

连续碳化硅纤维增强碳化硅陶瓷基复合材料在先进核能领域的发展研究

罗瀚¹, 陈博文¹, 黄鹤飞², 王苍龙³, 姜志忠⁴, 周海山⁵, 陈向阳⁶, 王晓敏⁷,
张瑞谦⁷, 董绍明^{1*}

(1. 中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 201899; 2. 中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201800; 3. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000; 4. 中国科学院合肥物质科学研究院核能安全技术研究所, 合肥 230031; 5. 中国科学院合肥物质科学研究院等离子体物理研究所, 合肥 230031; 6. 上海核工程研究设计院股份有限公司, 上海 200233; 7. 中国核动力研究设计院, 成都 610213)

摘要: 先进核能系统的发展对核材料在多场耦合极端环境中的服役稳定性提出了更高要求。连续碳化硅纤维增强碳化硅(SiC_f/SiC)陶瓷基复合材料具有低密度、高温力学性能优异、抗腐蚀、耐辐照等优点, 且在外力作用下呈现“假塑性”断裂行为, 被视为先进核能系统中极具应用前景的新型结构材料。本文首先从材料级、构件级、服役性能三个层面系统总结了核用SiC_f/SiC复合材料的基础研究体系, 分析了美国、法国、日本等传统核电强国, 其他新兴核电国家和我国在核用SiC_f/SiC复合材料领域的发展趋势, 梳理了我国核用SiC_f/SiC复合材料在原材料、数据积累和专利标准等方面存在的问题与发展面临的挑战, 针对性地提出了相关措施与建议, 包括加强材料制备技术研发、发展研发新范式、强化“产学研用”合作关系、在坚持以我为主的基础上加强国际交流等, 以期为我国核用SiC_f/SiC复合材料领域的研究方向及决策制定提供参考。

关键词: 先进核能系统用材; SiC_f/SiC复合材料; 材料设计; 服役性能

中图分类号: TB33 **文献标识码:** A

Development Strategy of Continuous Silicon-Carbide-Fiber-Reinforced Silicon Carbide Ceramic Matrix Composites in the Field of Advanced Nuclear Energy

Luo Han¹, Chen Bowen¹, Huang Hefei², Wang Canglong³, Jiang Zhizhong⁴, Zhou Haishan⁵,
Chen Xiangyang⁶, Wang Xiaomin⁷, Zhang Ruiqian⁷, Dong Shaoming^{1*}

(1. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201899, China; 2. Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China; 3. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China; 4. Institute of Nuclear Energy Safety Technology, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China; 5. Institute of Plasma Physics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China; 6. Shanghai Nuclear Engineering Research and Design Institute Co., Ltd., Shanghai 200233, China; 7. Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610213, China)

收稿日期: 2024-05-17; 修回日期: 2024-06-16

通讯作者: *董绍明, 中国科学院上海硅酸盐研究所研究员, 中国工程院院士, 主要研究方向为陶瓷基复合材料; E-mail: smdong@mail.sic.ac.cn

资助项目: 中国工程院咨询项目“关键材料体系自立自强战略研究”(2022-PP-02)

本刊网址: www.engineering.org.cn/ch/journal/sscae

Abstract: The development of advanced nuclear energy systems imposes stringent requirements on the service stability of nuclear materials under extreme environments characterized by multiple stressors. Continuous silicon-carbide-fiber-reinforced silicon carbide (SiC_f/SiC) ceramic matrix composites possess advantages such as low density, excellent high-temperature mechanical properties, corrosion resistance, and irradiation tolerance. Furthermore, SiC_f/SiC composites demonstrate a pseudo-ductile fracture behavior under external forces, positioning them as highly promising structural materials for advanced nuclear energy systems. This study systematically summarizes the fundamental research framework on nuclear-grade SiC_f/SiC composites at the material, component, and service performance levels. It also analyzes the developmental trends in this field among traditional nuclear powerhouses such as the United States, France, and Japan, as well as in other emerging nuclear energy countries and China. Furthermore, the study identifies existing issues and challenges faced by China's nuclear-grade SiC_f/SiC sector in terms of raw materials, data accumulation, and patent standards, and proposes targeted measures and suggestions: (1) strengthening the research and development of material preparation technologies, (2) developing a new paradigm of research and development, (3) reinforcing the industry-university-research-application cooperation, and (4) enhancing international exchanges on the basis of maintaining independence. The aim of the study is to provide guidance and reference for the research directions and policy-making in China's nuclear-grade SiC_f/SiC sector.

Keywords: materials used for advanced nuclear systems; SiC_f/SiC composite; material design; service performance

一、前言

核能具有清洁低碳、安全高效等优势，是面向国家重大能源需求、打造战略威慑力量体系必须重点发展的能源方向。1983年，“核能发展技术政策论证会”首次提出的“热堆—快堆—聚变堆”核能“三步走”发展战略已取得了瞩目成就：截至2024年3月，我国内地在运核电机组有55台（全球排名第三），在建核电机组有26台（全球排名第一）；2017年12月，首个快堆示范工程在福建省霞浦县开工；2024年3月，第四代核能供热系统——华能石岛湾高温气冷堆示范工程核能供暖项目正式并网运行；我国自主设计研制的可控核聚变大科学装置——新一代人造太阳“中国环流三号”项目在国际上首次发现并实现了一种先进磁场结构，对提升核聚变装置的控制运行能力具有重要意义。总的来说，我国目前已跻身世界核电大国行列，完全具备向核电强国迈进的基础条件。

核安全是核事业的生命线，也是先进核能系统持久发展的基石。党的二十大报告中明确指出，要积极安全有序发展核电。核材料作为反应堆设计的根本支撑，其性能与反应堆安全性密切关联，被视为核工业的重要支柱。先进核材料在发展核能经济、部署国家战略、提升国际竞争力、保障核能安全等方面都发挥着基础性、示范性、引领性的作用。随着核动力卫星使用的空间核反应堆、核动力火箭配套的核热推进、移动式微型反应堆和聚变堆等的发展，“一代材料、一代装备”的理念在核材料领域更为凸显，相关基础研究工作也受到广大科研人员的重视，迫切需要开发新型核材料以支撑先

进核能系统的设计升级。此外，在全球化大背景下，结合发展新质生产力要求，提升先进核材料的基础研究和工业应用水平，也将大力助推我国由核电大国向核电强国的转变。

目前，核反应堆关键材料仍以金属材料为主，核用陶瓷材料包括：含铀或钚可裂变核素的燃料材料、含硼或钷等元素中子吸收（控制）材料、含铍或氢等元素的慢化剂和反射层材料、高温气冷堆三元结构各向同性（TRISO）燃料SiC涂层、聚变堆含 ^6Li 陶瓷增殖材料、空间堆碱金属热电转换器中的 Al_2O_3 基体材料等。其中尚无陶瓷材料在核反应堆结构部件中应用，这主要归结于陶瓷材料对缺陷、裂纹的极高敏感性和自身化学键等特性赋予的本征脆性。

近年来，连续纤维增强陶瓷基复合材料以其轻质、耐极端高温、非脆性断裂等特性，在航空、航天等高新技术领域应用广泛，在核能领域的基础与应用研究也得到了广泛关注。本文选取具有代表性的连续碳化硅纤维增强碳化硅（ SiC_f/SiC ）陶瓷基复合材料体系，系统梳理面向先进核能系统应用的 SiC_f/SiC 复合材料基础研究的整体脉络和框架，总结国内外发展现状，分析我国核用 SiC_f/SiC 复合材料发展存在的问题，针对性提出相关措施建议，期为我国核用 SiC_f/SiC 复合材料领域的研究方向及决策制定提供参考，也为其他先进陶瓷基复合材料的研究提供借鉴。

二、核用 SiC_f/SiC 复合材料的研究体系

SiC具有轻质、高强、高硬度、高热导率、高

熔点、化学惰性等优点，是航空、航天等领域的新一代关键热结构材料，且其兼具热中子吸收截面低、抗辐照等特点，可进一步拓展至先进核能系统中作为结构材料应用，以 SiC 为燃料包覆层的 TRISO 燃料颗粒已被成功应用于高温气冷堆^[1]，随机弥散分布 UO₂ 陶瓷球的中空六棱柱 SiC 陶瓷构件也处于设计阶段^[2]。然而，SiC 具有强共价键，在服役过程中极易发生脆性断裂而出现灾难性破坏，这与核能系统的高安全性设计初衷背道而驰。以连续 SiC 纤维为骨架、SiC 基体为肌肉，引入界面相材料作为衔接两者的纽带，构筑多组元 SiC_f/SiC 复合材料，在外应力作用下将呈现非脆性失效（假塑性）模式，具有更高的安全裕量，这主要归因于通过界面相传递基体和纤维之间的应力，且捕获和偏折基体裂纹而耗散能量，进而发生裂纹偏转、界面脱粘、纤维拔出等现象^[3]。近年来，SiC_f/SiC 复合材料已成为先进核用材料的研究热点之一，受到广大科研人员的关注。然而，在先进核能系统中，结构材料的服役环境兼具高温、高压、高剂量辐照、高腐蚀性等特征，且服役周期长、安全性要求高，对核用 SiC_f/SiC 复合材料提出了极大考验。从 SiC_f/SiC 复合材料自身多组元（纤维、界面相、基体、涂层）构性调控出发，开展满足核用 SiC_f/SiC 复合材料构件尺寸与结构设计要求的成型、加工与连接等，进而推动力（疲劳、蠕变、磨损）、热、腐蚀（与冷却剂、核燃料芯块、吸收体材料等的相容性）、辐照及多场耦合服役环境评价，是核用 SiC_f/SiC 复合材料的完整研究体系链条。

（一）核用 SiC_f/SiC 的材料组元设计与结构调控

连续 SiC 纤维是在 SiC_f/SiC 复合材料中起到增强增韧、承载作用的主要结构单元，其中的氧、游离碳含量将直接影响 SiC 纤维强度、耐温、抗氧化和耐辐照等关键性能。由于 I 代 SiC 纤维成分富碳、富氧，II 代 SiC 纤维成分富碳，均难以胜任核用 SiC_f/SiC 复合材料性能需求。低氧碳含量、近化学计量比和结晶度较高的 III 代 SiC 纤维较 I、II 代 SiC 纤维，在耐高温、抗氧化性、抗高温蠕变和抗辐照性能方面均显著提高，且相较于辐照交联型细晶粒 SiC 纤维，烧结型大晶粒 SiC 纤维的辐照稳定性更为优异^[4]。目前，针对连续 SiC 纤维的研究多集中于 Zr、Al、Ti 等异质元素掺杂、晶粒结构调控和高

温/超高温力学性能研究。

先进核能系统的特殊服役环境对 SiC_f/SiC 复合材料基体的结晶度、纯度等要求极高。目前仅有化学气相沉积（CVI）和纳米浸渍瞬态共晶（NITE）法可以实现核用 SiC_f/SiC 复合材料基体致密化。CVI 的优点包括：工艺温度相对较低，对 SiC 纤维的损伤较小；获得的 SiC 基体纯度高，杂质含量低；能通过自由调控 CVI 参数对基体的化学成分进行设计；气相扩散能力强，便于制造大型、薄壁、复杂的近终型构件，是国内外广泛采纳的核用 SiC_f/SiC 复合材料制备方法^[5]。然而，CVI-SiC_f/SiC 材料仍存在孔隙率高、致密度不均匀、热导率低、工艺周期长、产生废气废水污染等问题；此外如何通过沉积炉的热场流场数值模拟优化 CVI 工艺也是一个重要研究方向^[6]。NITE 是 21 世纪初由日本科学家联合我国董绍明院士团队开发的新型 SiC_f/SiC 复合材料基体致密化工艺，工艺周期相较 CVI 得到大幅度缩短，且 NITE-SiC_f/SiC 材料具备孔隙率低、热导率高、基体致密、结晶程度高、不含残余硅等诸多优点，适合高温环境下长时间使用，但 NITE 过程中的高温高压条件极易对 SiC 纤维造成损伤，且基体中残余的烧结助剂可能含有中子毒物。低中子毒物烧结助剂的开发会降低 NITE 工艺的烧结温度并实现无压烧结，但是不可避免会形成高体积分数的晶界相，增加中子辐照下的材料缺陷并引发裂纹、肿胀等^[7]。此外，NITE 工艺需要通过加压辅助实现致密化，往往只能获得简单结构（如平板、短管、碗状）的 SiC_f/SiC 复合材料构件，对于特殊形状工件的制备提出了巨大挑战。中国核动力研究设计院对此提出了基于热等静压方法的 CVI+无模具 NITE 工艺并取得了一定效果，后续需要进一步实验验证该复合工艺在高长径比包壳管制备中的应用情况^[8]。

SiC 纤维与 SiC 基体间的界面相起到保护纤维、传递载荷、偏转裂纹等作用，是决定核用 SiC_f/SiC 复合材料服役性能的关键。目前常用的 SiC_f/SiC 界面相材料包括热解炭（PyC）、六方氮化硼（h-BN）、MAX 相和多层复合界面相材料等^[9]。PyC 界面相和多层界面相在高剂量中子辐照下将发生收缩-肿胀-无定型的结构演变，且后者被破坏后更容易导致界面相剪切强度和界面摩擦应力的急剧降低。对于 h-BN 界面相，其中 B 元素的 B-10 同位素

(天然丰度约为19.8%)具有极高的热中子吸收截面,在辐照环境中会发生显著体积变化并产生氦,导致界面脱粘和失效,尽管可使用富集B-11的原料去替代常规的CVI-BN前驱体,但实验成本极高,目前尚无相关研究报道。近年来,具有特殊层状结构的MAX相材料作为核用 SiC_f/SiC 复合材料的界面相材料也受到了广大科研人员的关注,主要工艺为熔盐法^[10]、浸涂^[11]和电泳沉积^[12,13]等,但需要进一步提高界面相均匀性、降低制造成本并经过更为系统的高温和辐照试验。总的来说,契合核用环境的 SiC_f/SiC 界面相材料需要持续进行研发攻关。

核用 SiC_f/SiC 复合材料表面的环境障碍涂层(EBCs)是隔绝冷却剂腐蚀、提高 SiC_f/SiC 复合材料抗氧化、耐磨损性能的第一道屏障。长期以来,核用 SiC_f/SiC 复合材料的涂层以同质材料CVD-SiC为主^[14],相关科学研究尚未得到足够的重视,后续可以进一步开展事故容错燃料(ATF)涂层材料、MAX相涂层、高熵金属/陶瓷涂层材料等的制备工艺探索及涂层与 SiC_f/SiC 基材和冷却剂的相容性研究^[15],这也是未来核用 SiC_f/SiC 复合材料的重要研究方向之一。

(二) 核用 SiC_f/SiC 复合材料的构件成型、加工与连接

从应用角度看, SiC_f/SiC 复合材料作为典型的连续纤维增强陶瓷基复合材料, SiC 纤维在基体中的分布、排列方式、均匀性和体积含量等将对 SiC_f/SiC 复合材料的性能存在重要影响。需要根据实际结构设计和构件承载要求,使用缠绕、铺层、编织、针刺、缝合等方式制备不同结构的 SiC 纤维预制体^[16]。然而, SiC 纤维的模量高、集束性差、单丝脆性大,成型过程中纤维自身与其他接触部件不可避免地发生摩擦,很容易产生单丝断裂、纤维束劈丝等现象,结构缺陷将进一步传导给 SiC_f/SiC 复合材料本身^[17]。对 SiC 纤维表面上浆剂和预制体成型工艺进行优化调控,是获得高质量 SiC_f/SiC 纤维预制体的首要攻关方向。

为满足 SiC_f/SiC 构件的特定尺寸结构、几何公差、表面平整性、装配面等要求, SiC_f/SiC 由材料级向构件的转化过程中必然会经历机械加工过程,但组成 SiC_f/SiC 复合材料的基体及增强相的硬度高、

抗磨损,属于典型的高、硬、脆难加工材料,加工过程中易产生材料碎裂、纤维断裂剥离拔出、微裂纹和凹坑等结构损伤,进而对核用 SiC_f/SiC 构件的尺寸精度与使用寿命产生较大影响^[18,19]。此外, SiC_f/SiC 复合材料加工过程中的刀具和砂轮磨损严重、切削力难以把控、精度质量难以满足要求,一般采用树脂/金属结合金刚石刀具或磨料进行加工,且成本较高,因此针对特殊结构核用 SiC_f/SiC 构件的高效率、低损伤加工技术的开发迫在眉睫。

SiC_f/SiC 构件在实际使用过程中需要与其他结构件进行密封式或连通式连接,以防止高放射性裂变产物的泄漏、阻止裂变气体逸出、隔离冷却剂与核燃料,如压水堆核燃料包壳首尾两端的 SiC_f/SiC -SiC陶瓷连接、熔盐堆控制棒套管的 SiC_f/SiC -镍基合金连接等,连接的可靠性将直接关系到反应堆安全。使用机械铆合等方式很难达到无缝连接,显然可靠性不足,而使用特殊的合金、玻璃、陶瓷等对核用 SiC_f/SiC 复合材料进行反应式的焊接,重点需要关注连接层与基材的界面润湿性和化学相容性,且必须考虑到连接层材料自身的耐辐照特性、低中子活性和耐腐蚀性,尤其是对高温高压水、氟熔盐、液态金属等的耐受特性^[20,21],否则连接层材料将成为 SiC_f/SiC 构件的薄弱点,因此,发展高可靠性核用 SiC_f/SiC 构件连接技术势在必行。

(三) 核用 SiC_f/SiC 复合材料的服役行为研究

核用 SiC_f/SiC 作为典型的各向异性、非均质、跨尺度复合材料,在反应堆内多种环境因素的耦合作用下,其结构、成分、性能将发生显著改变,其中辐照和腐蚀两大效应是影响其服役性能的关键,且应力、高温等条件也将显著加速 SiC_f/SiC 复合材料性能退化。因此, SiC_f/SiC 辐照损伤行为、腐蚀效应及辐照-腐蚀共同作用下的失效机理研究是开发高安全性核用 SiC_f/SiC 复合材料的重要基础^[22]。表1对多种核能系统中 SiC_f/SiC 拟应用的部件面临的辐照损伤范围和腐蚀介质种类等环境参数进行了归类。在高温高压水环境中 SiC 与 H_2O 反应形成 SiO_2 ,而 SiO_2 在水中易形成硅酸而被溶解,温度、氧浓度、氢浓度和pH值等环境因子是影响 SiC 水热腐蚀过程的重要参数,尤其是辐照作用会提高腐蚀速率几个量级;在高温液态金属环境中, SiC 的耐腐蚀性能显

表1 各类堆型服役环境

系统	SiC _f /SiC 复合材料 (拟) 应用的部件	中子辐照损伤范围/dpa	腐蚀介质种类	腐蚀介质温度范围/°C
压水堆	ATF 包壳	8~10	正常运行工况下含 3.5 μg/gLi、 1000 μg/gB 的高温高压水 (15.5 MPa), 事故工况下为高 温水蒸气	320~360 (正常工况)、 1200 以上 (事故工况)
熔盐堆	控制棒套管	20~40	67LiF-33BeF ₂ (FLiBe)、 46.5LiF-11.5NaF-42KF (FLiNaK)、FNaBeZrU/Th	650~1000
铅基堆	包壳、主容器	50~100	Pb 或 PbBi	400~650
聚变堆	液态包层流道插件, 包层第一壁材料	~100	液态锂铅	400~700

著优于低活化铁素体/马氏体钢和 Al₂O₃, 3000 h 腐蚀失重率小于 0.1%^[23]。其腐蚀机制主要是 C 在铅铋合金中的溶解度大于 Si, 且辐照导致 Si—C 键断裂形成 Si—Si 键和 C—C 键, 由于 C 原子的迁移率更高, 更容易导致表面富集和向 LBE 中的扩散和溶解^[24], 此外在有杂质氧的情况下, SiC 将与 PbO 反应生成 SiO₂、Pb 和 C, 这也是辐照、杂质等因素加速腐蚀的另一个原因^[25]; 针对熔盐堆体系, SiC 在熔融氟盐中的腐蚀主要是有温差驱动腐蚀、杂质驱动腐蚀和异质材料驱动腐蚀三种不同的腐蚀机理, SiC 在熔融氟盐环境下表现出一定的润湿性和化学反应性, 但只要保持盐的纯度、温度的均一性及环境的单一性, 理论上可维持稳定, 然而在实际熔盐堆环境中 (存在温差及异质腐蚀的条件, 且面临极高的载能粒子注入) 达到以上要求十分困难。利用离位、原位离子辐照装置和高通量中子试验堆对 SiC_f/SiC 复合材料的辐照性能进行测试, 结合高温高压釜、动态腐蚀介质回路装置开展 SiC_f/SiC 复合材料的腐蚀特性研究, 进而获取核用 SiC_f/SiC 复合材料关键性能的演变规律, 建立 SiC_f/SiC 复合材料服役后的构性关联模型, 是反馈优化高安全性 SiC_f/SiC 复合材料的结构、成分、性能优化设计的重要数据支撑。

三、国外核用 SiC_f/SiC 复合材料的发展现状

(一) 核用 SiC_f/SiC 复合材料起源

1975 年, SiC 首次被提出作为聚变堆用低活化

结构材料。随着连续 SiC 纤维的工程化取得进展, 核用 SiC_f/SiC 复合材料开始受到研究人员的广泛关注。美国能源部 (DOE) 聚变能源办公室在 1990 年组织了首个关于陶瓷基复合材料作为聚变结构材料应用的研讨会。美国的聚变反应堆概念研究工作在 ARIES-I 设计中使用氦冷却的 SiC_f/SiC 作为第一壁、包层、屏蔽、偏滤器结构材料^[26], 而欧洲的 Tauro 概念则采用了 Pb-Li 自冷 SiC_f/SiC 作为结构材料^[27], 但由于聚变堆设计的前瞻性, 目前 SiC_f/SiC 复合材料尚未在其中得到应用。2011 年日本福岛核事故后, 核能界对核燃料安全提出了更高的要求, DOE 率先提出事故容错燃料概念, 可显著提高核燃料在正常工况下的经济性及在事故工况下的安全性, 被视为核能发展的里程碑变革, 也是国际核电强国争相竞逐的核心技术, 其中 SiC_f/SiC 作为新型的 ATF 包壳材料得到重点关注^[28]。此外, 随着第四代先进核能系统的发展, SiC_f/SiC 也成为其中关键结构部件的重要候选材料, 如作为高温反应堆的核燃料/吸收体的包壳材料、铅基堆的结构容器材料和熔盐堆的热工水力段等。

(二) 美国、法国、日本的核用 SiC_f/SiC 复合材料研究进展

美国西屋电气公司 (Westinghouse) 是全球核工业领域的领先单位, 其联合美国通用原子能公司 (General Atomics)、爱达荷国家实验室 (INL) 等单位, 采用 CVI 获得了各项性能指标良好的 SiC_f/SiC 包壳管, 对焊接密封、工艺稳定性等关键

技术问题也进行了攻关，并致力于将 EnCore 品牌下的 ATF 进行商业化，原计划于 2022 年将 SiC_f/SiC 包壳置于商业反应堆中进行辐照。美国麻省理工学院开展了辐照环境下 SiC 陶瓷和 SiC_f/SiC 的性能对比研究；美国通用电子公司采用 CVI 制备了不同编织结构的 SiC_f/SiC 包壳管，系统研究了其力学、热学、密封性能与结构参数间的关系^[29]。INL 正在开展西屋电气公司、通用电气公司和法马通公司的燃料样品入堆辐照试验，并积累了大量堆内中子辐照数据。此外，在美国能源部先进反应堆示范计划 (ARDP) 中，加拿大核能公司 BWXT 受美国国防部 (DOD) 资助，将持续推进移动式微型反应堆 Pele 项目，其中拟使用 TRISO 燃料颗粒，并引入 SiC 基复合材料进行设计优化。

法国法马通公司联合法国原子能机构和法国电力公司成功研制出 SiC_f/SiC 多层结构复合包壳，这一概念最初是由法国替代能源和原子能委员会 (CEA) 于 2000 年为第四代反应堆开发设计提出，包括缠绕、二维和三维编织结构，并研究了二维互锁结构对 SiC_f/SiC 包壳管轴向和环向拉伸强度的影响规律，于 2016 年在瑞士戈斯根 (Gosgen) 工厂开始进行轻水堆 (PWR) 环境辐照试验。法马通公司原计划在 INL 的先进试验堆 (ATR) 中对使用 SiC_f/SiC 的燃料元件进行辐照试验，且在强化型事故容错燃料计划 (PROtect) 中和美国 GA 公司展开合作，拟将 SiC_f/SiC 进一步应用于沸水堆 (BWR) 中以替代燃料元件设计中近 40% 的锆金属。

日本在 SiC 纤维的研究和工程化方面处于国际前列，国际上成熟的 III 代碳化硅纤维 “Hi-Nicalon Type S” 和 “Tyranno SA3” 均源自于日本，这也是日本在 SiC_f/SiC 领域处于全球领先地位的关键支撑点。日本东芝公司、揖斐电电子有限公司及日本核燃料工业公司等机构已开发出可应用于核反应堆堆芯的先进 SiC 制造技术：通过采用改进的化学气相沉积法和优化镀膜工艺，SiC 生成速率相较传统 CVI 方法提高接近 20 倍，显著推动了工业化进程，所得材料于 2016 年在研究堆中接受辐照测试，计划在 2025 年为商业化核电站提供产品支撑。日本三菱重工业股份有限公司联合原子能研究院研究了 SiC_f/SiC 多层结构复合包壳在 PWR 事故工况下的服役行为，认为 SiC_f/SiC 具有本征抗事故属性。此外，日本 NITE 公司借助耐高温、大晶粒 SA 型 SiC 纤维和

NITE 技术，开发了多种规格的核用 SiC_f/SiC 构件，为后续推进商业化应用提供了支撑。

(三) 其他国家的核用 SiC_f/SiC 复合材料研究进展

除了美国、法国、日本外，韩国原子能研究中心研究了三层结构 SiC_f/SiC 包壳管的环向强度与纤维编织结构之间的关系，证明通过增加纤维体积分数和缠绕角度可提高 SiC_f/SiC 包壳管的环向拉伸强度^[26]。俄罗斯核燃料产供集团 (TVEL) 的博奇瓦尔无机材料研究所 (VNIINM) 也在新一代耐事故燃料计划支持下，开发了高性能 SiC_f/SiC 包壳管。在聚变堆方面，阿联酋核能公司 (ENEC) 也计划投资 GA-EMS 开展 SiGA 包壳在商业化核反应堆和模块化快堆中的应用。

四、我国核用 SiC_f/SiC 复合材料的发展现状

目前，我国各大院校及科研院所在科学技术部、财政部、工业和信息化部、国家国防科技工业局、国家自然科学基金委员会、中国科学院等部门的政策牵引和项目支持下，结合中国核工业集团有限公司、中国广核集团有限公司、国家电力投资集团有限公司、中国华能集团有限公司等核能领域重点单位对先进核能系统用关键材料研发的迫切需求，围绕核用 SiC_f/SiC 开展了系统性的研究，总体研发思路可概括为“基于两大面向，巩固加强现有材料、设计研发未来材料”。

(一) 面向商业化压水堆，加强 ATF-SiC_f/SiC 复合材料研制

2013 年，中国核工业集团有限公司在“龙腾 2020”计划中设立耐事故燃料元件用碳化硅复合材料包壳管研发专项，中核北方核燃料元件有限公司联合上海中核八所科技有限公司，在中国原子能工业有限公司的支持下，自主研制的 SiC_f/SiC 包壳管于 2020 年 4 月完成高注量辐照考验并顺利出堆。2020 年，由西北工业大学牵头，中广核研究院有限公司、国家电投集团科学技术研究院有限公司参与的国家国防科技工业局核能开发项目“SiC/SiC 复合材料 ATF 燃料元件关键技术研究”正式获批。中国核动力研究设计院、中广核研究院有限公司、西北工业大学、中南大学、中国科学院上海硅酸盐研

研究所等单位均自主开发了 SiC_f/SiC 包壳管全流程研制技术, 涵盖高长径比管状 SiC 纤维预制体成型、化学气相渗透增密、高均匀性 CVD-SiC 涂层制备、精密加工和端塞密封等, 尽管各单位研究路线不尽相同, 但均已走通了 1~2 m 的 SiC_f/SiC 包壳研制路线, 且最终目标均瞄准全尺寸 4 m 量级 ATF-SiC_f/SiC 包壳构件。其中, 中国核动力研究设计院于 2017 年 8 月至 2017 年 12 月, 在 HFETR 堆进行了国产 SiC 纤维和 SiC_f/SiC 的中子辐照考验, 快中子注量平均值最低为 $0.8 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$), 最高为 $2.5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$), 辐照温度范围为 300~400 °C, 辐照后 SiC_f/SiC 依然保持着伪塑性断裂特征, 未发生明显脆化现象, 后续将针对华龙系列型号的应用需求, 在 2025 年搭配芯块以燃料元件的形式进一步开展辐照考核。此外, 中广核研究院有限公司在 2022 年突破了 SiC_f/SiC 包壳-端塞焊接密封技术, 并成功研制出 SiC_f/SiC 包壳燃料小棒, 通过合格性鉴定, 2023 年通过了国家国防科技工业局的安全审评许可, 是继美国西屋公司和法国法马通公司后, 全球第三家实现 SiC_f/SiC 包壳燃料小棒入堆辐照考验。

(二) 面向先进核能系统, 开展核用 SiC_f/SiC 复合材料设计优化

以熔盐堆、高温气冷堆等为代表的第四代反应堆相较商业化压水堆, 温度更高、腐蚀更严重、中子注入剂量更大, 迫切需要开展 SiC_f/SiC 的服役性能研究、相关数据库的建设以及面向不同腐蚀介质的新材料应用研发。2012 年, 中国科学院上海硅酸盐研究所系统开展了 SiC_f/SiC 的氟熔盐腐蚀机理和构性分析研究, 成功研制了 1.4 m SiC_f/SiC 管件和复杂结构 SiC 陶瓷热交换器。中国科学院近代物理研究所提出的加速器驱动的先进核能系统是解决核燃料利用率、长寿命核废料处置的先进核能技术之一, 但其堆芯材料在 550~1300 °C 的高温条件下同时承受 50~220 dpa 的辐照损伤, 结构材料在 60~80 年的服役周期内需维持较高的强度与热导率。基于此, 中国科学院宁波材料技术与工程研究所与中国科学院近代物理研究所合作, 研发了多种 SiC 陶瓷和 SiC_f/SiC 构件, 并于 2024 年成功获批全省数据驱动高安全能源材料及应用重点实验室。然而, 在聚变堆研究领域, 面向等离子体涉核部件的中子辐

照 ($> 20 \text{ dpa}$) 和高热负荷 ($> 10 \text{ MW/m}^2$) 试验条件均十分严苛, SiC_f/SiC 作为聚变实验堆堆芯部件关键材料的基础性能研究、选型评价及标准化应用研究尚未系统开展。

五、我国核用 SiC_f/SiC 复合材料发展存在的问题

(一) 核用 SiC_f/SiC 的原材料支撑不足

连续 SiC 纤维是 SiC_f/SiC 的核心组元, 相关技术由美国、日本把控且不对外出口, 属于关键军工禁运材料, 只能由我国自主开发研制。国产 III 代 SiC 纤维以泉州立亚新材料有限公司生产的“Cansas3000”系列为主, 国防科技大学已完成“KD-S”和“KD-SA”两种 III 代 SiC 纤维的研发, 中国科学院过程工程研究所、中国科学院宁波材料技术与工程研究所、湖南泽睿新材料有限公司也在积极推进国产 III 代 SiC 纤维的高质量研发并取得了显著成效。然而, 面向后续设计的新型反应堆, 如长期服役温度远超商业化压水堆的先进堆型、原子平均离位与氦产量都比目前所用的裂变堆高 1~2 个数量级的聚变堆, 均需要使用更高性能的 SiC 纤维作为基础原料。因此, 加快高性能、低成本核用 SiC 纤维的研制、性能考核与规模化稳定生产迫在眉睫。

(二) 工程数据的体系性积累不足

目前, 我国针对核用 SiC_f/SiC 的研究多聚焦于基础层面, 缺少系统化的工程应用数据, 尤其缺乏多个换料周期的长时间腐蚀性能与高温力学性能数据, 不符合美国机械工程师协会标准和法国核电设计建造标准的要求。此外, SiC_f/SiC 在反应堆内使用往往需要与金属材料进行连接或制备成多层结构部件, 但铝合金、不锈钢等金属材料与 SiC_f/SiC 的热膨胀系数与延伸率相差较大, 在反应堆启停堆造成的温度波动下, 如何通过先进连接方法和新型结构设计, 减少两者间的热应力失配以及避免相关部件开裂是一大挑战。此外, 对于聚变反应堆液态包层用流道插件, SiC_f/SiC 需要在现有的 CVI/CVD 工艺基础上进行大幅度调整, 制备低热导率和低电导率的 SiC_f/SiC 部件进而满足绝热和绝缘要求, 这也是亟需攻克的难题。

(三) 在ATF燃料领域的专利、标准等体系建设方面存在巨大挑战

西屋公司等全球龙头公司仍然是核用SiC_f/SiC基础技术路线的先行者，已在积极利用专利制度维持其技术垄断地位，未来将对我国相关领域的发展构成较大威胁。尽管2018年以后美国政府禁止向中国出口先进核技术，但西屋公司在中国的核燃料专利申请并未受《美国对中国民用核能合作框架》的影响，仍持续在我国申请SiC_f/SiC核燃料技术系列专利，表明其坚守中国核燃料市场的决心。目前，我国中广核研究院有限公司、国家电投集团科学技术研究院有限公司、西北工业大学、广东工业大学等对核用SiC_f/SiC开展了系统的专利申请，涵盖材料制备、构件制造、测试设备等方面，但相关行业标准建设速度不足，未来需要进一步提速提质。

六、核用SiC_f/SiC复合材料的发展建议

(一) 加强核用SiC_f/SiC制备技术研发

在材料研究方面需要进一步创新，打破国外专利壁垒，发展新型连续SiC纤维制备技术，进一步降低核用SiC_f/SiC的工艺探索成本及入堆前的工程化测试费用。采用复合方法对SiC_f/SiC进行优化，如结合CVD和PVD技术制备核用SiC_f/SiC复合涂层、从原子分子层面对浸渍烧结工艺前驱体进行设计进而提高PIP-SiC_f/SiC的热导率和耐辐照性能等。积极发展新型连接技术和特殊结构部件设计，如超薄壁管件内螺纹结构、圆台型端塞连接结构、SiC_f/SiC-过渡层-金属层“三明治”复合结构等。此外，面向硬脆型难加工SiC_f/SiC，亟需推动外场辅助加工等新型技术的研究和工业化。

(二) 发展核用SiC_f/SiC研发新范式

使用智能制造、虚拟制造、高通量方法、人工智能、机器学习(ML)等方式，加速核用SiC_f/SiC的基础研究，助推其产业化进程。其中，人工智能可借助大量高维数据实现复杂系统参量间关联关系的分析、预测和优化，捕捉传统力学方法难以发现的规律，有望克服传统“炒菜式”、试错型材料研究方法的局限性。ML作为人工智能的一种重要实现手段，可进一步加速核用SiC_f/SiC的研发优化过程，包括①数据驱动的材料设计：通过机器学习对

大量实验和模拟衍生数据进行学习，建立预测模型，快速筛选出具有优异性能的材料配方和工艺条件；②工艺参数优化：利用ML对制备过程中的关键工艺参数进行优化，如温度、压力、时间等，以提高材料的质量和性能，使其达到最优；③性能预测与评估：可依托同步辐射、散裂中子源等大科学装置开展核用SiC_f/SiC复合材料的辐照评价，并基于所得结果建立的数据库和ML方法，对辐照数据进行归类、建模，结合少量堆内试验对模型进行修正，以减少实验验证的时间和成本。

(三) 强化“产学研用”合作关系

在国家政策支持和主要单位的推动下建立“产学研用”协同机制。鼓励高校、科研院所与核能企业建立长期稳定的合作关系，共同设立SiC_f/SiC复合材料研发平台。支持跨领域、跨行业的合作，促进资源共享与优势互补。同时，增加对SiC_f/SiC复合材料基础研究和应用开发的财政支持，设立专项基金。针对企业提供税收减免、研发补贴等优惠政策，激励企业加大研发投入。建立SiC_f/SiC复合材料科技成果转化机制，加快科研成果从实验室走向生产线。支持企业建设中试基地和生产线，推动产业化进程。在人才培养方面，鼓励高校和科研院所开设SiC_f/SiC复合材料相关专业和课程，培养专业人才。

(四) 坚持以我为主，加强国际交流

在日新月异的国际环境和形势下，继续保持和发扬我国核工业独立自主、自力更生的精神基础，并进一步加强国际基础研究合作，如借助国家自然科学基金委员会国际(地区)合作研究与交流项目等，共同推进SiC_f/SiC及相关产业的发展，对航空、航天领域用陶瓷基复合材料也能起到同步助推作用。此外，还可通过参与国际标准制定、引进国外先进技术等方式，提高我国在核用SiC_f/SiC领域的国际竞争力。

利益冲突声明

本文作者在此声明彼此之间不存在任何利益冲突或财务冲突。

Received date: May 17, 2024; Revised date: June 16, 2024

Corresponding author: Dong Shaoming is a research fellow from Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, and a member of Chinese Academy Engineering. His major research field is

ceramic matrix composites. E-mail: smdong@mail.sic.ac.cn

Funding project: Chinese Academy of Engineering project: “Strategic Research on the Self-Reliance and Self-Improvement of Critical Materials System” (2022-PP-02)

参考文献

- [1] Seibert R L, Jolly B C, Balooch M, et al. Production and characterization of TRISO fuel particles with multilayered SiC [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2019, 515: 215–226.
- [2] 刘仕超, 李权, 黄永忠, 等. 中空六棱柱燃料元件热-力学性能研究 [J]. *核动力工程*, 2022, 43(5): 133–137.
Liu S C, Li Q, Huang Y Z, et al. Research on the thermal-mechanical performance of hollow hexagonal fuel element [J]. *Nuclear Power Engineering*, 2022, 43(5): 133–137.
- [3] Li L L, Xia Z H. Role of interfaces in mechanical properties of ceramic matrix composites [M]. Amsterdam: Elsevier, 2018: 355–374.
- [4] 王珊人, 苟燕子, 王浩. 第三代 SiC 纤维及其在核能领域的应用现状 [J]. *无机材料学报*, 2020, 35(5): 525–531.
Wang P R, Gou Y Z, Wang H. Third generation SiC fibers for nuclear applications [J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2020, 35(5): 525–531.
- [5] 关康. CVI 法制备陶瓷基复合材料的微结构演变模拟 [D]. 西安: 西北工业大学(博士学位论文), 2014.
Guan K. Computational simulation of micro-structural evolution for Chemical Vapor Infiltration process of ceramic matrix composites [D]. Xi'an: Northwestern Polytechnical University (Doctoral dissertation), 2014.
- [6] Ramanuj V, Sankaran R, Jolly B, et al. Chemical vapor infiltration of additively manufactured preforms: Pore-resolved simulations and experimental validation [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2022, 105(4): 2421–2441.
- [7] 欧阳琴, 王艳菲, 徐剑, 等. 核用碳化硅纤维增强碳化硅复合材料研究进展 [J]. *无机材料学报*, 2022, 37(8): 821–840.
Ouyang Q, Wang Y F, Xu J, et al. Research progress of SiC fiber reinforced SiC composites for nuclear application [J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2022, 37(8): 821–840.
- [8] 李鸣, 张瑞谦, 何宗倍, 等. 耐事故 SiC/SiC 复合材料包壳管 CVI+无模具 NITE 制备技术研究 [J]. *核动力工程*, 2020, 41(S1): 169–173.
Li M, Zhang R Q, He Z B, et al. Study on preparation technology of accident-resistant SiC/SiC composite cladding tube CVI+ dieless NITE [J]. *Nuclear Power Engineering*, 2020, 41(S1): 169–173.
- [9] 张金, 刘荣军, 王衍飞, 等. 连续纤维增强陶瓷基复合材料新型界面相研究进展 [J]. *硅酸盐学报*, 2021, 49(9): 1869–1877.
Zhang J, Liu R J, Wang Y F, et al. Progress in research on new interphases of continuous fiber reinforced ceramic matrix composites [J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2021, 49(9): 1869–1877.
- [10] Yang J S, Ye F, Cheng L F. In-situ formation of Ti_3SiC_2 interphase in SiC/SiC composites by molten salt synthesis [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2022, 42(4): 1197–1207.
- [11] Li S B, Ni N, Wu B B, et al. Ti_3SiC_2 interphase coating in SiC/SiC composites: Effect of the coating fabrication atmosphere and temperature [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, 41(12): 5850–5862.
- [12] Lee H G, Kim D, Park J Y, et al. Formation of Ti_3SiC_2 interphase coating on SiC/SiC composite by electrophoretic deposition [J]. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2018, 15(3): 602–610.
- [13] Lee H G, Kim D, Jeong Y S, et al. Formation of Ti_3SiC_2 interphase of SiC fiber by electrophoretic deposition method [J]. *Journal of the Korean Ceramic Society*, 2016, 53(1): 87–92.
- [14] Seshadri A, Phillips B, Shirvan K. Impact of nuclear environment on hydrothermal corrosion and silica transport for CVD SiC in light water reactors [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2021, 556: 153155.
- [15] Deng J G, Zhang W, Qiu X, et al. Effect of Au-ion irradiation on the morphology, microstructure and lead-bismuth eutectic corrosion behavior of refractory TiNbZrMoV high-entropy alloy coating [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2023, 584: 154592.
- [16] 杨甜甜, 张典堂, 邱海鹏, 等. SiC_f/SiC 纺织复合材料微观结构及力学性能研究进展 [J]. *航空材料学报*, 2020, 40(5): 1–12.
Yang T T, Zhang D T, Qiu H P, et al. Research progress on meso-structure and mechanical properties of SiC_f/SiC textile composites [J]. *Journal of Aeronautical Materials*, 2020, 40(5): 1–12.
- [17] 吴宁, 韩美月, 焦亚男, 等. 高性能纤维的可织性研究进展 [J]. *航空制造技术*, 2020, 63(15): 81–89.
Wu N, Han M Y, Jiao Y N, et al. Research progress on weavability of high-performance fibers [J]. *Aeronautical Manufacturing Technology*, 2020, 63(15): 81–89.
- [18] Gavalda Diaz O, Axinte D A, Butler-Smith P, et al. On understanding the microstructure of SiC/SiC Ceramic Matrix Composites (CMCs) after a material removal process [J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2019, 743: 1–11.
- [19] Garcia Luna G, Axinte D, Novovic D. Influence of grit geometry and fibre orientation on the abrasive material removal mechanisms of SiC/SiC Ceramic Matrix Composites (CMCs) [J]. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, 2020, 157: 103580.
- [20] Herrmann M, Lippmann W, Hurtado A. Y_2O_3 - Al_2O_3 - SiO_2 -based glass-ceramic fillers for the laser-supported joining of SiC [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2014, 34(8): 1935–1948.
- [21] Wang H D, Feng Q, You X, et al. Microstructure and corrosion behavior of brazed joints of SiC/SiC composites and hastelloy N alloy using Cu-Ni alloy [J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2022, 37(4): 452.
- [22] Katoh Y, Snead L L, Henager C H Jr, et al. Current status and critical issues for development of SiC composites for fusion applications [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2007 (367–370): 659–671.
- [23] Lu W, Wang J, Shen X Y, et al. Long-time corrosion behavior of ceramic candidates for tritium permeation barriers exposed to flowing lead lithium [J]. *Corrosion Science*, 2021, 184: 109380.
- [24] Li B S, Sheng Y B, Liu H P, et al. Dissolution corrosion of 4H-SiC in lead-bismuth eutectic at 550 °C [J]. *Materials and Corrosion*, 2019, 70(10): 1878–1883.
- [25] Takahashi M, Kondo M. Corrosion resistance of ceramics SiC and Si₃N₄ in flowing lead-bismuth eutectic [J]. *Progress in Nuclear Energy*, 2011, 53(7): 1061–1065.
- [26] Tillack M S, Wang X R, Pulsifer J, et al. Fusion power core engineering for the ARIES-ST power plant [J]. *Fusion Engineering and Design*, 2003, 65(2): 215–261.
- [27] Ramírez A S P, Caso A, Giancarli L, et al. Tauro: A ceramic composite structural material self-cooled Pb–17Li breeder blanket concept [J]. *Journal of Nuclear Materials*, 1996, 233: 1257–1261.

- [28] 杨军, 张恩昊, 郭志恒, 等. 全球核能科技前沿综述 [J]. 科技导报, 2020, 38(20): 35–49.
Yang J, Zhang E H, Guo Z H, et al. Recent progress of frontier nuclear energy science and technology [J]. Science & Technology Review, 2020, 38(20): 35–49.
- [29] Lee S P, Jin J O, Park J S, et al. High temperature characterization of reaction sintered SiC based materials [J]. Journal of Nuclear Materials, 2004, 329: 534–538.