加速器驱动次临界系统装置部件用材 发展战略研究

王志光,姚存峰,秦芝,孙建荣,庞立龙,申铁龙,朱亚滨,崔明焕,魏孔芳

(中国科学院近代物理研究所,兰州 730000)

摘要:加速器驱动次临界系统(ADS)由强流高能离子加速器、高功率散裂靶和次临界反应堆三大分系统组成。作为未来先进核裂变能——加速器驱动先进核能系统(ADANES)的重要组成部分,ADS装置的研发对推动我国能源革命、促进能源转型以及刺激核能行业创新发展具有重大作用。本文以ADANES研发为背景,阐述了ADS装置的研发现状、可能的发展趋势以及ADS部件对材料的需求,重点探讨了ADS装置中高功率散裂靶和次临界反应堆部件用关键材料的研发进展与存在问题,面临的发展机遇和挑战;最后提出了几点发展对策,力求助力我国ADS装置的建设与先进核裂变能技术创新,推动未来先进核裂变能的安全高效和可持续发展。

关键词:加速器驱动次临界系统(ADS);加速器驱动先进核能系统(ADANES);关键材料;次临界反应堆;高功率散裂靶 中图分类号:TM71 文献标识码:A

Materials for Components in Accelerator-driven Subcritical System

Wang Zhiguang, Yao Cunfeng, Qin Zhi, Sun Jianrong, Pang Lilong, Shen Tielong, Zhu Yabin, Cui Minghuan, Wei Kongfang

(Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)

Abstract: Accelerator-driven subcritical system (ADS) mainly composes of a high beam intensity high-energy-ion accelerator, a high-power spallation target, and a subcritical reactor. ADS is a key part of the accelerator-driven advanced nuclear energy system (ADANES), and its research and development (R&D) will play a very important role in promoting China's energy transformation and stimulating the innovative development of China's nuclear energy industry. In this paper, the status and potential trends as well as materials requirements for the R&D of ADS facilities are introduced. Then the R&D progress and problems, development opportunities, and challenges of the key materials for the high-power spallation target and the subcritical reactor are intensively discussed. Finally, several countermeasures are proposed, in the hope of pushing forward the ADS facility construction and the technological innovation of advanced nuclear fission energy, and promoting safe, efficient, and sustainable development of advanced nuclear fission energy in the future.

Keywords: accelerator-driven subcritical system (ADS); accelerator-driven advanced nuclear energy system (ADANES); key materials; subcritical reactor; high-power spallation target

收稿日期:2019-01-09;修回日期:2019-01-17

通讯作者:王志光,中国科学院近代物理研究所,研究员,主要从事先进核能装置材料、ADS系统研发等研究; E-mail: zhgwang@impcas.ac.cn 资助项目:中国工程院咨询项目"新一代核能用材发展战略研究"(2016-ZD-06)

本刊网址:www.enginsci.cn

一、前言

加速器驱动次临界系统(ADS)由加速器、散裂靶、次临界反应堆芯等组成(见图1)。其工作原理是,利用加速器产生的高能强流质子束轰击重原子核,产生高能高通量散裂中子来驱动和维持次临界反应堆(有效中子增殖因数 k_{eff} < 1)运行,使堆芯中的可裂变材料发生持续的核裂变反应。 ADS 系统具有固有安全性,在嬗变核废料、核燃料增殖、产能等领域具有重大的应用前景,是未来先进核裂变能的重要发展方向。

国际上尚未建成 ADS 装置。研发 ADS 装置不 仅体现了一个国家的科技水平、经济水平和工业水 平等综合实力,而且会促进工业技术、国防技术的 发展,带动和提升诸多相关产业的技术进步和产业 升级,产生巨大的社会效益和经济效益。因此,美 国、日本、俄罗斯等核能科技发达国家非常重视 ADS 装置的研发,均结合核能发展实际情况制定了 ADS 中长期发展路线图,采取分步实施的战略,提 出了一系列 ADS 装置研发计划 [1],而且都设想在 2030年左右建成原型装置。我国政府也大力支持 ADS 装置的研发,中国科学院根据我国先讲核能科 学技术发展的重大需求和 ADS 研发进展与发展趋 势,从技术可行性与未来推广经济性出发,提出了 我国 ADS 发展路线图 [1] 和原创的加速器驱动先进 核能系统(ADANES)[2]的概念。ADANES 由加 速器驱动的燃烧器 (ADB) 和加速器驱动乏燃料再 生利用(ADRUF)两大系统组成(见图2),集核 废料嬗变、核燃料增殖和核能安全生产为一体,是 一种可提供数千年安全、低排放、高性价比的战略 能源系统。

作为 ADANES 的重要组成部分, ADS 装置的 研发对推动我国能源革命、促进能源转型以及刺激 核能行业创新发展具有重大作用。在中国科学院战 略性先导科技专项"未来先进核裂变能——ADS 嬗 变系统"(简称"ADS专项")等国家项目的支持 下,我国在超导质子直线加速器、重金属散裂靶、 次临界反应堆及新燃料元件、核能材料等研究方 面取得了重要进展和突破,一些关键技术达到国 际领先或先进水平,并在国际上率先从基础研究 阶段进入工程实施(ADS集成装置建设)阶段。 《国家重大科技基础设施建设中长期规划(2012-2030)》项目——加速器驱动嬗变研究装置(CiADS) 的建议书、可行性研究报告分别于 2015 年 12 月、 2018年1月获得国家发展和改革委员会批复,近期 将开工建设 CiADS。CiADS 建成后,将是国际上 第一个兆瓦级 ADS 系统集成研究装置,具有里程 碑意义。

目前,研发 ADS 装置面临的主要瓶颈问题之 一是材料。由于 ADS 不同于现有的核能系统,未 来商用 ADS 装置中材料服役的工况非常苛刻,现 有的成熟材料不能满足要求,必须寻找或者研 发新材料以适应 ADS 装置研发的需求。本文以 ADANES 研发为背景,阐述 ADS 装置部件对材料 的需求,关键材料研发进展与存在问题,面临的发 展机遇和挑战以及发展对策。



图 1 ADS 原理示意图



图 2 ADANES 原理示意图

二、ADS 装置部件用材

ADS 装置是一个比目前的反应堆更加复杂的系统,涉及的材料要求也更多。由于加速器用材料相对成熟,本文重点讨论次临界反应堆、高功率散裂靶、ADS 装置用核燃料相关的材料问题。图 3 给出了 ADS 装置部件涉及的主要材料。

(一) 次临界反应堆材料

ADS 次临界反应堆系统的主要功能是实现与 加速器、散裂靶耦合、产生快中子场并提供核反应 环境。次临界反应堆系统主要包括主容器、燃料组 件、堆内构件、主泵、换热器/蒸汽发生器、换料 机构等。为满足堆芯正常运行,除了要对堆内构件 进行科学设计及精细加工外,对堆内构件材料的力 学、热学和抗辐照等各项物理性能也提出了严格的



图 3 ADS 装置部件用材料分类示意图

要求。一般来说,堆内构件材料选择标准如下:材料需要有优良的中子学和耐辐照性能,以及良好的 热学、机械、抗蠕变性能、冷却剂相容性和长期稳 定性 [3]。

当前国际上计划中的主要 ADS 次临界反应堆 设计以液态铅(Pb)或者铅铋合金(LBE)为冷却剂, 设计温度为 300~500 ℃,因此可以选择奥氏体不锈 钢或铁素体/马氏体钢作为堆芯构件候选材料和换 热器/蒸汽发生器材料。然而,随着核能技术的发 展,对于未来更高的反应堆运行温度,现有的合金 钢将无法满足高温运行工况,具有良好高温性能的 耐腐蚀抗辐照的合金以及增韧复合陶瓷将成为更具 潜力和应用前景的堆内构件用材料。

(二) 高功率散裂靶材料

在 ADS 装置中,散裂靶是产生中子驱动反应 堆在次临界条件下持续稳定运行的核心。通过散裂 靶与强流质子加速器系统耦合,将高能强质子束流 引入散裂靶,通过与靶材料发生散裂反应产生高能 散裂中子,再与反应堆耦合驱动次临界反应堆运行。 以产生散裂中子用靶材料的形态为依据进行分类, 目前国际上有固态、液态、颗粒流散裂靶三种类型, 其中颗粒流散裂靶是由中国科学院近代物理研究所 科学家提出的一种原创性新型散裂靶 [4],兼具固 态、液态两种散裂靶的优势,物理上具有承受几 十兆瓦束流功率的可行性,是最具发展潜力的未来 商用 ADS 装置候选高功率散裂靶型。

散裂靶用主要材料包括:产生散裂中子用靶材

料、靶体结构材料、散裂靶 – 加速器耦合质子束窗 (质子束窗)材料。对于高功率散裂靶,则要求选 取的靶材料具有高的中子产额,并具有好的热力学 性能; 靶体结构材料和产生中子用靶材料必须耐强 辐照、耐高温; 质子束窗材料能够承受高功率束流 的轰击; 散裂反应中沉积的能量能够及时移除,以 保障系统的正常运行。

(三) ADS 装置用核燃料材料

核燃料及其包壳材料是 ADS 装置最为核心的 关键材料,面临着如高温、冷却剂强腐蚀、堆内快 中子的强辐照以及应力等极端恶劣的工况条件。基 于 ADANES,需要研发全新的核燃料元件。核燃料 以尽可能提高资源利用率为导向,核燃料包壳保护 燃料免于冷却剂的化学腐蚀和机械侵蚀,并防止裂 变产物进入冷却剂回路。

对于核燃料,碳化物陶瓷核燃料小球为再生核 燃料的主要候选形式。首先通过先进的干法首端处 理工艺去除乏燃料中部分裂变产物以及中子毒物, 然后制备包含有铀(U)、钚(Pu)以及次锕系核素 (MAs)的再生嬗变核燃料小球,并在 ADS 装置中 重复利用。

对于核燃料包壳材料,需要对反应堆特性如 工作温度、冷却剂类型、中子通量以及能谱、燃 料周期,堆运行寿命进行综合考虑来选择最为合 适的燃料包壳材料。截至目前,在大多数液态铅/ 铅铋冷却反应堆设计中已经对燃料包壳材料做出 了初步的选择,如欧盟选择15-15Ti或T91作为燃 料包壳材料,美国采用D9或Si添加铁素体/马氏 体钢作为Pb冷快堆包壳候选材料[5]。俄罗斯针 对铅冷快堆开发了一种含1.3%Si的铁素体/马氏 体钢——EP823(目前其他国家没有与之对应的钢 种),计划用于SVBR-100型铅冷反应堆并作为燃 料包壳材料。

三、ADS 装置部件用材的发展与现状

(一) 次临界反应堆材料

奥氏体不锈钢,如304L(N)、316L(N)具 有良好的高温机械性能以及加工、焊接性能,同 时拥有非常丰富的国际使用经验,被作为液态铅/ LBE 冷却反应堆主要部件候选结构材料之一。但 304L (N)、316L (N) 不锈钢辐照损伤限值较低, 在 50 dpa 以下,且此类材料温度超过 500 ℃,抗液 态金属腐蚀性能存在明显不足,因此 316L(N)等 奥氏体不锈钢一般用作反应堆中低温、低辐照部件, 如反应堆主容器、换料机构、堆芯支撑及下栅格板 等。以T91为代表的铁素体 / 马氏体钢是另一类堆 内主要部件候选材料,该钢具有高热导、低热膨胀、 良好的蠕变性能且不发生应力腐蚀开裂(SCC)现 象,是铅冷快堆换热器/蒸汽发生器结构材料。俄 罗斯 BREST-OD-300 采用 EP302-M 作为其反应堆 换热器/蒸汽发生器结构材料,美国西屋公司开发 的 DLFR 反应堆则采用涂层 316L 或 347 作为换热 器/蒸汽发生器结构材料。近年来,中科院近代物 理研究所与金属研究所在中科院先导专项的支持 下,研发出了适用于铅冷快堆环境的 SIMP 钢,其 耐 LBE 腐蚀、高温氧化腐蚀、抗离子辐照性能等 优于 T91 钢。

主泵是铅冷快堆的关键设备之一,其核心部件 叶轮、叶片边缘线速度在正常运行工况中可能达到 几十米每秒,存在非常严重的液态重金属磨蚀现象。 三元过渡族金属碳化物陶瓷材料(Ti₃SiC₂)、Al或 Ta 涂层 T91/316L 以及 Ti₃SiC₂ 涂覆铁素体钢可以作 为主泵可能的结构材料[5]。

当前有关堆内陶瓷构件材料的研究尚处于起步 阶段,国内外进行了一些陶瓷性能改进研究,如相 变及晶须/纤维增韧、热导提升和耐磨性能优化; 候选复合陶瓷(如 SiC 及 SiC₄/SiC)的辐照性能评 估,包括辐照引起的抵抗裂纹扩展能力、热导率和 力学性能变化,辐照肿胀和残余应力以及氦泡行为 等。但总体而言,材料类型较少,综合评估结果匮 乏,仍需要开展大量的研发工作。

(二)高功率散裂靶材料

1. 散裂靶部件材料

目前 ADS 散裂靶的每种类型都对应设计了不同的结构和束窗材料。在 ADS 装置运行时,高功率束流穿过质子束窗会产生大量的热和很高的辐照剂量。因此束窗需具有优良的热力学性能和抗辐照性能。在已有的散裂中子源工程中,可以作为束窗的候选材料有:奥氏体钢(316L)、马氏体钢(T91)、 镍基合金(Inconel 718)或铝基合金(A5083-O、AL6061-T4、Al-Mg、等)、钛合金(Ti92.5-Al5-V2.5)

或钒合金(V92-Cr4-Ti4)、铍-碳碳双层复合材料 (设计概念)、W-Re 合金。如 Inconel718 作为质子 束窗在英国 ISIS 散裂中子源和美国 LANSCE 散裂 中子源上成功应用。理论计算 Inconel718 可承受最 大辐照剂量为10 dpa, 对应辐照能量为7500 MW/h; 在 ISIS 中子源装置实际应用中, Inconel718 承受 了 34 dpa 的辐照剂量,没有出现设备运行方面的问 题[6]。AlMg,在瑞士 SINQ 散裂中子源作为靶安全 腔,Al5083 在日本散裂中子源作为束窗材料。由于 铝基合金高辐照环境中具有比高镍合金更优异的性 能,第二代质子束窗选用 Al6061-T4 作为原材料。 Al6061-T4 的服役寿命并不取决于原子位移损伤水 平,而更多受到氦气产生率的影响。理论计算保守 估计铝基质子束窗可承受的氦气浓度为 2000 appm, 在 2 MW 束流功率、每年运行 5000 h 条件下,服 役寿命约为2年。这些材料能否应用 ADS 装置还 有待检验。

2. 散裂靶靶材

散裂靶靶材一般有液态金属和固态金属两种类型,固体靶如钨、钨合金等,液体靶如液态铅、铅铋合金和汞等。固体靶存在热移除困难的问题,不适于高功率散裂靶工程。液态靶如液态铅铋合金靶具有良好的中子学与热力学性能、蒸汽气压低、低的化学活性等,是国际上备受关注的散裂靶靶材。 但是,由于液态金属靶存在流体力学不稳定性、泄露安全风险以及对结构材料的温度 – 腐蚀效应严重等问题,而且质子束辐照 LBE 后容易产生强毒性物质 Po,高能强质子束轰击液态靶产生的强冲击波会加速材料疲劳老化等。这些难以克服的困难使得液态靶的发展空间受到很大的限制。

颗粒流散裂靶兼具液态、固态散裂靶的优势, 以固体颗粒作为产生中子的靶材料。目前散裂靶 材料主要采用了高比重的钨镍铁合金球,钨基合 金制备加工容易、成本低,且材料机械性能优异。 在综合考虑靶球流动性、换热性等要素的基础上, 计算模拟结果表明,当小球尺寸为 ø1 mm 时有优 良的综合性能。目前,研究人员利用已建成的实 验平台,开展了颗粒流动性、传热、颗粒流集体 摩擦磨损、束靶耦合等一系列相关实验研究,对 颗粒流靶及其材料的可行性做了初步的验证。但 是,由于实验数据尚不充分,还需要继续进行更 深入的研究。

(三) ADS 装置用核燃料材料

1. 新型核燃料材料

传统的"分离 – 嬗变"是通过普雷克斯(Purex) 流程分离乏燃料中的U和Pu,然后再将高放废液 中的MAs(Np、Am和Cm)和长寿命裂变产物逐 个分离,最后将分离出来的MAs制备成核燃料并 放入ADS燃烧器中进行燃烧。传统的ADS嬗变燃 料中不含铀和钚,全部为次锕系元素。燃料形式主 要有金属型燃料、弥散型燃料以及陶瓷型燃料[7]。 其中陶瓷型燃料主要有氧化物、碳化物和氮化物 燃料。

氧化物陶瓷核燃料已经广泛地应用于核电站压 水堆中,它具有高熔点、膨胀各向同性的特点和良 好的辐照行为及机械性能。但是,它存在热导率低 以及容易脆化等问题。碳化物陶瓷燃料的热导率相 对较高,在堆内的使用温度比氧化物燃料的温度梯 度小,可获得较高的功率密度。碳化物燃料中易裂 变核素的含量相对较高,可以减小反应堆达到临界 值时所需要的燃料体积。另外,碳化铀还可与钚以 及部分次锕系核素形成二元混合共溶体系,形成单 一物相的金属混合碳化物燃料。由于 Pu 以及 MAs 的加入,燃料的稳定性显著增加。因此,碳化物核 燃料被认为是未来反应堆的理想候选核燃料。

2. 核燃料包壳材料

目前在役的反应堆中,燃料组件所采用的燃料 包壳材料主要有压水堆普遍采用的锆合金、快堆用 不锈钢和镍基合金、高温气冷堆用石墨/碳化硅。 随着核动力反应堆向高燃耗、长燃料循环寿命、高 安全性发展,传统包壳材料已不能满足未来先进核 能系统燃料元件对包壳材料的苛刻要求。

对于 ADS 装置, 15-15Ti 钢是以液态 PB/LBE 作为冷却剂的次临界快堆的候选燃料包壳材料之 一, 它是一种 Ti 稳定的新型奥氏体钢,在 316 不 锈钢基础上适当降低 Cr 元素含量、提高 Ni 元素含 量并添加少量 Ti, 显著提高了材料的高温性能和 抗辐照肿胀性能 [8],且具有在高通量快中子研究 堆(FFTF)、凤凰堆、超级凤凰堆、快中子研究堆 BOR60 等快堆中的使用经验。以 T91 为代表的铁 素体 / 马氏体钢(F/M)是另一类燃料包壳候选结 构材料,相比奥氏体钢具有非常优秀的抗辐照肿胀 性能,但在低温(<450℃)时易发生辐照硬化并伴 随韧脆转变温度(DBTT)的上升,在更高的温度 下辐照硬化 / 脆化现象往往减弱或消失;研究进一步表明,9% Cr F/M 钢(如 T91)比 12% Cr F/M 钢具有较好的低温韧性 [9]。

由于陶瓷材料相对于金属材料具有更好的高 温性能以及耐辐照腐蚀等优点,在事故容错燃料 (ATF)的开发中受到广泛重视,包括SiC、ZrC及 相关复合陶瓷材料。和传统的金属包壳材料相比, SiC基陶瓷材料可耐受更高的温度和更高的中子注 量、耐蚀性能好、使用寿命长,但SiC包壳工作时 的径向温度梯度、堆功率调节时产生的热冲击、辐 照肿胀等均会引起包壳管的体积膨胀甚至脆性断 裂;ZrC陶瓷比SiC陶瓷材料有着更加优异的抗辐 照、耐腐蚀性能,但在高温下的强度稳定性和高温/ 辐照复合条件下的蠕变性能仍需进一步改善。另外, SiC、ZrC、TiC、TiN等陶瓷涂层在合金包壳管上 的应用也得到了广泛关注,但关于陶瓷涂层的制备 方法、处理工艺以及后期性能验证等仍需做大量的 工作。

(四) ADS 装置用材料的抗辐照性能评价

1. 中子辐照效应评价

材料的辐照性能是决定其能否最终获得应用 的关键性能指标之一[10,11]。自1970年起,美 国、欧盟成员国、日本等的科学家开始利用美国实 验增值中子反应堆(EBR)、FFTF及快中子通量同 位素反应堆(HFIR),欧洲高中子通量堆(HFR)、 俄罗斯 Bor60 以及日本 JMTR 等产生的中子研究马 氏体/铁素体钢材料辐照肿胀、辐照硬化与脆化等 问题,获得了不同辐照条件下结构材料的肿胀率实 验数据 [12]。

受限于反应堆、热室条件和社会实际,在我 国开展材料的中子辐照材料评价仅在同时具备反应 堆和热室条件的中国核动力研究设计院、中国原子 能科学研究院等几家单位进行低剂量中子辐照下的 材料力学性能评价,对材料研究而言,反应堆中 子损伤速率低、周期长、费用高等不足严重限制了 材料的中子辐照性能评价工作的高效开展。基于 此,结合 ADS 项目的实际环境需求,一方面笔者 利用己建成的中国科学院近代物理研究所直线加速 器(LINAC)装置提供的 25 MeV 质子束流对材料 进行质子/散裂中子辐照性能评价研究;另一方面, 与国内外科研机构合作,重点开展反应堆内材料辐 照以及瑞士散裂靶 [13] 环境下材料的辐照性能评价研究,通过 STIP- VII、VIII两次靶实验已经完成近300 个不同小样品的辐照实验。

2. 离子辐照模拟

利用高能重离子模拟中子开展辐照先进核能候 选材料研究具有以下优势:①在材料中具有很大穿 透深度(超过100 μm),形成较宽的辐照损伤坪台 区,为开展辐照先进核能候选材料宏观力学性能研 究提供了条件;②具有较大的损伤速率,可以快速 实现较高的辐照损伤水平;③载能惰性气体离子辐 照引入掺杂气体原子模拟材料中的嬗变 He 效应; ④辐照后样品具有较低的活性,短时间内可以进行 方便的操作。

利用载能离子注入 / 高能重离子辐照模拟核反应堆环境对候选结构材料进行辐照,在较短的时间内可以达到较高的辐照损伤水平和较高的 He 掺杂浓度,来评估候选结构材料在整个服役年限内的辐照损伤水平。中国科学院近代物理研究所兰州重离子加速器国家实验室拥有 HIRFL-CSR、320 kV 平台、强流 LEAF 和 25MeV-LINAC 等一系列离子加速器,以及配套的多功能辐照终端,可以提供能量keV-GeV的 H-U离子进行离子辐照 / 注入实验, 开展模拟核材料中子辐照效应研究以及候选核材料的快速筛选评价研究。

四、ADS 装置部件用材研发面临的问题挑战

(一) 次临界反应堆材料

极端苛刻的高温强辐照腐蚀的反应堆环境挑战着现有材料的极限。

对于液态金属冷却快堆材料面临高温和腐蚀/ 磨蚀的挑战。在高温环境中,F/M钢(T91等)和 奥氏体不锈钢(316L等)均面临着高温性能不足的 问题,如F/M钢在温度超过550℃时,其蠕变性能 急剧下降。随着反应堆运行温度提高,液态铅/铅 铋对材料的腐蚀也更加严重[14]。反应堆堆芯冷却 剂温度超过500℃,通过氧控技术阻止液态金属结构 材料腐蚀已经变得不可行,表面处理或钝化技术是 目前解决高温腐蚀的一个重要途径,但工艺成熟度 以及长期稳定性仍然需要开展大量攻关工作。对于 反应堆主泵而言,液态重金属冷却剂对泵叶轮、叶 片磨蚀是其关注的首要问题。目前铅冷快堆主泵材 料主要候选材料均缺乏必要的实验考验和数据积累。

对于未来堆芯用陶瓷构件材料,面临的主要问题 包括:韧性差、热导低、难加工和连接、辐照腐蚀性 能评估欠缺等。虽然目前在材料制备工艺、韧化机理、 物理性能、力学性能和耐磨性能等方面的研究取得了 一些进展,但是陶瓷材料的韧性和可加工性仍远低于 当前的金属材料,不能满足需要。此外,不同用途陶 瓷及其复合材料的制备与部件的设计、加工和可行性 分析等研究匮乏,需要展开核能应用环境下陶瓷及其 复合材料的评价技术及计算模拟。

(二) 高功率散裂靶材料

1. 散裂靶部件材料

镍基合金和钢的机械性能好于铝基合金,而 铝基合金的密度最低、热导率较高、比热容大, 热力学性能好于镍基合金和钢。但铝基合金只能 在较低温区运行而不适于高温运行的 ADS 装置, 镍基合金、铁基合金、钒基合金则需要考虑大剂 量辐照环境下的氦脆效应以及由此带来的力学稳 定性。

目前,T91、316L及钛合金、钒合金只作为质 子束窗候选材料进行了一些评估。Inconel718 和铝 基合金有在 ADS 装置中实际应用的案例。钢(T91, 316L)主要采用单层、windowless 装配设计,从原 子位移损伤水平和 He 产生率两方面的理论计算估 计,服役寿命都为 100 d,而钛合金、钒合金的服 役寿命约为1年。Inconel718 硬度较高,只能选取 双层型几何设计,从原子位移损伤方面考虑,服役 寿命为1.5年。铝基合金一般采用双层或排箫结构, 通过 He 产生率的理论计算,服役周期约为2年(保 守估计,也有文献通过原子位移损伤水平计算其服 役周期为3.5年或更高)。因此,束窗的结构设计和 材料选取都有待进一步研究论证。

2. 颗粒流散裂靶靶材

作为一种创新型的散裂靶,前期无太多技术 借鉴和经验可循,尽管到目前已开展了大量相关验 证工作,但数据积累仍然有很大的差距。颗粒流散 裂靶仍存在辐照损伤、脆化、摩擦磨损问题等一系 列尚未完全解决的问题。颗粒流靶本质是一类固 体,它将长时间运行于强辐射场中,特别是强中子 辐照可引起小球辐照损伤,使得小球机械性能退化 等;尽管现有的实验表明钨合金是一种非常耐磨的 材料,但是大量靶球长时间在靶回路中循环流动会 产生碰撞、冲刷、接触滚动滑动,仍然会产生严重 的摩擦磨损。另外,为了进一步提高系统的可用性、 安全性和可靠性,现有颗粒流靶材料的成分与制备 工艺优化也需要深入研究。

(三) ADS 装置用核燃料材料

1. 新型核燃料制备

根据 ADANES 原理, ADS 装置中使用的核 燃料将由传统核电站反应堆的"精耕细作、吃细 粮"变为"吃粗粮且吃干榨净"。通过图 4 所示的 ADRUF 循环示意图可知,这种类型的核燃料可将 铀资源利用率由目前的"不到 1%"提高到"超过 95%",并且该类核燃料经过处理后核废料量不到 初始乏燃料的 4%,放射寿命由数十万年缩短到约 500 年。



图 4 ADRUF 循环的具体实施路线示意图

为了实现先进的闭式核燃料循环,必须发展相应的先进嬗变核燃料,实现将分离中子毒物后的乏燃料制备成再生嬗变核燃料。目前,近代物理研究所与瑞士保罗谢勒研究所(PSI)合作共同研制了一种室温无冷却即时混合与微波辅助加热相结合的快速溶胶凝胶工艺平台,并利用该平台成功制备出碳化铀核燃料小球[15]。所制备的UC陶瓷小球粒径为(675±10)µm,密度可达到理论密度的92%以上。同时,为了模拟利用乏燃料制备再生核燃料小球,利用该工艺又成功制备了含有20%摩尔比Ce以及同时含有20%Ce和10%Nd的金属混合碳化物陶瓷小球,陶瓷小球为具有UC立方相结构的MC(M=U、Ce和Nd)共溶体。该工艺可直接应用于先进闭式燃料循环中再生碳化物核燃料小球的制备。

由于乏燃料具有很强的放射性以及生物毒性, 将乏燃料转化为再生核燃料元件需要在密闭的手套 箱内通过远程控制完成,这导致再生核燃料制备困 难。目前采用的干法首端处理工艺以及再生核燃料 制备工艺的技术路线,还需要进行大量的研究。

2. 核燃料包壳材料

目前铅冷快堆运行温度和辐照损伤相对较低,现有奥氏体钢(15-15Ti)和F/M钢基本可以满足 要求。若进一步提高运行温度和燃耗,反应堆包壳 材料将面临更加严重的挑战。

ADS 铅冷快堆燃料包壳将承受辐照超过 200 dpa, 现有的奥氏体钢没法满足服役工况。研究表明 HT9 在 420℃辐照损伤达到 200 dpa,辐照肿胀为 1% [16],但 F/M 钢中目前缺乏更高辐照损伤数据。 燃料包壳温度超过 600℃,F/M 钢(T91、HT9等) 和奥氏体不锈钢(15-15Ti等)均存在高温机械性能 退化问题,新型 F/M 钢、ODS 钢或 SiC 陶瓷材料 是今后研究的主要方向。在更高温度和更强辐射工 况下,反应堆燃料包壳材料面临的液态金属冷却剂 腐蚀问题也更加严峻[17]。高温会显著促进液态铅/ 铅铋对材料的腐蚀,最新的研究显示辐照也存在同 样的效应,但目前依然缺乏了解和数据积累,需要 进一步进行攻关研究。

对于未来 ATF 包壳用陶瓷材料,制备工艺复杂,各向异性、脆性断裂、热冲击断裂、常规和辐 照数据不够充分等问题尚未解决,难以满足需求, 材料的热工数据有待完善。另外,陶瓷包壳燃料元 件在冷却剂泄漏事故(LOCA)条件下的热物理综 合性能的评估还有待系统开展。

(四) ADS 装置用材料的设计制备与快速筛选评价

1. 材料的设计制备

从 ADS 发展战略规划 [1,2] 角度来看,目前对 极端事件发生时材料的失效行为、规律及内在机理 研究不足。同时,从初始利用计算机模拟材料成分 优化设计、结构及部件设计优化,成分设计 – 组织 结构 – 工艺 – 性能评价之间的有机联系没有完全建 立,缺乏准确的材料性能预测模型。在材料的设计 制备评价过程中,目前国内缺少统一的标准和规范 的流程,导致不同来源的数据相互无法对比、印证; 另外,国内不同单位研发的材料基础参数数据库不 能共享,导致材料研发效能低下,严重影响了先进 核能新材料的研发工作。

2. 核材料的快速筛选评价

利用反应堆内辐照、加速器离子模拟辐照及散 裂靶等新型中子源辐照等可以进行核材料的快速筛 选评价工作。但是,对于材料在先进核能装置全生 命周期所受中子通量和损伤水平来说,目前的反应 堆内材料中子辐照远不能满足日益增长的反应堆 核材料辐照评价需求。再者,目前国内外缺乏足 够数量的核材料的快速筛选评价平台,如强流中 子源辐照装置、放射性材料处理与分析检测平台 等,严重制约了新型核材料的研发与候选材料的 筛选评价。

五、ADS 用材的发展建议

(一) 重点研发的材料

1. 次临界反应堆材料

对于未来 ADS 装置,可能的候选材料是新型 F/M 钢、铁素体(ODS)钢、SiC、SiC_f/SiC 材料或 高温合金。

ODS 钢是一种有望替代传统 F/M 钢作为未来 反应堆中服役于高温(>650℃)环境中的候选结构 材料。ODS 钢的许用温度可以提高到 800℃左右, 同时具备优异的抗辐照性能。但目前 ODS 钢的规 模化工业制备、加工处理工艺以及综合性能评价等 都需要进一步强化攻关研究。

SiC 或 SiC_f/SiC 等陶瓷材料具有优秀的高温性

能,同时与液态铅金属也有良好的相容性。但缺乏 在高温(1000℃)和高剂量(>30 dpa)中子辐照 条件下材料结构和性能变化数据,还需开展大量的 研究工作,主要包括:①高韧性、高热导新型复 合陶瓷的研发;②陶瓷精细加工及连接工艺研究; ③热力学性能与抗辐照性能评估;④与冷却剂相容 性研究;⑤辐照/腐蚀协同作用下结构损伤和性能 衰退评估等。

2. 高功率散裂靶材料

散裂靶束窗材料应研发高强度、高导热、抗辐 照、耐热冲击且易于加工成型(异型件)的材料。

靶材料的制备研发已取得阶段性进展,但试验数据不足,性能也有待改进。需要进一步优化成分和结构设计,研发具有高中子产额、抗辐照、结构和性能稳定的新材料,以满足 ADS 工业化的要求。

3. ADS 装置用核燃料材料

进一步优化和完善乏燃料干法处理以及再生核 燃料制备的工艺技术路线,在利用室温无冷却即时 混合与微波辅助加热相结合的快速溶胶凝胶工艺平 台制备模拟核燃料小球的基础上,进一步开展乏燃 料再生核燃料小球的制备工艺研究,探索并实现制 备 ADS 装置用再生碳化物核燃料小球。

研发 ADS 用事故容错燃料(ATF)元件的燃料包壳材料,特别是重点突破包壳用增韧复合陶 瓷材料。

(二)高性能材料研究平台建设

1. 强流中子源辐照平台

中国是世界上核能装置发展最快的国家,随着 国内多种先进核装置立项,抗辐照材料研发与新型 燃料组件国产化迫切需要强中子辐照测评平台。建 议尽快启动并重点建设由强流离子加速器和次临界 包层构成的强流中子源装置,用以开展新型核燃料 和材料的中子辐照实验研究,满足进行 ADS 用材 料研发与评价、新型核燃料的辐照考验、再生燃料 元件的初步测试等的需求。

2. 材料设计与离子辐照快速筛选研究平台

建立材料设计研究平台,利用计算机模拟进行 材料成分优化设计、结构及部件设计优化,把成分 设计-组织结构-性能评价有机联系在一起,建立 准确的材料性能预测模型。

考虑到反应堆中子损伤速率低、周期长、费用

高以及热室资源有限等不利因素对材料的辐照性能 评价工作的限制,需要改进现有的中子/离子辐照 大装置及其配套建设的材料辐照与性能测试分析平 台,以保障进行大量的评价实验工作的需求。

结合材料基础参数数据库的建设,用统一的标 准化数据,计算机模拟与实验研究相结合,构建材 料成分、组织、工艺和性能之间的内在联系,加速 新材料的评价筛选。

3. 放射性材料处理与分析检测平台

利用各类中子源开展核能材料辐照损伤机理研 究与抗辐照材料研发与评价工作,因材料具有较高 的放射活性,需要各中子辐照研究平台配备可用于 对高放射性材料的存放、冷却、分析、检测进行遥 操的标准化大/小型热室。主要建设由全热室和半 热室组成的放射性材料处理与分析检测平台。同时, 建立统一规范的自主化核材料标准试验体系,用以 不同辐照平台材料性能评价及对比。利用该平台能 够开展压水堆乏燃料干法后处理以及相关的工艺操 作、嬗变元件制造以及相关的工艺操作、乏燃料检 测等,满足新型燃料研发、核燃料循环后处理、核 材料研究等方面的需求。

4. 材料评价数据库平台

材料评价数据库是开展 ADS 装置设计的基础。 核材料研发需要较长的时间周期,为了确保材料数 据的可靠性和有效性,必须要构建不同材料的基础 数据和辐照评价数据库平台,体现传达材料数据的 质量与成熟度。在建立自主化核材料标准试验体系 的基础上,强化行业、学科之间的密切合作,通过 标准化数据及共享系统的建设,最终形成的材料共 享数据库,将对未来我国的新型核能材料以及先进 核能系统的研发产生深远的影响。

参考文献

- 詹文龙,徐瑚珊. 未来先进核裂变能——ADS 嬗变系统 [J]. 中 国科学院院刊, 2012, 27(3): 375–381.
 Zhan W L, Xu H S. Advanced fission energy program — ADS transmutation system [J]. Journal of the Chinese Academy of Sciences, 2012, 27(3): 375–381.
- [2] Xu H S, He Y, Luo P, et al. China's accelerator driven sub-critical system (ADS) program [J]. Activities and Research News, 2015, 25(3): 30–35.
- [3] Murty K L, Charit I. Structural materials for Gen-IV nuclear reactors: Challenges and opportunities [J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 383(1–2): 189–195.

- [4] Yang L, Zhan W L. New concept for ADS spallation target: Gravity-driven dense granular flow target [J]. Science China, Technological Sciences, 2015, 58(10): 1705–1711.
- [5] Organisation for Economic Co-operation and Development. Status report on structural materials for advanced nuclear systems [R]. Paris: Organisation for Economic Co-operation and Development, 2013.
- [6] Bach H T, Anderoglu O, Saleh T A, et al. Proton irradiation damage of an annealed Alloy 718 beam window [J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, 459: 103–113.
- [7] 李冠兴, 武胜. 核燃料 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2007.
 Li G X, Wu S. Nuclear fuel [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2007.
- [8] Davis T P. Review of the iron-based materials applicable for the fuel and core of future Sodium Fast Reactors (SFR) [R]. Research Project ONR-RRR-088, 2018.
- [9] Boutard J L, Alamo A, Lindau R, et al. Fissile core and tritiumbreeding blanket: Structural materials and their requirements [J]. Comptes Rendus Physique, 2008, 9: 287–302.
- [10] Zinkle S J, Ghoniem N M. Prospects for accelerated development of high performance structural materials [J]. Journal of Nuclear Materials, 2011, 417(1–2): 2–8.

- [11] Zinkle S J, Busby J T. Structural materials for fission & fusion energy [J]. Materials Today, 2009, 12(11): 12–19.
- [12] Garner F A. Void swelling and irradiation creep in light water reactor environments, radiation effects consulting [R]. USA: Woodhead Publishing Limited, 2010.
- [13] Dai Y, Jia X, Thermer R, et al. The second SINQ target irradiation program, STIP-II [J]. Journal of Nuclear Materials, 2005, 343: 33–44.
- [14] Zhang J, Li N. Review of studies on fundamental issues in LBE corrosion [R]. LANL/LA-UR-04-0869, 2004.
- [15] Tian W, Guo H, Chen D, et al. Preparation of UC ceramic nuclear fuel microspheres by combination of an improved microwaveassisted rapid internal gelation with carbothermic reduction process [J]. Ceramics International, 2018, 44: 17945–17952.
- [16] Klueh R L, Kai J J, Alexander D J. Microstructure- mechanical properties correlation of irradiated, conventional and reducedactivation martensitic steels [J]. Journal of Nuclear Materials, 1995, 225: 175–186.
- [17] Stergar E, Eremin S G, Gavrilov S, et al. Influence of LBE long term exposure and simultaneous fast neutron irradiation on the mechanical properties of T91 and 316L [J]. Journal of Nuclear Materials, 2016, 473: 28–34.