

国际原子能机构 《技术文件丛书》

国际原子能机构《技术文件》
第1862号

动力堆乏燃料 贮存期间的行为

摘录自 1981 年至 2014 年间的
乏燃料组件在贮存期间的
行为（BEFAST I-III）和乏燃料
性能评估及研究（SPAR I-III）的
协调研究项目（CRP）的最终报告



IAEA

国际原子能机构

国际原子能机构安全标准和相关出版物

国际原子能机构安全标准

根据《国际原子能机构规约》第三条的规定，国际原子能机构受权制定或采取旨在保护健康及尽量减少对生命与财产之危险的安全标准，并规定适用这些标准。

国际原子能机构借以制定标准的出版物以国际原子能机构《安全标准丛书》的形式印发。该丛书涵盖核安全、辐射安全、运输安全和废物安全。该丛书出版物的分类是**安全基本法则**、**安全要求**和**安全导则**。

有关国际原子能机构安全标准计划的资料可访问以下国际原子能机构因特网网站：

www.iaea.org/zh/shu-ju-ku/an-quan-biao-zhun

该网站提供已出版安全标准和安全标准草案的英文文本。以阿拉伯文、中文、法文、俄文和西班牙文印发的安全标准文本；国际原子能机构安全术语以及正在制订中的安全标准状况报告也在该网站提供使用。欲求进一步的信息，请与国际原子能机构联系（Vienna International Centre, PO Box 100, 1400 Vienna, Austria）。

敬请国际原子能机构安全标准的所有用户将使用这些安全标准的经验（例如作为国家监管、安全评审和培训班课程的依据）通知国际原子能机构，以确保这些安全标准继续满足用户需求。资料可以通过国际原子能机构因特网网站提供或按上述地址邮寄或通过电子邮件发至 Official.Mail@iaea.org。

相关出版物

国际原子能机构规定适用这些标准，并按照《国际原子能机构规约》第三条和第八条 c 款之规定，提供和促进有关和平核活动的信息交流并为此目的充任成员国的居间人。

核活动的安全报告以《安全报告》的形式印发，《安全报告》提供能够用以支持安全标准的实例和详细方法。

国际原子能机构其他安全相关出版物以《应急准备和响应》出版物、《放射学评定报告》国际核安全组的《核安全组报告》《技术报告》和《技术文件》的形式印发。国际原子能机构还印发放射性事故报告、培训手册和实用手册以及其他特别安全相关出版物。

安保相关出版物以国际原子能机构《核安保丛书》的形式印发。

国际原子能机构《核能丛书》由旨在鼓励和援助和平利用原子能的研究、发展和实际应用的资料性出版物组成。它包括关于核电、核燃料循环、放射性废物管理和退役领域技术状况和进展以及经验、良好实践和实例的报告和导则。

动力堆乏燃料贮存期间的行为

下列国家是国际原子能机构的成员国：

阿富汗	格鲁吉亚	北马其顿
阿尔巴尼亚	德国	挪威
阿尔及利亚	加纳	阿曼
安哥拉	希腊	巴基斯坦
安提瓜和巴布达	格林纳达	帕劳
阿根廷	危地马拉	巴拿马
亚美尼亚	圭亚那	巴布亚新几内亚
澳大利亚	海地	巴拉圭
奥地利	教廷	秘鲁
阿塞拜疆	洪都拉斯	菲律宾
巴哈马	匈牙利	波兰
巴林	冰岛	葡萄牙
孟加拉国	印度	卡塔尔
巴巴多斯	印度尼西亚	摩尔多瓦共和国
白俄罗斯	伊朗伊斯兰共和国	罗马尼亚
比利时	伊拉克	俄罗斯联邦
伯利兹	爱尔兰	卢旺达
贝宁	以色列	圣卢西亚
多民族玻利维亚国	意大利	圣文森特和格林纳丁斯
波斯尼亚和黑塞哥维那	牙买加	萨摩亚
博茨瓦纳	日本	圣马力诺
巴西	约旦	沙特阿拉伯
文莱达鲁萨兰国	哈萨克斯坦	塞内加尔
保加利亚	肯尼亚	塞尔维亚
布基纳法索	大韩民国	塞舌尔
布隆迪	科威特	塞拉利昂
柬埔寨	吉尔吉斯斯坦	新加坡
喀麦隆	老挝人民民主共和国	斯洛伐克
加拿大	拉脱维亚	斯洛文尼亚
中非共和国	黎巴嫩	南非
乍得	莱索托	西班牙
智利	利比里亚	斯里兰卡
中国	利比亚	苏丹
哥伦比亚	列支敦士登	瑞典
科摩罗	立陶宛	瑞士
刚果	卢森堡	阿拉伯叙利亚共和国
哥斯达黎加	马达加斯加	塔吉克斯坦
科特迪瓦	马拉维	泰国
克罗地亚	马来西亚	多哥
古巴	马里	特立尼达和多巴哥
塞浦路斯	马耳他	突尼斯
捷克共和国	马绍尔群岛	土耳其
刚果民主共和国	毛里塔尼亚	土库曼斯坦
丹麦	毛里求斯	乌干达
吉布提	墨西哥	乌克兰
多米尼克	摩纳哥	阿拉伯联合酋长国
多米尼加共和国	蒙古	大不列颠及北爱尔兰联合王国
厄瓜多尔	黑山	坦桑尼亚联合共和国
埃及	摩洛哥	美利坚合众国
萨尔瓦多	莫桑比克	乌拉圭
厄立特里亚	缅甸	乌兹别克斯坦
爱沙尼亚	纳米比亚	瓦努阿图
斯威士兰	尼泊尔	委内瑞拉玻利瓦尔共和国
埃塞俄比亚	荷兰	越南
斐济	新西兰	也门
芬兰	尼加拉瓜	赞比亚
法国	尼日尔	津巴布韦
加蓬	尼日利亚	

原子能机构《规约》于 1956 年 10 月 23 日在纽约联合国总部召开的国际原子能机构规约会议上通过，于 1957 年 7 月 29 日生效。原子能机构总部设在维也纳。原子能机构的主要目标是“加速和扩大原子能对全世界和平、健康及繁荣的贡献”。

国际原子能机构《技术文件》第 1862 号

动力堆乏燃料贮存期间的行为

摘录自 1981 年至 2014 年间的乏燃料组件
在贮存期间的行为（**BEFAST I-III**）和
乏燃料性能评估及研究（**SPAR I-III**）的
协调研究项目（**CRP**）的最终报告

国际原子能机构
2021 年·维也纳

版 权 说 明

国际原子能机构的所有科学和技术出版物均受 1952 年（伯尔尼）通过并于 1972 年（巴黎）修订的《世界版权公约》之条款的保护。自那时以来，世界知识产权组织（日内瓦）已将版权的范围扩大到包括电子形式和虚拟形式的知识产权。必须获得许可而且通常需要签订版税协议方能使用国际原子能机构印刷形式或电子形式出版物中所载全部或部分内容。欢迎有关非商业性翻印和翻译的建议并将在个案基础上予以考虑。垂询应按以下地址发至国际原子能机构出版科：

Marketing and Sales Unit
Publishing Section
International Atomic Energy Agency
Vienna International Centre
PO Box 100
1400 Vienna, Austria
传真：+43 1 2600 22529
电话：+43 1 2600 22417
电子信箱： sales.publications@iaea.org
<https://www.iaea.org/publications>

有关本出版物的进一步信息，请联系：

核燃料循环和材料处

国际原子能机构

维也纳国际中心

邮政信箱 100

奥地利维也纳 1400

电子信箱： Official.Mail@iaea.org

© 国际原子能机构 • 2021 年

国际原子能机构印制

2021 年 11 月 • 奥地利

动力堆乏燃料贮存期间的行为

国际原子能机构，奥地利，2021 年 11 月

IAEA-TECDOC-1862

ISBN 978-92-0-530021-4（简装书：碱性纸）

ISBN 978-92-0-156919-6（pdf 格式）

序 言

在反应堆内服役时，核燃料受到中子损伤等现象影响，结构会逐渐发生变化。这些变化会影响燃料组件或燃料棒束在后续循环中的运行性能。一旦燃料成为乏燃料，就意味着其不再支持高效的堆内裂变，则会将其永久地从堆芯中卸载，并进行管理直到被最终处置。根据现有的燃料循环政策，最终处置方式可能是回收或直接处置。

燃料循环的初始基础是对乏燃料进行后处理和回收，并辅以后处理活动之前进行临时贮存。由于后处理利用的延迟或不进行后处理和回收的决策，乏燃料的贮存时间逐步增加，所以需要了解乏燃料在选定的贮存环境中的行为，需要在反应堆贮存装满时扩展额外的贮存能力，以及需要了解乏燃料和新贮存系统的行为。为了满足上述需要，国际原子能机构（原子能机构）发起了关于乏燃料组件在贮存期间的行为（BEFAST）和乏燃料性能评估及研究（SPAR）的协调研究项目（CRP），并在一系列出版物上发表了研究成果。虽然 CRP 对很多专题问题开展了调查，但是主要目还是研究乏燃料和相关材料在干法贮存环境和湿法贮存环境中的长期性能，并预测其行为。

本出版物摘录了 BEFAST 项目和 SPAR 项目在过去 30 年中的研究成果，审查了这些研究成果的适用性，并将其合并出版。本出版物对从事安全评价工作的专业人士特别有价值。

原子能机构感谢 B. Hanson（美利坚合众国）、A. Hillier（英国）、H. Issard（法国）、A. Jussofie（德国）、J. Kyffin（英国）、A. Machiels（美利坚合众国）、L. McManniman（英国）和 F. Takáts（匈牙利）协助起草和审查本出版物。原子能机构负责本出版物的官员是核燃料循环和废料技术司的 P. Standring。

编者按

本出版物系根据投稿人提供的原始资料编写，未经国际原子能机构编辑人员编辑。所述观点仍由投稿人负责，并不一定代表原子能机构或其成员国的意见。

原子能机构或其成员国对使用本出版物可能产生的后果均不承担任何责任。本出版物不涉及任何人的作为或不作为的法律或其他责任问题。

使用国家或领土的特定名称并不意味着原子能机构作为出版者对这类国家或领土、其当局和机构或其边界划定的法律地位作出任何判断。

提及具体公司或产品的名称（不论表明注册与否）并不意味着原子能机构有任何意侵犯所有权，也不应被解释为原子能机构的认可或推介。

作者有责任事先获得原子能机构的必要许可，以复制、翻译或使用来自已受版权保护的来源的资料。

原子能机构对本出版物中提及的外部或第三方因特网网站的网址继续存在或准确与否不负有责任，而且不保证这类网站上的任何内容现在或将来仍然准确或适当。

目 录

1. 引言	1
1.1. 背景：关于乏燃料长期贮存期间行为的协调研究项目概述	2
1.1.1. 与乏燃料贮存有关的安全标准	4
1.2. 目标	4
1.3. 范围	4
2. 全球形势和出版背景	6
2.1. 燃料循环组成要素	6
2.2. 乏燃料贮存	8
2.3. 燃料组件设计	10
2.3.1. LWR	10
2.3.2. CANDU	11
2.3.3. RBMK	11
2.3.4. WWER	12
2.3.5. AGR	13
2.3.6. MAGNOX	14
3. 乏燃料贮存技术概述	15
3.1. 湿法贮存技术	15
3.2. 干法贮存技术	16
3.2.1. 贮存库	18
3.2.2. 筒仓或混凝土密封容器	20
3.2.3. 屏蔽容器（金属和混凝土）系统	21
4. 乏燃料性能退化机理（湿法和干法）	25
4.1. LWR	25
4.1.1. 湿法贮存	25
4.1.2. 干法贮存	28
4.1.3. 冲击载荷的影响	54

4.2. 先进气冷堆（AGR）燃料	64
4.3. MAGNOX 燃料	66
4.3.1. 湿法贮存.....	66
4.3.2. 干法贮存.....	66
4.4. CANDU 燃料	66
4.4.1. 湿法贮存.....	66
4.4.2. 干法贮存.....	67
4.5. RBMK 和 WWER-440/1000 燃料.....	69
4.5.1. 湿法贮存.....	69
4.5.2. 干法贮存.....	69
5. 湿法贮存乏燃料行为	71
5.1. 常规性能	71
5.2. LWR（BWR，PWR）燃料.....	71
5.3. CANDU 燃料	73
5.4. RBMK 和 WWER 燃料.....	74
5.5. AGR 燃料	75
5.6. MAGNOX 燃料	75
6. 干法贮存乏燃料行为	76
6.1. 常规性能	76
6.2. LWR（BWR，PWR）燃料.....	77
6.3. CANDU 燃料	81
6.4. RBMK 燃料.....	82
6.5. WWER 燃料.....	82
6.6. MAGNOX 燃料	82
6.7. AGR 燃料.....	82
7. 湿法和干法贮存设施结构	83
7.1. 材料	83
7.1.1. 不锈钢.....	83

7.1.2.	铝合金.....	83
7.1.3.	作为中子吸收体的硼化不锈钢或硼化铝合金复合材料 ...	84
7.1.4.	混凝土.....	85
7.1.5.	铸铁.....	85
7.1.6.	碳钢.....	86
7.1.7.	聚合物.....	86
7.2.	性能退化机理	86
7.2.1.	金属性能退化机理.....	86
7.2.2.	混凝土性能退化.....	88
7.2.3.	聚合物性能退化.....	89
7.3.	研究结果	89
7.3.1.	不锈钢.....	89
7.3.2.	硼化不锈钢.....	92
7.3.3.	含硼铝合金.....	93
7.3.4.	混凝土.....	93
7.3.5.	聚合物.....	95
7.3.6.	金属密封件.....	97
8.	乏燃料贮存监测	100
8.1.	性能验证方法	100
8.1.1.	湿法贮存乏燃料完整性验证技术.....	103
8.1.2.	干法贮存乏燃料完整性验证技术.....	103
8.1.3.	贮存系统完整性验证技术.....	104
9.	破损燃料完整性	107
9.1.	燃料完整性定义及准则	107
9.2.	破损燃料案例	107
9.2.1.	破损燃料棒.....	107
9.2.2.	破损结构.....	108
9.2.3.	破损燃料修复.....	109

9.3. 乏燃料完整性检测109

9.4. 破损燃料贮存实践110

 9.4.1. 湿法贮存.....110

 9.4.2. 干法贮存.....112

10. 结论.....114

 10.1 湿法贮存和干法贮存乏燃料性能.....114

 10.2. 湿法贮存和干法贮存乏燃料性能退化机理.....114

 10.3. 湿法贮存和干法贮存设施115

 10.4. 乏燃料贮存监测（湿法和干法）116

 10.5. 破损燃料完整性116

参考文献117

术语缩写125

参与起草和审查的人员129

1. 引言

1979 年，国际原子能机构（原子能机构）在全世界范围内发起了一项关于水冷堆乏燃料组件湿法贮存经验的调研。这项调研的结果后来形成了一系列的技术报告发表[1]。调研得到如下结论：

- 针对轻水堆（LWR）和加压重水堆（PHWR）低燃耗乏燃料，已经积累了长达 20 年以上的湿法贮存经验；
- 在水池中长时间贮存更高燃耗的乏燃料，不存在重大难点；
- 然而，应继续进行观察和研究，以评估高燃耗乏燃料的长期贮存性能，进一步确认已有的良好经验。

上述调查发现也是原子能机构发起关于乏燃料长期贮存期间行为研究的第一个协调研究项目（CRP）的基础。

在 CRP 启动之初，唯一获准运行的动力堆干法贮存设施是英国 Wylfa 电站的干法贮存设施。这个用于贮存 MAGNOX 乏燃料的干法贮存设施由三个 CO₂ 冷却的贮存库（于 1971 年建成）和两个空气冷却的贮存库（于 1979 年建成）组成。2015 年 12 月 30 日 Wylfa 核电厂退役后，这个干法贮存设施也被关闭。

此外，奥地利、加拿大、德国、日本和美国也对将干法贮存技术用于贮存锆合金包壳乏燃料显示出了浓厚的兴趣，并发起了若干个示范项目和实验室研究项目[2]。

CRP 开始时，主要的目的是保持对乏燃料水池中贮存的乏燃料（燃耗逐步增大）性能的持续监测，更好地理解干法贮存中乏燃料的性能以及干法贮存系统的发展[2]。第一个 CRP[3]中，与干法贮存相关的技术问题包括：

- 什么介质适用于乏燃料贮存？
- 导致乏燃料包壳不会大规模失效的包壳最高温度是多少？
- 如何准确预测包壳温度以确保其不会超过上述包壳最高温度？

1.1. 背景：关于乏燃料长期贮存期间行为的协调研究项目概述

本部分内容主要来自参考文献[2]和[4]。其他参考文献内容根据需要适当引用。

1981 年以来，原子能机构组织了多个 CRP，研究动力堆乏燃料长期贮存（或延长贮存）期间的性能。早期的项目名称为 BEFAST I-III（BEhaviour of spent Fuel Assemblies in STorage），后续的项目名称为 SPAR I-III（Spent fuel Performance Assessment and Research）。每个 CRP 完成后，都会整理形成项目研究概要，形成相应的原子能机构技术报告（TECDOC）[2]—[7]。

CRP 的总目标是通过评估参加成员国乏燃料贮存设施的运行和研究经验，发展反应堆乏燃料长期贮存技术，并预测乏燃料在长期贮存期间的性能。具体的研究目标包括：

- 及时调研参加成员国在乏燃料组件贮存方面积累的经验；
- 研究使用干法贮存和湿法贮存的乏燃料和贮存部件的性能退化机理；
- 评估临时贮存设施对后续乏燃料管理活动（如操作和运输）的潜在影响；
- 发展新技术以评估潜在的恶化机理对乏燃料超期贮存和临时贮存系统超期使用的影响；
- 交流乏燃料贮存设施的监督和监测计划的结果；
- 协调参加成员国之间的研究项目；
- 整理乏燃料组件贮存技术，促进技术转让。

BEFAST-I 期项目（1981—1986 年）由来自 11 个国家的 12 个组织参加，包括奥地利、加拿大、捷克斯洛伐克、芬兰、联邦德国、德意志民主共和国、匈牙利、日本、瑞典、美国和前苏联。

接续的 BEFAST-II 期项目（1986—1991 年）由来自 13 个国家的 16 个组织参加，包括阿根廷、加拿大（2）、联邦德国、芬兰、德意志民主共和国、匈牙利、意大利、日本、韩国、瑞典、英国（2）、美国和前苏联（2）。

BEFAST-III 期项目（1991—1996 年）由来自 12 个国家的 15 个组织参加，包括加拿大（2）、芬兰、法国、德国、匈牙利、日本、韩国、俄罗斯（2）、斯洛伐克、西班牙、英国（2）和美国。另外还有一个来自瑞典的观察员。

在三个 BEFAST 项目的过程中，参加国贡献了各自在乏燃料贮存问题上的基础研究与开发成果。

在 BEFAST-III 期项目的末期，研发比重大幅减少，重点更多地放在乏燃料贮存设施的运行。但是，乏燃料贮存技术（尤其是干法贮存技术）正经历快速发展：新的燃料和材料设计不断发展，乏燃料的燃耗逐步增加，另外乏燃料的预期贮存时间稳定增长。随着乏燃料燃耗增加，裂变气体和裂变产物也逐步增加，包壳的应变、氧化和氢化也逐步增大。由于 BEFAST III 期项目过程中乏燃料贮存技术发生了显著的变化，为了研究这些新现象对乏燃料长期贮存的影响，接续项目开始实施，以研究这些新现象对后续乏燃料干法贮存设施运行，尤其是对操作和运输的影响。

原子能机构发起的乏燃料性能评价和研究项目 SPAR-I 期（1997—2002 年）由来自 10 个国家的 11 个组织参加，包括加拿大（2）、法国、德国、匈牙利、日本、韩国、俄罗斯、西班牙、英国和美国。瑞典作为观察员国参加。

原子能机构发起的 SPAR-II 期（2004—2008 年）成员包括欧盟委员会以及来自 10 个国家的 11 个组织参加，包括阿根廷（参加较晚）、加拿大、法国、德国、匈牙利、日本（2）、韩国（参加时间有限）、斯洛伐克、西班牙和美国。瑞典和英国作为活跃的观察员参加。

原子能机构发起的 SPAR-III 期（2009—2014 年）成员包括欧盟委员会和来自 9 个国家的 11 个组织，包括阿根廷、法国、德国、匈牙利、日本（2）、韩国、斯洛伐克、西班牙和美国（2）。瑞士和英国作为活跃的观察员参加。

总体而言，总计有 21 个国家和 1 个国际组织参加了一个或多个 CRP。

表 1 总结了所有 6 个 CRP（1981—2014 年）涉及的干法贮存和湿法贮存的研究主题。该表记录了 1981 年至 2014 年期间 CRP 各期的重点转移情况。

1.1.1. 与乏燃料贮存有关的安全标准

根据安全标准分类，与乏燃料贮存有关的安全标准的层次从包罗万象的基本安全原则[8]，到适用于所有核燃料循环设施和活动的一般安全要求，层层递进，并在关于放射性废物的预处置管理[9]和燃料循环设施安全[10]的出版物中给出的具体要求，最终都匹配了具体的安全导则。相关的安全导则包括：核燃料循环设施放射性废物的预处置管理[11]，核燃料循环研究与开发设施的安全[12]，核电厂燃料处理和贮存系统的设计[13]，乏燃料贮存[14]。

此外，还有与管理系统和辐射防护相关的安全标准，包括：处理和操作和贮存放射性废物的管理系统[15]，核电厂运作中的辐射防护及放射性废物管理[16]。

1.2. 目标

2013 年，核燃料循环和乏燃料管理技术工作组（TWG-NFCO）建议将 BEFAST 和 SPAR 项目的研究成果整理出版。

本出版物执行了这一建议，并涵盖了 SPAR III 期的经验，尽管在提出这一建议时，SPAR III 期的经验正在定稿中。

对 BEFAST 和 SPAR 技术报告（TECDOC）[2]—[7]中的相关信息进行了审查，并只将与现阶段技术最相关的内容进行整理出版。在需要的时候，报告会引用记录有 CRP 更详细信息的参考文献，这些参考文献可能会进一步引起读者的兴趣。

BEFAST 和 SPAR 技术报告（TECDOC）仅研究了在堆内和堆外贮存期间的乏燃料性能。燃料循环还包括一些运输部分的工作。尽管 CRP 中开展了一些运输条件下的乏燃料行为研究（比如，燃料的影响[7]和受损燃料的运输问题[2]），但是本出版物没有纳入这些研究成果。

1.3. 范围

本出版物重点聚焦从动力堆中卸载的乏核燃料。

从成员国正在运营或已运营的一些“特殊”的单一反应堆卸载的乏燃料、从研究堆卸载的乏燃料、分离钚的临时贮存、后处理铀和玻璃化废物不在本出版物的范围内。

表 1. CRP 研究主题

长期 贮存行为	B- I	B- II	B- III	SPAR- I	SPAR- II	SPAR- III	监测	B- I	B- II	B- III	SPAR- I	SPAR- II	SPAR- III	运行设施	B- I	B- II	B- III	SPAR- I	SPAR- II	SPAR- III
材料（包壳 和零部件）	X			X	X	X	监测 （湿法 + 干法） — 环境 — 零部件 — 燃料组件 — 工人剂量			X	X	X	X	能力提升 — 高密度贮存 — 重新装载 — 分层 — 掺杂冷却剂 — 燃料棒集成			X			
性能退化 机理和模型	X	X		X	X	X	燃料状态 — 运行 — 制造 — 技术 — 缺陷		X	X	X	X	X	改变模式 — 湿法转变为 干法			X	X	X	X
验证 — 试验 — 经验							反应堆类型		X	X	X	X	X	严重损坏燃料 处理			X	X	X	X
							系统性能	X		X	X	X	X		X	X	X	X	X	X

2. 全球形势和出版背景

2.1. 燃料循环组成要素

燃料循环的概念模型已经建立，用于表示当前的、预期的和潜在的（未来）核燃料循环的组成要素。燃料循环由 (1) 反应堆模块 (2) 乏燃料管理模块 (3) 地质处置模块和 (4) 先进反应堆模块四个要素组成[17]。前两个模块在全球范围内或局部地区得到了不同形式的商业应用。目前还没有建成乏燃料或高放废物的地质处置库，但芬兰¹、法国和瑞典等一些国家的地质处置贮存库的建设取得了积极的进展。同样，虽然俄罗斯从 1980 年开始已经成功运行了 BN-600 钠冷快堆（Beloyarsk 核电厂 3 号机组），并在近期启动了 BN-800 快堆（Beloyarsk 核电厂 4 号机组），但先进反应堆暂未得到商业应用。

考虑到目前所有核反应堆中轻水堆（包括压水堆（PWR）和沸水堆（BWR））占比超过 85%，图 1 给出了轻水堆（LWR）燃料循环的四个要素。

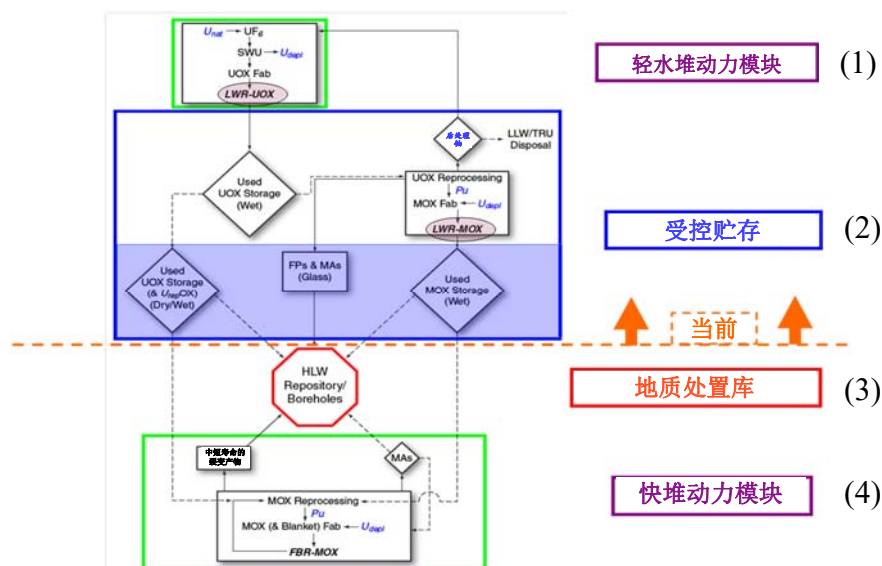
轻水堆（LWR）动力模块

轻水堆前端基础设施（铀矿开采和研磨、转换、浓缩和燃料制造等）已经非常成熟。在此基础上，其它反应堆技术（如 AGR、RBMK、WWER）能较为容易地替代轻水堆技术及其燃料。类似的，通过删除铀浓缩过程，CANDU 和 MAGNOX 技术也能被其它反应堆技术代表。

乏燃料和高放废物（HLW）管理（受控贮存）

受控贮存适用于整个核燃料循环，可以用于在任何节点从反应堆卸载的乏燃料。卸载的氧化铀乏燃料（“辐照过的”或“乏的”氧化铀）要么被临时贮存起来，要么直接进行后处理。乏燃料的临时贮存通常在核电厂内，或者被转运到中心贮存厂进行集中贮存。

¹ 芬兰于 2015 年 11 月颁发了建造许可证。



译注: U_{nat} : 天然铀; UF_6 : 六氟化铀; SWU: 分离功; U_{depl} : 贫铀; UOX Fab: 氧化铀制造; LWR-UOX: 轻水堆氧化铀燃料; Used UOX Storage (Wet): 已使用氧化铀 (湿法贮存); Used UOX Storage (& $U_{rep}OX$) (Dry/Wet): 已使用氧化铀 (干法贮存/湿法贮存); FPs & MAs (Glass): 中短寿命的裂变产物和寿命长达百万年的次锕系核素; U_{rep} : 后处理铀; LLW/TRU Disposal: 低放射性废物/超铀废物后处理; UOX Reprocessing: 氧化铀后处理; Pu: 钚; MOX Fab: MOX 燃料制造; U_{depl} : 贫铀; LWR-MOX: 轻水堆-混合氧化物燃料; Used MOX Storage (Wet): 已使用氧化铀 (湿法贮存); HLW Repository/Boreholes: HLW 处置库/钻孔; FPs: 中短寿命的裂变产物; MAs: 寿命长达百万年的次锕系核素; MOX Reprocessing: 混合氧化物燃料后处理; Pu: 钚; MOX (& Blanket) Fab: 混合氧化物燃料 (和外壳) 制造; U_{depl} : 贫铀; FBR-MOX: 快中子堆 MOX 燃料。

图 1. 当前 (LWR 动力模块和受控贮存)、预期 (地质处置库) 和潜在 (快堆动力模块) 核燃料循环组成要素 (由 EPRI 供图[17])。

含铀乏燃料后处理之后可以得到回收铀，反应堆级钚和。回收铀和反应堆级钚被再次放入 LWR 中继续使用，可以节省约 25% 的天然铀。包含贫铀 ($U_{rep}OX$)、钚 (混合氧化物) 的乏燃料被贮存在临时贮存设施中。在后处理作业产生的不同废物中，含有裂变产物和少量锕系元素的玻璃化 HLW 也被置于临时贮存设施中。

因此，虽然不同系统中的放射性毒性分布不同，没有进行后处理乏燃料和经过后处理放射性废物的最终解决措施都需要临时贮存。实施临时贮存、后处理和燃料再制造的技术和设施都已得到商业化部署和应用。

图 1 经过简单的修改后也可以用于其他反应堆技术，如 AGR、MAGNOX、CANDU、RBMK 和 WWER 等。

地质处置库

所有选项都需要地质处置库。技术界普遍认为，对于核电厂中产生的相对较少的乏燃料和高放废物而言，深层地质处置是一种安全的选择。在这个过程中，政治意愿和社会接受度是大多数国家执行地质贮存的主要影响因素。

先进反应堆动力模块

最主要的设计是以近增殖模式或增殖模式运行的钠冷快堆。根据后处理方案，可以考虑对一些长寿命的裂变产物和低放化物进行分离和嬗变。但是这些技术在未来的几十年都不太可能达到商业化应用的程度。

2.2. 乏燃料贮存

乏燃料贮存是一个临时步骤。这个临时步骤的持续时间与成员国允许的燃料循环政策直接相关。对于选择一次性燃料循环政策的成员国来说，现实的问题是没有乏燃料后处理设施可用。首个地质处置库预计将在 2025 年之前投入使用，但是地质贮存库的普及应用则要到几十年以后。

一些国家延迟实施乏燃料后处理方案，其他国家在某些时候放弃乏燃料后处理方案，以及所有国家延迟乏燃料处置，导致了乏燃料临时贮存时间稳步增加。虽然从不给后代造成负担的角度来看，后者是不可取的，但从技术角度来看，由于在前端实现了更高的效率，实际上的负担已经减小。这些发展减少了乏核燃料（SNF）的数量，但却给乏核燃料贮存系统带来了更大的负担。因此，需要创新的方法来满足这一挑战，比如通过干法贮存或者湿法贮存的方法。较高能耗的乏燃料是其在反应堆内接受较长时间辐照的结果，可能会导致包壳腐蚀的增加、更大的衰变热和更多的裂变气体释放，并导致能耗增大。较大的衰变热也会影响乏燃料后处理和地质贮存的可接受度。在地质处置之前，乏燃料必须临时贮存一段时间，以确保专设和自然屏障体系中材料的热负荷始终低于设计限值。在某些情况下，可能需要将乏燃料冷却 100 年或更长时间。

就锆合金包壳燃料而言，高能耗会导致包壳的吸氢量增加。由于高能耗乏燃料的衰变热较高，在干法贮存（包括附带的操作，如干燥）和运输过程（包括运输后的再湿润）中，氢化物有可能沿径向方向重新定向。氢化物重定向引起包壳力学特性变化，会引起燃料棒在较低温度范围内承受压载荷时延展性下降。因此，研究锆合金包壳乏燃料的吸氢行为及其对包壳力学性能的影响是两个重要的研究方向。CRP 成员国一直在进行此类研究，以提高对干法贮存乏燃料性能的理解。

CRP 成员国关于湿法和干法贮存经验的数据见表 2 和表 3。这些资料来自成员国参与项目时的共享数据。这些数据已经使用通用的燃料循环信息进行了调整，以达到一个共同的基线。

表 2. CRP 成员国湿法贮存经验

国家	反应堆	包壳材料	在出版物中报告的评论/ 共享数据 ^a
阿根廷	CANDU	Zry-4	1、5、6
加拿大	CANDU	Zry-4	1、2、3、4、5
芬兰	PWR	Zry-4	1、2、3
	WWER	Zr-1%Nb	1、2、3
法国	LWR	Zry-4、M5 TM	1、2、3、4、5、6 1、2、3、4、5、6
德国	PWR	Zry-4、M5 TM	1、2、3、4、5、6
	WWER	Zr-1%Nb	1、2、3、4、5、6
	BWR	Zry-2	1、2、3、4、5、6
匈牙利	WWER	Zr-1%Nb	1、2、3、4、5、6
日本	BWR	Zry-2	1、2、3、4、5、6
	PWR	Zry-4、MDA TM 、 ZIRLO TM	1、2、3、4、5、6 1、2、3?
	GCR	MagnoxAL80	
韩国	PWR	Zry-4	2、3、4、5、6
	CANDU	Zry-4	2、3、4、5、6
俄罗斯	WWER440	Zr-1%Nb	1 ^b 、2 ^b 、3、4
	WWER1000	Zr-1%Nb	1 ^b 、2 ^b 、3、4
	RBMK1000	Zr-1%Nb	1 ^b 、2 ^b 、3、4
斯洛伐克	WWER440	Zr-1%Nb	1 ^c 、2 ^c 、3、5、6
西班牙	PWR	Zry-4、ZIRLO TM	3、4、5、6
	BWR	Zry-2	3、4、5、6
瑞典	LWR/PHWR	Zry-2	1、2、3、4、5
瑞士	LWR	Zry-2、Zry-4	6
英国	MAGNOX	MagnoxAl80	2、3、4、5、6
	AGR	20Cr:25Ni:Nb SS	
	LWR	Zry-2、Zry-4	
	SGHWR	Zry-4	
美国	PWR	Zry-4、ZIRLO TM 、 M5 TM	1、2、3、4、5、6
	PWR	SS	1、2、3、4、5、6
	BWR	Zry-2	1、2、3、4、5、6
	HTGR	不适用	1、2、3、4、5、6?

^a CRP 按照顺序连续编号，如 BEFAST II 期项目编号 2，SPAR I 期项目编号 4。

^b 苏联

^c 捷克斯洛伐克

表 3. CRP 成员国干法贮存统计

国家	反应堆类型	贮存类型	第一个贮存系统建成时间	在出版物中报告的评论/共享数据 ^a
阿根廷	CANDU	竖直筒仓	1993	5、6
加拿大	CANDU	竖直筒仓	1985	1、2、3、4、5
		混凝土屏蔽容器	1995	1、2、3、4、5
德国	PWR	金属屏蔽容器	1995	1、2、3、4、5、6
	WWER	金属屏蔽容器	1999	1、2、3、4、5、6
	BWR	金属屏蔽容器	2002	1、2、3、4、5、6
匈牙利	WWER	贮存库	1997	3、4、5、6
日本	BWR	金属屏蔽容器	1995	1、3、4、5、6
韩国	CANDU	竖直筒仓	1992	2、3、4、5、6
西班牙	PWR	金属屏蔽容器	2002	3、4、5、6
	PWR	混凝土屏蔽容器	2009	3、4、5、6
瑞士	PWR	金属屏蔽容器	1983	6
	BWR	金属屏蔽容器	2005	6
英国	MAGNOX	贮存库	1972	2、3、4、5、6
美国	PWR	金属屏蔽容器	1986	1、2、3、4、5、6
	PWR	水平筒仓	1986	1、2、3、4、5、6
	PWR	混凝土屏蔽容器	1994	1、2、3、4、5、6
	BWR	水平筒仓	1999	1、2、3、4、5、6
	BWR	混凝土屏蔽容器	2000	1、2、3、4、5、6
	BWR	金属屏蔽容器	2000	1、2、3、4、5、6

^a CRP 按照顺序连续编号，如 BEFAST II 期项目编号 2，SPAR I 期项目编号 4。

2.3. 燃料组件设计

以下部分概要介绍 BEFAST 和 SPAR 项目中报告的商用燃料设计：

- LWR 燃料组件，包括 PWR 燃料和 BWR 燃料；
- 俄罗斯 RBMK 和 WWER 燃料；
- 加拿大 CANDU PHWR 燃料；
- 气冷堆 MAGNOX 燃料和先进气冷堆 AGR 燃料。

2.3.1. LWR [2][4]

LWR 燃料组件由燃料棒和大量的结构部件组成。

所有 PWR 和 BWR 燃料组件/燃料棒束都包含等间距的燃料棒。锆包壳管里装入了圆柱形的含铀芯块。PWR 和 BWR 燃料组件设计不同之处包括：燃料棒直径和燃料棒的数量；BWR 燃料组件有外部流道盒；BWR 燃料芯块有多种燃料富集度。目前，主流燃料组件燃料棒的排列方式从 14×14 变化到 18×18 。BWR 燃料棒束燃料棒的排列方式从 7×7 变化到 10×10 ，如图 2 所示。燃料组件的不同零部件结构，如定位格架、导向管、上/下管座、垫块、异物过滤板、通水管或燃料通道等主要由锆合金、不锈钢和铬镍合金制造。

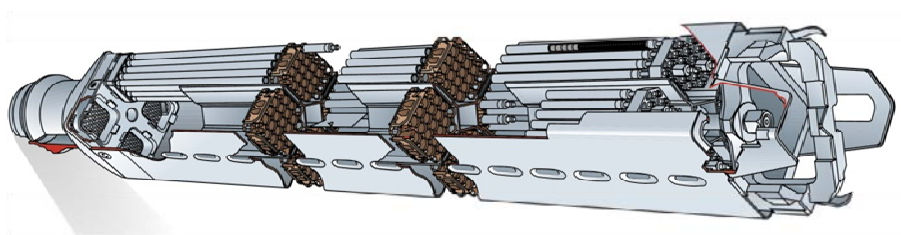


图 2. BWR 燃料组件示意图（由 SKB 供图）。

2.3.2. CANDU [2][4]

用于 CANDU 堆的燃料棒束由 28 根或者 37 根燃料棒组成。这些燃料棒组成圆柱状结构，两端焊接锆合金端板（图 3）。每根 Zry-4 包壳管里装 UO_2 燃料芯块，燃料棒的总长约为 50 cm。根据燃料棒束在组件中的位置，垫片与燃料棒包壳外表面通过钎焊连接。定位格架用于维持冷却剂流道，垫片用于防止包壳管与压力管之间的磨损。Zr-5Be 钎焊用于将锆合金格架和垫片固定在锆合金包壳上。

2.3.3. RBMK

RBMK 是俄罗斯设计的石墨作为慢化剂的沸水堆。俄罗斯已经建造了 3 个 RBMK 反应堆机组，每个机组的功率为 1000 MW(e)。

燃料组件的长度约为 10 米，包括一个中心导向管、两个燃料束（其间隔是为了在辐照期间允许燃料束之间的热膨胀）和一个延长杆。每个燃料棒束包含 18 根燃料棒，由 9 个垫块和一个中心管固定在骨架上。燃料芯块 (^{235}U) 丰度为 2.8%，所有燃料棒都含 0.6% 的中子吸收体材料[2]。

RBMK 燃料组件的主要设计特征见表 4。根据燃料循环方案，RBMK 燃料组件在被拆解处理之前首先需进行冷却处理，延长杆则作为废物处置。

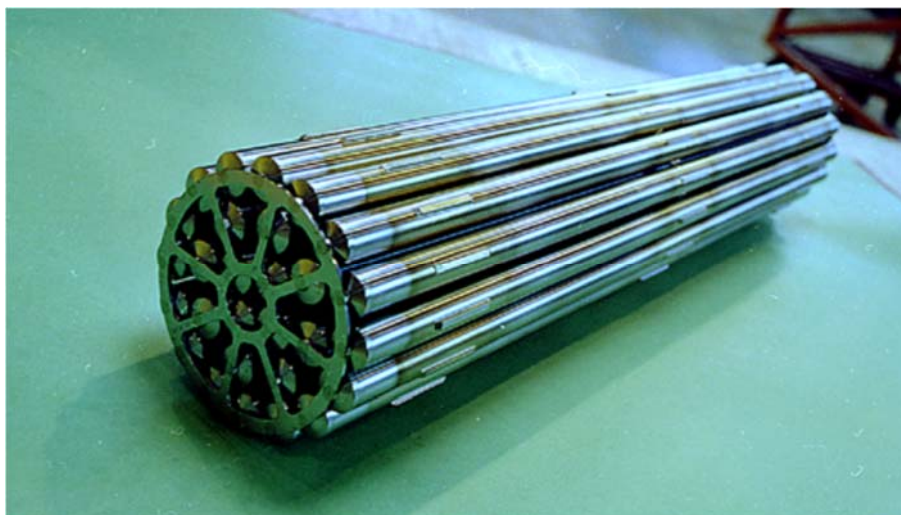


图 3. CANDU 燃料棒束（长度约 50 cm，由 OPG 供图）。

2.3.4. WWER

WWER 是俄罗斯设计的压水堆。燃料组件为六角形，外部有流道盒，部分设计外部没有流道盒。当前设计的 WWER 燃料组件的上管座是可拆的，以便燃料棒的拆装。WWER-1000 和 WWER-400 使用的燃料组件主要有如下几方面的设计差异：

- WWER-1000 燃料组件有 312 根燃料棒，而 WWER-440 燃料组件燃料棒数量为 126 根；
- 不管是长度还是宽度，WWER-1000 燃料组件都要比 WWER-440 燃料组件大；
- WWER-440 燃料组件外面有一个由 Zr-2.5%Nb 制造而成的六角形冷却剂流道盒，而 WWER-1000 燃料组件没有流道盒。

WWER 燃料组件的主要设计特征见表 4。

表 4. 俄罗斯燃料组件主要设计特征

设计特征	反应堆		
	WWER-440	WWER-1000	RBMK-1000
燃料棒外径, mm	9.1	9.1	13.6
燃料棒包壳厚度, mm	0.65	0.67	0.90
包壳材料	Zr-1%Nb	Zr-1%Nb	Zr-1%Nb
燃料组件总长, mm	3200	4570	10 014
燃料组件直径, mm	145	235	80
定位格架材料 ^a	Zr-1%Nb	Zr-1%Nb	Zr-2.5%Nb
结构材料 (燃料组件中心或拐角管)	Zr-1%Nb	Zr-1%Nb	Zr-2.5%Nb
燃耗			
— 当前燃耗	40—43	45—49	24
— 计划燃耗	45—50	55	35

^a 定位格架最初使用不锈钢材料。

2.3.5. AGR

AGR 燃料组件（见图 4）包括石墨套管、底部支撑板、导向管、顶部支架、中间支架和 36 根燃料棒。燃料棒和导向管与底部支撑板固定连接。除了石墨套管，其它零部件都是用不锈钢制造而成。在反应堆内，8 个 AGR 燃料组件由一个不锈钢组件通过燃料组件导向管连接在一起，组合形成燃料串[2][4]。燃料组件通道由长度约为 8 m 的燃料串和一个长度约为 15 m 的拉杆（Dungeness B 电站里燃料串的长度为 7 m）组成。

根据燃料循环方案，AGR 燃料组件从反应堆卸载后，首先需在 CO₂ 环境中冷却，然后在热室里拆解，最后贮存在乏燃料水池中。

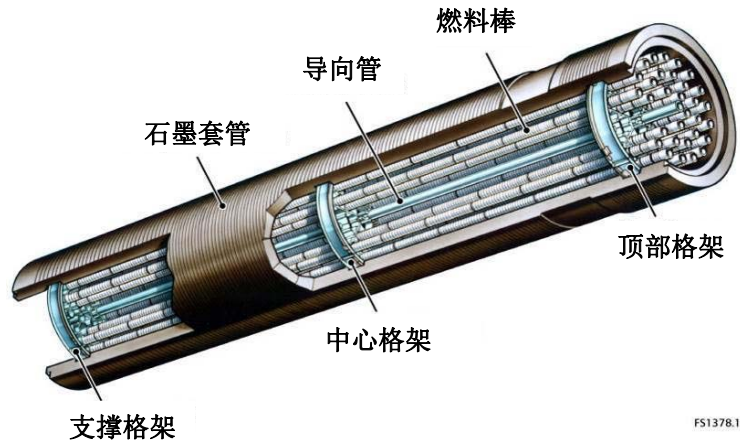


图 4. AGR 燃料组件（由 Sellafield 供图）。

2.3.6. MAGNOX[2][4]

商用 MAGNOX 燃料的制造工作于 2008 年完成。MAGNOX 燃料元件的设计虽然相似，但都是为每个反应堆量身定做。每个燃料元件包括带凹槽的天然铀棒、挤压成型镁合金外壳（多边形或“人字形”）、圆锥形端头、陶瓷绝缘垫和端盖等（见图 5）。燃料元件内部间隙充满氦气后通过施加外部压力锁紧外壳。在反应堆石墨通道内，燃料元件堆叠在一起形成燃料串。在天然铀棒上加工凹槽的目的是锁紧外壳，减小辐照过程中局部应力。端盖仅仅是 MAGNOX 燃料的一个结构部件。

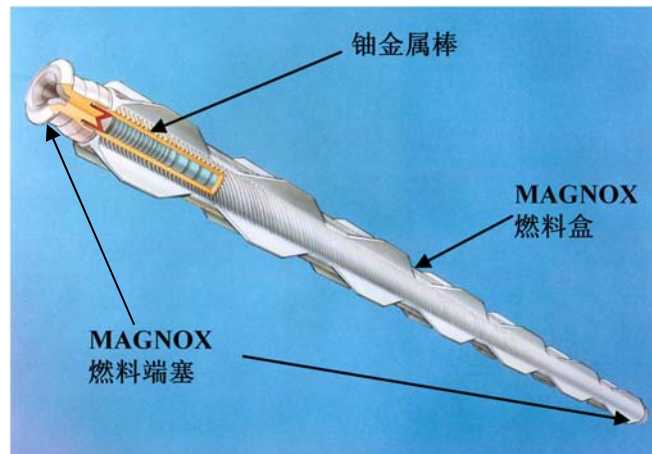


图 5. MAGNOX 燃料组件（由 Sellafield 供图）。

3. 乏燃料贮存技术概述

乏燃料贮存技术主要包括干法贮存技术和湿法贮存技术。这两种贮存技术的目标是相同的，概括起来有以下几点[1]：

- 在正常运行工况和事故工况下维持乏燃料处于次临界状态；
- 有效移除乏燃料的衰变热；
- 确保核电厂操作人员、公众和环境免于受到超过法规限值要求的辐照；
- 在操作和贮存环境腐蚀影响下，保持乏燃料包壳完整性；
- 为乏燃料提供足够的冷却，维持其温度在限值以下，确保燃料性能不会退化；
- 尽量减少放射性同位素的释放以达到保护环境的目的；
- 始终保持乏燃料可回收。

乏燃料贮存相关的安全导则[14]可以提供更多信息。

3.1. 湿法贮存技术

湿法贮存是目前应用最为广泛的乏燃料贮存技术，主要用于核电厂内临时贮存和后处理过程中大规模临时贮存。乏燃料池中冷却水可以为乏燃料提供足够能力的冷却和辐射防护。在本出版物中，AR 指的是与动力堆物理连接或同一建筑物内的乏燃料贮存。

在 CRP 开始时，湿法贮存技术已经经过了约 20 年左右的技术发展和运行经验的积累，是一种比较成熟的贮存技术。在过去的 30 年里，虽然在测量仪器、远程操作、贮存密度等方面有所改进，但是湿法贮存的技术基础没有发生本质的变化。因此，本文不会针对湿法贮存技术展开进一步的讨论。表 5 给出了 CRP 参加国关于湿法贮存的概要，包括贮存设施的数量、设计贮存能力、第一个湿法贮存设施运行时间，以及截止到 2013 年通过湿法贮存所贮存的乏燃料数量。

更多有关乏燃料湿法贮存技术的信息可以从以下文件中获取，包括：

- 乏燃料贮存方案[18]；
- 乏燃料贮存的经验教训[19]。

3.2. 干法贮存技术

与湿法贮存技术不同，在 30 年前，干法贮存技术仅被允许用于一些研究堆乏燃料或者气冷堆燃料贮存。在这一时期，干法贮存的使用有了增长（见图 6），干法贮存技术也得到了发展。例如，1985 年，美国仅允许使用湿法贮存技术贮存乏燃料，但是到 2014 年的时候美国已经建成了大约 66 个乏燃料干法贮存设施，约占美国乏燃料贮存能力的 28%。

表 5. CRP 参加国堆外湿法乏燃料贮存概要

成员国	投运的堆外水池			
	设施数量	总设计能力，t(HM)	2013 年估计存量，t(HM)	首次投运时间（第二个堆外、第三个堆外……）
阿根廷	1	2000	1850	1988
芬兰	2	1890	1673	1980、1987
法国	4	17 600	9799	1981、1984、1986、1988
德国	1	286	100	1999
日本	2	4300	3951	1997、1999
俄罗斯	6	22 500	17 300	1977、1984、1985、1986、1996
斯洛伐克	1	1694	1631	1987
瑞典	1	8000	5740	1985
瑞士	1	425	195 ^a	2008
英国	4	10 200	4608	1964、1981、1986、1988
美国	1	675	675	1984

^a 数据包括 Gösgen 核电厂在堆和堆外贮存的存量。

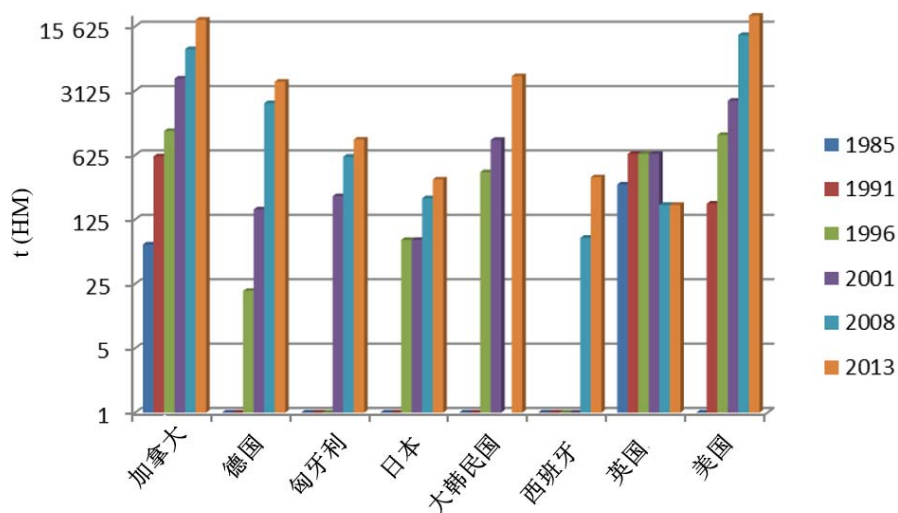


图 6. CRP 参加国乏燃料干法贮存增长情况。

最初的干法贮存技术都是单一目的的系统。他们仅仅起到在堆外贮存乏燃料（只有一个例外）的作用，不具备乏燃料异地运输的能力（没有重新处理和重新将燃料装入运输屏蔽容器）[4]。这样单一功能的干法贮存系统很多，包括贮存库、筒仓，以及不具备运输功能的屏蔽容器。

随着干法贮存技术的发展，人们逐步认识到用于贮存乏燃料的屏蔽容器和罐可以发挥更多样的作用。在此基础上，同时具备贮存和运输功能的屏蔽容器被研发出来（比如德国的 CASTOR 屏蔽容器、美国的 NAC-STC 屏蔽容器等）。一些贮存系统的容器可用于乏燃料的运输和/或最终处置，这些系统被称为两用或多用系统[1]。

表 6 给出了 CRP 参加国已经投入使用的乏燃料干法贮存设施、设计贮存能力和截至到 2013 年通过干法贮存所贮存的乏燃料数量。

表 6. CRP 参加国干法贮存概要

成员国	投运的干法贮存系统			
	设施数量	首次投运时间	2013 年设计能力， t(HM)	2013 年估计存量， t(HM)
阿根廷	1	1993	2460	1950
加拿大	7 ^a	1984 ^b	27 700	18 427
德国	15	1992	22 370	3924
匈牙利	1	1997	1080	837
日本	2	1995	760	340
韩国	1	1992	6237	4903
俄罗斯	3	2012	9500	1000
西班牙	3	2002	1236	360
瑞士	2	2001	3800	410
英国	1	1971	258	180
美国	60	1986	43 000	20 200

^a 不包括 Chalk River 和 Whiteshell 研究中心的设施。

^b 数据系指原型 CANDU 动力堆燃料贮存。第一个干法贮存系统于 1977 年在 CRL 部署，用于早期动力堆/研究堆乏燃料贮存。

以下各部分概述了在 CRP 参加国投运的干法贮存系统的基本信息。

3.2.1. 贮存库

贮存库是第一种用于商用核电厂乏燃料干法贮存的系统。该技术最初用于气冷堆乏燃料贮存，是迄今为止唯一用于此目的的干式贮存技术。

贮存库的设计原理是将乏燃料贮存在一个钢筋混凝土建筑内的贮存通道阵列中。设施的外部结构具有屏蔽防护作用，设施内的通道通过空气自然循环将乏燃料组件的衰变热带走。衰变热要么直接排到大气中，要么通过二次除热系统排出[1]。另外，通过强迫空气冷却也可以提供冷却。乏燃料以单个或多个组合的方式贮存在贮存通道中。最初的技术是将未包装的乏燃料贮存在贮存通道中，新的系统则是将包装好的乏燃料贮存在贮存通道中。贮存通道使用金属 O 圈密封，并充满惰性气体。用于包装乏燃料的容器在惰性气体环境中进行焊接密封。与其他干法贮存技术不同的是，乏燃料贮存通道内的环境可以监测。

目前，贮存库设施已经在法国、匈牙利、英国和美国建成投运。虽然在参加 CRP 的时候还不具备建设的条件，但是俄罗斯自参加 CRP 以来已经建

成了一个贮存库综合设施²，专门用于贮存 RBMK 反应堆卸载的乏燃料和 WWER-1000 反应堆卸载的乏燃料。西班牙也正在发起一个建设项目，拟在未来建设一个基于贮存库技术的集中干法贮存设施。

图 7 展示了匈牙利 Paks 核电厂模块式贮存库干法贮存设施（MVDS）。MVDS 干法贮存设施是第一个建成的用于水冷商用核电厂乏燃料干法贮存的系统。表 7 给出了 CRP 参加国贮存库设施的概要，更多关于贮存库设施的信息见参考文献[18]。



图 7. Paks 核电厂 MVDS 干法贮存设施，顶部视图和装料大厅
(由 PURAM 供图)。

² 参考文献[2]报道了建造乏燃料贮存设施的计划。该设施最初计划于 2007 年投入使用，总贮存量为 33 000 吨（HM）。

表 7. CRP 参加国贮存库设施干法贮存概要

国家/设施	设施数量	2013 年设计能力， t(HM)	2013 年存量， t(HM)	首次投运时间
法国 ^a	1	180	180	1990
匈牙利	1	1080	837	1997
俄罗斯	1	8200	330	2012
英国	1	3 × 86	180	1971
美国 ^a	1	14.7	14.7	1991

^a 法国和美国的贮存库贮存特殊类型动力堆卸载的燃料。

3.2.2. 筒仓或混凝土密封容器

采用筒仓或者混凝土密封容器贮存乏燃料的技术最初是由加拿大 AECL (Atomic Energy Canada Limited) 提出的。1975 年, AECL 在 Whiteshell 实验室建立了第一个原型系统。该原型系统的初始设计依赖混凝土屏蔽层内的空气自然循环进行散热, 确保乏燃料长期贮存期间混凝土的温度低于设计限值。在后续的筒仓系统 (NUHOMS 和 MAXSTOR) 的设计中, 又进一步在混凝土中增加了通风孔 (见图 8), 以增强散热。

筒仓贮存设施主要由固定的整体式或者独立的钢筋混凝土结构组成, 混凝土主要起屏蔽的作用。用于贮存乏燃料的容器有两种形式: 一种是一体式的金属结构, 内部装燃料篮, 燃料篮里装乏燃料; 另一种是单独的密封金属容器。筒仓不是垂直定向 (CANDU) 就是水平定向 (LWR)。燃料装入筒仓一般都是在贮存场址使用金属运输屏蔽容器进行[1]。

参考文献[18]提供了关于筒仓的更多信息。表 8 概括了 CRP 参加国使用筒仓和混凝土密封容器设施的情况。



图 8. 卡尔弗特-克利夫斯核电厂 NUHOMS® 系统（美国核管会供图）。

表 8. CRP 参加国筒仓和混凝土密封容器设施概要

国家	设施数量	2013 年设计能力, t(HM)	2013 年存量, t(HM)	首次投运时间
阿根廷	1	2210	1950	1993
加拿大 ^a	4	5047	3924	1984
韩国	1	6250	4900	2012
美国 ^b	26	8500	7800	1986

^a 不包括 Chalk River 和 Whiteshell 的研究设施。

^b 一些厂址包含屏蔽容器和筒仓系统的混合，因此在设计能力上存在一些重复计算。设计能力在有数据时取自原子能机构核燃料循环信息系统。

在 CRP 研究期间，阿根廷、加拿大、韩国和美国报告了其乏燃料在筒仓或混凝土密封容器中的贮存情况。

3.2.3. 屏蔽容器（金属和混凝土）系统

金属和混凝土屏蔽容器是用于乏燃料干法贮存的另一种形式。根据原子能机构专业术语表，乏燃料干法贮存容器是指一种便于乏燃料贮存、移动或最终处置的容器[1][20]。这种容器要么是厚壁容器，要么是有独立保护壳

的薄壁容器。金属屏蔽容器的结构材料可以使锻钢、球墨铸铁、钢/铅或锻钢/树脂/钢夹层结构[1]。混凝土屏蔽容器是钢/混凝土/钢三明治结构，或者是有独立保护壳（通常是钢筋混凝土）的薄壁钢密封容器。

参考文献[18]提供了大量的各种容器系统的设计和描述。

这种乏燃料干法屏蔽容器贮存设施已经在加拿大、德国、日本、俄罗斯、瑞士和美国等建成投运。表 9 给出了 CRP 参加国使用干法屏蔽容器贮存的概要。

表 9. CRP 参加国屏蔽容器干法贮存概要

国家	设施数量	2013 年设计能力, t(HM)	2013 年存量, t(HM)	首次投运时间
加拿大	3	22 645	14 503	1996
德国	15	22 370	3924	1992
日本	2	900	250	1995
俄罗斯	2	1300	656	2012
西班牙	3	1236	360	2002
瑞士	2	3800	438	2001
美国 ¹	42	33 750	15 149	1986

¹ 美国三个厂址包含屏蔽容器和筒仓的混合，因此数字存在一些重复计算。

3.2.3.1. 金属屏蔽容器

1977 年，德国首次研究了使用金属屏蔽容器来贮存和运输乏燃料的可行性。经过一段时间的概念论证和示范试验，1986 年第一个商用系统在美国萨里核电厂部署。

金属屏蔽容器通常直接从燃料装载区转移到贮存场地。部分金属屏蔽容器被批准用于贮存和（在公共道路上）场外运输。乏燃料通常垂直装入金属屏蔽容器并垂直贮存[1]。

德国、日本、西班牙、瑞士和美国等许多 CRP 成员国都有使用金属屏蔽容器贮存的经验[1]。图 9 和图 10 给出了部分示例。



图 9. 美国 Surrey 核电厂 TN-32 贮存屏蔽容器（由美国 NRC 供图）。



图 10. 德国 Ahaus 和 Gorleben 的 CASTOR 屏蔽容器（由 GNS 供图）。

3.2.3.2. 混凝土屏蔽容器

加拿大安大略水电公司首先研究了使用混凝土容器来运输、贮存和处置乏燃料的混凝土屏蔽容器，这种设计被称为 DSC 系统。1988 年建立了一个示范项目，后来在 1996 年部署了第一个使用该技术的商业系统，即图 11 所示所示的干法贮存屏蔽容器（DSC）。



图 11. CANDU 乏燃料干法贮存屏蔽容器（由 OPG 供图）。

大约在同一时间，美国完成了类似的混凝土屏蔽容器贮存系统设计，这种设计后来被称为 **Sierra** 核公司的通风贮存屏蔽容器（VSC）。VSC 系统与安大略水电公司的 DSC 系统的不同之处在于，乏燃料被装载到一个金属密封容器中，然后使用金属运输屏蔽容器将其转移到混凝土贮存屏蔽容器中。相比于 DSC 系统，VSC 系统的主要优点是可以贮存仅经过较短时间冷却的高燃耗乏燃料。此后，DSC 的热负荷限值通过使用高性能混凝土系统得到了进一步改善。

之后，更多的混凝土屏蔽容器逐步发展起来，比如 **HOLTEC** 公司的 **HI-STORM** 通风模块、**NAC** 公司的 **UMS** 和 **GNB** 公司的 **CONSTOR** 屏蔽容器等，参考文献[18]提供了关于混凝土屏蔽容器的更多信息。

成员国加拿大、西班牙和美国报告了在 CRP 期间混凝土屏蔽容器的贮存情况。

4. 乏燃料性能退化机理（湿法和干法）

本章中的信息来自于参考文献[2]和[4]，否则将予以说明。另外，其他参考文献的内容根据需要适当引用。

保持乏燃料和燃料棒包壳结构完整性是非常重要的。在贮存及操作过程中，完整的燃料棒包壳是燃料芯块及其裂变产物的第一道安全屏障。这对所有类型的乏燃料都是一样的，包括 LWR、WWER、RBMK、AGR、MAGNOX 和 CANDU 堆乏燃料。对于 CANDU 和部分 BWR 燃料，包壳结构完整性对保持燃料组件（燃料棒束）结构完整性有重要影响，因为这些燃料组件中的部分燃料棒同时也是用于承载的结构件。

4.1. LWR

除了早期数量有限的燃料设计外，当前所有的 LWR 燃料棒包壳都是由锆合金制成的。BWR 主要使用 Zry-2 合金，而 PWR 主要使用 Zry-4 合金或 Zr-Nb 合金。

4.1.1. 湿法贮存

在湿法贮存期间，可能引起乏燃料包壳完整性失效的机理包括：

- 1) 均匀（水）腐蚀；
- 2) 局部腐蚀（点坑腐蚀、电蚀和微生物腐蚀（MIC））；
- 3) 氢化。

图 12 说明了在湿法贮存期间可能导致燃料包壳完整性失效的机理。

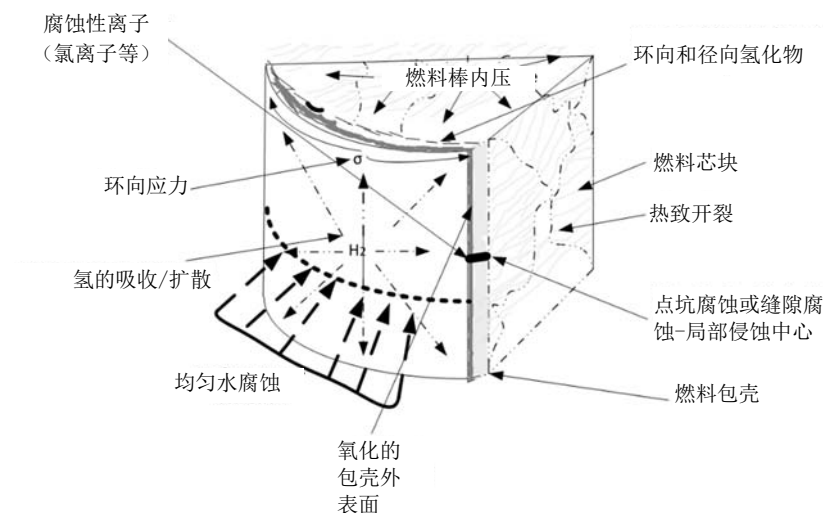


图 12. 湿法贮存期间可能影响乏燃料包壳完整性的机理。

4.1.1.1. 均匀腐蚀

锆合金在 200°C 以上的加压水和水蒸气中的腐蚀性能研究已经较为透彻。由于在转折后腐蚀区域腐蚀速率符合阿伦尼乌斯定律 (Arrhenius law)，因此在 30°C 至 45°C 的环境下锆合金的腐蚀速率比反应堆运行条件下的腐蚀速率低约 10^{10} 量级³。因此，至少在受控的水化学条件下，锆合金在湿法贮存期间几乎不会发生均匀腐蚀。

2012 年，SPAR-III 期项目采用浸入式试验方法研究了 50°C 时不同水化学条件下经过辐照的 Zry-4 包壳管样品的腐蚀性能[7]。将抛光和氧化后完整的包壳试样浸入氢氧化钠 (pH 值为 11.4)、硝酸钠 (浓度高达 50 ppm) 和脱盐水中。氢氧化钠和硝酸钠溶液采用脱盐水制成。试验时间为一年。基于前期确定的方案，在选定的时间间隔内取出试样，通过失重测量和扫描电子显微镜 (SEM) 金相检查开展分析。

³ 从这个角度来看，一个完整的发电日所产生的腐蚀相当于在湿法贮存几百万年时间里所产生的腐蚀。

通过研究得到如下结果：

- 腐蚀速率低于可检测值。因此，SEM 极限分辨率（50 nm）被视为所有水化学条件下的腐蚀速率的最差值，即 50 nm/年⁻¹；
- 没有观察到原始 ZrO₂ 层的剥落或局部腐蚀现象；
- 不能得出任何化学反应对氧化层的附着厚度或形态有影响的结论。

除锆基材料外，燃料组件/燃料棒束还使用了包括不锈钢（304L）和锆合金（625、718 和 X-750）等其他结构材料。虽然它们在水中的均匀腐蚀速率高于锆合金在水中的腐蚀速率，这些材料在湿法贮存环境中仍然表现出优异的耐腐蚀性（<1 μm/年⁻¹）。

4.1.1.2. 局部腐蚀（点坑腐蚀、电化学腐蚀和 MIC）

湿法贮存期间，池水起电解质的作用，电化学腐蚀会对两种属性不同的金属中的一种进行优先攻击。当乏燃料与乏燃料水池中贮存格架或干法贮存容器贮存材料接触时，必须关注电化学腐蚀的影响。

不锈钢在乏燃料水池贮存格架和贮存容器中得到普遍使用，因为它和锆合金一样，是贵金属，不会发生电化学腐蚀。迄今为止的证据证明了这一点。另一种使用较为广泛的材料是铝。铝合金较为活泼，如果与锆合金接触，会使铝合金氧化，使锆合金氢化。但实际上，上述现象并未发生。在现实中，这种情况不会发生，因为这两种材料都很容易形成氧化膜从而形成屏障，防止材料之间直接发生电化学反应。

在乏燃料水池正常水化学条件下，锆合金和不锈钢不易发生点坑腐蚀。MIC 则是某些细菌物种代谢活动的结果；特别是在静水中的硫酸盐还原细菌的作用下。虽然有一些证据证明在冷却结构中会发生 MIC，但尚未在锆合金和乏燃料水池贮存设备中观察到 MIC 现象。作为一项预防措施，可以定期取样以检测有害物种的存在；特别是对于室外贮存设施。

4.1.1.3. 氢化

反应堆运行结束时，锆合金包壳的最大截面平均氢含量通常在 50—600 ppm 之间；具体的值则与锆合金材料成分、高度位置以及燃耗等有关。当乏燃料被冷却到水池温度时，锆合金中的氢主要以氢化物的形式存在，除了可

能与辐照缺陷有关（或被困在其中）的氢，如空位错位环。由于水的传热特性，在感兴趣的乏燃料实际水池温度条件下长期贮存时，可以排除由于热扩散和奥斯特瓦尔德熟化作用（Ostwald ripening）导致的氢再分布。

4.1.2. 干法贮存

干法贮存和后续的装卸和运输操作期间，可能影响 LWR 燃料包壳完整性的性能退化机理包括：

- 1) 空气氧化；
- 2) 热蠕变；
- 3) 应力腐蚀开裂（SSC）；
- 4) 氢致延迟开裂（DHC）；
- 5) 氢化物重定向；
- 6) 氢迁移和再分布。

当惰性气体（通常为氦气）逐渐被空气取代，惰性环境逐步丧失时，空气氧化需要重点关注。热蠕变、SSC 和 DHC 可能会导致贮存期间出现穿透包壳的缺陷。氢化物重定向、氢迁移和再分布不太可能会导致燃料棒失效，但它们可能会降低包壳在操作或运输事故中承受机械载荷的能力，间接导致包壳失效。

寿期末，LWR 燃料棒截面上可能影响乏燃料锆合金包壳结构完整性的各种因素如图 13 所示。

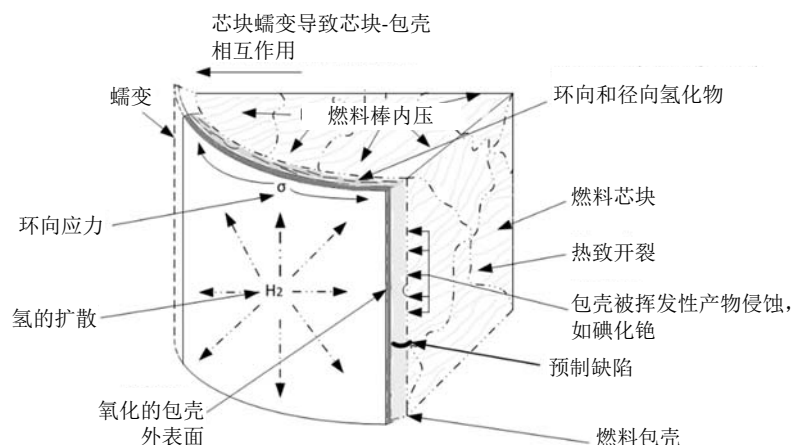


图 13. 干法贮存期间可能影响乏燃料锆合金包壳完整性的机理。

导致包壳完整性丧失的潜在系统性条件要么被法规禁止，要么被认为是不太可能发生综合性现象，尤其是那些由严重的包壳破裂引起的现象。由于应力强度因子值远低于裂纹萌生和/或扩展的阈值，SSC 和 DHC 通常被认为不太可能导致薄壁包壳燃料元件失效。但是，对于 CANDU 乏燃料而言，DHC 是导致乏燃料结构完整性失效的重要机理。为了更好地理解发生氢化物重定向所需要的条件，开展了很多实验研究工作，以便更好地理解包壳力学性能退化以及它对乏燃料处理和运输的潜在影响。由于轴向温度分布不均引起的氢迁移现象的影响有限。

4.1.2.1. 空气氧化

通过适当的干燥和惰性处理操作，干法贮存期间的惰性气氛环境可以使乏燃料与大量空气接触。正常情况下，不会导致乏燃料发射超过其在堆内服役时遭受的氧化程度。因此，氧化不是正常惰性贮存环境条件下导致材料性能退化的主要机制。在非正常工况或事故条件下可能会发生空气氧化，这种情况下将导致贮存系统的密封失效。主要需考虑如下两种情况：(1) 燃料棒包壳没有贯穿性缺陷；(2) 燃料棒包壳存在贯穿性缺陷。

包壳氧化

由于在典型的干法贮存温度下,空气对锆合金包壳的氧化率相对较低⁴,甚至在长时间空气暴露的情况下,包壳壁厚损失也被限制在几个百分点。因此,对于不含穿透性缺陷的燃料棒来说,包壳仍然是有效的安全屏障,保护燃料芯块不会暴露在空气中。

燃料氧化

对于存在贯穿性缺陷的包壳,空气会进入燃料棒内部与燃料芯块接触。温度低于~250°C时, UO_2 氧化速率非常低。如果温度超过 250°C, UO_2 将可能转化为 U_3O_8 。乏燃料在空气中的氧化过程分为两步,如公式(1)所示:



在乏燃料氧化试验中[21],氧/金属比(O/M)会首先在 2.4 附近达到一个稳定水平(而不是 U_4O_9 对应的 2.25)。氧化过程(公式(2))不会引起芯块密度的显著变化。



一旦乏燃料氧化为 $UO_{2.4}$,将抑制其进一步氧化为更高价的氧化物。过了稳定期,氧化过程将会继续,并持续发展至 U_3O_8 相形成(公式(3))。



公式(3)中的反应强烈地依赖于燃料温度和燃耗深度,而且这个转变将导致体积膨胀超过 36%。燃料氧化为 U_3O_8 产生的体积膨胀,将导致包壳应力提高,可能导致包壳严重破裂或者燃料棒出现“拉链状”开裂。

对燃耗深度为 $50 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 和 $65 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ [22]的辐照后芯块进行了研究,以得到燃耗深度对氧化性能的影响规律。将燃料样品暴露在 300~400°C 的干燥空气中。图 14 给出了 300°C (左图)和 350°C (右图)下的增重曲线;4%增重对应 UO_2 已 100%转化为 U_3O_8 。在 300°C 时,燃耗为 $50 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 和 $65 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ [22]的燃料氧化行为没有明显差别。另

⁴ 根据 *The Corrosion of Zircaloy Clad Fuel Assemblies in a Geological Repository Environment* [Hillner E., Franklin, D.G., and Smee, J.D., WAPD-T3173 (1998)]中提出的公式预测,燃料在 400°C 温度下保持 100 天,包壳壁厚的额外损失只有 20 μm 。虽然 Hillner 等人的公式是针对蒸汽腐蚀而提出的,但是蒸汽腐蚀和空气腐蚀速率基本相同。

一方面，在 350°C 时，O/M 比超过 2.4 之后，燃耗为 $65 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的样品的氧化率高于燃耗为 $50 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的样品。据此推断，燃料芯块的微观结构影响了其在 350°C 时的氧化性能。

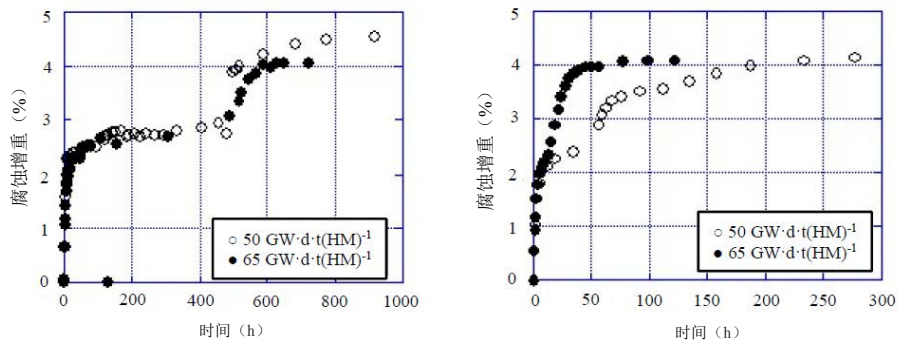


图 14. 氧化行为与燃耗及温度的关系（由 CRIEPI 供图[4]）。

4.1.2.2. 热蠕变

泄压后造成驱动力减小（也就是棒内压力减小），再加上燃料棒内贮存的机械能非常低（以 pV 的形式），过度蠕变造成的包壳破裂通常是“针孔”形式（或细裂纹）的开裂。为了避免干法贮存期间出现蠕变导致包壳破裂的可能，早起对于整个干法贮存周期内可能的热蠕变量建立的准则是非常保守的。Spilker 等[23]人提出的贮存末期允许 1% 的蠕变量是很保守，该值被德国安审机构接受。据报告，过去 20 年乏燃料行为的研究已取得了重大进展。因此，当前与热蠕变相关的监管要求存在较大的差异。热蠕变相关的监管要求包括：最高要求，遵守 Spilker 等提出的 1% 蠕变限制；最低要求，无强制的蠕变限值，如美国的监管制度。

早期，德国在实施蠕变限制时形成了一套方法，主要考虑以下因素：

保守地将从未辐照的包壳上获得的关联性应用于预测经过辐照的包壳的热蠕变性能。通过比较未辐照合金和经过辐照合金的蠕变数据，可以得到保守因子（见图 15）。

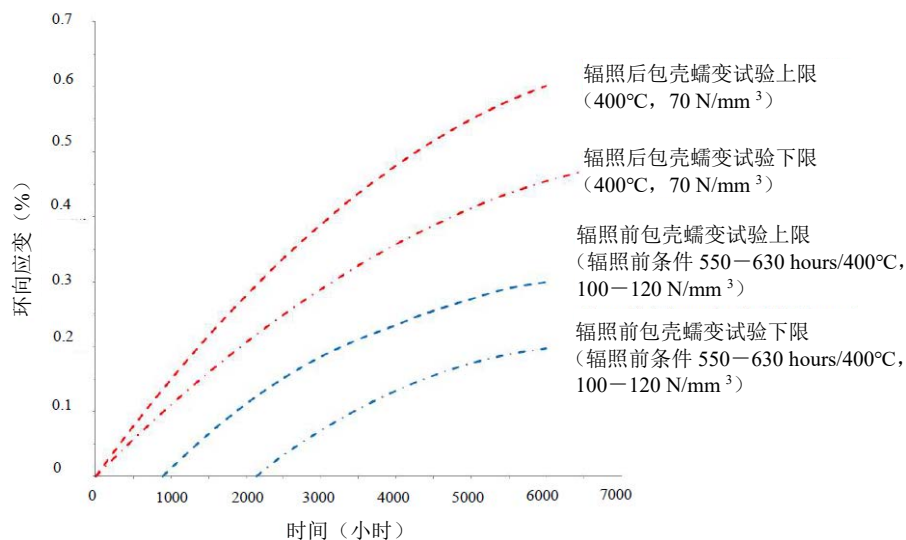


图 15. 辐照后和未辐照的 Zry-4 包壳蠕变应变比较[4]。

在假设的干法贮存条件下，收集了燃料棒包壳的总蠕变性能数据库。对于燃耗小于 $40 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的乏燃料，爆破试验表明包壳破裂前的均匀应变量将达到 1%。由于包壳管破裂应变能力随能流的增加而减小，保守的应变速率非常高的爆破试验被应变速率较低的加速蠕变试验所替代。因此，采用燃耗高达 $64 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的乏燃料开展了一个试验项目[23]。该项目为德国平均燃耗为 $55 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的 UO_2 和 MOX 乏燃料贮存提供了受安审机构认可的设计基准。

尽管干法贮存还不是法国商用核电厂燃料循环计划的必要选项，但是在 PRECCI (Programme de Recherches sur l'Evolution à long-terme des Colis de Combustibles Irradiés) 项目背景下，为了更好地理解乏燃料在干法贮存和地质处置相关环境条件下的长期演变过程，法国在试验和分析方面开展了很多工作。尤其是，试验数据、推导蠕变破裂准则、建立包壳蠕变本构方程等。这项工作是在法国核废物管理法的框架下进行的[24]。

在日本，燃料包壳的蠕变行为被认为是实施乏燃料干法贮存过程中影响燃料结构完整性的最重要问题之一。在晶界滑移和位错攀爬两种蠕变机理下，在不同的周向应力、温度和辐照条件下研究了蠕变性质。位错攀爬

(σ/E 比值较高, 其中 σ 是周向应力, E 是杨氏模量) 向晶界滑移 (σ/E 比值较低) 的转变如图 16 所示。

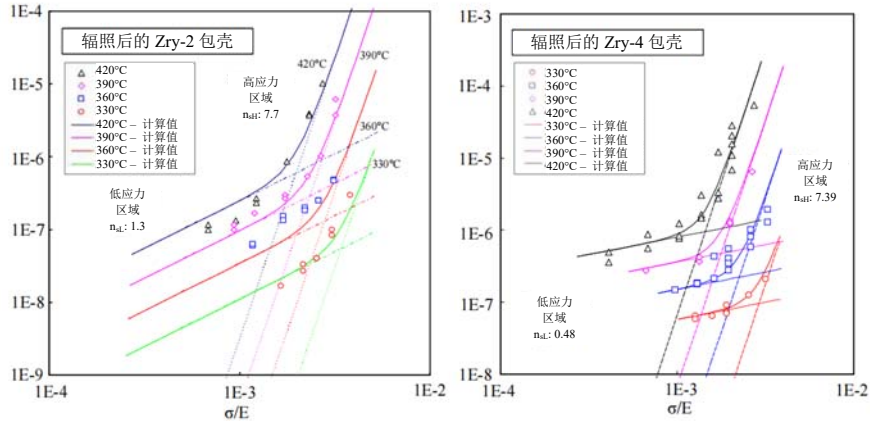


图 16. 应力与二次蠕变率关系曲线 (由 JNES 供图[4])。

为未辐照和经过辐照的 BWR 包壳 (燃耗高达 $50 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的 Zry-2 包壳) 和 PWR 包壳 (燃耗高达 $48 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的 Zry-4 包壳) 推导的蠕变应变公式表达为初始蠕变应变和稳态蠕变应变之和。公式记录在参考文献[4]中。

在所有温度条件和应力机制下, 辐照后包壳的稳态蠕变速率和蠕变应变都比未辐照包壳小。在测试条件范围内, 这些结果确认了较低的蠕变应变是由中子辐照造成的。温度和应力较低时, 影响较小。假设在高应力区和低应力区的蠕变机制分别是位错攀移和晶界滑移, 诸如点缺陷簇、间隙原子和位错环等辐照缺陷阻止了位错运动。因此, 在位错攀移蠕变占主导的高应力区, 蠕变抑制变得更显而易见。另一方面, 由于辐照缺陷被认为对抑制晶界滑移蠕变的效果不太有效, 所以在低应力区的抑制效果相对较低。

对未辐照包壳所开展的试验, 在所研究的温度和周向应力范围内, 氢对包壳蠕变的影响如下:

- 氢含量低于溶解度极限: 对于 BWR Zry-2 包壳, 充氢后蠕变表现出了轻微的加速, 但是对于 Zry-2 包壳却没有明显的变化;

- 氢含量高于溶解度极限：PWR 包壳的蠕变抑制作用随着氢含量增加而增加，但是 BWR 包壳在低应力区观察到轻微的加速作用，在高应力区则观察到抑制作用；
- 由于氢化物重定向，在径向方向没有观察到对蠕变速率的影响。

西班牙 CSN、ENRESA 和 ENUSA 已经成功地实施了一个计划，即在西班牙 Vandellós 核电厂的高燃耗 ZIRLO 合金 ($68 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$) 上获得了热蠕变数据[25]。蠕变结果与作为参考的 Zry-4 包壳的蠕变性能一致。在一次试验中，包壳管截面应变为 17% 时，试样发生了泄漏；值得注意的是，裂纹在泄压后自动闭合，表明材料保持了良好的塑性。

在美国公用事业行业和美国核管理委员会 (NRC) 的联合支持下，EPRI 建立了一种用于高燃耗乏燃料干法贮存的蠕变方法论[26][27]。所考虑的行为机制包括辐照损伤恢复和氢含量对包壳蠕变速率的影响。此外，还考虑了外表面腐蚀（包括氧化物剥落）对包壳局部应力的影响，以及由此产生的对蠕变变形的影响，还有干法贮存过程中持续冷却造成的应力随温度变化影响。蠕变断裂试验表明，蠕变断裂是应力诱发的塑性失稳，在干法贮存过程中不太可能发生。这是因为在干法贮存条件下，包壳的蠕变变形是自限制的，其特征是应变率不断降低，这是由于包壳应力不断降低，与蠕变引起的体积膨胀和温度下降成比例。结果表明，在干法贮存过程中，蠕变应变不太可能超过导致塑性失稳的临界应变。

同期，美国阿贡国家实验室 (ANL) 进行的实验采用了 Surry 核电厂乏燃料（燃耗约为 $35 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ ）和 H.B. 罗宾逊核电厂乏燃料（燃耗约为 $68 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ ）研究 Zry-4 包壳的蠕变性能。径向蠕变应变高达 8.5% (Surry) 和 5.5% (HBR)，没有出现包壳厚度局部减薄现象。

图 17 给出了对氧化层厚度为 $120 \mu\text{m}$ 的高燃耗燃料棒和深度等于原壁厚 50% 的氢化物透镜状韧带结构进行干法贮存分析模拟的例子。初始温度和内压分别为 400°C 和 19.1 MPa 。此外，假设在 24 小时的干燥周期中温度为 440°C ，包括升温 and 降温各 8 小时。图 17 给出了氢化物透镜状区域（薄截面）处和远离透镜状区域（厚截面）处的环向应变，氧化层厚度作为等效金属损耗处理。这张图给出了包壳蠕变的自限行为（即使在局部氢化物透镜状区域）。

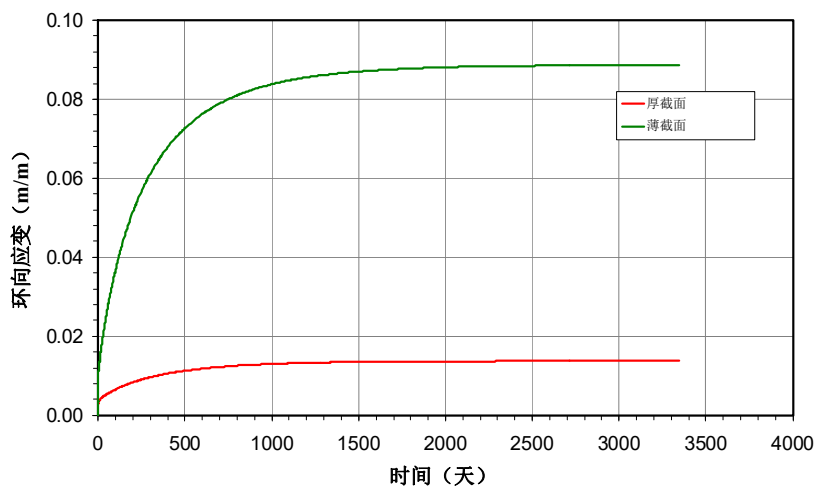


图 17. 在干燥屏蔽容器中经过 24 小时干燥循环后燃料棒的应变历史，峰值温度为 440°C（由 EPRI 供图[4]）。

在加压管蠕变试验中没有模拟的一个重要行为特征是燃料芯块对含局部氯化物的高燃耗燃料棒蠕变变形抑制的影响。图 18 给出了存在使包壳有效壁厚减少 2 倍的透镜状氯化物的情况下，有燃料芯块燃料棒（左侧）与无燃料芯块空包壳段（右侧）蠕变造成的变形。结果表明，蠕变变形是不均匀的。对于无燃料芯块试样，变形倾向于局限于透镜状氯化物区域。这将导致包壳被拉向远离透镜状区域 90 度的位置，进一步增加了变薄区域的变形。燃料芯块阻止了这种行为的进一步发展，并限制了透镜状氯化物区域的变形。两种蠕变行为模式的差异是相当显著的。

这些研究结果导致了美国 NRC 做出了决定，概括起来有以下几点：

“总体而言，这些数据和分析支持以下结论：(1) 蠕变引起的变形会随着时间的推移而缓慢发展，并会降低棒内压力；(2) 随着包壳温度的降低，环向应力也随之降低，蠕变速率也随之减慢，以致于在干法贮存后期蠕变变形增量极小；(3) 在不太可能发生的情况下，由于蠕变导致的包壳破裂不会非常严重。基于上述结论，NRC 工作人员确信，在正常贮存条件下的蠕变不会导致包壳出现大破口，并且只要使包壳的最高温度不超过 400°C (752°F)，乏燃料的结构完整性是可以保证的[28]”。

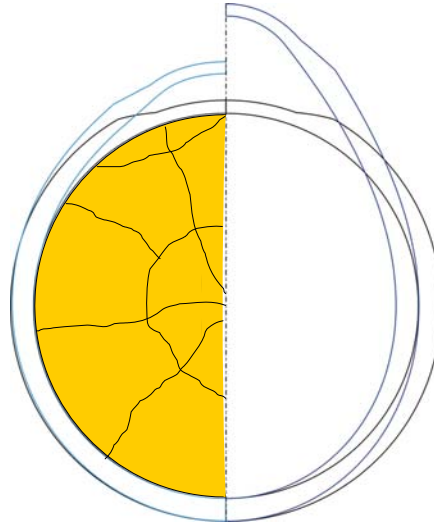


图 18. 含芯块燃料棒（左侧）和空包壳管（右侧）蠕变试验结果对比（由 EPRI 供图[4]）。

4.1.2.3. 应力腐蚀开裂

碘致应力腐蚀开裂（SCC）仅在特定的高温区域发生，并且该区域需要存在化学活性碘和足够的应力。裂变产物的行为具有抗释放高稳定性的特点。 UO_2 芯块晶体结构是在 CaF_2 型晶格，包含多个空位，这有助于保留反应堆运行产生的裂变产物。此外，每个裂变的 U 原子都会在晶格中留下一个额外的空位。因此，即使在高燃耗燃料中，也不是所有空位都被占据的， UO_2 晶体有足够的包容裂变产物。关于这个主题的完整讨论可以在 Peehs 等人[29]的文章中找到。在典型的干法贮存温度范围内， UO_2 芯块在运行条件下产生的裂变产物在 UO_2 晶格中是固定的，并且碘不是以可能引发 SCC 的形式存在的。

由于 SCC 诱发剂和裂纹扩展所需的应力条件通常不会同时存在，因此可以得出结论，包壳不会发生由于 SCC 导致的失效。因此，所有裂变产物驱动的可能引起缺陷的机理，如应力腐蚀开裂、燃料棒内部裂变产物对包壳的均匀腐蚀和局部腐蚀都不活跃。

4.1.2.4. 氢致延迟开裂

锆合金发生氢致开裂的途径有很多种。DHC 是一个非常特殊的力学过程，需要锆的三轴应力来膨胀晶格。三轴应力使固溶体中占据晶格位置的氢原子变成间隙原子，造成锆的四面体晶格膨胀。这将允许氢原子沿着应力梯度扩散并在峰值应力区域析出。虽然在足够厚的锆合金试样中观察到 DHC，但由于包壳管没有足够的壁厚来产生很大的三轴应力，因此 DHC 预计不是导致包壳管失效的主要机理。

对有缺口和预制裂纹的试样的实验研究表明，DHC 过程可以分为两个阶段。第 I 阶段包括裂纹萌生，随后裂纹扩展速度迅速增加，直至过渡到稳定的裂纹扩展状态，即第 II 阶段。第 II 阶段，在等温条件下溶解的氢扩散到裂纹尖端周围的高应力区。随着氢向裂纹尖端区域的持续扩散，局部氢浓度上升，直至超过溶解度极限，氢化物开始以垂直于应力方向的片状形式在裂纹尖端析出。当氢化物达到临界尺寸时，可能会断裂，使裂纹继续扩展，直到裂纹被更坚硬的锆合金材料阻止，在那里形成一个新的高应力裂纹尖端，并重复这一过程。裂纹继续以这种间歇性的方式扩展，直到剩余的区域塑性不稳定而失效。这一过程如图 19 所示，裂纹扩展速度被描述成应力强度因子的函数，（公式（4））：

$$K_I = f\sigma\sqrt{\pi a} \quad (4)$$

其中，

σ 是周向应力；

a 是包壳缺陷（裂纹）的长度；

f 是包壳缺陷相关的因数（1.04~1.26）。

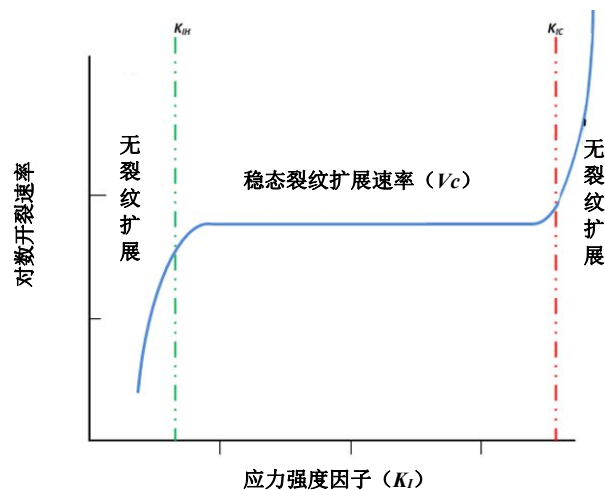


图 19. 裂纹扩展速度随应力强度因子的函数关系（是在第 I 阶段到第 II 阶段过渡时的值。为阶段 II 末期的值，与不稳定裂纹的生长有关）。

Rashid 等人[30]给出了一项分析结果，定义了 LWR 乏燃料干法贮存过程中 DHC 成为主要影响机理的五种条件。分析认为 DHC 在干法贮存中不是一种起主要作用的机理。结果也表明 LWR 燃料包壳的应力强度因子 (K_I) 通常都远低于裂纹萌生及裂纹持续扩展的临界应力强度因子 (K_{IH})。但是，DHC 被认为是在干法贮存过程中影响 CANDU 燃料棒束完整性的最关键机制（见下文）。

4.1.2.5. 氢化物重定向

本部分内容来自所引用的参考文献。

乏燃料贮存、运输安全评价中的一个重要问题是氢化物对乏燃料包壳完整性影响的评价[4]。主要的问题是在操作和运输乏燃料过程中发生的冲击载荷可能引起的安全和操作后果。乏燃料包壳在干式贮存若干年后，能在多大程度上保持足够的强度和延展性，取决于若干因素，包括氢化物的空间分布和方向。在 PWR 燃料运行几个周期后，Zry-4 包壳的总氢含量可高达 500—600 ppm。包壳管的制造过程在包壳中产生一种组织，导致氢化物主要以片状形式沿切向（或周向）方向析出。由于在缓慢的水腐蚀过程中吸氢，这种氢化物形态在反应堆运行过程中演变得非常缓慢，导致包壳力学性能发生显著变化，但在操作上是可以接受的[2][4]。由于氢的溶解度随温度降低，反应堆停堆期间会产生额外的周向氢化物析出。

氢化物的重定向是由以下一系列影响因素引起的。在温度大约为 30—40°C 的池中进行湿法贮存后，乏燃料被转移到干法贮存设施中，或运输到后处理设施中进行后处理。干法贮存和/或运输操作可能导致包壳温度显著升高，通常考虑包壳峰值温度高达 400°C（干法贮存）或 420°C（运输）。从湿法贮存条件到干法贮存/运输条件，温度升高会导致氢化物溶解，在锆合金基体中固溶的氢相应增加，达到氢的溶解度极限。温度的升高也会导致棒内压力的增加。在后续干法贮存过程时冷却或运输后再进入入水池后重新湿润会导致包壳材料中固溶氢再析出，但由于没有反应堆中的冷却剂压力补偿燃料内部压力，在包壳的环向拉伸应力的影响下可能在径向和轴向重新排列。这可能会导致混合的、周向的和径向的氢化物结构，主要取决于温度和包壳环向应力。在较低的温度范围（小于 200°C）下，这种氢化物结构可以对包壳的力学性能和失效极限有显著的影响[4]。

导致氢化物重定向的两个主要因素是包壳温度和环向应力[4]。法国对 Zry-4 进行的几次研究中获得的结果如图 20 所示，图中结果显示没有观察到氢化物重定向的区域（左侧）和氢化物再取向的区域（右侧）之间的边界。随着温度和应力的增加，温度-环向应力条件越严重，界面右侧的氢化物重定向程度越高。

JNES 采用了另一种替代方法来确定在何种温度和环向应力条件下氢化物重定向不会对力学性能产生影响[31]。在这种情况下，边界条件是通过对径向热处理（RHT⁵）后的包壳进行塑性环压试验得出的，RHT 条件由包壳的初始温度和环向应力确定。然而，后一种方法产生的结果可能与 RHT 的参数密切相关，尤其是冷却速率，特别是带锆衬里的 BWR Zry-2 包壳，这将在后面的部分进行讨论。表 10（PWR 包壳）和表 11（BWR 包壳）给出了 JNES 研究的结果，提供了 RHT 处理的最高温度和环向应力值，在 RHT 处理后的室温环压试验中没有观察到塑性恶化。

⁵ 也被称为 HRT。

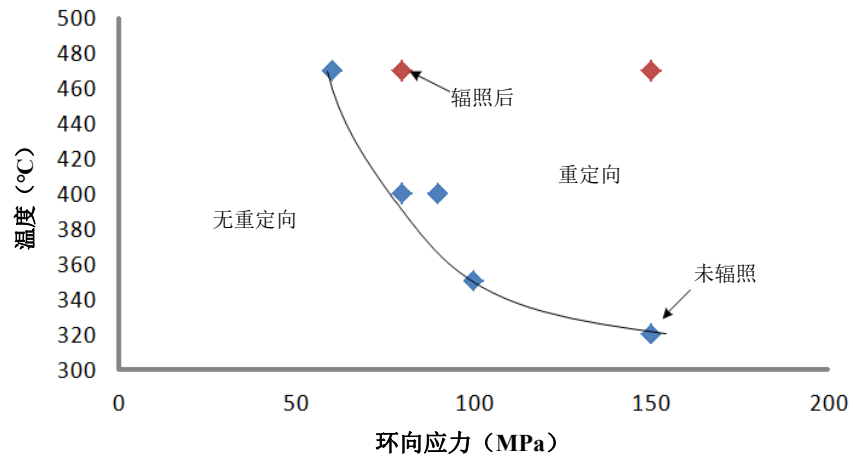


图 20. 氢化物重定向与应力/温度的关系[24]。

表 10. PWR 包壳氢化物再取向造成无塑性退化的 RHT 阈值概要[7]

氢化物重定向导致的无延展性退化阈值			
	包壳类型	温度 (°C)	胡克应力 (Mpa)
PWR	39 GW·d·t (HM) ⁻¹ Zry-4 (CWSR)	≤275	≤100
	48 GW·d·t (HM) ⁻¹ Zry-4 (CWSR)	≤275	≤100
	55 GW·d·t (HM) ⁻¹ MDA TM	≤250	≤90
	55 GW·d·t (HM) ⁻¹ ZIRLO TM	≤250	≤90

表 11. BWR 包壳氢化物再取向造成无延展性退化 RHT 阈值概要[7]

包壳		氢化物重定向导致的无延展性退化阈值	
		温度 (°C)	胡克应力 (Mpa)
BWR Zry-2 (RXA)	40 GW·d·t (HM) ⁻¹ 无内衬	≤200	≤70
	50 GW·d·t (HM) ⁻¹ 有内衬	≤300	≤70
	55 GW·d·t (HM) ⁻¹ 有内衬	≤300	≤70

温度对氢化物重定向的影响

只有那些在从湿法贮存环境转移到干法贮存环境时由于包壳温度升高而溶解，随后在冷却过程中重新沉淀的环向氢化物才有可能重新定向[4]。因此，包壳最高温度决定了有多少氢固溶回锆合金基体中。

氢化物在析出和溶解之间通常表现出显著的滞后现象，其特征是在两种溶解度之间存在温度差。这意味着在冷却过程中，氢化物在一定温度（氢化物开始析出的温度，TTSSP）下开始析出，在加热过程中，氢化物在不同的温度（氢化物完全溶解的温度，TTSSD）下完全溶解[4]。McMinn 等人[32]和 Kammenzind 等人[33]分别观察到 Zry-2 和 Zry-4 在稀氢含量（≤80 ppm）和高氢含量（<500 ppm）时存在滞后温度差。这两项研究中所采用的测试材料是应力释放完全再结晶态的材料。对于应力释放完全再结晶锆合金，从溶解到开始析出环向氢化物之间的温度滞后差约为 55±10°C。

为了说明问题，图 21 建立了未辐照 α 退火 Zry-4 的溶解曲线（TTSSD 和 TTSSP）。从乏燃料水池温度加热到 400°C 导致高达~210ppm 的氢溶解到锆合金基体中（加热到 300°C 只溶解约 77 ppm）。由图 21 可知，从 400°C 冷却到~335°C，氢以氢化物的形式再次析出。这些行为与氢含量接近溶解极限 210 ppm 的材料预期行为相符。

如上所述，当锆合金中含有 500 ppm 的氢时，当加热到 400°C 时，约 210 ppm 的氢处于固溶体中，剩余的氢（约 290 ppm）不受影响，仍为氢化物。在冷却后，K. Colas[34]用原位 X 射线衍射仪（XRD）发现，对于未辐照的冷作应力消除退火态的 Zry-4 合金包壳，当冷却开始时仍有残余的氢化物存在时，可能会发生一些氢化物再析出，没有或只有很少的滞后。在这些条件下，氢化物重定向的周向应力阈值在 150~200 MPa 之间，大大高于 400°C 下无氢化物试样的应力阈值。

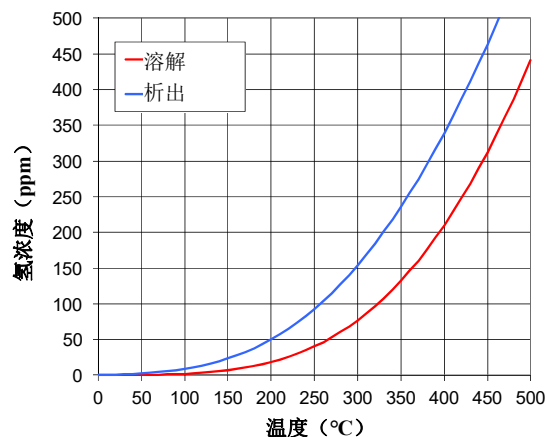


图 21. α 退火 Zry-4 的溶解度曲线 (改编自参考文献[33])。

阿根廷国家原子能委员会 (CNEA) 正从事一个研究氢化物溶解-析出现象的实验研究项目。氢化物的大小分布是由光学和透射电子显微镜 (TEM) 图像确定的。直方图如图 22 所示。在分析中, 以 $1\ \mu\text{m}$ 作为光学图像和 TEM 图像分辨率的边界。统计分析结果表明, 亚微观氢化物的含量是不可忽略的 (高于 13%), 但在光学范围内不可见。25% 的氢化物小于 $5\ \mu\text{m}$, 氢化物粒径分布较宽, 从 $10\ \text{nm}$ 到 $100\ \mu\text{m}$, 分布范围超过 4 个数量级, 分布偏向于小于 $5\ \mu\text{m}$ 的尺寸。参考文献[7]提供了更多细节。

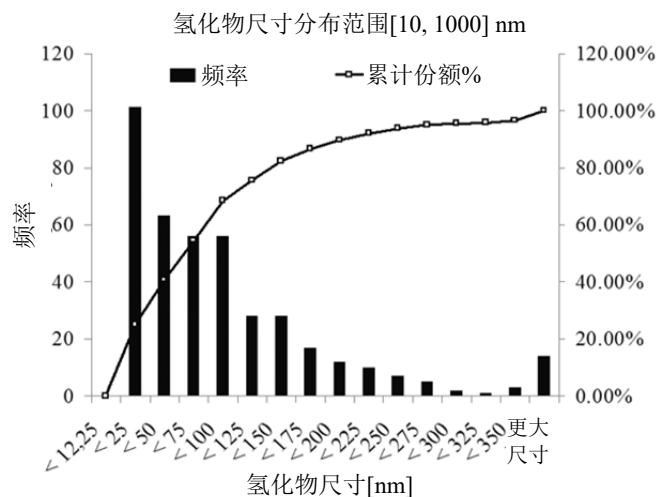


图 22. TEM 范围直方图显示氢化物粒径分布偏小 (最大频率在 $20-30\ \text{nm}$, 由 CNEA 供图[7])。

应力对氢化物重定向的影响

如图 20 所示，包壳应力和温度都会影响氢化物重定向。寿期末（EOL）棒内压力（RIP）是长期干法贮存过程中包壳性能发生变化的主要因素。在真空干燥或干法贮存的最高温度时，棒内压力决定了燃料棒包壳的最大应力，这反过来又为包壳在惰性贮存屏蔽容器内环境中进行缓慢冷却时发生的若干与时间有关的变化确定了初始条件。最终，包壳局部温度达到固溶氢开始重新析出的水平，正如上一部分所讨论的，这时包壳应力状态与评估氢化物重定向的可能性最为相关。

在真空干燥和干法贮存操作中燃料棒存在温度分布和空腔体积分布，寿期末计算燃料棒棒内压时必须考虑到这些因素的影响。在非常缓慢的冷却过程中，棒内压缓慢降低（温度效应）。此外，由于包壳蠕变，燃料棒内压也可能降低，这导致燃料棒空隙体积增加（体积效应）。在计算包壳应力时，由于在处理高燃耗燃料时，包壳与芯块之间存在相互作用（即芯块包壳机械作用），还存在额外的不确定性。燃料包壳的粘结可以有足够强度来阻止热蠕变，但由于形成了一个由附在包壳上紧密相扣的芯块碎片组成的复合结构，可能将部分载荷从包壳转移到芯块。在假设芯块和包壳之间存在间隙的情况下，包壳应力可能会大大低于计算出的应力。

使用加压管方法，并允许应力随温度降低，ANL 评估了最高温度下的初始应力对氢化物重定向程度的影响，并使用径向氢化物连续性系数（RHCF）作为重定向的衡量标准[35]。由表 12 可以看出，施加初始应力越高，重定向程度越高。

表 12. 70 GW·d·t(HM)⁻¹ ZIRLO™和 67 GW·d·t(HM)⁻¹ ZRY-4 径向热处理后结果

材料	400°C 时 σ (MPa)	C _H (ppm)	RHCF (%)	RHCF 数据点数
ZIRLO™	140	650±190	65±17	16
	110	425±63	27±10	8
	110	350±80	33±14	33
Zry-4	140	615±82	16±4	12
	110	520±90	9±5	11

图 23 到图 25 进一步说明了应力的影响。图 23 中绘制了带有锆合金内衬的 BWR Zry-2 包壳的环向应力 $F_n(40)$ ⁶ 和 $F_l(45)$ ⁷。对于 300°C RHT 试样，在 40 MPa 和 70 MPa 环向应力下，和略有增加，在 100 MPa 环向应力下，很容易看到有一定程度的氢化物重定向。在 300°C 时，和随应力呈线性增加，在 100 MPa 时再取向度仍小于 40%。在 400°C RHT 试样中，和在试验环向应力范围内随环向应力的增加而增加。

可通过考虑 HRT 温度下固溶氢的含量进行归一化，如公式（5）所示：

$$F_{ne}(40) = \frac{C_{H_t} \cdot F_n(40) - (C_{H_t} - C_{H_d}) \cdot F_n(40)_0}{C_{H_d}} \quad (5)$$

其中：

C_{H_t} 是样品中的总氢含量；

C_{H_d} 是 RHT 温度下的氢溶解量；

C_{H_d} 等于包壳的 TSSD，如果 C_{H_t} 大于 C_{H_d} ；

C_{H_d} 等于 C_{H_t} ， $F_{ne}(40)$ 等于 $F_n(40)$ ，如果 C_{H_t} 小于 C_{H_d} ；

$F_n(40)_0$ 等于 $F_n(40)$ ，对于辐照后的试样。

对于辐照后的带锆合金内衬的 BWR Zry-2 包壳，使用图 23(a)中给出的数据计算出的归一化值 F_{ne} 如图 24 所示。

采用与研究 BWR 燃料包壳相同的方式，对燃料耗为 $48 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的 PWR 燃料包壳的氢化物重定向进行了测试，结果如图 25 所示。与刚出时相比，经过 115 MPa、300°C、30°C/h 的 HRT 后，试样的径向氢化物比有所增加，如图 27 所示[4]。

⁶ $F_n(40)$ 是（径向±40° 的氢化物数量之和）/（所有氢化物数量之和）。

⁷ $F_l(45)$ 是（径向±45° 的氢化物长度之和）/（所有氢化物的长度之和）。

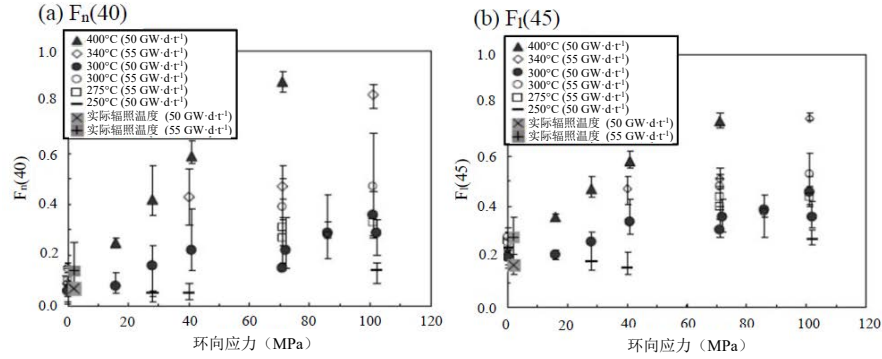


图 23. 辐照后的 BWR 带锆合金内衬 Zry-2 包壳的重定向程度 $F_n(40)$ 和 $F_l(45)$ 与 RHT 条件 (冷却速率: $30^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$) 之间的关系 (图经许可转载自参考文献[31], ASTM 国际版权所有, 地址: 100 Barr Harbor Drive, West Conshohocken, PA 19428)。

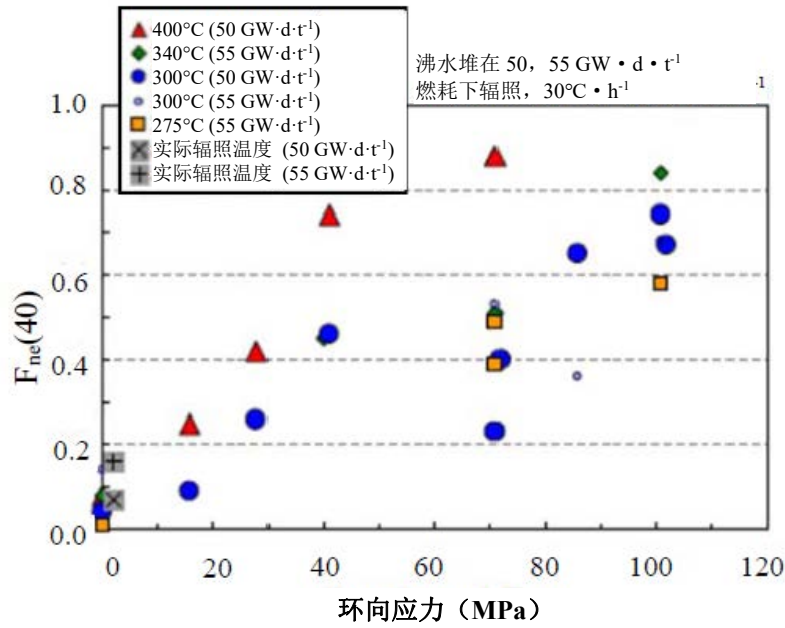


图 24. 辐照后的 BWR 带锆合金内衬 Zry-2 包壳的重定向归一化程度 $F_{ne}(40)$ 与 RHT 条件 (冷却速率: $30^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$) 之间的关系 (图经许可转载自参考文献 [31], ASTM 国际版权所有, 地址: 100 Barr Harbor Drive, West Conshohocken, PA 19428)。

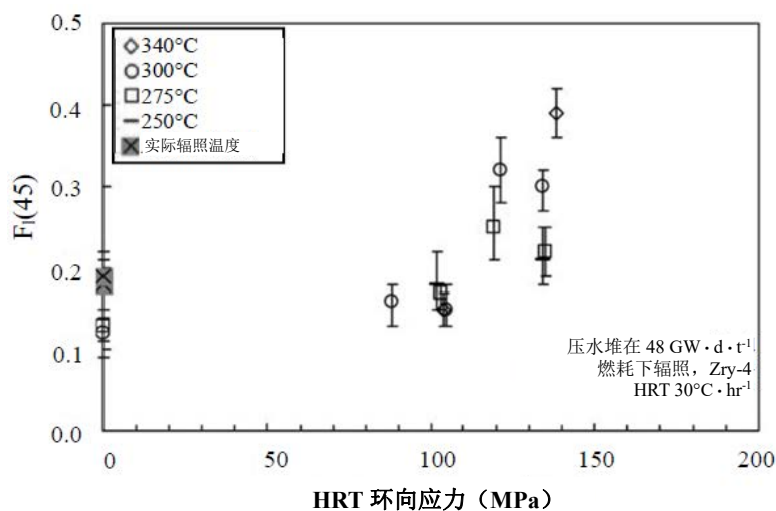


图 25. 辐照后的 PWR Zry-4 包壳重定向程度与 RHT 条件的关系（图经许可转载自参考文献[31], ASTM 国际版权所有, 地址: 100 Barr Harbor Drive, West Conshohocken, PA 19428）。

径向热处理对包壳延展性的影响

ANL 和其他一些研究人员利用在环向压缩试验（RCT）中测得的偏移量来确定氢化物重定向处理后包壳的延展性。

RCT 测试结果表明, 与高燃耗 Zry-4 燃料棒相比, 高燃耗 ZIRLO™ 燃料棒径向重定向程度（以径向氢化物连续因子或 RHCF⁸ 的形式）和塑脆转变温度（DBTT）存在显著差异。对燃料棒进行测试时采用相同的温度和应力历史, 用以模拟干法贮存条件[35]。在评估这些结果时考虑了如下几个因素:

- 测试前的径向氢化物分布;
- 织构;

⁸ 径向氢化物连续性因子(RHCF)与加拿大研究人员定义的氢化物连续性因子(HCC)相似。后者是通过将 0.11 mm 环带内的径向氢化物在投影到金属包壳壁的半径上来确定的。将这些投影的氢化物的净长度归一化到金属壁厚, 以确定 HCC。RHCF 遵循类似的程序在 150 μm 包壳壁厚段上进行计算。

- 残留应力;
- 合金成分。

根据平行样的金相检验, 与高能耗的 Zry-4 包壳相比, 高能耗的 ZIRLO™包壳的氢化物更致密、更局部。值得注意的是, Zry-4 的氢化物边缘以下的平均氢含量似乎高于 ZIRLO™。根据光学显微镜图像, 估计 Zr-4 内环三分之二部分的平均氢含量为大于 200 ppm, 而 ZIRLO™内环三分之二部分的平均氢含量小于 150 ppm。试验前氢含量的差异对 RHCF 有显著影响[35]。在 Zry-4 内表面没有 RHT 前后的氢化物, 这表明高能耗 ZIRLO™和 Zry-4 结果的主要差异不是由测试前氢化物径向分布的差异造成的。结果表明, 在反应堆停堆期间, 高能耗 ZIRLO™可能比高能耗 Zry-4 对包壳内表面析出的径向氢化物更敏感, 在模拟干法贮存条件下也是同样结果。

组织对包壳材料在存在周向应力时的冷却过程中径向氢化物析出的敏感性有显著影响。ANL 测试项目中使用的 ZIRLO™和 Zry-4 都是 CW-SRA 材料。1977 年, 用于制造包壳和 HBR 燃料棒的 Zry-4 制造细节提供给了 ANL 并用于制造了 HBR 燃料棒。然而, 对于 1987 年开始辐照的用于制造 North Anna 燃料棒的 ZIRLO™包壳, 却没有提供这样的细节。两种包壳材料之间的组织差异可能导致了结果的差异, 这种因素的影响可能存在。

在合金成分方面, ZIRLO™与 HBR Zry-4 在 Sn 含量 (约 1 wt.% vs 1.4 wt.%) 和 Nb 含量 (约 1 wt.% vs. 0 wt.%) 上有所不同。其他用作包壳的含 Nb 锆合金有 RXAM5™(Zr-1%Nb)。在日本, 从 PWR 乏燃料棒制备的 MDA™和 ZIRLO™包壳也进行了测试[31]。如图 26 所示, 在能耗为 $55 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 时, 与本研究测试的其他 PWR 包壳材料相比, ZIRLO™包壳的相对较大 [2]。MDA™包壳含有 0.5% 的 Nb, 其水平与 $48 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ Zry-4 包壳相同。因此, 在 ANL 和 JNES 的高能耗 ZIRLO™测试中, Nb 的存在不太可能是导致径向氢化物析出敏感性较高的主要原因。

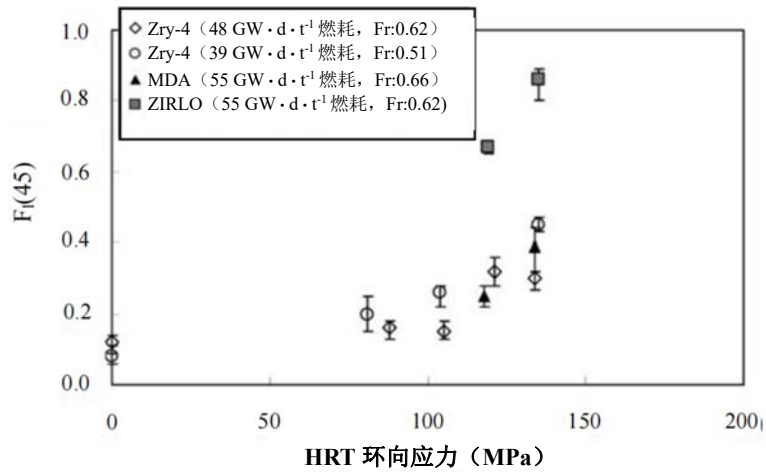


图 26. 辐照后 PWR 包壳材料再取向行为比较 (HRT 300°C, 30°C/h⁻¹)
(图片许可来及参考文献[31], 版权 ASTM International, 100 Barr Harbor Drive, West Conshohocken, PA 19428)。

JNES 的研究还揭示了包壳材料之间的不同取向行为。Zry-2 (RXA) 和 PWR 包壳材料 (CW-SRA)、Zry-4 和 ZIRLO™, 再取向行为的差异归因于热处理的影响。热处理影响材料性能, 如晶粒结构 (包括晶粒尺寸、晶界取向、内应力/应变等)。对于 PWR 包壳材料 (CW-SRA) 重定向行为上的差异, 认为导致 ZIRLO™包壳重定向程度较大的因素不是织构, 因为 ZIRLO™包壳的 Kearns 因子 (Fr) 与 48 GW·d·t(HM)⁻¹ 的 Zry-4 包壳的 Kearns 因子 (Fr) 相同。合金元素的影响似乎不是主导因素, 因为 Zry-4 和 MDA™表现出相对相似的行为。ZIRLO™包壳管生产过程中的退火温度低于 Zry-4 包壳的退火温度[36]。因此, 受退火温度影响的性能 (例如晶粒尺寸), 时可能的影响因素。

反应堆辐照对塑性的影响

使用辐照材料 (从乏燃料组件上切割下来的试样) 的成本很高, 这就提出了一个问题, 即在研究氢化物重定向的潜力和影响时, 非辐照充氢样品是否是辐照样品的良好替代物。

ANL 对预氢化并 RHT 后的未辐照包壳样品 RCT 结果进行了初步评估，样品的成功标准是在 1.7 mm RCT 位移时包壳裂纹≤50%壁厚。图 27 给出了在 150°C 下进行的合格/不合格的 RCT 结果，其中开放符号表示环位移 1.7 mm 时试样裂纹≤50%厚度。实心符号表示试样有大于 50%壁厚的裂纹。当氢含量降至临界水平以下，观察到合格/不合格脆性：即 400°C、环向应力 150 MPa 时，为 275±25 ppm；400°C、环向应力为 135 MPa 时，为 200±20 ppm；400°C、环向应力 120 MPa 时，为小于 100 ppm。

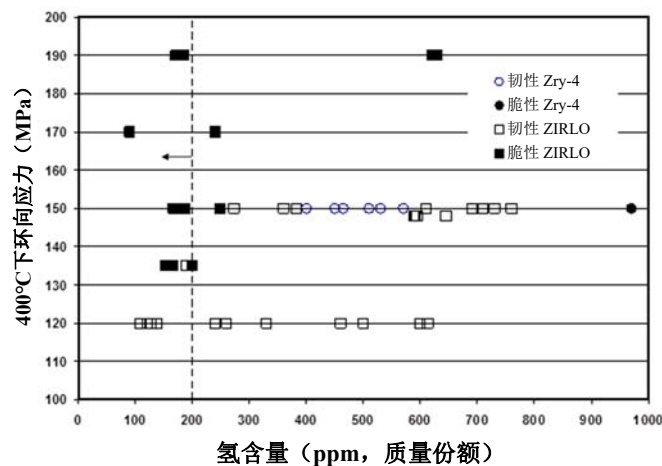


图 27. 预充氢并进行 RHT 后的 Zry-4、ZIRLO™在 150°C 下的 RCT 结果（由 NRC 供图[7]）。

脆性对含氢量 350—650 ppm（对应于高燃耗燃料的氢含量）的预氢化燃料棒包壳环在 400°C、周向应力为 150 MPa 条件下进行 RCT 测试。在 150°C 下，这些试样表现出高塑性（大于 10%偏移），除了一个试样外，其他试样都通过了 RCT 测试，没有开裂的迹象。然而，在整个范围内氢均匀分布的延展性样品，被证明是非常差的替代品。高燃耗 ZIRLO™乏燃料棒（氢含量 650 ppm）在略低的应力（400°C、140 MPa）下经受相同的热循环，在 150°C 的 RCT 中表现出高度脆性。试验材料之间的主要区别是测试前氢的径向分布，预氢化包壳是均匀的，高燃耗包壳是高度不均匀的。

虽然预氢化的未辐照包壳似乎不是高燃耗包壳的良好替代品，但在确定径向氢化形成程度的衡量标准、沿轴向裂纹的不连续（指示径向氢化物片

的不连续)、确定低氢含量对径向氢化物析出和径向氢化物诱发的脆化的影响时,用预氢化包壳样品进行试验所获得的结果已被证明是有用的。在氢含量相同的情况下,如果预氢化、未辐照样品的形貌可以做到更接近于辐照后包壳的形貌时,可能会有用。

冷却速率的影响

与 PWR Zry-4 包壳相比,改变冷却速率对 BWR Zry-2 包壳的影响存在明显的差异。与标准 Zry-2 相比,氢在纯锆或低合金化锆中的氢溶解度较低,因此锆内衬起到了氢阱的作用。通过降低冷却速率在较长时间内保持较高的包壳温度, Zry-2 中可用于重定向的氢较少。

在图 28 的前三张图中,可以观察到,在从 $50 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}^{-1}$ 乏燃料棒切割的 BWR Zry-2 包壳试样中,氢剥离区尺寸的增加是冷却速率的函数。因此,在足够低的冷却速率下, Zry-2 包壳没有发生塑性损失。

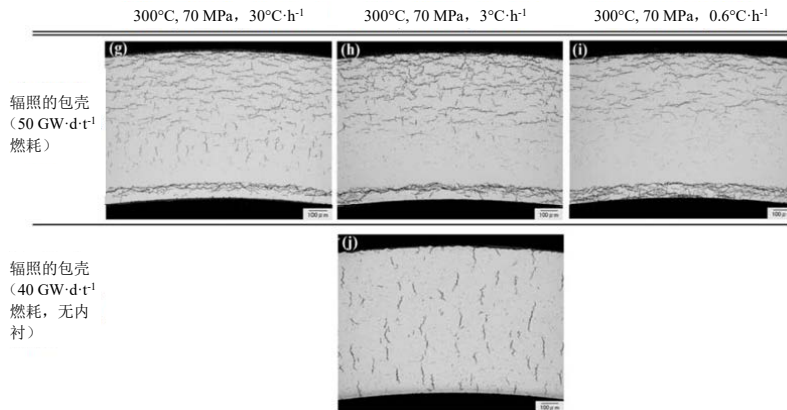


图 28. 氢化物重定向试验中 Zry-2 包壳试样的金相切片 (由 JNES 供图[7])。

图 28 底部的图片是没有锆内衬的 Zry-2 包壳。观察到相对较大程度的氢化物重新定向,与带锆内衬包壳有很大的不同[4]。

对于 PWR 包壳,冷却速率对氢化物形态的影响如图 29 所示。 $3^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却试样大于 $30^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却试样的,而与 $0.6^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却试样中几乎相同(图 29(a))。当冷却速率从 $30^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$ 降低到 $3^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$ 时,径向氢化物长度增加;从 $3^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$ 降低到 $0.6^\circ\text{C}/\text{h}^{-1}$ 时,效果不明显。

RHT 冷却速率对环压变形的塑性影响如图 30 所示。 $0.6^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却试样与 $3^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却试样相似； $3^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却试样与 $30^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却试样相比下降。如图 29 所示，与 $30^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却的试样相比， $3^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却的试样的重定向度和氢化物长度都有所增加，而 $0.6^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却的试样的结果与 $3^{\circ}\text{C}/\text{h}^{-1}$ 冷却的试样相似。由此推断，冷却速率对塑性的影响与图 29 所示的氢化物形态的变化是一致的[4]。

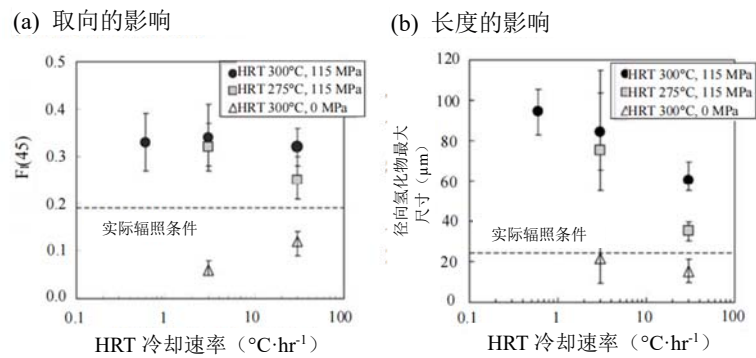


图 29. RHT 冷却对 $\text{PWR } 48 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 辐照后 Zry-4 包壳的氢化物形态的影响（图经许可转载自参考文献[31]，ASTM 国际版权所有，地址：100 Barr Harbor Drive, West Conshohocken, PA 19428）。

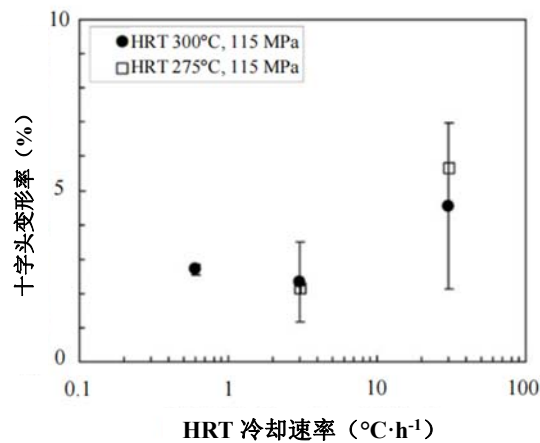


图 30. RHT 冷却速率对辐照后 PWR Zry-4 包壳环压变形的影响（图经许可转载自参考文献[31]，ASTM 国际版权所有，地址：100 Barr Harbor Drive, West Conshohocken, PA 19428）。

塑脆转变温度

ANL 在升温过程中进行环压试验以检测塑性和脆性行为之间的变化。观察到变化的温度是指 RCT 中观察到的塑脆转变的温度 (DBTT)。DBTT 是包壳材料、最大干法贮存温度下的应力和预干燥时氢的径向分布的函数。

经过 110 MPa 和 140 MPa 径向热处理及 400°C 条件下干燥后, 高燃耗 Zry-4 的 DBTT 值分别为 <20°C 和 55°C 左右[7]。大多数径向氢化物相对较短且靠近于 RCT 弯曲应力非常低的包壳中壁。它们影响了裂纹的扩展, 但与裂纹的萌生无关。

对于高燃耗的 ZIRLO™, 发现径向氢化物相对较长, 并从包壳内表面开始延伸, 而施加载荷下部和支撑板上部的内表面所承受的 RCT 弯曲应力最大。在 110 MPa 和 140 MPa 下, DBTT 值分别为 120°C 和 190°C。

作为比较, Aomi 等人[31]只在室温 (RT) 下对高燃耗 Zr-4 进行了测试。Aomi 的 RHT 与 ANL 的研究不同之处在于, 在冷却过程中压力和应力保持恒定。Aomi 的大部分数据是在冷却速度较快 (30°C/h⁻¹) 的条件下获得的。对于 Aomi 等人测试的高燃耗 Zry-4, 氢含量似乎相对于 ANL 研究中使用的样品较低, 最大退火温度较低 (250—340°C vs. 400°C)。

Zry-4 在室温下表现出脆性 (<2% 偏移应变) 的唯一数据点, 是冷却前在 340°C 和约 140 MPa 环向应力下进行退火的样品。结果与 ANL RT 数据点一致, 高燃耗 Zry-4 在冷却前在 400°C 和 140 MPa 环向应力下退火。Aomi 等人对 Zry-4 在 340°C 和约 100 MPa 环向应力下进行退火后的数据点表明, 其在室温下表现出延展性。同样, 这一结果可能与 ANL 数据点一致, Zry-4 在 400°C 和 110 MPa 环向应力下退火。对于参考文献[31]中的其他数据, RHT 条件 (250°C—300°C) 太低, 不能进行一对一的比较。

4.1.2.6. 氢迁移和再分布

由于贮存系统中存在轴向温度分布, 固溶的氢可以从包壳的高温区迁移到低温区[37][38][39]。当且仅当氢含量达到足够高的过饱和度, 氢将以氢化物的形式在较冷的区域析出。这种情况下, 氢化物的析出将导致脆性增加, 影响燃料的完整性。

使用包壳管进行了氢的轴向再分布实验，得到了氢迁移的相关数据，如扩散激活能、氢扩散系数和溶解度[40]。对已经通过干法贮存 20 年的 PWR UO₂ 乏燃料棒样品进行了研究，其燃耗分别为 58 GW·d·t(U)⁻¹ 和 31 GW·d·t(U)⁻¹，未辐照的包壳也用作对比材料。30 mm 长的试样安装在加热器之间，周围有隔热层。试样一端温度保持在 380℃，另一端温度保持在 260℃。实验环境为空气，以保持包壳表面有氧化层，防止氢从样品中逸出（见图 31）。

图 32 给出了加热 10 天后每个试样的氢浓度分析。试样中氢从高温区迁移到低温区。在测试前，相邻试样的氢浓度差小于 2.2 ppm，试样中的氢谱线可视为是平坦的。利用氢扩散方程进行最佳拟合，计算了氢的扩散激活能、扩散系数和溶解度[40]。

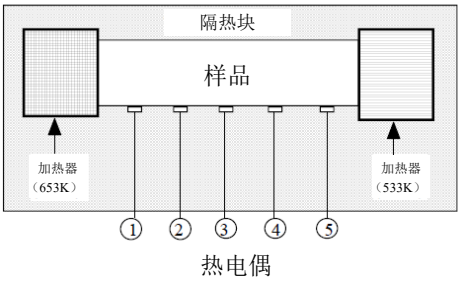


图 31. 氢再分配实验用的仪器装备
(由 CRIEPI 供图[4])。

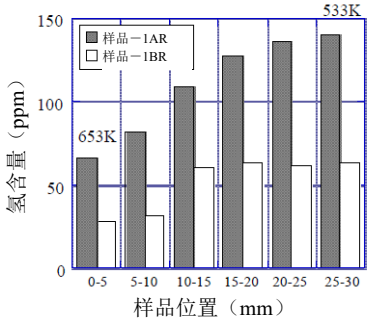


图 32. 10 天再分布实验后试样中
氢的分布 (由 CRIEPI 供图[4])。

采用一维氢扩散计算方法，利用研究中获得的扩散激活能、扩散系数和溶解度，估算了贮存 40 年后氢在 PWR 燃料棒中的再分布情况[40]。图 33 给出了氢在燃料棒贮存 40 年后的再分布情况。由于氢扩散系数较低，在氦气气氛中贮存 40 年后，除燃料棒末端外，轴向氢迁移不显著，氢谱线与初始值并无显著差异。因此，得出结论，在干法贮存期间氢迁移对燃料包壳的完整性没有显著的影响。

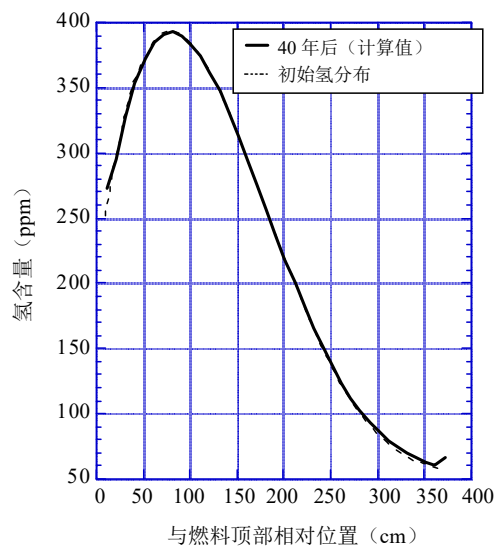


图 33. 贮存 40 年后氢轴向再分布计算结果（由 CRIEPI 供图[4]）。

4.1.3. 冲击载荷的影响

本小部分内容仅来自所引用的参考文献。

如图 34 和图 35 所示，将具有较深燃耗的装有贫铀 UO_2 芯块的乏燃料或燃料棒装入屏蔽容器，开展高度为 9 m 的跌落试验，获得试验数据[7]。通过试验得到燃料棒的变形模式、格架及管座的屈服、燃料棒束的变形和滑动、未辐照包壳的最大许用载荷。

针对未经辐照的 PWR 和 BWR 燃料棒，开展基础性的动态和准静态试验，确定包壳材料可承受的最大载荷。在跌落高度为 9 m 的屏蔽容器轴向跌落试验中，燃料棒出现轻微的横向变形，包壳没有出现任何的裂纹或破裂。

针对 PWR 和 BWR 燃料小棒开展横向弯曲试验，针对燃料棒束跨段开展准静态弯曲试验，由试验结果可知，燃料棒伸长量为 35 mm (25°C)，500°C 时对应的燃料棒变形为 60 mm，燃料每次破裂将会泄漏 2.6g 的燃料。

针对辐照后的 BWR 燃料棒开展准静态弯曲试验，在破裂位置出现了 10 mm 的变形，角度在 25°—30°范围内，并且泄漏了 7.65 g 的燃料。针对辐照后的 BWR 燃料棒空包壳开展压塌试验，结果显示当承受纵向载荷时，空包壳在压塌前和破裂后都保持较高的强度。



图 34. 做过 9 m 跌落试验的 PWR 新燃料组件（由 TN International 及 INS Ltd 供图[7]）。



图 35. 做过 9 m 跌落试验的 BWR 新燃料组件（由 TN International 及 INS Ltd 供图[7]）。

如图 36 所示，当横向跌落的加速度适中时，在端部位置的格架稍有压紧，而中间位置的格架则完全坍塌，燃料棒破损的风险不高。相比之下，在加速度较大的情况下，中间部分的燃料棒束被完全压实，发生燃料棒破裂的风险不可控。

如图 37 所示，当轴向跌落的加速度适中时，通常会出现燃料棒弯曲或弹性屈曲。在较高的载荷下，会导致局部塑性屈曲、不可接受的变形和燃料棒破裂。

图 38 给出了横向跌落和纵向跌落时的破裂位置，每次破裂燃料泄露量估计为每个跨段 1 个或 3.5 个芯块。

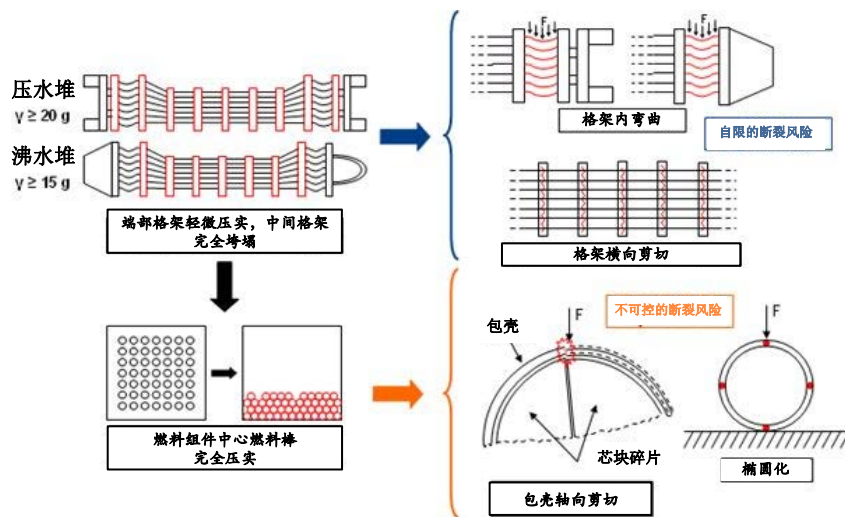


图 36. 横向跌落时的包壳破裂风险评估 (由 TN International 及 INS Ltd 供图[7])。

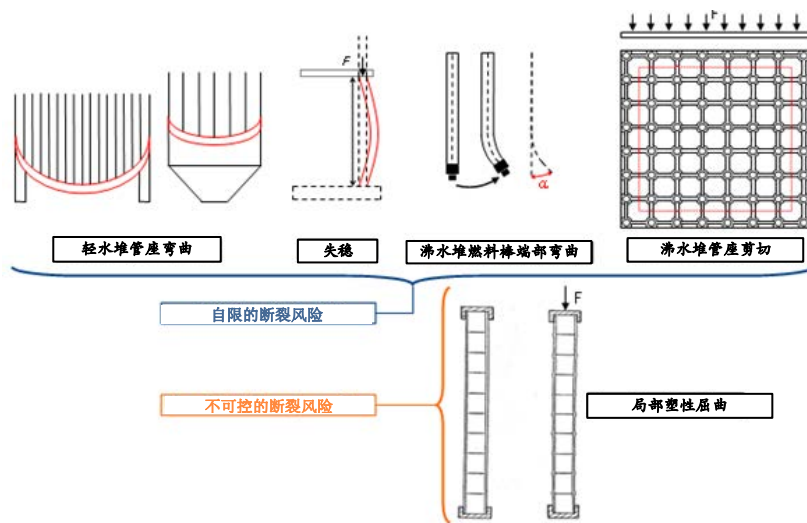


图 37. 轴向跌落时的包壳破裂风险评估 (由 TN International 及 INS Ltd 供图[7])。

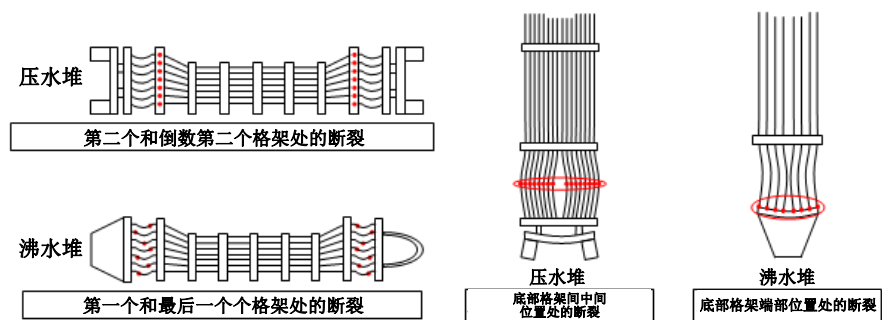


图 38. 横向及轴向跌落对应的破裂位置（由 TN International 及 INS Ltd 供图[7]）。

横向跌落时的燃料棒变形与格架压塌模式有关。当燃料组件中部的格架出现压塌时，燃料组件的裂变截面减小，通常会导致 LWR 燃料组件反应性降低。比较保守的做法是，保持初始状态的裂变截面不变，并将其作为临界分析的基础数据。

PWR 燃料棒出现欧拉屈曲，导致燃料棒束发生碰撞。相比之下，BWR 燃料棒在末端出现弯曲，且燃料棒束在底部跨段内出现局部收缩。对于 BWR 燃料组件，与横向跌落相类似，较为保守的做法是采用初始状态下没有发生变形的底部跨段的几何结构，考虑到变形的连续性，可以在第二个跨段考虑发生膨胀的棒束。对于 PWR 燃料组件，保守的做法是在底部跨段发生变形后，对其中的燃料棒束采用均匀的膨胀量（图 39）。

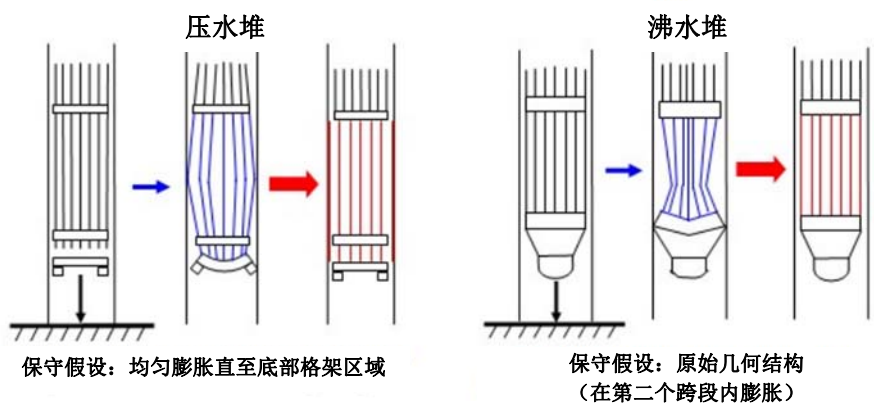


图 39. 轴向跌落中的燃料棒束变形（由 TN International 及 INS Ltd 供图[7]）。

4.1.3.1. 燃料棒发生滑动的可能性

发生横向跌落时，燃料棒与格架之间不会出现相对滑动，且下管座不会发生变形；因此不需要考虑燃料棒的位移，燃料棒活性区的位置保持不变。

在发生轴向跌落时，除了加速度极低的情况外，PWR 燃料棒发生均匀移动，燃料棒底部与下管座之间不再有间隙。由于 BWR 燃料棒被固定在下管座上，因此 BWR 燃料组件不存在这样的间隙（图 40）。

4.1.3.2. 燃料棒断裂行为研究

本文还针对横向冲击载荷下作用下乏燃料棒的断裂行为，以及燃料棒断裂时的燃料泄漏量开展了研究。释放锤子使其做自由落体运动，与燃耗为 $74 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的 PWR 燃料小棒发生碰撞。图 41 给出了发生碰撞前后由高速摄像机拍摄的照片。

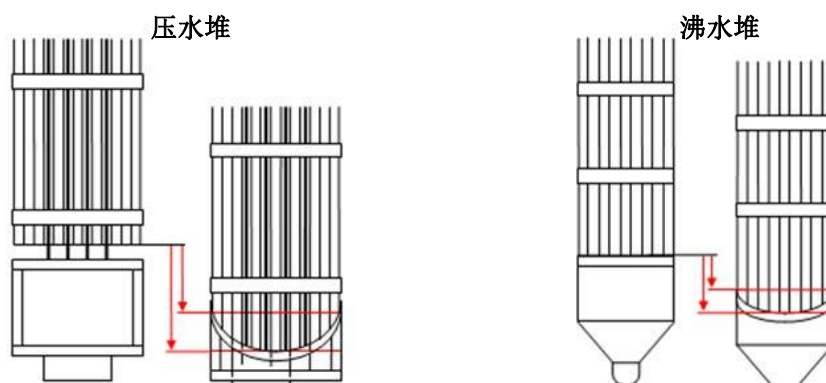


图 40. 轴向跌落时棒束位移采用的假设（由 TN International 及 INS Ltd 供图[7]）。

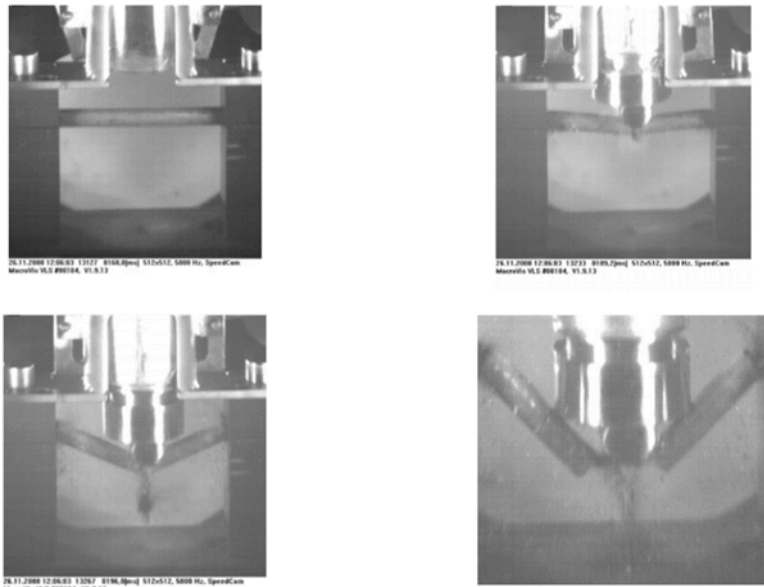


图 41. 燃耗约为 $74 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的 PWR 燃料小棒断裂照片（由 GNS 供图）。

表 13 对每次试验后收集的燃料颗粒量进行了汇总。每次断裂的燃料泄漏量，相对于样品总量是具有可比性的。试验中在装置底部收集泄漏的燃料，每次断裂泄漏量不超过 2 g。

由表 13 可以看出，发生泄漏的燃料数量与燃耗之间没有清晰的关系 [4]。

表 13. 冲击试验中泄露的燃料质量

燃料种类	燃耗 $\text{GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$	断裂数	燃料泄漏量 (g)
PWR	19.0	3 ^a	3.9
	42.6	3	4.8
BWR	73.6	3	5.6
	53.0	3	4.7

^a 没有从样品上彻底脱落。

针对在日本商用 BWR 和 PWR 反应堆中辐照过的高燃耗乏燃料棒，开展了动态冲击试验[7]；表 14 为试验矩阵。对乏燃料棒所承受的轴向和横向载荷开展研究，确定燃料棒的失效载荷、失效应变和碰撞时的燃料泄漏量。

基本力学试验包括拉伸和环向压缩试验。轴向拉伸试验获得了轴向拉伸屈服强度、失效应变和环向压缩强度。

根据 BWR 和 PWR 燃料包壳动态拉伸试验结果获得了极限拉伸强度-应变率的关系曲线以及总伸长率-应变率的关系曲线。如图 42 所示，随着应变速率的增加，极限抗拉强度增加，而总伸长率降低。

表 14. 日本开展辐照后燃料棒及其包壳动态碰撞试验的试验矩阵

燃料类型/燃耗			BWR 55 GW·d·t(HM) ⁻¹	PWR 55 GW·d·t(HM) ⁻¹
包壳类型			Zircaloy-2	MDA TM
包壳 机械试验	动态拉伸试验（直至 10 ² /s ⁻¹ ）		6	12
	燃料棒 动态试验	动态环向压缩 试验（直至 4000 mm/s ⁻¹ ）	4	3
		辐照后 氢化物再取向	4	6
燃料棒动载 荷冲击试验	轴向载荷		5	5
	横向载荷	辐照后	5	6
		氢化物再取向	1 ^a	2 ^b

^a 锆合金衬垫；
^b 包含由镁橄榄石制成的模拟芯块（每个芯块中 2 mg）。

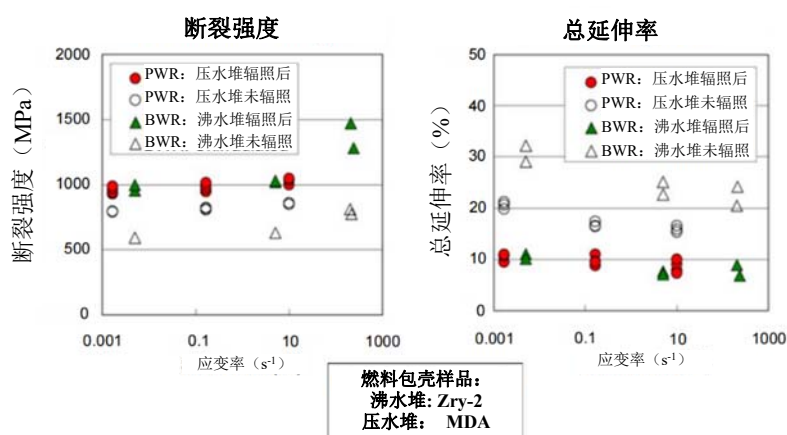


图 42. 拉伸试验结果 (由 JNES 供图[7])。

图 43 给出了 BWR 和 PWR 燃料包壳的动态环向压缩试验结果，以十字头位移比-压缩速度表示，随着压缩速度的增加延展性降低。

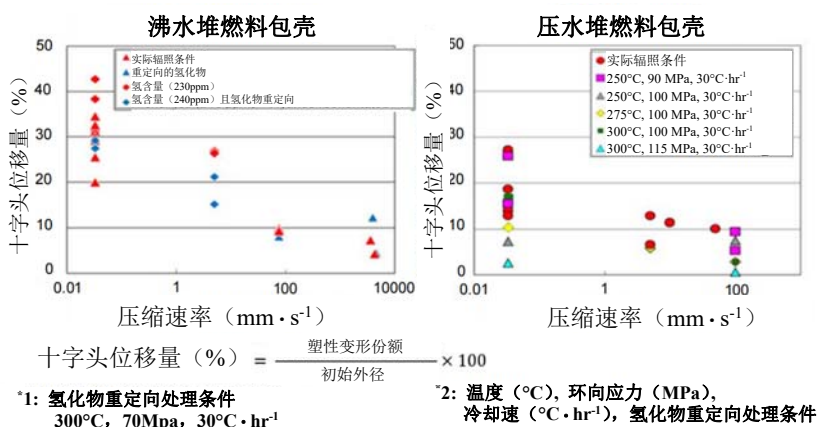


图 43. 动态环向压缩试验结果 (由 JNES 供图[7])。

在 300°C 条件下开展氢化物重定向处理，材料的初始环向应力为 70 MPa。降温速度为 30°C/h⁻¹。在给定的压缩速度下，对 BWR 包壳试样进行氢化物重定向对 BWR 包壳的延展性没有影响。而对于 PWR 包壳，氢化物重定向对包壳延展性的影响很大。碰撞速度在 3.7—12 m/s⁻¹ 之间变化。如表 15 所示只有在碰撞速度为 12 m/s⁻¹ 时，才会发生包壳破裂和燃料泄漏。

表 15. BWR 燃料棒轴向碰撞试验结果

	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)
质量			3.5 kg		
碰撞速度	12 m/s ⁻¹	9 m/s ⁻¹	6 m/s ⁻¹	3.7 m/s ⁻¹	6 m/s ⁻¹
试样类型		燃料部分（硬质粘合材料）			上腔室
弥散芯块	是	否	否	否	否
变形	螺旋形断裂	底部弯曲	无	无	腔室弯曲

轴向碰撞试验中，BWR 燃料棒破裂位置的燃料泄漏量，大致相当于 2 个芯块，其中约 60%为非常细的粉末。在横向冲击试验中，燃料泄漏量大致相当于 3 个芯块，其中约 40%为精细的粉末。

PWR 燃料组件的燃料泄漏量较少（约 1.4 g）。

同时，针对冲击条件下的燃料包壳响应开展研究。为此，对动态（即落锤试验）和静态环向压缩试验的结果进行了比较。材料为经过去应力处理且未经辐照的 ZIRLO™包壳。

样品呈环状，其长度为 10 mm，含氢量分别为 150、250 和 500 ppm。热处理后形成的氢化物在样品横截面上分布均匀，且沿样品环向分布。

冲击试验在落塔试验机上进行。冲击速度为 3 m/s⁻¹。试验温度分别为在 25、135 和 300℃。准静态试验在三种位移率下进行：0.5、100 和 1000 mm/m⁻¹。

跌落试验（冲击速度为 3 m/s⁻¹）的结果曲线的形状与静态试验相似（图 44）。

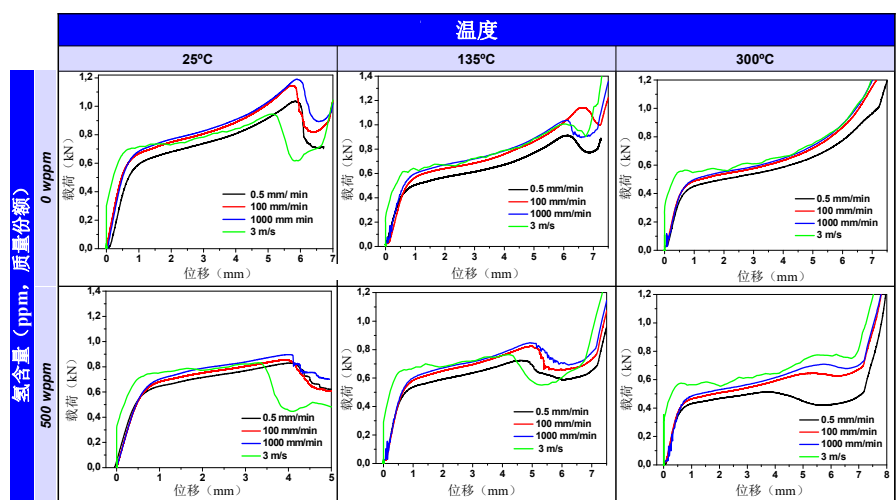


图 44. 静态及动态环向压缩试验得到的载荷-位移曲线
(由 ENRESA 供图[7])。

施加初始位移后，环向压缩试验结果曲线的斜率随着应变率的增加而增加。这意味着包壳刚度、杨氏模量的增加。样品是否含有氢化物对试验结果没有显著差异。只能观察到最大载荷的变化以及此时对应的位移值。

在准静态加载条件下，形成了典型的韧性断裂表面形貌，在裂纹扩展方向上存在较大的微孔。试验温度不会对断裂机理产生影响。未经处理和经过氢化处理的试样得到的结果是相似的。

表 16 总结了经过氢化处理的试样在不同试验条件下的观察结果。

表 16. 在准静态和动态载荷下含氢化物试样（500 ppm）的断裂面特征

	温度		
	25°C	135°C	300°C
准静态试验 (环向压缩试验)	延性	延性	延性
动态试验 (跌落试验)	脆性	脆性+延性	延性

室温条件下，试样断口表面以脆性区域为主。同时也会发生韧性断裂，但仅限于 ZIRLO™试样。在 135°C 时，断面同时存在韧性和脆性特征。在 300°C 时，只发生延展性断裂。从这些结果可以推断，高温环境可以提升包壳强度。

总之，包壳刚度和强度随着位移速率的增加而增加。普遍认为，事故期间较高的载荷施加率可以增强包壳强度，该假设与试验结果是一致的。

在动态和准静态环向压缩试验中，温度和含氢量对载荷-位移曲线的影响是相似的。

4.2. 先进气冷堆（AGR）燃料

先进气冷反应堆燃料包壳使用的材料是 20 Cr:25Ni:Nb 不锈钢。在反应堆运行过程中，这种不锈钢在 340—520°C 温度范围内（峰值温度为 420°C）受到中子辐照时会敏化，再叠加燃料元件应力集中的影响，导致当其贮存在潮湿环境中或者富氯离子的环境中时容易失效。这种失效现象被称为辐照引起的晶间应力腐蚀开裂（IGA）。由于空气进入，IGA 会在反应堆停堆时、干法贮存管和临时贮存水池初始冷却/贮存阶段产生影响。

IGA 现象是导致 AGR 燃料在中短期贮存期间不锈钢包壳失效的主要机理。与锆合金不同，如果贮存时间较长的话（比如数百年），水腐蚀将成为其失效的主要机理，尤其是当燃料从反应堆卸载时不锈钢包壳减薄比较明显的情况下。水腐蚀也是导致燃料元件中不锈钢结构材料失效的主要原因。

不锈钢敏化是一个被广泛研究的问题。它是由合金中的游离碳与合金中的铬反应，在金属晶界处形成碳化铬导致的。晶界上富铬碳化物的形成，使不锈钢材料处于钝态，从而对 IGA 变得非常敏感。

AGR 燃料不锈钢包壳通过限制碳元素含量、引入铌元素来达到缓解碳化铬沉积的目的。引入的铌元素会优先与不锈钢中的碳元素反应，使不锈钢性能保持稳定。在 930°C 时，经过约 30 分钟的退火处理，不锈钢中的铌元素和碳元素会发生充分的反应，这个过程应确保铌元素有一定的裕量。通过上述退火工艺的处理，在辐照开始时不锈钢包壳中碳元素的含量将会非常低。另外，AGR 燃料不锈钢包壳冷却剂侧也含有较多的碳元素，理论上也可能对包壳产生威胁；但是已有实验结果证明[41]，冷却剂侧碳的扩散速率很小，不足以使包壳材料敏化。

辐照引起的成分偏析是 AGR 燃料不锈钢包壳敏化的主要影响因素。快中子能够通过原子的“非弹性”位移在金属中产生缺陷。原子可以从它的正常晶格位置被撞击到间隙位置，并产生一个空位。空位是可移动的，也可

以湮灭在陷阱处。晶界是一种很典型的缺陷陷阱。在晶格中移动时，一个空位需要与另一个原子交换位置。相比铁和镍，铬在奥氏体不锈钢中的扩散系数最快。这导致空位向晶界扩散的过程中，其与铬原子有更大概率发生位置交换。带来的净效应是 Cr 元素逐渐扩散远离晶界。镍元素扩散最慢，因此在晶界处富集。

当来自晶粒内部的铬供应来不及补充晶界区域时，晶界上的贫铬区才能维持。当空位移动性非常低时，极少空位能够抵达缺陷陷阱。因此，存在一个辐照温度窗口，在该温度之上和之下都无法观察到辐照导致材料敏化。这带来下列重要推论。首先，在稳定的中子注量率条件下，将会形成一个稳定的铬元素贫化区分布，该分布取决于空位迁移速率（受控于空位数量与移动性）和铬元素扩散速率（成分梯度与移动性）。基于对试验观测的建模，可以预测 AGR 在一定燃耗下，辐照导致的敏化会消除。其次，晶界附近的铬元素贫化分布特征（贫化区宽度和贫化程度）很可能影响应力腐蚀开裂发生的频率和速度。

图 45 提供了来自两个 AGR 反应堆的数据，显示了不同燃耗水平的燃料的腐蚀深度（纵坐标）及其对应的辐照温度（横坐标）。如前所述，贫铬晶界处的腐蚀深度和宽度预计会在 $20 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}/\text{U}^{-1}$ 以后随着燃耗加深而逐步趋于稳定。

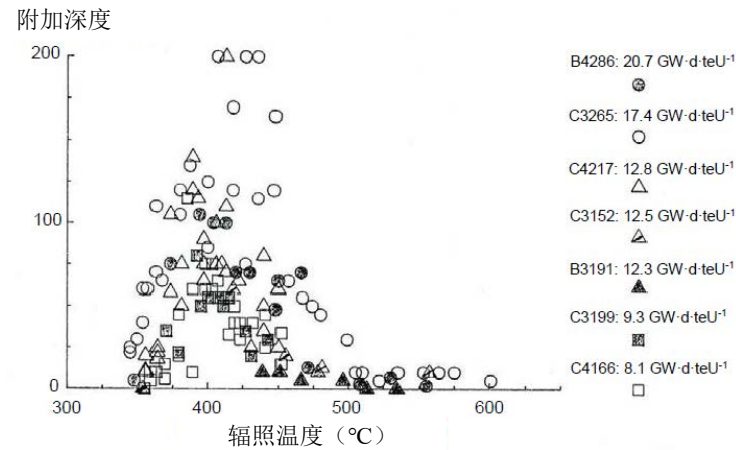


图 45. 包壳中层 72 小时测试结果（试样接触铜粉并暴露在沸腾硫酸中）
（图由塞拉菲尔德公司提供 [4]）。

在 AGR 燃料湿法贮存期间，由于 IGR 引发的问题可通过加入 pH 值为 11.4 的氢氧化钠溶液抑制剂得以抑制。抑制剂 pH 值水平是氯离子含量和池水温度的函数。最初认为，长期使用氢氧化钠会溶解不锈钢上的氧化膜保护层，进而导致水腐蚀。但腐蚀研究表明，实际上并未发生任何腐蚀加速的迹象。

4.3. MAGNOX 燃料

4.3.1. 湿法贮存

在湿法贮存期间，MAGNOX 燃料包壳通过与水发生反应受到腐蚀，生成 $Mg(OH)_2$ 和氢。理论上，当 pH 值大于 11.5 时， $Mg(OH)_2$ 的溶解度非常低，从而在包壳表面形成有效的氧化膜保护层。然而研究表明，氧化膜上的微裂纹以及碳元素的存在，导致辐照后 MAGNOX 燃料包壳的腐蚀速率比未辐照燃料包壳提高了三倍。水中杂质也会对包壳腐蚀产生影响，比如氯化物，即使在浓度很低的情况下也会导致腐蚀点坑的出现。为了减小上述影响，水中的氯化物和硫酸盐离子的浓度应控制在 1 ppm 以下。点坑腐蚀在 MAGNOX 燃料长期贮存期间会导致燃料包壳失效。由于上述原因，通常要求 MAGNOX 燃料在卸载反应堆后两年内进行后处理；然而目前的实践经验表明，在卸载反应堆后 5 年内，乏燃料水池内 MAGNOX 燃料的性能都较为稳定。

4.3.2. 干法贮存

MAGNOX 燃料包壳是专门为气冷反应堆设计的，非常适合干法贮存。MAGNOX 燃料干法贮存首先在 CO_2 环境中实施，直到包壳温度低于氢化铀的燃点（如果存在并且氧气供应受限的话）；安全等级制度的应用。当贮存在 CO_2 环境中且温度低于 $350^\circ C$ 时，MAGNOX 燃料包壳腐蚀可以忽略不计。将 MAGNOX 燃料在空气环境中进行贮存也已经积累了几十年的经验，燃料温度低于 $150^\circ C$ 。在空气环境中贮存时，如果相对湿度大于 50% 且存在腐蚀性离子，或者有水进入，MAGNOX 燃料容易发生点坑腐蚀。

4.4. CANDU 燃料

4.4.1. 湿法贮存

湿法贮存期间，CANDU 燃料的失效机理与 LWR 燃料相同，详见 4.1.1 部分。

4.4.2. 干法贮存

在长期干法贮存期间，CANDU 燃料的失效主要受氢致效应的影响。CANDU 乏燃料的燃耗相比 LWR 燃料低很多，相应地，CANDU 乏燃料的裂变产物相对也较少，衰变热也较低，进而使得干法贮存的温度也较低。较低的温度对缓解绝大多数乏燃料包壳失效是有利的，但是氢致效应除外。在接近韧-脆转变温度时，氢化物沉积和热循环效应会进一步加强。这一现象在干法贮存期间成为主要的影响因素。

对于反应堆运行过程中出现的有包壳缺陷的燃料元件，在异常贮存条件下可能暴露在氧气中，进而可能由于燃料氧化和膨胀导致包壳破裂。对各种贮存环境下带缺陷的燃料棒束开展试验表明，燃料棒束暴露在空气中不会导致芯块膨胀或包壳破裂，见 9.4.2 部分。

蠕变导致的包壳失效已经得到广泛的研究[42]并在参考文献[2]中进行了总结。在较低的贮存温度（小于 200°C）和较低的应力水平（小于 100 MPa）下，蠕变并不是导致 CANDU 乏燃料包壳失效的主要机理。对于 CANDU 燃料，端塞和端板焊缝位置氢致延迟开裂（DHC）是导致 CANDU 燃料失效的主要原因。

4.4.2.1. 氢致延迟开裂

为了加深对 CANDU 燃料棒束端塞和端板焊缝特性的理解，明确 DHC 问题是否值得关注，专门开发了一种检测设备和方法，可以较容易地在热室中对 CANDU 燃料棒束端塞和端板焊缝实施检查。重要参数包括导致焊缝开裂的强度因子以及辐照后焊缝开裂速率随干法贮存温度条件（-50°C 到 150°C）的变化函数。

第一阶段计划于 2007 年完成，完成了设备的开发，并通过对未辐照的 CANDU 燃料棒束焊缝的检查建立了焊缝性能检查方法。该检测设备和方法本质上是一种弯曲强度试验，即将在端板上施加一个扭矩将其从燃料棒束端塞上移除。过程中测量得到扭矩的大小和焊缝位置裂纹的增长量，并测量裂纹的增长。该试验装置能够成功地在焊缝处生成裂纹并跟踪裂纹的生长。图 46 显示了 DHC 测试装置的照片。

试验装置可以成功产生初始裂纹并跟踪了裂纹增长。典型的裂纹如图 47 所示。

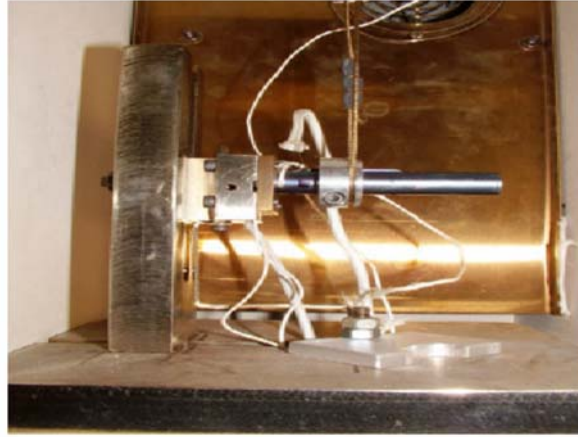


图 46. CANDU 燃料 DHC 检测装置（由 OPG 供图[4]）。

随着扭矩的增大，裂纹首先在焊缝缺口生成，并逐渐沿着端板生长。焊缝缺口促进了应力集中。

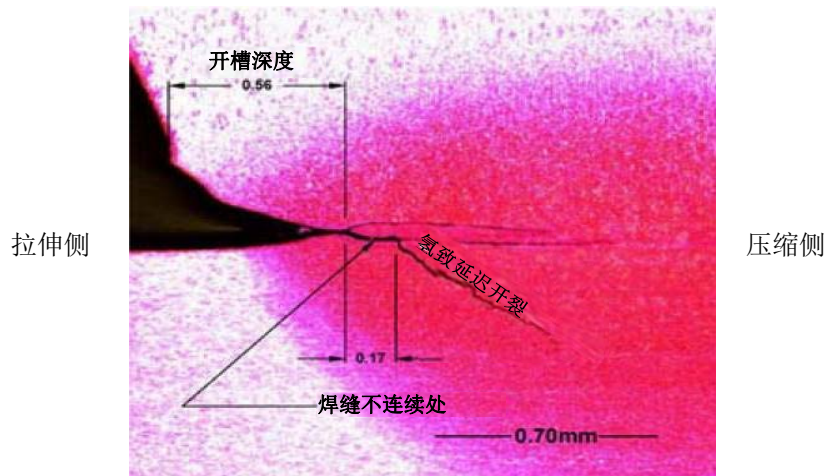


图 47. 显示焊缝缺口、焊缝不连续和 DHC 裂纹的金相切片
（由 OPG 供图[4]）。

第一次检测主要是用于调试设备和演示方法。试验用的材料是氢含量约为 10 ppm 的锆合金，用于确认 DHC 现象是否会在正常氢含量的 CANDU 新燃料中发生。同时，也使用辐照后的燃料棒束开展了一系列的检测。

结果表明，在氢含量较低、应力强度因子为 $13.9 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ (130°C) 的焊缝中会发生 DHC。在准备测试用焊缝试样时，在各种温度和扭矩下进行了一系列检测，以进一步优化方法并确定基准数据。

在这些测试中，未辐照的包壳和焊缝通过电化学方法将氢含量增加到约 40 ppm 的水平。测试结果通过与几何形状相关的应力强度因子理论分析方法和专门开发的有限元代码进行了分析评估。有限元计算得到的结果与理论分析方法基本一致。通过扫描电镜分析裂纹形态，证实了存在 DHC。根据试验确定的应力强度因子 (K_{IH}) 约为 $7.6\text{--}13.6 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ (150°C)，裂纹开裂速度为 10^{-9} m/s^{-1} 。针对 DHC 现象，参考文献[43]提供了更多的信息。

4.5. RBMK 和 WWER-440/1000 燃料

本部分内容仅来自所引用的参考文献。

4.5.1. 湿法贮存

湿法贮存期间，RBMK 和 WWER-440/1000 燃料的失效机理与 LWR 燃料相同，详见 4.1.1 部分。

4.5.2. 干法贮存

干法贮存期间，RBMK 和 WWER-440/1000 燃料的失效机理与 LWR 燃料相似（见 4.1.2 部分），因此包壳的失效机理主要聚焦 Zr-1%Nb 包壳的蠕变现象；适用于所有类型的反应堆。以下研究主要目的是证明 Zr-1%Nb 包壳材料的性能[2][4]：

- 用长度为 80 mm 的 Zr-1%Nb 包壳管，经氦气加压后放入 BOR-60 研究堆中开展辐照考验。蠕变试验在 400°C 的真空环境中开展了 20 天。结果表明，与其它锆合金类似，包壳发生辐照硬化，减小了热蠕变；因此，未辐照试验的结果是保守的[44]。
- 在一定温度和环向应力下对未辐照的 Zr-1%Nb 包壳管开展了蠕变试验，以确定 CASTOR 444/84 屏蔽容器中贮存的 WWER-440 燃料允许的最高温度。相关信息详见参考文献[45]。
- 在 Novovoronezh 核电厂，一个“WWER-1000”屏蔽容器内装了 3 个罐子；每个罐子内装了一组 WWER-440 燃料棒束，棒燃耗为 $36 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{HM})^{-1}$ 。12 个 WWER-1000 乏燃料屏蔽容器中作为热源。

在贮存 2.5 个月后，从屏蔽容器中移除时燃料棒的温度在 330—380°C 范围内[46]。检查结果表明，燃料棒没有改变，直径没有超过限值要求[2][4]。试验的总时间为 12 个月。

- 两个燃耗为 $48.2 \text{ GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t(HM)}^{-1}$ 的 WWER-440 燃料棒被装入乏燃料干法贮存设备中，然后充满了氩气；之后 4 个月，在季米特洛夫格勒原子反应堆科学研究所（RIAR）热室中将这个干法贮存设施外部被加热到 350°C（持续 2 个月）后又被加热到 390°C（持续 2 个月）[47]。对来自同一个燃料组件的 3 根对照棒进行了一系列无损检查和破坏性检查。结果表明：

“燃料棒包壳的外观、氧化膜厚度、燃料棒长度、裂变产物分布均保持不变。统计结果表明，燃料棒外径仅改变了 $2.6 \mu\text{m}$ 。此外，在实际包壳温度下，计算得到的累积环向应变（约 0.02%）会使包壳蠕变在 10 年后饱和” [47]。

5. 湿法贮存乏燃料行为

本章中的信息来自参考文献[2][4][6]，其他参考文献的内容酌情引用。

5.1. 常规性能

乏燃料湿法贮存技术已经积累了大约 60 年的应用经验。这项技术带来的好处主要与冷却效率和屏蔽有关。冷却水还有助于保障措施、燃料检查/检验工作、操作的灵活性（特别是在后处理操作方面），通过池水分析可以确定燃料包壳的完整性，并能收集特定的燃料组件数据。

除了常规的燃料处理操作外，可能影响燃料组件或包壳完整性的因素在第 4 部分中已经进行了概述。

通常，乏燃料湿法贮存只受到不利的水池化学条件或燃料贮存结构恶化的限制。对于堆内贮存设施而言，主要的影响因素是需要保持备用容量以备未来燃料从反应堆卸载或反应堆退役时基于经济原因完全关闭。

确认乏燃料性能的技术包括破坏性分析（在热室中对试样进行物理测量）和非破坏性分析（可在核电厂现场使用的技术）。后者将在第 8 部分讨论。

5.2. LWR（BWR，PWR）燃料

LWR 燃料在湿法贮存期间的性能一般都很好，只是偶尔会出现操作问题或事故。对于锆合金包壳燃料，有数据显示其在乏燃料水池中的最长连续贮存时间超过 50 年，而不锈钢包壳燃料则为 32 年。

在 CRP 开始时，LWR 燃料湿法贮存的技术基础已基本确立，只有增加燃料燃耗时，其影响需进一步评估。20 世纪 80 年代初，包括芬兰、德国、英国和美国等在内的一些 CRP 参加国已经进行了包壳完整性研究，包括破坏性和非破坏性分析。湿法贮存时间最长的燃料是低燃耗的锆合金包壳燃料，其在去离子水中已经贮存超过 20 年。贮存时间最长的不锈钢包壳燃料则在硼化水中贮存了 6 年。德国评估了高燃耗燃料（高达 $39 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ ）的

性能，在贮存 1 年、3 年和 6 年后，对基准乏燃料进行重新检查。这些国家研究得到的总体结论是，没有观察到可检测的包壳性能退化[1][3]。然而，一些证据表明，在贮存 8 年后，PWR 燃料包壳表面的水垢层开始松动。

在随后的几年里，对贮存的乏燃料进行重复检查的次数受到了限制。然而，燃料完整性检查/监测是在水池卸载期间和支持后处理操作时需要例行开展的。例如，美国要求所有乏燃料组件在处理前必须进行目视检查[48]。表 17 给出了与美国最近在水池卸载过程中收集的两个示例数据[49][50]。

表 17. 美国为支持堆内水池卸载所收集的乏燃料完整性信息示例

核电厂	检查燃料 组件数量	改装燃料 组件数量	运输燃料 组件数量	放入破损燃料 罐中的数量	最早一批 燃料	备注
Zion	2226	1478	1369	98	1973	用仪表管拉杆进行改装
Kewaunee	887	241	161	3	1974	用导向管拉杆进行改装； 无结构性异常

对于长期贮存的 LWR 燃料（40 年以上），在后处理操作或卸载到干法贮存屏蔽容器中时，其状态通常被发现是良好的。没有证据表明，湿法贮存会导致燃料组件包壳性能退化。在堆内湿法贮存过程中也没有发现限制效应，包括使用新型耐腐蚀结构材料贮存高燃耗乏燃料。

然而，据报道，部分含锆合金导向管和 304 不锈钢的 PWR 燃料组件的碳含量高于正常水平，套管的腐蚀随后导致后续燃料操作过程中上管座分离。分离机理被确定为不锈钢凸起接头的晶间腐蚀开裂（或在制造过程中敏化，或在反应堆堆芯中敏化，并通过暴露于不利的水池化学条件而启动）。自 20 世纪 90 年代的这些发现之后，新设计的 PWR 燃料组件经历了设计方案和材料的改变。为了尽量减少湿法贮存中乏燃料结构材料的腐蚀，氯化物、氟化物和硫酸盐的浓度也被限制在 0.1 ppm，钠和钙的含量必须低于 0.5 ppm，最低 pH 值为 4.5。

英国在乏燃料处理前对一些易受胀接接头腐蚀影响的 PWR 燃料组件进行了检查。包括对一个观察到胀接接头腐蚀的燃料组件进行了多年的反复检查，并没有发现其状况随着时间的推移而恶化，在随后回收和后处理的

过程中，上管座未发生分离。西班牙基于其 13 000 个乏燃料组件贮存经验为英国提供了进一步的支持。

然而，上管座分离的可能性仍然是回收长期贮存乏燃料需要关注的一个问题。为了避免上管座分离，需对易受腐蚀影响的乏燃料实施相关控制和修复措施。例如，最近在美国 Kewaunee 核电厂的堆内乏燃料池中回收 887 个乏燃料组件。已知有 241 个燃料组件易受到胀接接头腐蚀的影响，因此在乏燃料被转移到干法贮存密封容器之前采取了补救措施[50]。补救措施包括在导向管中插入六个锚栓，并进行了负载能力测试，载荷可以达到 $450 \text{ Kg}\cdot\text{m}^{-1}$ 。

在 SPAR 项目中，针对 2001 年 9 月 11 日事件以及最近的福岛第一核电站事件（2011 年），对堆内乏燃料进行了性能评估。美国对 BWR 和 PWR 燃料潜在的快速失水和锆合金部件与空气发生不受控制的反应性进行了评估，根据评估结果引入了减轻水池长期冷却能力下降的策略。一项对 BWR 核电厂进行的乏燃料水池安全研究表明，严重地震导致乏燃料水池放射性释放的几率约为千万分之一[51][52]。美国监管部门证实，上述结果适用于所有美国核电厂[53]。

其他 SPAR 国家也进行了类似的研究。经济合作与发展组织（OECD）核能机构（NEA）核设施安全委员会（CSNI）在关于“失去冷却和失去冷却剂事故下的乏燃料池”的报告中提供了关于此类研究结论的最新总结报告[54]。

5.3. CANDU 燃料

20 世纪 50 年代以来，加拿大一直在研究采用湿法贮存技术贮存乏燃料。CANDU 堆的乏燃料一直被贮存在核电厂的乏燃料水池中，并且已经连续贮存了约 45 年，积累了丰富的湿法贮存经验。

1977 年/1978 年，AECL 和安大略水电公司在 AECL 下设的 Chalk River 实验室（CRL）启动了一项试验，以评估将辐照后的 CANDU 燃料连续贮存在乏燃料水池中至少 50 年的可行性。来自 19 个燃料棒束的 176 根燃料棒被选定用于该试验。包括在 CRL 的国家通用研究（NRU）反应堆中的乏燃料，以及核电示范（NPD）、Douglas Point 和 Pickering 反应堆中的乏燃料。1962 年 5 月，为该计划选择的最早一批燃料棒束从 NPD 反应堆中卸载。所

有 19 束燃料棒束均被拆除，并单独贮存在开口的不锈钢管中。8 根管子一组被装入铝或不锈钢贮存罐。该项目选择了不锈钢和铝贮存罐，以调查贮存材料性能的差异。

最早一批燃料棒束在 1977 年/1978 年进行了性能监测，其中包括对每个燃料棒束的特定燃料元件进行破坏性检查，以及对其余元件进行非破坏性检查。检查结果表明，经过 16 年的湿法贮存，燃料或包壳的状况与最初的辐照后检查结果相比没有变化。

1988 年，从每个燃料棒束中取出特定的燃料元件，进行详细的检查。检查结果显示，经过 26 年的湿法贮存，任何完整的燃料或包壳的状况没有明显的变化。参考文献[55]第 9 部分中给出了刻意有缺陷的燃料的状况。目前还没有对这种燃料进行进一步检查的报告。

5.4. RBMK 和 WWER 燃料

俄罗斯对堆内湿法贮存乏燃料规定的条件是：硼酸保持在 $12-16 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ，卤化物（Cl 和 F）的浓度保持在 $0.1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以下，pH 值在 4.3—6.5 范围。对于堆外乏燃料水池，需使用去离子水，卤化物浓度保持在 $0.15 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 以下，pH 值在 5.5—7.0 范围内。

在湿法贮存 Zr-1%Nb 包壳 WWER 和 RBMK 燃料方面，俄罗斯已有超过 50 年的经验。根据监测，在正常运行条件下没有关于湿法贮存乏燃料包壳失效的报告。然而，已有不锈钢贮存格架被腐蚀的经验反馈。为解决该问题，格架材料已更改为锆合金。

俄罗斯还对从不同燃耗和冷却时间的 RBMK 和 WWER 乏燃料上切割下来的 Zr-1%Nb 合金包壳试样进行了腐蚀研究。结果表明，燃耗对包壳塑性的影响明显大于贮存时间的影响。

对于 RBMK 燃料，在化学性质不受控制的开放型密封容器中，观察到乏燃料在格架接触区域存在最大 $3-5 \mu\text{m}/\text{年}^{-1}$ 的氧化层增长率；贮存时间可达 15 年。对于 WWER-440 燃料，氧化膜沿包壳均匀分布，平均厚度为 0.01 毫米；在定位格架的位置，氧化膜厚度局部增加了 0.005 毫米[2]。

5.5. AGR 燃料

对于 20Cr:25Ni:Nb 不锈钢包壳的 AGR 燃料，已积累了 38 年的贮存经验。尽管这些燃料的一般包壳腐蚀率明显高于锆合金（大约 $0.1 \mu\text{m}/\text{年}^{-1}$ ），但对于目前研究的贮存时间（长达 100 年）而言，一般腐蚀并不是主要的限值因素。

对于 AGR 燃料来说，需要特别注意乏燃料水池的水化学条件，因为在反应堆运行过程中，燃料会敏化（见第 4.2 部分），导致包壳存在侵蚀性阴离子（尤其是氯化物）的情况下容易受到晶间腐蚀（IGA）影响。为了抑制 IGA，建议 AGR 燃料湿法贮存时使用 pH 值为 11.4 的氢氧化钠池水，这种环境下的连续贮存时间长达 24 年。贮存在氢氧化钠水池中的燃料没有发生可检测的包壳性能退化。正如 SPAR-II 期项目所示，已经开始研究贮存 AGR 燃料的替代水化学成分，以促进与 AGR 燃料和 LWR 燃料在 THORP 水池中共同贮存。最初采用硝酸钠进行研发，包括积极的实验室规模的高燃耗支撑材料测试，和对从大量池水中分离出含有 AGR 燃料的有限数量贮存容器的一系列对照研究。由于缺乏操作经验，在受控测试中硝酸钠完全阻止腐蚀的能力存在一些不确定性，以及担心可能会促进藻华，因此决定放弃使用硝酸钠。

随后，THORP 水池被确定并实施了短期加注氢氧化钠的方案，使其 pH 值维持在 9 左右，既能保护湿法贮存期间 AGR 燃料包壳，又能与贮存水池中的铝制部件兼容。上述方案提供了许多优势，包括积累了在 Sellafield 的贮存水池中广泛使用氢氧化钠的经验。

5.6. MAGNOX 燃料

镁合金（MAGNOX Al80）包壳燃料在湿法贮存条件下特别容易发生包壳腐蚀。虽然最初形成了一层保护性的氢氧化镁膜，但任何水中存在侵蚀性离子都会促进保护性氧化膜的溶解，使包壳容易受到点坑腐蚀。因此，MAGNOX 燃料被贮存在高纯度的钠水中，最低 pH 值为 11.4，而且贮存时间往往有限，通常小于 5 年。MAGNOX 燃料在堆外被贮存在初始 pH 值为 13.0 的容器中。

目前相关工作还在开展中，以确定湿法贮存 MAGNOX 燃料超过目前接受的期限的可行性。目的是确定 MAGNOX 燃料后处理设施发生重大故障时的应急方案[56]。

6. 干法贮存乏燃料行为

6.1. 常规性能

商用核电厂乏燃料干法贮存具有近 40 年的良好应用经验，研究堆乏燃料干法贮存具有约 50 年的良好应用经验。各种类型反应堆(CANDU、HWR、PWR、BWR、WWER、RBMK、MAGNOX 和 HTGR) 燃料都有干法贮存的实践经验。自其诞生以来，已经发展出了各种各样的干法贮存系统(第 3.2 部分)。几乎所有参与过 BEFAST 或 SPAR 项目的国家(阿根廷、加拿大、法国、德国、匈牙利、日本、韩国、俄罗斯联邦、西班牙、瑞士、英国和美国)都开展了各种干法贮存技术的研究。几乎参加国也都在积极开展干法贮存研发项目。到目前为止的研究结果表明，乏燃料在目前条件下可以安全贮存几十年[2][4][6]。

在过去的 20 年里，被放入干法贮存容器的乏燃料数量大幅增加。在 2013 年底，大约 52 500 吨乏燃料采用干法贮存[4]。对一些国家来说，这占总乏燃料贮存量的 30%左右。

乏燃料干法贮存的运行环境(覆盖气体)和贮存条件的选择依据详见参考文献[3]，对空气和惰性气体的研究表明可采用了以下两种方法之一：将乏燃料装入温度合适的不会影响任何暴露的燃料氧化的空气环境中；将乏燃料装入惰性气体环境(以避免暴露的燃料和燃料包壳氧化)。

氦气主要用于 LWR 燃料的干法贮存，为了便于及时从堆内水池中取出乏燃料，必须适应相对较高的残余包壳温度[2]。选择氦气是因为它的导热性能比空气、氮气、二氧化碳或氩气强 5—6 倍。评价屏蔽容器或封闭系统中热行为的研究还表明，在 0.1—0.5 MPa 的压力范围内，增加覆盖气体的压力可有效提高传热效率[3]。

例外的是贮存在干燥空气中的 CANDU 燃料，最初贮存在二氧化碳中然后在燃料冷却后转移到空气中的 MAGNOX 燃料，和采用 MVDS⁹ 干法贮存技术的氮气。

⁹ 在俄罗斯联邦热列兹诺戈尔斯克的采矿和化学联合企业 MVDS 中使用了氮气和氦气混合气体。

在美国和西班牙,当温度限值为 400℃时,在惰性气体中干法贮存 LWR 乏燃料的许可取决于燃耗和屏蔽容器的类型(温度高于 400℃时,如果低燃耗乏燃料的包壳环向应力可以保持低于 90 MPa,也可以)。在匈牙利,对于 Zr-1%Nb 包壳燃料,允许在 410℃ 的温度下在氮气中干法贮存[2][4][6]。

在德国,没有规定具体的燃料包壳温度限值,而是给出了以下两条准则以保证系统燃料棒包壳在干燥贮存期间不会失效:

- 包壳最大切向应力不应超过 120 MPa;
- 在干法贮存期结束时,包壳的残余切向应变不应超过 1%[2]。

对于燃耗为 $55 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的乏燃料组件,在水中冷却了大约 5 年后包壳表面的温度限值为 360℃[2][4]。

大多数干法贮存乏燃料包壳是锆合金(Zry-2、Zry-4 和 Zr-1%Nb),也有部分干法贮存乏燃料包壳是镁和铝合金[2][4]。

最大燃耗可达 $65 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 。燃料组件的燃耗的趋势是普遍增加。例如,德国 PWR 燃料组件的平均燃耗已经从 1983 年的 $35 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 增加到 1998 年的 $50 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$,目前已经达到 $65 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 。在美国和 SPAR 项目参与国,大多数乏燃料组件的燃耗超过 $45 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 。尽管如此,大多数干法贮存系统适用于最大燃耗为 $45-65 \text{ GW} \cdot \text{d} \cdot \text{t}(\text{HM})^{-1}$ 的乏燃料[2][4]。

除了为支持后处理活动而从英国 Wylfa 电站的干法贮存设施中提取的 MAGNOX 燃料外,可用于确认干法贮存中乏燃料性能的数据是十分有限的[2]。在大多数情况下,只有在干法贮存系统打开后才能确认乏燃料是否退化。对于大多数干法贮存系统而言,设计基础是如果贮存系统保持密封,燃料将保持完整性。并且往往是通过监测贮存系统密封是否完好来判断燃料完整性。主要的例外是贮存在模块化贮存库系统的裸露燃料,在该系统中可以对贮存管气体进行定期监测。

6.2. LWR (BWR, PWR) 燃料

LWR 燃料在干法贮存系统中的性能最初是通过 20 世纪 80 年代进行的短期示范试验确定的[3]。例如,德国使用 CASTOR 和 TN 运输屏蔽容器进

行了 1 周至 30 个月的示范试验。在这些试验中，对基准燃料组件进行了回收和检查，以确定其性能是否发生了变化[57]。

表 18 中汇总了更多最近燃料和屏蔽容器检查的清单。

1984 年，美国爱达荷国家实验室启动了一项示范计划，以支持美国 LWR 燃料干法贮存研究[58]。该计划的初始阶段包括定期对屏蔽容器内的气体取样，以确认燃料包壳的完整性[58]。14 年后的 1999 年，重新打开其中一个屏蔽容器（即 CASTOR V/21）进行了检查。检查包括取出所有 21 个乏燃料组件，并进行了非破坏性检查以确认乏燃料的状况。这些检查结果总结如下：

“……在长期（14 年）贮存期间，没有证据表明屏蔽容器、屏蔽层或燃料棒的性能退化会影响屏蔽容器的性能或燃料完整性。在贮存期间，没有证据表明屏蔽容器的外部或内部发生了性能退化，也没有任何密封或屏蔽失效的迹象。燃料完好无损，也没有任何迹象表明有明显的包壳蠕变或燃料棒弯曲……” [59]。

表 18. 干法贮存屏蔽容器乏燃料完整性研究概要

检查时间	1985—1998	1999	2000	2005	2009	2013
类型	示范	示范	监管要求	监管要求	监管要求	设计基础事件后的完整性检查
检查范围	气体采样	屏蔽容器和燃料完整性	屏蔽容器和燃料完整性	屏蔽容器和燃料完整性	屏蔽容器和燃料完整性	屏蔽容器和燃料完整性
业主	能源部/弗吉尼亚电力/电力研究协会	能源部/道明尼/电力研究协会	东京电力	东京电力	日本原子能公司	东京电力
国家	美国	美国	日本	日本	日本	日本
屏蔽容器数量	5	1	1	5	1	9
检查前贮存时间 (年)	针对所有屏蔽容器长达一年的性能测试； CASTOR V/21: 10—13; VSC-17: 7—11;	14	5	10	7	18
屏蔽容器类型	CASTOR V/21, MC-10, TN-24P, REA-2003, VSC-17	CASTOR V/21	TN-24 (37 BWR)	TN-24 (52 BWR)	Hitachi-Zosen (61 BWR)	TN-24 (37&52 BWR)
衰变热 (kW)	12.6—28.4	28	不适用	不适用	13	不适用
气体取样	CASTOR V/21, VSC-17, MC-10: ⁸⁵ Kr 未超过本底; REA-2003: 测得单棒失效; TN-24P: 性能测试中;	⁸⁵ Kr未超过本底	⁸⁵ Kr 未超过本底	⁸⁵ Kr 未超过本底	⁸⁵ Kr 未超过本底	⁸⁵ Kr 未超过本底
内盖泄露速率 (Pa m ³ s ⁻¹)	不适用		5.3×10 ⁻⁸	1.6×10 ⁻⁷	无变化	<1×10 ⁻⁶ (1×屏蔽容器)
密封面/垫片状况	不适用		二级顶盖垫片观察到白色产物 ^b	二级顶盖垫片观察到白色产物 ^b	无变化	二级顶盖垫片被海水腐蚀 ^c

检查时间	1985—1998	1999	2000	2005	2009	2013
燃料耗 (GW·d·t(HM) ⁻¹)	24—35	24—35	32	28	33.5	
燃料状况	根据气体取样，无燃料退化的证据	无燃料退化的证据	未观察到变化	未观察到变化	未观察到变化	未观察到变形或异常

- a 2001 年更换了所有屏蔽容器的密封垫。
- b 所引用的原因与 2000 年的不同。
- c 更换了所有贮存容器内部盖子的密封垫。

在日本，东京电力公司和日本电力公司也进行了屏蔽容器和燃料完整性检查，目的是为了确认金属垫圈的密封性和乏燃料完整性。在 Tokai Daini 现场，密封面和密封垫的目视检查没有显示异常[4]。然而，福岛第一核电站 2000 年的检查结果显示，部分金属垫圈表面发生了颜色变化；在 2005 年的检查中，颜色有所增加。在 2000 年的检查中，发现表面有白色异物，结论是垫圈内的铝材料和残留的水之间发生了反应。2005 年检查发现，在打开贮存容器盖子之前，贮存容器在反应堆水池中浸泡了数天，白色异物的颜色出现变化[60]。在乏燃料完整性方面，通过对贮存容器内的气体采样，没有检测到 ^{85}Kr 气体，对乏燃料组件的目视检查也没有显示任何异常[4]。

在地震和随后的海啸中（2011 年），福岛第一核电站的屏蔽容器贮存设施受到了大量海水、沙子和碎片的影响。通过外观对屏蔽容器的安全性能确认后，9 个贮存的屏蔽容器被从干法贮存设施运到公共的乏燃料水池中，并进行了进一步的检查以确认密封性、次临界性和燃料完整性。经调查，被取走检查的 3 个具有代表性的乏燃料组件屏蔽容器没有任何异常。只有在发现屏蔽容器盖子密封圈泄漏或检测到 ^{85}Kr 时，才考虑拆除其他 8 个屏蔽容器的盖子；无需采取进一步行动。由于海水导致的腐蚀，所有屏蔽容器盖子密封圈均进行了更换[61]。

6.3. CANDU 燃料

1978 年至 1996 年期间，AECL 下设的 Whiteshell 实验室开展了支持 CANDU 燃料干法贮存性能研究的示范计划[2][4]。燃料历史、研究范围和发现详见参考文献[5]。

OPG 的 Pickering 和 Bruce 核电厂的典型燃料元件被定期从贮存容器中取出，并接受检查。检查包括非破坏性和破坏性的检查。研究得到的主要结论是，没有检测到明显的变化。

另外，没有来自阿根廷和韩国的 CANDU 燃料干法贮存相关的检查结果。

6.4. RBMK 燃料

据报道，将经过 8—10 年的水冷却的 RBMK 燃料元件在空气中贮存 3 年，不会对其耐腐蚀性和机械性能造成任何严重影响。此外，由于 RBMK 燃料在 5 年湿法贮存后的衰变热相对较低，预计干法贮存容器中心温度不会超过 270°C[5]。

6.5. WWER 燃料

相关内容详见 4.5.2 部分。

另据报道[5]，1988 年至 1989 年期间，在南乌克兰（South Ukraine）国家核电厂对一个装有 12 个 WWER-1000 乏燃料组件的 TK-13 屏蔽容器进行了装载，没有收到关于贮存容器泄漏的报道。

6.6. MAGNOX 燃料

自 20 世纪 70 年代以来，根据英国 Wylfa 核电厂 MAGNOX 燃料干法贮存的经验，无论是使用二氧化碳冷却的短期贮存还是使用空气冷却的较长期贮存，效果都非常好[2][4]。随着 Wylfa 核电厂于 2015 年 12 月 31 日关闭，政府的政策是对所有 MAGNOX 燃料进行后处理，目前该电厂正在将乏燃料卸载并运往 Sellafield。

唯一关于燃料完整性问题的报告是由于水进入其中一个空气冷却的贮存容器导致的，详见第 9.4.2 部分。

6.7. AGR 燃料

尽管已经对 AGR 燃料在干法贮存条件下的行为进行了一些研究[62—63]，但目前还没有工业应用的经验。

然而，AGR 燃料从反应堆卸载后首先是在二氧化碳冷却的贮存管中进行强制冷却。对于大多数使用 AGR 燃料的核电厂来说，乏燃料干法贮存的能力是非常有限的。因此，AGR 燃料的循环策略是先在二氧化碳中初步冷却，然后在运往 Sellafield 之前进行堆内湿法贮存。

7. 湿法和干法贮存设施结构

用于乏燃料贮存的设施必须能够经受数十年的中子辐射，以及热和腐蚀的影响。为此，各种不同的材料被用于乏燃料贮存设施的制造。湿法贮存设施通常为含不锈钢内衬的混凝土结构，里面充满冷却剂，并布置了特殊设计的乏燃料贮存格架。这样的设计有助于缓解混凝土受到腐蚀的影响，也有助于后期退役。干法贮存设施通常的结构是具有自屏蔽功能的贮存系统（金属或混凝土屏蔽容器）、基于密封容器的贮存系统（置入混凝土结构中密封但没有屏蔽功能的不锈钢密封容器）或者是一种可以容纳装在贮存管中的 1 个或多个乏燃料组件且具有屏蔽功能的建筑。屏蔽容器具有以下全部或者部分设计特征：一体化设计、有外部冷却系统和起重吊耳、有 1 个或多个子系统、通过金属和/或橡胶或焊接密封、有可以容纳乏燃料的燃料篮以及中子吸收体。相比而言，其它类型的干法贮存系统仅具有乏燃料贮存和排出衰变热的作用，混凝土结构主要起到对贮存管中密封容器装载的燃料或燃料进行屏蔽和物理防护，并促进衰变热排出。

下面主要介绍乏燃料贮存系统中使用的材料、影响材料性能退化的主要机理以及 BEFAST 和 SPAR 项目相关工作进展。

7.1. 材料

7.1.1. 不锈钢[2][4]

由于形成了保护性氧化膜，不锈钢具有极好的耐腐蚀性。例如，点坑腐蚀或电化学腐蚀是可以忽略的，并且一般（或均匀）腐蚀速率只会在很长一段时间后（数百年）变得较为显著。不锈钢在放射性水中的短期腐蚀速率大约是 $0.3 \mu\text{m}/\text{年}^{-1}$ ，而在加入氢氧化钠的去离子水（pH 值为 11.4）中的腐蚀速率则小于 $0.1 \mu\text{m}/\text{年}^{-1}$ 。在适当的条件下，影响不锈钢的最重要的失效机理是应力腐蚀开裂和微生物腐蚀导致的失效。

7.1.2. 铝合金

湿法贮存条件下，导致铝合金腐蚀的机理有很多种，包括从快速的贯穿腐蚀到可以持续几十年的慢速腐蚀。通常，材料的稳定性很大程度上取决于保护性氧化膜的保留。例如，在 pH 值为 4—8.5 环境中，铝合金的均匀腐

蚀速率很低，但在更高或更低的 pH 值下，铝合金的腐蚀就会变得很严重，这主要是由于保护性氧化膜被溶解导致的。影响铝合金性能的最重要的降解机制是点坑腐蚀，其他机理如缝隙、电化学和微生物腐蚀也会产生影响；特别是当池水电导率大于 $3\ \mu\text{S}/\text{cm}^{-1}$ [2]。

在干法贮存设施中，铝合金主要作为屏蔽容器内一种有效的导热材料使用。与其他金属相比铝合金密度较低，是一种合适的用于制造乏燃料贮存篮的材料，可以增加乏燃料组件的装载数量，实现高效运输和贮存。此外，硼化铝合金和复合材料也常被用作中子吸收体材料。在干法贮存条件下，腐蚀被降到最低，这是由于铝合金部件经过了阳极氧化处理或由耐腐蚀性能良好的合金制成的。

铝合金制成的贮存结构上没有外部机械负载，因为屏蔽容器上的负载仅限于垂直或水平搬运和由于直立或水平放置而产生的静负载。通常，在快中子通量低于约 $10^{20}\ \text{n}\cdot\text{cm}^{-2}$ 时，铝合金的机械性能不会发生显著变化。在可预见的贮存期内，中子发射量要小几个数量级。因此，铝合金的机械性能不会因为辐照的影响而发生显著变化。

7.1.3. 作为中子吸收体的硼化不锈钢或硼化铝合金复合材料[4]

中子吸收体材料被布置在乏燃料贮存格架、运输容器等设备上，作为一种维持乏燃料组件次临界状态的有效手段。常用的含硼吸收体材料包括：

- 硅橡胶粘合剂中的碳化硼，例如 Boraflex；
- 铝合金包壳中的碳化硼，例如 Boral；
- 硼化铝合金，例如 BC-A6N01SS-T1 和 1%B-A6061-T6/T651；
- 硼化不锈钢合金；
- 防渗漏包壳中的金属镉，例如 Cadminox。

最新的屏蔽容器设计要求使用新的中子吸收材料来减弱较高富集度铀（丰度高于 5% 的 ^{235}U ）和高燃耗乏燃料（燃耗大于 $55\ \text{GW}\cdot\text{d}\cdot\text{t}(\text{U})^{-1}$ ），即需要一种有更高热传导效率和中子吸收效率的材料。例如，与含硼不锈钢相比，金属基复合材料可以容纳更多的硼。它们由铝合金制成，既可作为中子吸收体材料，也可以作为乏燃料篮的结构部件。铝具有出色的导热性能。

中子吸收体材料使用了以下两种技术中的一种制成：

- 在熔融的铝中加入硼（铸锭冶金）；
- 在稳定的化合物（如 B_4C ）中混入与铝合金粉末（粉末冶金）。

通常，硼化铝需要具备如下性能：

- 在材料中均匀地混合硼（或碳化硼）以控制确保次临界；
- 具有较高的热导率以导出衰变热；
- 在高温（ $>200^{\circ}C$ ）条件下，长期（超过 60 年）保持所需的机械强度。

7.1.4. 混凝土[4]

混凝土本质上是一种非均匀的各向异性材料，价格相对便宜，有很高的抗压强度，但抗拉性能比较差。钢则价格昂贵，但是有非常高的抗拉强度。因此，钢被引入混凝土中以增强混凝土的抗拉性能，即当受到拉载荷时主要由钢来承载。通过控制与混凝土中的拉伸应变有关的裂缝宽度，钢对混凝土也有有益的影响。这种拉伸应变可能是由于机械和热加载，和/或抑制干燥收缩（浇筑后不久）的影响，以及固化条件下温度梯度引起的表面热收缩应变。质量良好的混凝土在良好的环境中可以无限期地持续使用下去，而不会出现任何严重的结构恶化。

7.1.5. 铸铁[2]

与未经处理的碳钢类似，铸铁的抗腐蚀性较差，主要用于运输/贮存屏蔽容器和屏蔽容器处理设备的制造。然而，铸铁的这种材料特性在贮存容器的设计时得到了充分的考虑，比如干法屏蔽容器的厚度是在特定腐蚀速率下由屏蔽要求计算得到的，并确保有 100% 的安全裕量。为了缓解均匀腐蚀，铸铁通常要用几层环氧树脂涂层进行处理。需要注意的是，在盐水中对球墨铸铁进行的极端条件下的长期腐蚀试验结果表明，其平均腐蚀速率约为 0.1 mm/年^{-1} 。这是由于铸铁中的高碳含量使氧化层具有良好附着力的结果。

7.1.6. 碳钢[2]

未经处理的碳钢在低温含氧水体中的耐腐蚀性能较差，因此没有得到广泛应用。为了克服这种缺点，碳钢通常镀锌处理和/或涂上环氧树脂。因此，需要考虑的主要降解机理是点蚀（即保护层在操作过程中被损坏或被破坏）。在出现这种缺陷的地方，点蚀将在侵蚀性离子（例如氯化物）的存在下持续进行。保持良好的水化学条件可以使这种影响降到最低。

7.1.7. 聚合物[4]

湿法贮存时，聚合物可用作无衬里防渗水结构中的柔性宽聚合物条或“水条”。伸缩缝处可通过加入聚氯乙烯条等材料来防止渗水。缝隙也可以用聚合物密封剂填充，例如聚硫化物或聚氨酯。

干法贮存时，各种聚合物被用作中子屏蔽材料，包括聚丙烯、聚乙烯、聚酯、环氧树脂和各种混合聚合物。顾名思义，中子屏蔽材料的目的是为了阻止中子。中子在被吸收材料捕获之前必须先减慢其速度。快中子的减速是通过聚合物实现的，因为聚合物中有高浓度的氢原子。

7.2. 性能退化机理

7.2.1. 金属性能退化机理

7.2.1.1. 辐照损伤

铸铁、不锈钢等金属的辐照损伤主要是由能量超过 100 KeV 快中子造成的。中子通量超过 $10^{18} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时，金属的机械性能会有显著改变。然而，典型的中子通量远远低于这个值。例如，一个 CASTOR®屏蔽容器存量 40 年的全部能谱如以下的等式所示：

$$N(40 \text{ 年}) = 10^{19} - 10^{20} \text{ n (屏蔽容器)}^{-1} \quad (6)$$

7.2.1.2. 应力腐蚀开裂

当同时受到在机械应力和侵蚀性离子（如氯化物）的影响时，铬含量较低的不锈钢（晶界中的铬含量降至 12%以下）容易发生应力腐蚀开裂 [2][4]。

干法贮存时，在一定的温度范围内可能会诱发不锈钢的敏化。敏化是不锈钢中的铬从晶界析出，并与自由碳反应，形成碳化铬颗粒的过程。热退火过程可以使铬重新均匀分布[2][4]。因此，敏化是一个可逆转的过程。

应力腐蚀开裂已被确定为靠近海洋的密封容器干法贮存系统面临的一个潜在问题。这是因为这中内焊接密封容器通常是由奥氏体不锈钢制成的，焊缝应力没有释放，在冷却过程中有可能会盐分进入焊缝。

7.2.1.3. 微生物

随着时间的推移，微生物菌落可能会附着在管道等地方，为了生存建立有利于其生长的局部环境。已建成的菌落对液体和大多数化学处理方法有很强的抵抗力，很难被清除。微生物可以有效地屏蔽金属表面的水处理化学品，使缓解腐蚀的化学药剂失去作用。已经证明，与光滑的管道表面相比，奥氏体不锈钢的焊接会增加其对微生物的敏感性。事实上，微生物的主要影响区域包括焊缝和相关的热影响区。微生物的影响通常被忽视，因为很难被发现，而且这种现象通常会被一般腐蚀所掩盖。微生物的主要影响是会让需定期更换的部件的更换频率比预期略高[2][4]。

为了避免微生物发生，建议定期取样，以确定是否存在任何可导致腐蚀的微生物。纠正措施包括去除诸如光、碳等会促进菌落生长的因素。

7.2.1.4. 点蚀[2]

点蚀在富氯环境中最为突出。点蚀往往在缺陷处发展，氯离子不仅会促进保护性氧化膜局部溶解，而且还会促使金属溶解，从而促进点坑的生长。点蚀的影响区域较小，主要会在点坑中形成局部化学成分。在某些情况下，这些化学成分通过在点坑上形成壳体与大量的水隔离。在这种情况下，改善水化学条件只能缓解点蚀，无法完全抑制点蚀。

这里介绍高级铝制屏蔽容器外部的密封圈经历点蚀的一个具体案例。1000 系列合金是高纯度的铝合金，在大多数环境中，由于迅速形成了一层薄而致密的保护性氧化层，因此具有很高的抗腐蚀性。然而，在某些环境中，例如含有硼酸的环境，如果存在氯化物，氯化物会破坏这种保护性氧化层，导致点蚀。这种情况下，如果与阴极性较强的金属密切接触，无疑会因点蚀后形成的电化学腐蚀而遭受更严重的腐蚀影响。

7.2.1.5. 电化学腐蚀[2]

铝合金是活泼金属。在乏燃料贮存时，在高电导率（大于 $100\ \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ）的水中，当与不锈钢甚至不同的铝合金结合时，可以观察到铝合金的电化学腐蚀现象。通常，在高纯度的水中（ $1-3\ \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ），电化学腐蚀不会降低铝合金的性能；除了在不同的金属缝隙中，这有利于发展低 pH 值和低浓度的杂质。

7.2.1.6. 缝隙腐蚀[2]

缝隙腐蚀是一种局部腐蚀现象，通常发生在紧密贴合的表面，这些表面的偏移可能会使水进入。可能导致缝隙腐蚀的机理是，氯离子被吸入缝隙，导致金属溶解，形成酸性条件，最终导致腐蚀的发生。

与电化学腐蚀一样，将水的电导率保持在 $1-3\ \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ ，可以缓解缝隙腐蚀。

7.2.2. 混凝土性能退化

与普通混凝土不同的是，由于钢筋易受腐蚀的影响，钢筋混凝土的耐久性也不太好。“保护层”是指从钢筋到混凝土外表面的最小混凝土厚度。一旦这个“保护层”区的混凝土到钢筋失去了碱性，由于水分和氧气的进入，钢筋将开始腐蚀。导致钢筋混凝土性能退化的可能原因有很多，包括物理条件（如地基移动、结构超载、意外撞击损坏等）、热循环，以及化学/环境影响（例如碳化或氯化物渗入）。因此，当务之急是定期检查混凝土结构，以便发现警告信号并确定缺陷的成因。对于大型乏燃料水池，通常需每年进行一次检查[2][4]。

7.2.2.1. 混凝土碳化

在混凝土的水化过程中，会形成氢氧化钙，这就是混凝土高碱度（pH 大于等于 12）的原因。氢氧化钙会逐渐转化为碳酸钙，碳酸钙与空气中的二氧化碳反应，使 pH 值降低到约 9。在潮湿的环境中，混凝土表面开始“腐蚀”，与此同时体积也扩大了。根据混凝土密度的不同，二氧化碳可以渗透到混凝土中深度也不同，从几毫米或几厘米不等。

7.2.3. 聚合物性能退化

聚合物性能退化会损害聚合物的机械性能，并降低其减缓快中子的能力。聚合物性能的变化通常被称为“老化”。因此，老化的聚合物失去其特定功能的可能性增加。由于辐照和其它环境因素的综合影响，主要是化学剂（酸、碱和某些盐）在干法贮存时受潮和受热，聚合物将随着时间的推移而性能退化。同样地，聚合物的性能退化也取决于聚合物是否与水接触或暴露在空气或无氧环境中。各种聚合物的性能退化遵循相同的模式，它们通过释放相对较小的化学分子（如氢气、氯化氢、水和氧化化合物）来减轻重量，释放的化学分子取决于聚合物的组成。只要聚合物与水接触，小的化学分子就会渗入到池水中，这对水处理系统也会产生影响[4]。

各种聚合物材料，如聚丙烯、聚乙烯、聚酯、环氧树脂和各种混合聚合物都被用作中子屏蔽材料[4]。例如，超高分子量聚乙烯（UHMW-PE）被植入 CASTOR®屏蔽容器的容器壁和两端，为热膨胀留有足够的空间并排除氧气。因此，只需要考虑两种可能的退化机理。这就是高能辐射对 UHMW-PE 的影响，它导致了大部分氢的释放和交联的产生。产生的放射性气体的数量完全取决于材料在贮存期间吸收的剂量。在屏蔽容器设计中考虑了慢化剂附近压力的可能增加。

作为运输和贮存屏蔽容器的屏蔽材料，聚合物能够在短时间内承受高温，如在火灾情况下能够承受 30 分钟 800°C 的高温。随着燃料燃耗增加和混合氧化物燃料的发展，考虑到屏蔽容器操作温度的增加，聚合物长期热稳定性的重要性也在增加。随着对长期热稳定性以及高中子/伽马剂量的需求增加，有必要开发新的屏蔽材料[4]。

7.3. 研究结果

本部分对材料在湿法贮存环境中的性能进行了回顾[64]，包括截至 1997 年的腐蚀数据。对于大多数材料来说，这些信息仍然非常有用。

7.3.1. 不锈钢

以 Jaslovské Bohunice 乏燃料临时贮存设施（SFIS）为对象，一项用于评估中乏燃料贮存篮和水池内衬中所用材料的腐蚀速率和性能的项目正在实施[7]。这些材料被制作成腐蚀试样，包括：

- 标准腐蚀试样；
- U 型弯管试样；
- 圆形焊接试样；
- 缝隙弯曲梁试样；
- 特殊试样，例如六角形的焊接接头。

这些材料在贮存环境中的性能主要通过标准失重测量和显微镜分析进行了监测。

对于用 ANSI 321 不锈钢制造的水池内衬，结果与预期一致（见图 48）。由于样件变化和重量处于测量极限，报告的结果存在一些差异。

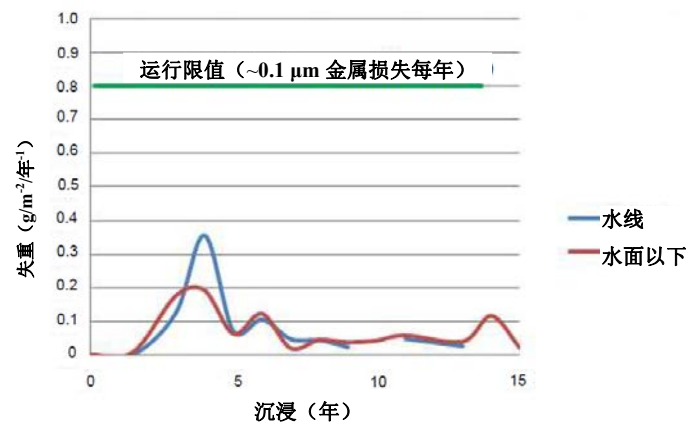


图 48. 用于水池内衬的 ANSI 321 不锈钢失重测量数据。

7.3.1.1. 燃料密封容器应力腐蚀开裂

在通风混凝土屏蔽容器贮存系统中使用的奥氏体不锈钢燃料密封容器有可能发生应力腐蚀开裂（SCC）。如果存在残余应力和氯离子等侵蚀性离子，这些燃料密封容器的焊接区可能发生 SSC。参考文献[4][7]评估了引发 SCC 的最小盐浓度、裂纹增长率，以及盐的处置和运输方法，得出以下结论。

日本对 304L 不锈钢的研究认为，在模拟实际环境条件下，引发 SCC 的最小盐浓度为 $0.8 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ （如图 49 所示）。将表面裂纹长度限制在小于等于 $100 \text{ } \mu\text{m}$ 是有效控制 SCC 的方法。

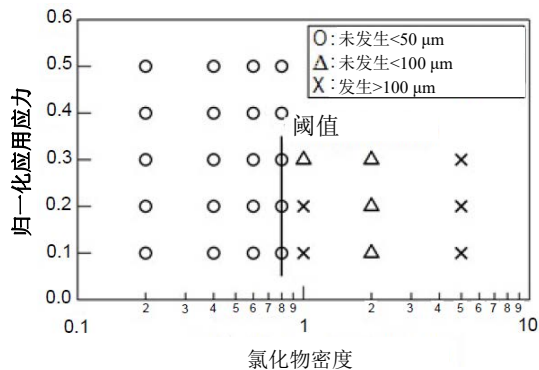


图 49. SCC 发生试验的结果 (试样 B 时间为 5000 小时, 硬度 247 Hv)
(由 CRIEPI 供图)。

美国研究表明, 在自然条件下 (最大绝对湿度为 $30 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$, 温度范围为 $35-60^\circ\text{C}$), 观察到了 304 U 型弯管试样发生 SCC; 当暴露期间的相对湿度 (RH) 高于模拟海盐潮解的测量 RH 时。相比日本的研究结果 ($0.8 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$), 美国学者在沉积了低至 $0.1 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ 海盐的试样上观察到了 SCC 发生。裂纹扩展程度随着表面盐浓度的增加而增大。由于没有低于 $0.1 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ 浓度的 SSC 的试验, 所以没有确定 SCC 发生的阈值。炉敏材料更易发生 SCC。U 型弯管试样的热影响区表现为更易发生 SCC, 其显微组织与已收到的材料相似。

在 304L 材料制成的 C 型环试样上也观察到了 SCC, 该试样在 $35-52^\circ\text{C}$ 的温度下被拉伸到 0.4% 或 1.5%, 表面沉积的盐浓度为 1 或 $10 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$ 。在 0.4% 的应变下, C 形环试样上的应力大约等于 304L 的屈服应力。

在 304 材料制成的 U 型弯管试样上没有观察到由于 NH_4NO_3 、 NH_4HSO_4 和粉煤灰沉积引起的 SCC, 这与预期相符。当将 304 材料制成的 U 型弯管试样暴露在 NH_4NO_3 和 NaCl 的混合物中 (NO_3^- 与 Cl^- 的摩尔比分别为 3.0 和 6.0、 NaCl 小于 $10 \text{ g} \cdot \text{m}^{-2}$), 观察到了 SCC 发生, 表明 NO_3^- 不能有效抑制 SCC 发生。

在日本, 通过使用由 304L 不锈钢 (304L SS) 制成的四点弯曲试样, 测量了各种条件下的裂纹增长率 (CGR)。图 50 给出了在 80°C 和 35% 相对湿度条件下的测试结果, 最初裂纹快速扩展, 随后扩展速度下降。假设初始裂纹的大小是由最初的快速裂纹扩展造成的, 剩余的密封容器壁厚可以用裂纹慢速扩展率数据进行评估。图 51 给出了计算得到的密封容器表面相对

湿度随时间变化的变化规律。根据上述计算，在 60 年的贮存期内，相对湿度超过 15%（发生 SCC 的阈值）的累计时间大约为 15 000 小时（即小于 2 年）。当 CGR 为 $1 \times 10^{-11} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 时，估计在此期间的裂纹扩展值仅为 0.5 mm。

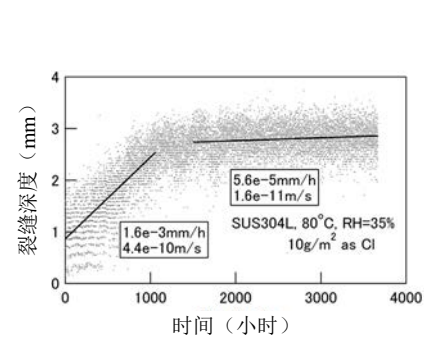


图 50. 裂纹增长测试结果
(由 CRIEPI 供图)。

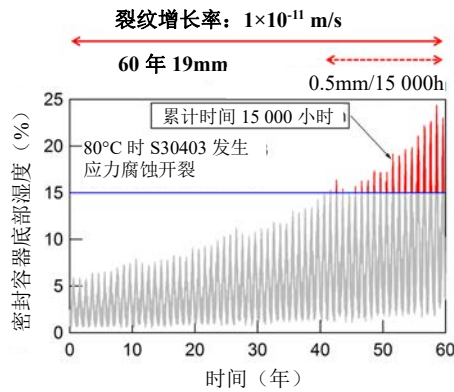


图 51. 密封容器底部相对湿度随时间的变化 (由 CRIEPI 供图)。

使用表面处理技术，如喷丸处理、激光喷丸处理和低塑性烧结，可以释放焊缝区域的应力。参考文献[7]提供了更多相关信息。

7.3.2. 硼化不锈钢

在 Jaslovské Bohunice 的乏燃料贮存篮中使用的中子吸收体材料是含有 1.1% 硼的 ANSI 304 不锈钢 (ATABOR)。这种材料已经经受了如 7.3.1 部分所述的监督计划的考验。材料的失重测量结果如图 52 所示。

然而，分析结果表明，在基体金属高铬含量区域存在一些微裂缝。这些微裂缝与腐蚀无关，是样品制备时由于 Cr-B 脆性导致的结果，研究也没有找到裂纹扩展的相关证据[7]。

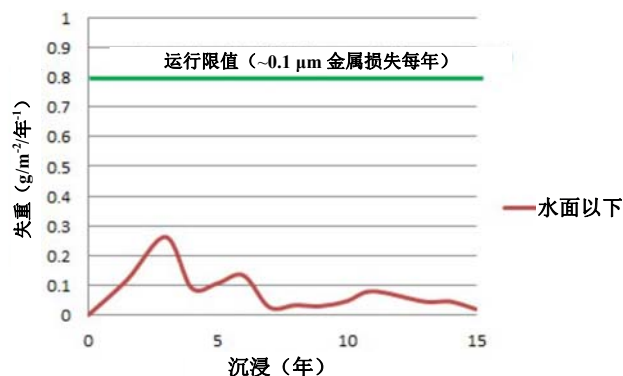


图 52. 乏燃料贮存格架用 ATABOR 失重测量数据。

7.3.3. 含硼铝合金

日本研究了硼化铝材料的机械性能[7]。研究堆辐照考验结果表明，辐照对硼化铝材料的机械性能影响可以忽略。

有关在运输和贮存篮中使用硼化铝合金的其他相关信息参见参考文献[65]。

7.3.4. 混凝土

7.3.4.1. 通风混凝土屏蔽容器

相关研究主要集中于用于 LWR 乏燃料干法贮存的通风混凝土屏蔽容器系统的钢筋混凝土结构[2][4]。日本开展了一些不同温度和湿度下不同水灰比混凝土中 CO_2 和氯气的扩散速率研究，可以确定在给定的操作条件和设计寿命下所需的最小钢筋混凝土厚度。参考文献[2][4][7]记录了上述研究成果，参考文献[66]对这些研究作了全面的介绍。

研究表明，在 $20-90^\circ\text{C}$ 的温度范围内，导致钢筋开始腐蚀所需的氯离子浓度约为 $1.2 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。氯离子扩散系数是通过在一系列工作温度下将混凝土浸泡在 10% 的氯化钠溶液中测试得到的。主要研究结论如下：

- 氯化物的扩散系数随温度升高而增加；
- 扩散系数的对数与温度的倒数线性相关；
- 水灰比较大的混凝土样品具有较大的扩散系数。

上述结果被用作确定扩散系数本构方程的基础，具体见参考文献[7][66]。

在老化管理方面，通过对取自非关键区域的小型岩心样本的分析，可以确定已部署系统中碳化物和氯化物侵入的深度。碳化和氯氯化物侵入的深度取决于现场操作条件、混凝土成分和制造系统的质量。

7.3.4.2. 混凝土屏蔽容器

对于混凝土屏蔽容器内外金属层之间的钢筋混凝土，其碱度损失对混凝土的特性没有影响。打开的 CONSTOR[®]屏蔽容器进行目视检查，没有发现壁面上有明显的腐蚀[2]。

OPG 干法贮存屏蔽容器使用的水泥等级的变化[4]

加拿大标准协会（CSA）20 型水泥被用于制造 OPG DSC 干法贮存屏蔽容器。出于对 20 型水泥的长期性能的关注，开展了相关的研究其性能：

- CSA 20E 型或 50E 型水泥性能相同，特别是用矿渣粉代替普通硅酸盐水泥 20%左右；
- CSA 50 型水泥（即高抗硫酸盐混凝土）。

对于含有矿渣的水泥配方，有人担心由于矿渣中含有硫化物，可能会导致碳钢腐蚀。后续的一项研究认为，如果有足够的残留水在水泥基体中形成水相，硫化物可以转化为 H₂S。如果只剩下水蒸气相，那么 H₂S 的生成量将极少。该研究指出了低残余水分含量的重要性，以减少钢筋和 DSC 钢构件的腐蚀风险。目前，尚未开展动力学速率研究以确认上述研究结论。

由于上述发现，一个研究 50 型水泥的项目已经启动。该计划包括实验室测试和现场试验。实验室测试的目的是开发、优化和测试使用 50 型水泥的高密度混凝土。现场试验的目的是确认该混凝土的综合性能，并解决其加工问题（如混合、配料和固化等）。

50 型水泥获得了令人满意的结果，而且，实验结果符合 DSC 的规格、长期性和耐久性的要求。根据 DSC 的规范要求，50 型水泥符合 300 kJ·kg 水泥 7 天水化作用限制。现场试验的结果表明，在硬化的混凝土中观察到一些局部蜂窝/分层现象，这是由于压实度不够造成的，该现象后来得到了解决。

上述项目得到的主要研究结论是，50 型水泥可以被推荐代替 20 型水泥。

7.3.5. 聚合物

7.3.5.1. 用于密封大型建筑的聚合物（PVC） [4]

PVC 的退化受到一些参数的影响，包括厚度、成分（其他材料的存在）、辐照、与之接触的介质（空气、水、硼酸等）。例如，在相同的总辐照剂量下，材料以低辐照剂量率受到长期照射时的降解程度比在较短的时间内受到高辐照剂量率照射时的退化程度大。

对英国 Sellafield 接收和贮存水池（TR&S）的伸缩缝中使用的 PVC 水棒材料进行加速辐照测试。结果表明，在温度为 35°C 的水中进行辐照（辐照剂量率为 $10^4 \text{ Gy} \cdot \text{h}^{-1}$ ）时，该材料在 $1 \times 10^6 \text{ Gy}$ 时经历了中度到严重程度的损坏，在 $5 \times 10^6 \text{ Gy}$ 时出现了性能退化。考虑了一些影响因素，例如低辐照剂量吸收校正、空气和水的辐照差异等影响，并采用了两个数量级的安全系数，确定了辐照剂量吸收限值约为 $2 \times 10^4 \text{ Gy}$ 。

评估认为 TR&S 中 PVC 水棒的使用寿命可达 80 年。该评估使用了过去和未来的燃料贮存模型数据，以及 FISPIN 计算中得出的伽马数据。

评估结论认为，大部分水棒不会接近 $2 \times 10^4 \text{ Gy}$ 限值，但有一个区域有可能超过这一限值。目前，已经提出了一些管理方案，以确保所有区域都不会超过该限值。

7.3.5.2. 用于中子屏蔽的聚合物

为了满足乏燃料贮存需求，法国对应用于运输贮存屏蔽容器的屏蔽树脂材料进行了研究[7]。研究结果表明，需要高性能的屏蔽材料来防止严重的中子和伽马辐射。新的材料主要是为了适应如下几方面的要求[4]：

- 更高的中子屏蔽效率；
- 耐火；
- 耐长期高温（160°C 至 180°C）。

对聚合物 Vyal 树脂进行了评估。Vyal 是通过让乙烯基酯聚合物与苯乙烯反应生成的。由此产生的聚合物是高度交联的固体。矿物填料、水合铝（阻燃剂和氢源）和硼酸锌（阻燃剂和硼源）被分散在聚合物基体中以提升 Vyal 树脂中子辐射屏蔽能力[4]。

与其他中子屏蔽材料、聚酯树脂和乙丙橡胶（EPR）相比，Vyal 树脂在相同的温度下，在相同的样品大小和测试时间内显示出较少的重量损失。在 160°C，Vyal 树脂在 10 000 小时后损失了约 2.5% 的重量，低于 EPR（约 3%）和现有聚酯树脂（大于 4%）。同样，Vyal 树脂耐火性也非常好，只损失了 7% 的重量[4]。

在使用时，中子屏蔽材料性能受辐照和热影响而变化。实验结果表明，氧化是迄今为止最主要的影响机理，并通过以下方法研究了中子屏蔽材料的氧化过程：

- 中子屏蔽材料在不同温度和 O₂ 分压下的加速老化试验；
- 通过渗透试验来估计 O₂ 在中子屏蔽膜中的扩散性和溶解性；
- 应用一个非经验模型，以研究中子屏蔽材料的长期特性。该模型模拟了重量损失和氧化曲线。

上述研究得到如下结论：

- 观察到一种有限扩散的氧化过程，如图 53 所示；
- 增加温度和 O₂ 压力会加速质量损失；
- 氢原子损失与整体重量损失之间线性相关；
- 在所有试验条件下，模拟数据与实验结果一致。这使得我们可以预测未来几十年 Vyal 氢原子的损失，如图 54 所示。

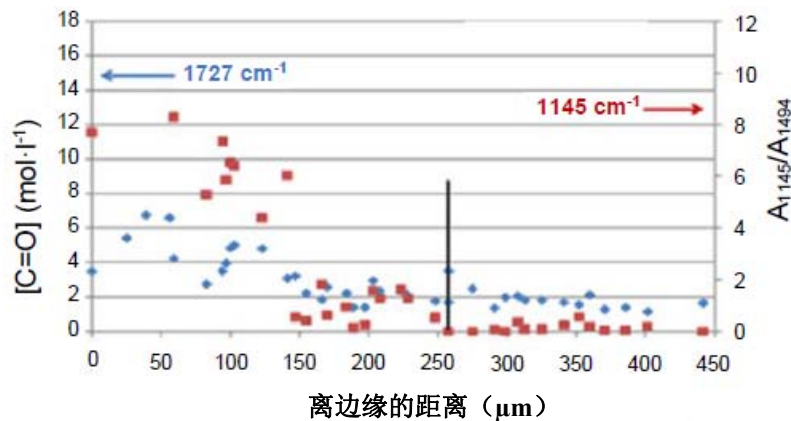


图 53. 暴露在 160°C、2 bar 的 O₂ 分压下 Vyal B 样品表层（大约 250 微米）（由 AREVA TN 供图[7]）。

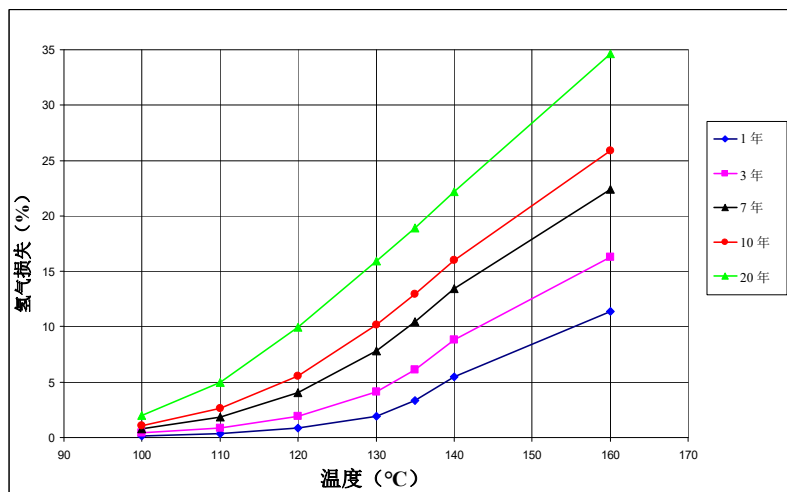


图 54. 氢损失与温度、时间的关系（由 AREVA TN 供图[4][7]）。

7.3.6. 金属密封件

金属密封圈通常用于密封干法贮存屏蔽容器。最广泛使用的密封圈是带弹簧的 O 形圈。用于乏燃料干法贮存的密封 O 形圈包括一个可以产生内部应力的内部螺旋弹簧、一个使弹簧压紧力均匀分布的内部不锈钢护套和一个铝制护套。这种类型的金属密封圈的特点是具有良好的弹性，确保弹性能够得到有效恢复是贮存容器能适应由于内部和外部负载的变化（甚至在意外的运输条件下）而导致的贮存容器盖子轻微变形的先决条件。图 55 给出了一个典型的密封圈（HELICOFLEX®）压缩和恢复周期。

累积运行经验（CASTOR®型屏蔽容器）表明，HELICOFLEX®密封圈的密封性能没有受到任何老化效应的影响。

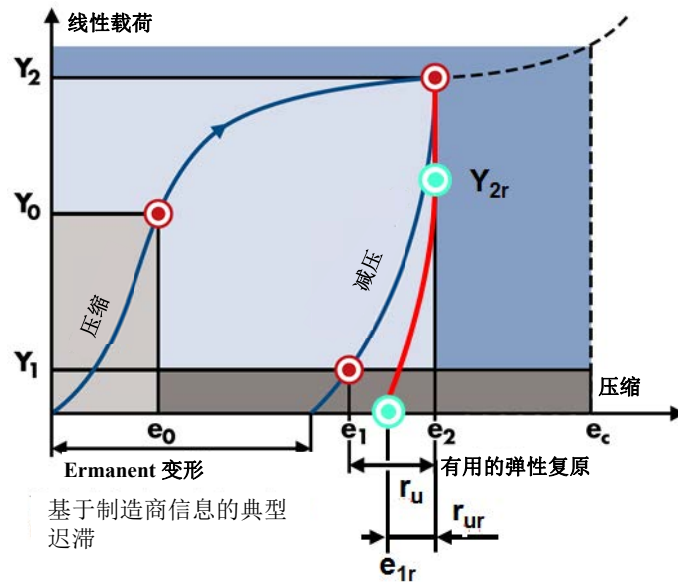


图 55. 氢损失与温度、时间的关系（由 AREVA TN 供图[7]）。

7.3.6.1. 性能退化研究

长期以来，带弹簧的密封圈的主要性能退化机理是机械载荷作用下的热蠕变。蠕变导致了密封圈和密封面之间线性载荷和弹性恢复过程发生变化。参考图 55，蠕变的影响从最佳压缩点开始，随着时间的推移向更低的负载值（ Y_{2r} ）漂移。密封圈的额外永久变形会随着时间的推移减少弹性恢复。这是运输时必须考虑的一个重要影响因素，因此在屏蔽容器盖子的设计中必须考虑低弹性恢复（ r_{ur} ）的影响。基于预定的贮存时间，间隙必须限制在残余的弹性恢复能力范围内。负载-压缩行为和泄漏率之间的相关性对于任何延长贮存期或长期贮存后的运输的屏蔽容器行为预测都很重要。

因此，需要开展研究以探索带弹簧密封圈的负载-压缩行为随时间和温度的变化规律，详见 SPAR II 期和 III 期项目[4][7]。

以下总结了这些研究得到的主要结论：

- 利用 19 年来收集的密封圈性能数据（温度保持在在 160°C ），建立了用于铝和银制密封圈密封性能 Larson Miller 参数（LMP）。铝的 LMP 为 7942，银的 LMP 为 7781，发生泄漏的阈值为 8050。

基于短期结果预测长期贮存期间（60 年）密封圈的密封性能，结果显示，在初始密封温度小于 134°C 和小于 125°C 时，铝和银密封圈仍然能够保持良好的密封性；

- 其它长达 4 年的密封测试试验结果（温度保持在在 150°C）表明：
 - 负载值（ Y_{2r} ）和弹性恢复能力都随着时间而减少。随着温度的增加，下降速率加快。可以得出的结论是，屏蔽容器装载时的初始温度对密封圈的使用寿命影响最大；
 - 在对数时间尺度上，该行为似乎是一个线性函数；
 - 对 40 年的贮存期进行推断，垫片即使在 150°C 的条件下也有能力保持良好的密封性；
- 在高至 250°C 和 10 000 小时的短期测试中¹⁰，确认密封圈的泄漏率 $10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 。

另外，其他研究已经调查了内外壳之间有含硼池水的密封圈的长期腐蚀行为，以及其在外壳上可能产生的缺陷。在这两种情况下，泄漏密封性都得到了确认。对金属密封的热松弛试验也已经进行了，参考文献[7]给出了更多细节。

¹⁰ 泄漏率 $< 10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 被认为是无泄漏的。

8. 乏燃料贮存监测

本章中的信息来自参考文献[2][4]。另外，还适当地引用了其他参考文献的内容。

SPAR I 期和 II 期[2][4]部分项目致力于整理关于监测技术和工艺的信息，包括概述监测的目的，并对日常使用的监测技术进行了简要描述。BEFAST III 期[6]报告了项目成员国在监测和监督方面的其他经验和做法。

BEFAST 和 SPAR 项目报告了参加国的监测活动，这些技术的主要目的是持续确认乏燃料完整性，或报告在不采取纠正措施的情况下将影响乏燃料长期完整性的发展状况的早期迹象。

8.1. 性能验证方法

性能验证所采用的技术包括从基本的目视检查（通过生物屏蔽湿或干洞）到复杂的辐射检测系统（如燃耗检测器）。

表 19 和表 20 总结了 CRP 参加国常用的技术。这些技术在参考文献[2]中进行了详细描述。

大多数确认贮存期间乏燃料完整性的技术都是后验性的，也就是说，当检测到放射性核素时（例如池水中的铯或覆盖气体中的氩），乏燃料已经破损。核电厂运营商必须确定故障所在，进行某种形式的故障分析，并就如何管理故障燃料做出决定。

以下部分报告了已经部署或测试的用于确认乏燃料和贮存系统结构完整性的新技术应用情况。

表 19. 监测技术和应用概要

技术/功能	系统	屏蔽	重要度	可操作性	研发数据 确认	其它安全 功能
压力监测	√				√	
气体取样	√					
温度				√	√	√
辐射探测系统		√				√
液体取样	√			√		√
目视检查	√		√	√		√
气体取样					√	
池内检查系统					√	√
能耗			√		√	√
超声检测	√			√		

表 20. 各个 CRP 参加国目前和未来的监测技术和应用概要

技术/功能	阿根廷		加拿大		法国		德国		匈牙利		日本		韩国		俄罗斯		美联储		斯洛伐克		西班牙		瑞典		英国		美国	
	W	D	W	D	W	D	W	D	W	D	W	D	W	D	W	D	D		W	D	W	D	W	D	W	D	W	D
压力监测	-	-	-	F	-	-	-	C	-	C	-	C	-	C	-	-	F	-	F	-	C	-	-	-	-	-	-	C
裂变气体取样	-	C	-	F	-	-	C	-	C	C	-	C	-	-	-	C	F	-	F	C	-	C	-	-	-	C	-	-
温度	C	C	C	C	C	-	C	-	C	C	C	C	C	C	C	-	-	-	-	C	C	C	-	C	C	C	-	-
辐射监测系统	C	C	C	C	C	-	C	C	C	C	C	C	C	C	C	C	F	-	F	C	C	C	-	C	C	C	C	C
液体取样	C	-	C	-	C	-	C	-	C	-	C	-	C	-	C	-	-	-	C	F	-	-	-	C	-	C	-	-
目视检查	C	C	C	-	C	-	C	-	C	-	C	-	C	C	C	C	F	-	F	C	C	C	-	C	C	C	C	C
气体取样	-	-	-	F	-	-	-	-	-	C	-	C	-	-	-	-	F	-	-	-	-	-	-	C	-	-	-	C
池内检查系统	-	-	C	-	C	-	C	-	C	-	C	C	C	-	-	-	-	-	-	C	-	-	C	-	C	-	-	-
燃耗监测	-	-	-	-	P	F#	-	-	-	-	P	F	F	F	-	-	-	F	-	-	F	-	P	-	-	-	-	F
超声检测	-	-	-	-	C	-	-	-	-	-	C	-	C	-	-	-	-	-	-	-	C	-	-	-	-	-	-	-
腐蚀探针	-	F	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	F	-	-	-	-

W: 湿法贮存系统; D: 干法贮存系统; C: 目前; F: 未来; P: 在后处理之前或支持后处理

#: 转运容器

8.1.1. 湿法贮存乏燃料完整性验证技术

湿法贮存乏燃料的完整性验证通过对含裂变产物 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 的池水取样进行确认。 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs 的比例可以说明是否发生了燃料破损，或者说明已经存在多个燃料破损的情况下是否发生了新的燃料破损。这种方法的问题是，一旦检测到 Cs，通常为时已晚。对于一些燃料或部件，例如不锈钢，如果贮存在脱盐水中，可以通过对镍元素和活化产物 ^{54}Mn 、 ^{55}Fe 、 ^{60}Co 和 ^{63}Ni 采样来监测燃料破损的早期信息。当存在 LWR 燃料时，不断变化的贮存情况的检测可能会受到水垢的干扰。

考虑到上述情况，强调趋势监测而不仅是触发和行动层面的检测是非常必要的。例如，在达到触发和行动层面之前，乏燃料水池中可能已经有多个燃料棒破损，只有对采样结果进行趋势分析才能确定恶化的情况。

使用与燃料棒包壳相同材料制成的在线腐蚀探针或设计用于模拟已知燃料腐蚀机制的探针，可以提供一种方法来弥补检测故障和启动条件之间的差距。在 SPAR 项目实施期间研究的技术包括电化学噪声 (EN)、电化学阻抗光谱 (EIS)、零电阻电流表 (ZRA)、现场特征法 (FSM) 和辐射电阻法等。

在线腐蚀探头的使用对于在异常运行条件下容易发生故障的乏燃料特别有意义。尽管锆包壳燃料在大多数运行条件下不容易受到腐蚀，但 Zry-4 探针已被用于研究水池水化学特性改变引起的对 LWR 燃料的影响。这些技术的进一步发展和成熟，可以为重新申请许可或安全审查活动提供支持，也可作为对长期贮存的乏燃料进行检查的一种替代方法。

使用腐蚀探针的例子包括：

- 应用 EN 和 EIS 技术确认 MAGNOX 燃料的钝化（见第 10.2.4 部分[4]）；
- 采用基于 ZRA 和 FSM 技术的晶间腐蚀探针来研究 AGR 燃料腐蚀的起始情况（见第 4.1.3 部分[4]）。

8.1.2. 干法贮存乏燃料完整性验证技术

除了贮存库技术可以使用便携式气体分析仪对贮存容器的覆盖气体进行现场采样以检测是否存在气体裂变产物，其他干法贮存技术中乏燃料完

完整性都需要通过打开贮存设施检查确认。其它贮存设施内乏燃料的完整性是通过外部温度和容器的监测（密封圈压力监测（螺栓屏蔽容器系统）和/或屏蔽容器或密封容器外部放射性/视觉检查）、系统关闭期间的质量保证和支持性研发来推断的，这使得人们相信贮存期间的故障是可以避免的。

第 6.2 部分中讨论了关于打开屏蔽容器的具体方法，下面报告封闭系统中燃料失效监测相关技术的研发情况。

为了进一步向主要利益相关者确保乏燃料在贮存期间的完整性，提出了一些非侵入式技术。

伽马监测

监测干法贮存中乏燃料状态的最佳的方法之一是直接测量 514 keV ^{85}Kr γ 射线。这种技术对于监测干法贮存初期乏燃料状态特别有效。如果贮存时间长达 50 年以上，考虑到 ^{85}Kr 的半衰期是 10 年，该技术的优势就会降低。

由 CRIEPI 研究的伽马监测技术需要对贮存容器的顶盖设计进行修改。研究表明，如果从一根或多根破损的燃料棒中释放出来 ^{85}Kr 大于 $7 \times 10^{10} \text{ Bq}$ ，它将被伽马探测器接收到（详见第 10.2.2 部分[6]）。

声学监测

监测通过覆盖气体传播的声速是检测乏密封系统内部环境状态的另一种有效方法。这种系统是为 TranStorTM 贮存系统[67]提出的，用于检测氦气中的氧气（空气进入的指标）。但是，TranStorTM 系统没有发展形成一个可运行的系统。

8.1.3. 贮存系统完整性验证技术

8.1.3.1. 湿法贮存

乏燃料水池内衬完整性监测

该技术需要监听材料发生塑性变形时释放的自然能量波。对于乏燃料水池内衬而言，塑性变形是由负载、压力或温度变化导致的。这是一种定性的技术，用于确定结构内部的损坏，并用于监测缺陷的发展。当裂纹尖端的应力水平（和相应的能量水平释放）比周围的金属高数倍时，就可以检测到缺陷。

在 Jaslovské Bohunice（斯洛伐克），每个水池中都安装了 6 个传感器，使用便携式数据收集系统定期进行测量，并与存档的数据进行比较，以确定是否发生裂缝或缺陷。迄今为止，尚未发现任何重大缺陷。

8.1.3.2. 干法贮存

加拿大干法贮存屏蔽容器温度监测

为了确认干法贮存屏蔽容器不会遭受严重的冻融破坏，制定了一个监测贮存设施和干法贮存屏蔽容器温度的计划。监测在乏燃料贮存设施进行，第一阶段 Pickering 站的监测从 2000 年 12 月下旬到 2001 年 3 月底（当时正值气温恢复到冰点以上），监测的目的是记录 DSC 可能出现的最低温度。为了实现这一目标，总共有 31 个热电偶被布置在不同的位置，包括在贮存设施的外面测量环境空气温度的热电偶，在贮存设施的内部（包括混凝土地板表面）的热电偶，暴露在最冷温度下的 DSC 的外壳表面的热电偶，以及位于 DSC 底部测量它们与混凝土地板接触的温度的热电偶。

观测得到的温度表明，最冷日贮存设施外的温度是-17.5°C，并且在监测期间有 31 次冻融循环。在整个监测周期内，DSC 下的混凝土底板温度都保持在 0°C 以上，DSC 的外壳温度也比 0°C 高出约 2°C。贮存设施的最低空气温度达到-4.5°C，混凝土底板温度为-0.5°C。在贮存设施内部，两个 DSC 之间冻融循环了 7 次，而设施外表面冻融循环了 4 次。

监测结果表明，该贮存设施为防止冻融发生提供了重要保护。数据显示，尽管设施内的环境温度有 7 次低于冰点，但 DSC 始终保持在零度以上。然而，设施内的低温记录表明，随着燃料衰变热的衰减，DSC 在其 50 年的设计寿命中可能会经历一些冻融循环。鉴于混凝土夹带了 6% 的空气，混凝土的一些冻融循环被认为不会导致有害的影响。

焊接的贮存密封容器的表面分析

为了检测环境条件是否存在诱发无应力消除焊接密封容器上应力腐蚀开裂的可能性，即氯化物是否存在，CRIEPI 研究了激光诱导击穿光谱技术。这种技术是非接触式的，因此在不取样的情况下就可以进行现场分析。这种技术能够分析高温下的密封容器，并减少操作员的摄入剂量。

使用经过不同量氯化物处理的不锈钢样品，该技术提供的氯的定量分析结果的可靠性已经得到证实。研究表明，在 0.05 至 $0.4 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ （最高为 $1.0 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ ）的范围内，氯气排放强度与氧气排放强度成正比。参考文献[7]第 8.2.4.6 部分提供了关于这项研究的详细信息。

包容丧失 — 焊接燃料密封容器

在混凝土屏蔽容器贮存系统中，乏燃料被装入不锈钢密封容器中，充满氦气后进行焊接密封。氦气的主要作用是将燃料贮存在惰性气体环境中，也能促进乏燃料散热。如果氦气从密封容器中泄漏，则会影响衰变热从燃料到密封容器表面的热对流（即理论上密封容器表面的温度会发生变化）。

CRIEPI 已经研究了氦气损失对密封容器表面温度的影响。虽然很难判断表面温度的变化是否是由氦气泄漏引起的，但研究确实表明，对于一个发生故障的密封容器，60 小时后密封容器底部和顶部的温度差约为 8°C 。参考文献[7]第 8.2.4.6 部分提供了关于这项研究的详细信息。

9. 破损燃料完整性

乏燃料完整性这一主题已在 SPAR-II 期项目中详述（见第 6 部分）[4]。本部分对 BEFAST 和 SPAR 报告的概要仅限于损伤的类型、在反应堆检测乏燃料失效的技术以及贮存损伤或失效燃料的运行经验。包装和运输损伤燃料的技术包含在 SPAR-II 项目中，不在此赘述。

9.1. 燃料完整性定义及准则[2]

各个国家用于描述燃料完整性的术语，特别是对“损伤”或“失效”燃料的定义有所不同，详见 SPAR-I 期和 II 期[2][4]。本报告“失效”燃料是指出现以下情况的燃料组件：

1. 包壳屏障已破损；
2. 发生了影响乏核燃料操作的结构变形；
3. 乏核燃料中产生了机械缺陷。

应当指出，燃料组件可以有不被归类为“失效”的轻微的机械损伤或结构改变。在运行期间发现的包壳损伤，也有可能是在出堆贮存期间通过“自愈合”或通过腐蚀产物在损伤区域的生长/沉积而闭合。

9.2. 破损燃料案例[4]

9.2.1. 破损燃料棒

图 56 和图 57 展示了 PWR 和 BWR 中出现的一次和二次破损的例子。许多一次破损是由小金属异物引起的。由于燃料棒的振动，包壳会发生局部磨损。定位格架夹持力低，导致燃料棒与格架搅混翼或弹簧相互作用，也会出现类似的情况。二次破损通常可以通过在燃料棒的典型轴向位置出现氢氧化物太阳纹来识别。偶尔也会观察到严重的二次恶化，如包壳上的长裂缝，见图 57[68]。

9.2.2. 破损结构

结构部件也可能呈现出损伤。乏燃料池中的检查观察到了各种各样的现象，如端板上的压痕和磨痕，定位格架上的磨痕甚至缺边掉角，以及损坏的导向管或轻微扭曲的燃料组件。图 58 左边展示了掉了一个角的格架，右边展示了损坏一条边的格架。这类损伤可能在操作吊装燃料组件期间发生，通常不影响燃料棒的完整性，但可能对在反应堆水池或在贮存中操作吊装燃料组件的能力产生影响。

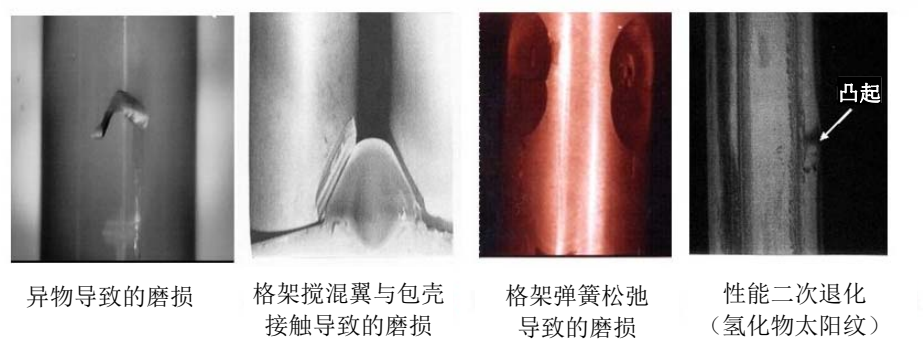


图 56. 磨损和二次恶化导致的燃料棒破损照片
(由 Framatome ANP GmbH 供图[4])。

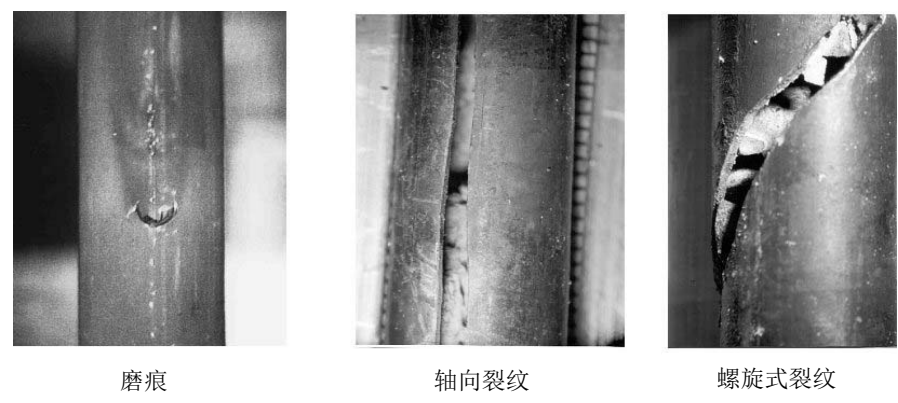


图 57. 燃料棒破损 (由 Framatome ANP GmbH 供图[4])。

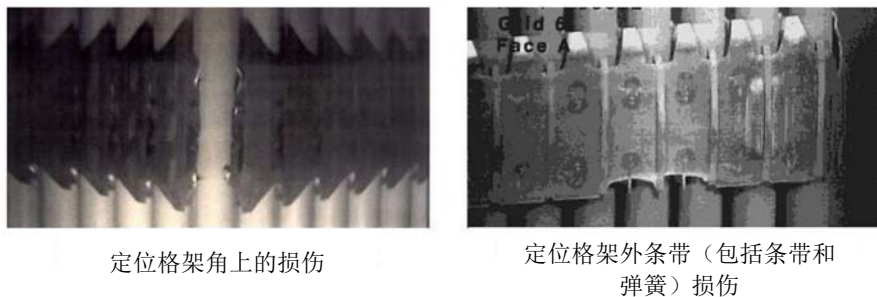


图 58. 定位格架破损照片（由 Framatome ANP GmbH 供图[4]）。

9.2.3. 破损燃料修复

修复燃料组件的主要目的是使其能回堆继续使用。修复的主要技术是更换损伤的燃料棒，修复格架和更换整个骨架。损伤的燃料棒可以用新燃料棒或用不锈钢或锆合金制成的假棒代替。还有多种技术可用于修复燃料组件的结构部件，以便继续回堆使用。图 59 是修复格架边角的照片，重新校准格架栅元中的弹簧，调整格架翼片，更换端板和压紧弹簧等。

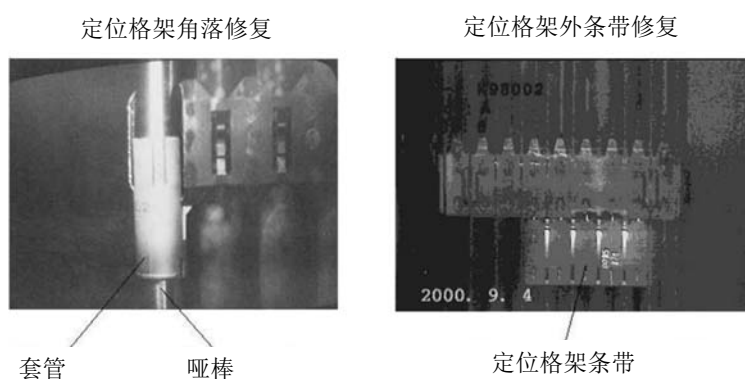


图 59. 定位格架修复照片（由 Framatome ANP GmbH 供图[4]）。

9.3. 乏燃料完整性检测[4]

监测破损燃料的典型技术是在线监测、啜吸和浸出试验以及对燃料组件的外观、超声、涡流等详细检查。

反应堆至少有一个在线监测系统来探测堆内燃料失效，并以此来控制一回路的沾污和随后运维操作中的人员剂量。LWR 中，通常通过监测与反应堆冷却剂或排气中特定放射性裂变产物相关的伽马比活度来检测燃料失效。典型的失效指示是 Xe、Kr 或 I 同位素活度的增加。为了确定失效的特征，应当区分来自铀沾污或缺陷棒的裂变产物。在 CANDU 堆中，缓发中子（DN）系统测量 ^{137}I 和 ^{87}Br 的活度（它们释放中子，也是质子和 γ 射线的发射体）。DN 信号的增加表明铀释放到冷却剂中[69]。

除了堆内监测系统外，大多数反应堆也装备了与卸料或水池操作系统相连的吸取系统，用于检查包壳/燃料组件的完整性。吸取法检测燃料失效是基于检测泄漏燃料棒中释放的气态裂变产物的原理。样品可以从燃料组件的顶部采集，或将燃料组件放置于密闭容器中采集。在吸取过程中裂变产物释放的驱动力来自于冷却水减少导致燃料棒的加热，或是燃料组件被提升至浅水处导致的外压降低。

参考文献[4]第 6.3.1 部分提供了关于吸取系统和燃料失效检测技术的进一步信息。

9.4. 破损燃料贮存实践

9.4.1. 湿法贮存

对于湿法贮存的燃料，一般的经验是缺陷不会在长期贮存期间恶化或扩展，但浸水或填满的燃料除外[2][4]。

许多国家都有在湿法贮存后处理 LWR 燃料失效的锆合金包壳经验。

德国有一个为期 18 年的示范计划，在湿法贮存期间对有初始缺陷和贯穿包壳缺陷的锆合金包壳燃料棒进行定期检查。这些缺陷包括裂缝、氢化物失效和磨损[6]。未见不可预期的缺陷的影响或变化，这提供了强有力的证据表明在有足够的水化学清洁度下，该类型燃料在湿法贮存下是安全可靠的[2][70][71]。

韩国对预制损伤的压水堆燃料棒的贮存进行了长期研究。其中，第一个系列有 10 根燃料棒，包括 7 根有预制贯穿包壳缺陷的燃料棒，在贮存第 1 年、2.5 年和 5 年后进行检查[6]。即使在 5 年后也没有发现尺寸变化的迹象。但在缺陷周围发现了一些沉积物。2.5 年后观察到一种白色物质（被认

为是氢氧化铯），5年后观察到一种不明的黄色物质。超声检查用于快速确定燃料棒内进水的距离。评估了缺陷棒的铯释放率，发现在最初的30天内迅速增加，在90天内以较慢的速度增加，然后几乎保持不变。记录了 ^{60}Co 的溶解情况，发现 $0.0093\text{ Bq}\cdot\text{sec}^{-1}\cdot\text{rod}^{-1}$ 的测量值与 $0.1\text{ Bq}\cdot\text{sec}^{-1}\cdot\text{rod}^{-1}$ 的报告值一致。在第二个系列中，用PIE技术对贮存了12年的两根燃料棒进行了检查和检验。同样，没有迹象表明在缺陷位置有任何尺寸变化或涡流信号变化。在这些棒的检查中未见之前其他带缺陷燃料棒上发现的黄色物质[2]。

在瑞典，对有缺陷的燃料棒进行了研究，以确定在包壳被贯穿后反应堆内运行中包壳和燃料芯块的化学成分和结构完整性[72]与同类型的完整燃料棒相比，可明显观察到30%的大量铯损失，特别是在包壳贯穿缺陷间。事实证明，有缺陷的棒在去离子水中的Cs、U和Cm的浸出率较高，而Sr、Pu和Am的结果则更为复杂。有缺陷的棒也经历了结构的变化，晶粒增长和组织重定向，这可能是由于氧含量增加。燃料棒上部分位置的包壳也发生了氢化。

对英国的长期冷却（长达23年）的LWR失效燃料进行了外观检查，无法确定长期的水池贮存是否会导致失效的扩展，但不认为存在影响燃料操作的结构缺陷。对一个贮存在多个燃料元件容器（MEB）中的已知腐蚀区域的组件进行了检查，评估认为九年以来没有恶化。

在美国，有堆内运行导致缺陷的锆合金包壳压水堆燃料组件在贮存8年后进行了检查。在缺陷周围没有明显的包壳劣化，也没有明显的燃料溶解损失[73]。

在湿法贮存21年和27年后，对预制缺陷的CANDU燃料进行了检查。确定包壳表面没有发生可测量的氧化，也没有观察到燃料状况的变化[6]。对湿法贮存21年的燃料预制缺陷附近区域内的二氧化铀的检查表明，燃料碎片的表面完全水化并被明显氧化[2][6]。然而，氧化仅限于表面非常薄的一层（纳米级）[2]，并且没有证据表明氧化导致燃料元件直径增加[6]。证据表明，有缺陷的燃料棒束的湿法贮存至少可以持续50年而不会出现明显的劣化[6]。

在匈牙利和俄罗斯，有缺陷的WWER燃料在单独的容器中湿法贮存，两者都没有发生意外事件，也没有发现进一步的恶化[2][4]。

废弃的 MAGNOX 燃料在湿法贮存期间可能会发生点坑腐蚀。这些缺陷导致需要从贮存水中去除裂变产物和锕系元素。但除此之外，只要燃料保持湿润，就不会造成操作问题。为了尽量减少腐蚀，MAGNOX 燃料被贮存于高纯度的碱性水中[4]。

在英国贮存有缺陷的 AGR 燃料显示出对湿法贮存操作的影响很小，因为没有遇到操作问题，而且与失效的 MAGNOX 燃料相比，裂变产物释放量很低[6]。有缺陷的燃料的并不影响在燃料燃料棒拆解的稳固性。

CEA 对失效的 MOX 燃料的贮存进行了研究[74]。在静态条件下，将经过辐照的 MOX 燃料样品在有外部伽马辐射和无外部伽马辐射的纯水中浸泡 14 天。结果发现，对于没有外部伽马辐射的样品，水中的铀和钚的浓度随着时间的推移而稳步增加，但没有达到稳定状态。另一方面，在有伽马辐射的情况下浸出的样品很快就达到了稳态条件。第二组实验使用拉曼光谱法来表征燃料表面的演变。在有伽马辐射的情况下，被表征的燃料样品在纯氧水中被浸泡了 3 个月。结果只观察到二氧化铀基体的改变。该研究的总体结论是，在 MOX 燃料包壳破损的情况下，其行为不会差于标准二氧化铀乏燃料所观察到的情况。

9.4.2. 干法贮存

20 世纪 80 年代中期，在 EMAD 设施进行压水堆燃料组件包壳完整性试验的，在 275°C 的空气中贮存 2 个月后，发现有一根失效的燃料棒[75]。直至试验终止，该组件在空气中共存放了 2 年且没有证据表明有任何进一步的燃料性能退化。燃料棒失效的原因还没有确定。有证据表明，如果暴露在足够高温的空气中，堆内运行所致的或预制的缺陷会使燃料氧化并扩展为缺陷[76][77]。

20 世纪 80 年代末，在潮湿空气中贮存了乏燃料碎片和有缺陷的乏燃料段，以获得相对于乏燃料干法贮存的氧化数据[2][4]。观察到由于二氧化铀的氧化导致的较大增重和包壳开裂，但没有观察到与燃烧或覆盖气体湿度的相关性。一个例子是，在 150°C 的空气中贮存了 23 000 小时后，一个预制缺陷的锆包壳燃料棒因开裂而失效[78]。

在 Battelle-Columbus 实验室, 通过将 BWR 锆合金包壳燃料棒在 325℃ 下贮存 2100 小时, 评估了覆盖气体对有堆内运行缺陷的锆合金燃料棒干法贮存的影响。一根燃料棒贮存在氩气中, 另一根在空气中。暴露在惰性气体中的棒未显示出包壳缺陷变化。暴露在空气中的棒发生了明显的燃料氧化、燃料膨胀和包壳变形[79]。

20 世纪 70 年代末, 在一项长期的干法贮存试验项目中, 将有缺陷的 CANDU 燃料棒束装入混凝土贮存容器中。它们贮存在温度高达 150℃ 的干燥空气中, 尽管大量的燃料已被氧化, 燃料直径没有明显增加, 且包壳结构保持完整。其他预制缺陷的 CANDU 燃料棒束在湿度饱和的有限空气中贮存了 8 年, 又在湿度饱和的无限空气中贮存了 2 年 (都是在 150℃), 观察到端塞开裂延伸到包壳。这些开裂被认为是由于在反应堆内运行期间发生的端塞严重氢化和端塞附近的包壳正应变而导致的 DHC, 并叠加了燃料棒束在干法贮存前的损伤的影响。

对在英国 Wylfa 核电厂因进水而损伤的干法贮存 MAGNOX 燃料进行了详细检查, 其状态稳定。

10. 结 论

10.1 湿法贮存和干法贮存乏燃料性能

对于采用锆或不锈钢包壳的 LWR 乏燃料，已经积累了超过 50 年的湿法贮存和超过 30 年的干法贮存经验。贮存期间乏燃料性能稳定，没有发现失效现象。

对于采用不锈钢包壳 AGR 乏燃料，有超过 30 年的湿法贮存经验。只要有缓解腐蚀剂存在，AGR 乏燃料在贮存期间的性能很稳定。

对于 MAGNOX 乏燃料，已经在处理和贮存方面积累了约 57 年的经验（包括约 43 年的干法贮存经验）。目前的发展趋势是，只在乏燃料水池中贮存相对时间较短，但只要保持乏燃料水池中水化学条件良好，MAGNOX 乏燃料也可以实现较长时间的临时贮存。目前还没有关于 MAGNOX 乏燃料从干法贮存中取回后性能退化的报告¹¹。

10.2. 湿法贮存和干法贮存乏燃料性能退化机理

可能影响湿法贮存锆合金包壳完整性的机理包括[4]：

- 均匀（水）腐蚀；
- 点坑腐蚀、电化学腐蚀和微生物引起的腐蚀（MIC）；
- 氢化。

在湿法贮存条件下，上述的现象并未在 BEFAST 和 SPAR 项目参与者（来自 21 个国家的 30 个组织和欧洲委员会）开展的研究中被明显提及。因此可以得出这样的结论：只要保持乏燃料水池中水质良好，到目前为止还没有证据或理论机制可以限制湿法贮存的方式贮存锆合金燃料的时间。

在干法贮存、后续处理和运输操作中，可能影响锆合金包壳完整性的机理包括：

¹¹ 除了在 Wylfa 核电厂的一个空气冷却的贮存设施中受到进水影响的少量燃料。

- 空气氧化；
- 热蠕变；
- 应力腐蚀开裂；
- 氢致延迟开裂；
- 氢化物重定向；
- 氢迁移和重分布。

在正常的干法贮存条件下，目前受到 CRP 参与者关注的主要机理是热蠕变（尽管美国认为热蠕变不是问题），氢致延迟开裂（在 SPAR-III 期项目作为 CANDU 燃料的一个问题已被调查，可能已解决），和氢对锆合金包壳行为的影响。后者正处于调查阶段，在现有的操作/处理条件下可能是个问题。

对于以不锈钢和镁合金作为包壳的燃料，情况略有不同。在这两种情况下，包壳都不会受到氢化的影响，其他机理反而是主要影响因素。对于经过 350—520°C 反应堆运行温度环境考验的不锈钢包壳材料，在贮存期间（包括湿法和干法）很容易受到晶间侵蚀。缓解措施是根据水池贮存情况调整贮存化学成分，或干法贮存时完全排除水分。

MAGNOX 燃料包壳是专门为抗氧化而设计的，因此在干法贮存条件下其性能是非常可靠的。燃料回收作业过程中的经验反馈也能够证明上述结论，目前还没有发现 MAGNOX 燃料发生性能退化。然而，MAGNOX 燃料包壳并不是为湿法贮存而设计的，它容易与水发生反应。改变乏燃料水池中的水化学成分可以将这一过程减慢到可接受的水平。英国政府的政策是对 MAGNOX 乏燃料进行后处理。

迄今为止的贮存经验表明，基于良好的贮存环境，临时贮存对运输没有任何影响。

10.3. 湿法贮存和干法贮存设施

在乏燃料贮存过程中使用了许多材料，例如金属、混凝土和聚合物。在 BEFAST 和 SPAR 项目中对这些材料的长期性能进行了研究，结果在本出版物中得到了总结。

到目前为止，已经确定需要进一步考虑的是老化管理和与干法贮存系统的应力腐蚀开裂相关问题。

有一个领域有很高的研究水平，那就是金属密封圈的长期行为。从现场部署的金属密封圈和内部长期测试中积累的经验已经证明了它们具有良好的耐久性。根据这些经验，推断出 40—60 年贮存周期内其耐久性不是问题。为了改进这一长期预测，目前正在进一步调查来扩大数据集。

10.4. 乏燃料贮存监测（湿法和干法）

对湿法贮存期间乏燃料完整性监测是通过对乏燃料水池中的池水取样进行的。水样的趋势对于建立恶化状况的早期指标是很重要的。

对干法贮存期间乏燃料完整性大多是通过外部温度和贮存容器监测来推断得到的（对于螺栓连接的系统，通常是对贮存容器盖子进行永久监测）。近年来关于如何解决这一问题的研究已经获得了一些进展。

10.5. 破损燃料完整性

长期湿法贮存经验反馈表明，燃料包壳的缺陷不会随着时间推移进一步恶化或扩展[2][4]。水渍或填充的燃料以及 MAGNOX 燃料是例外。如果缺陷大于针孔，那么从燃料包壳的缺陷中会出现释放率很低的裂变产物，并且其释放率会随着 ^{137}Cs 的半衰期而减少。

将有缺陷的燃料以干法贮存的方式贮存在高温惰性气体环境中，缺陷未恶化[2]。同样，在温度最高达 150°C （即低于 UO_2 转换为 U_3O_8 的温度）的干燥空气中贮存带有贯穿缺陷的燃料包壳，也没有出现缺陷扩展或进一步恶化的现象。

参 考 文 献

- [1] 国际原子能机构《水堆乏燃料在水池中的贮存 — 世界经验调查》，《技术报告丛书》第 218 号，国际原子能机构，维也纳（1982 年）。
- [2] 国际原子能机构《乏燃料性能评估和研究》，国际原子能机构《技术文件》第 1343 号，国际原子能机构，维也纳（2003 年）。
- [3] 国际原子能机构《乏燃料组件延长贮存期间的行为（BEFAST-I）》，国际原子能机构《技术文件》第 414 号，国际原子能机构，维也纳（1987 年）。
- [4] 国际原子能机构《乏燃料性能评估和研究：协调研究项目（SPAR-II）的最后报告》，国际原子能机构《技术文件》第 1680 号，国际原子能机构，维也纳（2012 年）。
- [5] 国际原子能机构《乏燃料延长贮存（BEFAST-II）》，国际原子能机构《技术文件》第 673 号，国际原子能机构，维也纳（1992 年）。
- [6] 国际原子能机构《乏燃料延长贮存的进一步分析（BEFAST-III）》，国际原子能机构《技术文件》第 944 号，国际原子能机构，维也纳（1997 年）。
- [7] 国际原子能机构《乏燃料性能评估和研究：2009—2014 年乏燃料性能评估和研究协调研究项目（SPAR-III）的最后报告》，国际原子能机构《技术文件》第 1771 号，国际原子能机构，维也纳（2015 年）。
- [8] 国际原子能机构《基本安全原则》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 SF-1 号，国际原子能机构，维也纳（2006 年）。
- [9] 国际原子能机构《放射性废物的处置前管理》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 GSR Part 5 号，国际原子能机构，维也纳（2009 年）。
- [10] 国际原子能机构《核燃料循环设施的安全》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 SSR-4 号，国际原子能机构，维也纳（2017 年）。
- [11] 国际原子能机构《核燃料循环设施产生的放射性废物的处置前管理》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 SSG-41 号，国际原子能机构，维也纳（2016 年）。
- [12] 国际原子能机构《核燃料循环研究与发展设施的安全》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 SSG-43 号，国际原子能机构，维也纳（2017 年）。

- [13] 国际原子能机构《核电厂燃料处理和贮存系统的设计》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 NS-G-1.4 号，国际原子能机构，维也纳（2003 年）。
- [14] 国际原子能机构，《乏核燃料贮存》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 SSG-15 号，国际原子能机构，维也纳（2012 年）。
- [15] 国际原子能机构《放射性废物加工、处理和贮存的管理系统》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 GS-G-3.3 号，国际原子能机构，维也纳（2008 年）。
- [16] 国际原子能机构《核电厂运行中的辐射防护和放射性废物管理》，国际原子能机构《安全标准丛书》第 NS-G-2.7 号，国际原子能机构，维也纳（2002 年）。
- [17] LE BIEZ, V., MACHIELS, A., SOWDER, A., “Advanced Nuclear Fuel Cycles – Main Challenges And Strategic Choices”, GLOBAL 2013, Salt Lake City, Utah, September 30–October 3 (2013), paper 7802.
- [18] 国际原子能机构《乏燃料湿法和干法贮存调查》，国际原子能机构《技术文件》第 1100 号，国际原子能机构，维也纳（1999 年）。
- [19] 国际原子能机构《乏燃料贮存运行 — 经验教训》，国际原子能机构《技术文件》第 1725 号，国际原子能机构，维也纳（2013 年）。
- [20] 国际原子能机构《放射性废物管理术语》2003 年版，维也纳（2003 年）。
- [21] THOMAS, L.E., EINZIGER, R. E., Effect of fission products on air-oxidation of LWR spent fuel, J. Nucl. Mater., 201 (1993) 310-319.
- [22] SASAHARA, A., MATSUMURA, T., PAPAIOANNOU, D., “Examinations of Spent Fuels during Interim Storage (5) – Oxidation Behavior of Irradiated UO₂ Fuel in Air”, Autumn meeting of the Atomic Energy Society of Japan (2003).
- [23] SPILKER, H., PEEHS, M., DYCK, H.P., KASPAR, G., NISSEN, K., Spent LWR Fuel Dry Storage in Large Transport and Storage Casks after Extended Burnup, J. Nucl. Mater. 250 (1997) 63-74.
- [24] FERRY, C. et al., Référentiel Scientifique sur l’Evolution à long terme des Combustibles Usés, Commissariat à l’Energie Atomique, RT DPC/SECR 04-032, Gif-sur-Yvette (2005).
- [25] QUECEDO M. et al., “Results of thermal creep on highly irradiated ZIRLO™”, paper presented at TOP FUEL 2008, Seoul, Republic of Korea, October (2008) Paper 8063.

- [26] ELECTRIC POWER RESEARCH INSTITUTE, “Creep Modeling and Analysis Methodology for Spent Fuel in Dry Storage”, EPRI 1003135, EPRI, Palo Alto, CA. (2001).
- [27] RASHID, J., MACHIELS, A., “Examination of the creep rupture phenomena and the development of an acceptance criterion for spent fuel storage”, Storage of Spent Fuel from Power Reactors, IAEA-CSP-20, IAEA, Vienna (2003) 431–441.
- [28] GRUSS, K. A., BROWN, C. L., HODGES, M. W., “U.S. Nuclear Regulatory Commission Acceptance Criteria and Cladding Considerations for the Dry Storage of Spent Fuel”, paper presented at TOP FUEL 2003, Wurzburg, Germany (2003).
- [29] PEEHS, M., GARZAROLLI, F., GOLL, W., “Assessment of Dry Storage Performance of Spent LWR Fuel Assemblies with Increasing Burnup”, Storage of Spent Fuel from Power Reactors, IAEA-TECDOC-1089, IAEA, Vienna (1999) 313–324.
- [30] ELECTRIC POWER RESEARCH INSTITUTE, “Creep as the Limiting Mechanism for Spent Fuel Dry Storage”, EPRI 1001207, EPRI, Palo Alto, CA (2000).
- [31] AOMI, M., et al., “Evaluation of hydride reorientation behavior and mechanical property of high burnup fuel cladding tube in interim dry storage”, Zirconium in the Nuclear Industry: 15th Int. Symp., STP 1505, ASTM, West Conshohocken (2009) 651.
- [32] MCMINN, A., DARBY, E.C., SCHOFIELD, J.S., “The terminal solid solubility of hydrogen in zirconium alloys”, Zirconium in the Nuclear Industry: 12th Int. Symp., STP 1354, ASTM, West Conshohocken, PA (2000) 173-195.
- [33] KAMMENZIND, B.F., FRANKLIN, D.G., PETERS, H.R. AND DUFFIN, W.J. “Hydrogen pickup and redistribution in alpha-annealed Zry-4,” Zirconium in the Nuclear Industry: 11th Int. Symp., STP 1295, ASTM, West Conshohocken, PA (1996) 338–370.
- [34] COLAS, K., Fundamental Experiments On Hydride Reorientation In Zircaloy, PhD Thesis, The Pennsylvania State University, Department of Mechanical and Nuclear Engineering (2012).

- [35] BILLONE, M.C., BURTSEVA, T.A., EINZIGER, R.E., Ductile-to-brittle transition temperature for high burnup cladding alloys exposed to simulated drying-storage conditions, *J. Nucl. Mater.*, **433** (2013) 431–448.
- [36] SABOL, G.P., “In-reactor corrosion performance of ZIRLO™ and Zry-4”, *Zirconium in the Nuclear Industry: 10th Int. Symp.*, STP 1245, ASTM, West Conshohocken, PA (1994) 724–744.
- [37] SAWATZKY, A., Hydrogen in Zircaloy-4: Its Distribution and Heat of Transport, *J. Nucl. Mater.*, **2**, No.4 (1960) 321-328.
- [38] HONG, H.S., KIM, S.J., LEE, K.S., Thermotransport of Hydrogen in Zircaloy-4 and Modified Zircaloy-4, *J. Nuc. Mat.*, **257** (1998) 15–20.
- [39] FORSBERG, K., MASSIH, A.R. Redistribution of Hydrogen in Zircaloy, *J. Nucl. Mater.*, **172**, (1990) 130–134.
- [40] SASAHARA, A., MATSUMURA, T., TSUCHIUCHI, Y., “Experiment of Hydrogen Migration under Temperature Gradient in Irradiated Cladding”, 2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Oct. 2–6, 2005, Kyoto, Japan, (2005) Paper #1036.
- [41] 国际原子能机构《乏燃料贮存中辐射和环境因素对材料耐久性的影响》，国际原子能机构《技术文件》第 1316 号，国际原子能机构，维也纳（2002 年）。
- [42] PARE, F.E., PATTANTYUS, P., HANSON, A.S., "MACSTOR: Dry spent fuel storage for the nuclear industry", *Proc. Int. Conf. on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation*, Prague, Vol 1. ASME New York, NY (1993) 275–279.
- [43] SHEK, G.K., WASILUK, B.S., LAMPMAN, T., FREIRE-CANOSA, J., “Testing the susceptibility of CANDU fuel bundle endcap/endplate welds to delayed hydride cracking”, paper presented at 10th CNS International Conference on CANDU Fuel, Ottawa, 2008.
- [44] KADARMETOV, I.M., BIBILASHVILI, Y.K., MEDVEDEV, A.V., “Evaluation of the maximum allowable temperature of WWER-1000 spent fuel under dry storage conditions”, *Proc. Int. Symp. on Safety and Engineering Aspects of Spent Fuel Storage*, IAEA Proceedings Series STI/PUB/949, IAEA, Vienna (1995) 269–279.
- [45] VESELY, J., VALACH, M., FREJTICH, Z., PRIMAN, V., “Creep properties of non-irradiated Zr-1%Nb cladding tubes under normal and

abnormal storage conditions”, Storage of Spent Fuel from Power Reactors, IAEA-TECDOC-1089, IAEA, Vienna (1999) 305–312.

- [46] ZALIOTNYCH, B.A., NOVIKOV, YU.B., TIKHONOV, N.S., MAKARCHUK, T.F., TOKARENKO, A.I., KOZLOV, YU.V., RAZMASHKIN, N.V., “Investigation of the behaviour of WWER spent fuel rods at Novovoronezh NPP”, Extended synopses International Symposium on Storage of Spent Fuel from Power Reactors, 9–13 November, 1998, IAEA-SM-352, IAEA, Vienna (1998).
- [47] 国际原子能机构《模拟干法贮存条件下的 WWER-440 燃料棒实验》，国际原子能机构《技术文件》第 1385 号，国际原子能机构，维也纳（2004 年）。
- [48] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION, “Classifying the Condition of Spent Nuclear for Interim Storage and Transportation Based on Function”, ISG-1 Rev. 2, U.S. NRC, Washington, DC (2007).
- [49] WOOD, B., “Fuel transfer operations” paper presented at NEI Used Fuel Management Conference, 5–7 May, Orlando, 2015.
- [50] RIDDER, R., “Fuel characterization challenges for pool offload at Kewaunee” paper presented at NEI Used Fuel Management Conference, 3–5 May, Orlando, 2016.
- [51] DURBIN, S.G., LINGDREN, E.R., “Investigation of zirconium fires during spent fuel pool LOCAs”, paper presented at NEI Used Fuel Management Conference, Baltimore, 2011.
- [52] ZIGH, G., VELAZQUEZ-LOZADA, E.R., “Zirconium fire on pressurized water reactor (PWR) spent fuel pools (SFP)”, paper presented at U.S. NRC Regulatory Information Conference, Washington, DC, 2013.
- [53] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION, “Consequence Study of a Beyond - Design Basis Earthquake Affecting the Spent Fuel Pool for a U.S. Mark 1 Boiling Water Reactor”, NUREG-2161, U.S. NRC, Washington, DC (2014).
- [54] NUCLEAR ENERGY AGENCY, “Status Report on Spent Fuel Pools under Loss-of-Cooling and Loss-of-Coolant Accident Conditions”, NEA/CSNI/R(2015)2, NEA, Paris (2015).

- [55] FROST C. R. “Current Interim Used Fuel Storage Practice in Canada”, Ontario Hydro Nuclear Report N-03710-940052, Ontario Hydro (1994).
- [56] NUCLEAR DECOMMISSIONING AUTHORITY, MAGNOX Fuel Strategy: Contingency Options (2014), <http://www.nda.gov.uk/publication/magnox-fuel-strategy-contingency-options-january-2014>
- [57] FLEISCH, J., “Analysis of spent fuel behaviour in dry storage cask demonstrations in FRG”, CONF-860417-Volume 1, Proceedings of 3rd International Spent Fuel Storage Technology Symposium/Work Shop, Seattle, PNNL (1986) S-254–262.
- [58] MCKINNON, M.A., STEWART, L., “Spent Nuclear Fuel Integrity during Dry Storage”, Storage of spent fuel from power reactors, IAEA-TECDOC-1089, IAEA, Vienna (1999) 297–302.
- [59] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION, “Dry Cask Storage Characterization Project – Phase 1: CASTOR V/21 Cask Opening and Examination”, NUREG/CR-6745, U.S. NRC, Washington, DC (2001).
- [60] KUMANO, Y., “Integrity inspection of dry storage casks and spent fuels at Fukushima Daiichi nuclear power station”, paper presented at CRIEPI Int. Conf. ISSF 2010, Tokyo, 2010.
- [61] TOKYO ELECTRIC POWER COMPANY., “Report of Investigation and Maintenance Results of the Dry Storage Casks at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station”, Technical Meeting on Spent Fuel Storage Options, IAEA-TM-45455, Vienna (2013).
- [62] BRADLEY, N., BROWN, G.A., “Interim dry storage of irradiated fuel and vitrified high activity level waste”, Nuclear Power Experience – Nuclear Fuel Cycle, Proceedings Series, IAEA-CN-42/142, IAEA, Vienna (1983) 863–874.
- [63] GRAVENOR, J.G., BLANCHARD, A., KENDALL, D.S., JACKSON, P.A., “Post-Irradiation testing of AGR element components in support of the Scottish Nuclear Limited dry store project”, Fuel Management and Handling, ISBN 0 7277 2033 3, BNES, London (1995) 128.
- [64] 国际原子能机构《乏核燃料和设施部件在湿法贮存中的耐久性》，国际原子能机构《技术文件》第 1012 号，国际原子能机构，维也纳（1998 年）。

- [65] ISSARD, H., “Anticipating future needs for the transport and storage of spent fuel from evolutionary nuclear power reactors”, Proc. IAEA International Conference on Management of Spent Fuel from Nuclear Power Reactors, 19–23 June 2006, IAEA, Vienna (2007) 341–351.
- [66] CENTRAL RESEARCH INSTITUTE OF ELECTRIC POWER INDUSTRY, Basis of Spent Nuclear Fuel Storage, ISBN978- 4-900622-55-5, ERC Publishing Co. Ltd., Tokyo (2015) 274-289.
- [67] DICKSON, R.M., “Flexibility of the BNFL dry storage systems”, Storage of Spent Fuel from Power Reactors, IAEA-TECDOC-1089, IAEA, Vienna (1999) 195–200.
- [68] 国际原子能机构《破损乏核燃料管理》，国际原子能机构《核能丛书》第 NF-T-3.6 号，国际原子能机构，维也纳（2009 年）。
- [69] 国际原子能机构《水冷堆燃料破损审查》，国际原子能机构《技术报告丛书》第 388 号，国际原子能机构，维也纳（1998 年）。
- [70] PEEHS, M., BANCK, J., BOKELMANN, R., — Spent fuel storage performance data and storage strategy assessment in nuclear power performance and safety, Proc. Int. Conf. Spent Fuel Management, Vienna, 1987, IAEA, Vienna (1988).
- [71] PEEHS, M., EINFELD, K., “Effects of long term dry storage of spent fuel”, Proc. of Int. HLRWM Conf., Las Vegas NV (1992).
- [72] FORSYTH, R., JONSSON, T., “Experimental Study of Defect Power Reactor Fuel”, Final Report, Studsvik/ NF(P)-82/72 (1982).
- [73] JOHNSON, Jr., A.B., et al., Materials Behavior in Interim Storage of Spent Fuel, Trans. Am. Nucl. Soc. 43 (1982) pp. 314-315.
- [74] JÉGOU, C., CARABALLO, R., DE BONFILS, J., BROUDIC, V., PEUGET, S., VERCOUTER, T., ROUDIL, D., Oxidizing dissolution of spent MOX47 fuel subjected to water radiolysis: Solution chemistry and surface characterization by Raman spectroscopy, J. Nucl. Mater. **399** (2010) 68–80.
- [75] JOHNSON, Jr., A.B., et al., ‘Simulated Dry Storage Test of a Spent PWR Nuclear Fuel Assembly in Air’, Proceedings of Waste Management 85, Tucson, Arizona, USA, March 24-28 (1985).
- [76] HASTINGS, I.J., MCCRACKEN, D., “Behavior in Air at 175-400 C of Irradiated UO₂ Fuel”, Proceedings of Int. Workshop -Irradiated Fuel

Storage: Operating Experience and Development Programs, Toronto, Canada, October 17-18 (1984), pp. 626-654.

- [77] OLSEN, C.S., "Fuel Rod and Crud Behavior Under Long-Term Dry Storage Conditions", Proceedings of Int. Workshop - Irradiated Fuel Storage: Operating Experience and Development Programs, Toronto, Canada, October 17-18 (1984), pp.432-455.
- [78] CUNNINGHAM, M.E., et al., "Status of spent UO₂ oxidation studies supporting on dry storage of spent fuel", Paper presented at INMM Spent Fuel Management Seminar VIII, Washington D.C. (1991).
- [79] KOHLI, R., et al., The Behavior of Breached Boiling Water Reactor Fuel Rods on Long-Term Exposure to Air and Argon at 598 K, Nucl. Tech. 69, May (1985), pp.186-197.

术 语 缩 写

AECL	加拿大原子能有限公司
AFR	堆外
AR	堆内
AGR	先进气冷反应堆
ANL	阿贡国家实验室
ASTM	美国测试与材料协会
BEFAST	乏燃料组件贮存行为
BWR	沸水反应堆
CANDU	加拿大重水反应堆
CBB	裂缝弯曲梁
CC	混凝土密封容器
CEA	可替代能源和原子能委员会（法国）
CGR	裂纹扩展速率
CLAB	乏核燃料临时贮存中心设施（瑞典）
CNEA	国家原子能委员会（阿根廷）
CRIEPI	电力中央研究所（日本）
CRL	恰克河实验室（加拿大）
CRP	协调研究项目
CRUD	沉积在燃料组件表面的水垢
CSA	加拿大标准协会
CSN	核安全委员会（西班牙）
CSNI	核设施安全委员会（OECD/NEA）
CSSR	捷克斯洛伐克社会主义共和国
CTDT	包壳管变形试验
CWSR	冷作应力释放
DBTT	延脆性过度温度
DHC	氢致延迟开裂
DLO	扩散限制氧化
DSC	干法贮存容器
EIS	电化学阻抗法

ERPI	电力研究协会（美国）
EN	电化学噪声
ENRESA	国家放射性废物公司（西班牙）
ENUSA	埃努萨高新工业技术公司（西班牙）
EOL	寿期末
EPR	乙烯丙烯橡胶
FA	燃料组件
FEM	有限元模拟
FISPIN	裂变产物存量（英国）
FR	快堆
FGR	德意志联邦共和国
FSM	场指纹法
GDR	德意志民主共和国
GGBFS	粒状高炉矿渣
HBR	HB 罗宾逊（美国）
HCC	氢化物连续性系数
HLW	高放废物
HTGR	高温气冷堆
HWR	重水堆
IGA	晶间腐蚀
INFCIS	原子能机构核燃料循环信息系统
INS	国际核服务（英国）
ISFSI	独立乏燃料贮存装置
JAPC	日本原子能公司（日本）
JNES	日本核能安全组织（日本）
LIBS	激光诱导击穿光谱仪
LMP	Larson Miller 参数
LPB	低塑性烧结
LSP	激光喷丸处理
LWR	轻水反应堆
MAGNOX	非氧化镁合金（镁合金包壳，英国）
MCC	采矿业化学联合体
MDA TM	三菱开发包壳合金
MEB	多个燃料元件容器

MIC	微生物腐蚀
MMC	金属基复合材料
MOX	混合氧化物燃料
MPC	多用途密封容器
MVDS	模块式贮存库干法贮存设施
NPD	核电示范
NPP	核电厂（站）
NRC	核管理委员会（美国）
NRU	国家通用研究
OECD	经济合作与发展组织
OPC	普通波特兰水泥
OPG	安大略电力公司（加拿大）
OS	场外
PHWR	加压重水堆
PIE	辐照后检查
PURAM	放射性废物管理有限公司（匈牙利）
PWR	压水堆
RBMK	慢化水冷堆
RCT	环向压缩试验
RH	相对湿度
RHCF	径向氢化物连续性系数
RHF	径向氢化物占比
RHT	氢化物重定向处理
RIAR	原子反应堆研究所（俄罗斯）
RIP	杆内压
RS	反应堆现场
RT	室温
RXA	再结晶退火
SCC	应力腐蚀开裂
SEM	扫描电子显微镜
SF (A)	乏燃料（组件）
SKB	瑞典核燃料和废物管理公司
SNF	乏核燃料
SP	喷丸处理

SPAR	乏燃料性能评估和研究
SRA	应力释放与退火
SS	不锈钢
SSC	系统、结构和部件
TAD	运输、老化和处置
TC	热电偶
t(HM)	吨重金属
TEM	透射电子显微镜
TEPCO	东京电力公司（日本）
THORP	热氧化燃料后处理厂（英国塞拉菲尔德）
TR&S	塞拉菲尔德热氧化物后处理厂接收和贮存设施（英国）
TSSD	溶解的最终固溶度
TSSP	沉淀的最终固溶度
UHMW-PE	超高分子量聚乙烯
UOX	氧化铀
U _{rep} OX	后处理氧化铀
USSR	苏维埃社会主义共和国联盟
WWER	俄罗斯压水堆
XRD	X 射线衍射
ZIRLO™	锆的低氧化性
ZrNb	锆铌合金燃料包壳
ZRA	零电阻电流表
Zry	锆合金

参与起草和审查的人员

Hanson, B.	西北太平洋国家实验室, 华盛顿, 美利坚合众国
Hillier, A.	塞拉菲尔德有限公司, 坎布里亚, 英国
Issard, H.	TN 国际公司, 蒙蒂尼勒布勒托讷, 法国
Jussofie, A.	BGZ 临时贮存公司, 德国
Kyffin, J.	塞拉菲尔德有限公司, 坎布里亚, 英国
Machiels, A.	电力研究所, 加利福尼亚, 美利坚合众国
McManniman, L.	塞拉菲尔德有限公司, 坎布里亚, 英国
Standring, P.	国际原子能机构
Takáts, F.	TS Enercon 公司, 布达佩斯, 匈牙利

顾问会议

奥地利维也纳: 2014 年 8 月 11 日至 15 日



IAEA

国际原子能机构

No. 26

当地订购

国际原子能机构的定价出版物可从下列来源或当地主要书商处购买。
未定价出版物应直接向国际原子能机构发订单。联系方式见本列表末尾。

北美

Bernan / Rowman & Littlefield

15250 NBN Way, Blue Ridge Summit, PA 17214, USA

电话: +1 800 462 6420 • 传真: +1 800 338 4550

电子信箱: orders@rowman.com • 网址: www.rowman.com/bernan

世界其他地区

请联系您当地的首选供应商或我们的主要经销商:

Eurospan Group

Gray's Inn House

127 Clerkenwell Road

London EC1R 5DB

United Kingdom

交易订单和查询:

电话: +44 (0) 176 760 4972 • 传真: +44 (0) 176 760 1640

电子信箱: eurospan@turpin-distribution.com

单个订单:

www.eurospanbookstore.com/iaea

欲了解更多信息:

电话: +44 (0) 207 240 0856 • 传真: +44 (0) 207 379 0609

电子信箱: info@eurospangroup.com • 网址: www.eurospangroup.com

定价和未定价出版物的订单均可直接发送至:

Marketing and Sales Unit

International Atomic Energy Agency

Vienna International Centre, PO Box 100, 1400 Vienna, Austria

电话: +43 1 2600 22529 或 22530 • 传真: +43 1 26007 22529

电子信箱: sales.publications@iaea.org • 网址: <https://www.iaea.org/zh/chu-ban-wu>

国际原子能机构
维也纳