjean C. *A State-of-the-Art Review of Past Programs Devoted to Fuel Behavior Under LOCA Conditions, Part two, Impact of Clad Swelling Upon Assembly Cooling*[R]. Saint Paul: IRSN, 2016
- [18] Kecek A, Tuček K, Holmstrom S *et al.* *Development of M5 Cladding Material Correlations in the Transuranus Code*[R]. Luxembourg: Publications Office of the European Union, 2016
- [19] Nuclear Regulatory Commission. *Establishing Analytical Limits for Zirconium-Alloy Cladding Material*[R]. Rockville: Nuclear Regulatory Commission, 2016
- [20] Powers D A, Meyer R O. *Cladding Swelling and Rupture Models for LOCA Analysis*[R]. Washington: Nuclear Regulatory Commission, 1980
- [21] Hobson D O, Rittenhouse P L. *Embrittlement of Zircaloy-Clad Fuel Rods by Steam During LOCA Transients*[R]. Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory, 1972
- [22] Billone M, Yan Y, Burtseva T *et al.* *Cladding Behavior During Postulated Loss-of-Coolant Accidents*[R]. Washington: Nuclear Regulatory Commission, 2016

Experimental Research on High-Temperature Thermo-mechanical Behavior of Self-Developed New Type Zirconium Cladding Under Loss-of-Coolant Accident

Guo Xiaoming^{1,2}, Qian Libo², Luo Yuejian²

(1. Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(2. National Key Laboratory of Nuclear Reactor Technology, Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610041, China)

Abstract: High-temperature thermo-mechanical experiments were conducted to investigate the behavior of self-developed new type zirconium cladding under loss-of-coolant accident (LOCA) conditions, including high-temperature oxidation, high-temperature creep, high-temperature burst, and embrittlement experiment. Results show that the high-temperature oxidation rate of self-developed new type zirconium cladding is comparable to that of ZIRLO, M5, and Zr-4 cladding when the oxidation temperature exceeds 1000 °C, which can be estimated by Cathcart-Pawel model. Notably, the self-developed new type zirconium cladding exhibits significantly lower high-temperature creep-burst strain than M5 and Zr-4 cladding, which can decrease fuel assembly blockage during LOCA, thus contributing to a more favorable outcome in LOCA analysis. Additionally, the embrittlement criteria of the self-developed new type zirconium cladding meet the requirements of a peak cladding temperature of ≤ 1204 °C and the maximum cladding oxidation rate of $\leq 17\%$.

Key words: self-developed new type zirconium cladding; loss-of-coolant accident; high-temperature thermo-mechanical behavior; safety characteristic evaluation

Corresponding author: Guo Xiaoming, Master, Professor, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, P. R. China, E-mail: guoxiaoming@npic.ac.cn