

文章编号: 1007-4627(2006)02-0155-06

# 利用高能离子模拟研究反应堆结构材料中的辐照效应\*

王志光

(中科院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000)

**摘要:** 简要介绍了载能粒子辐射损伤对反应堆结构材料性能的影响, 阐述了载能粒子束特别是高能离子束开展模拟研究的优势, 并举例说明了国内利用高能重离子模拟研究反应堆结构材料辐射效应取得的进展。实验结果和理论分析表明, 载能离子特别是高能离子辐照非常适合用于模拟研究反应堆结构材料中由粒子辐射引起的材料微观结构和宏观性能变化, 是模拟研究反应堆结构材料辐射效应的非常有效的手段。

**关键词:** 反应堆; 结构材料; 高能重离子辐照; 辐照效应

**中图分类号:** O571.33      **文献标识码:** A

## 1 引言

1942年, 费米领导建设了世界上第一座试验性原子核反应堆, 使链式反应变为连续、缓慢、可控的核反应, 实现了核能平缓的释放。1952年11月1日, 美国在太平洋比基尼岛核试验基地成功爆炸了世界上第一颗氢弹。由于核裂变和核聚变可以释放出大量的能量, 其应用前景引起了各国特别是科技发达国家的高度重视。1954年6月, 世界上第一座商用核电站在前苏联奥布宁斯克(Obninsk)的物理和电气工程院建成发电, 功率5 MW。自此以后, 利用核裂变能发电在俄、法、美和英等国迅速实现商用化。现在, 世界上有400多座发电用裂变反应堆, 向世界提供着约16%的电力。在我国, 核电作为国家能源安全发展战略的一个重要组成部分也备受重视, 大亚湾、秦山核电站相继建成投入商业运营, 并产生了巨大的经济效益。到2020年, 我国将新建多座核电站, 核电建设进入了一个快速发展的历史时期。

在开发利用裂变能的过程中, 自20世纪60年代起, 对聚变能和平应用的探索也已经开始, 经过几十年的努力, 研究取得了显著进展。最近, 由欧盟、俄罗斯、日本、中国、美国和韩国共同参与的国际聚变试验堆(ITER)计划将进入建造阶段。这标志着,

国际上核能的利用也将进入一个新的阶段。

与煤炭、石油和天然气相比, 核能在世界能源平衡中具有独特的优势: 核电不排放温室效应气体, 核能燃料的储量丰富, 可为现有的核能系统供应250年, 如采用新的技术, 供应期可长达几千年。在未来的世界能源需求和社会经济发展中, 核能将扮演越来越重要的角色。

但是, 新型高效的核电面临结构材料问题的制约。不同类型反应堆中结构材料所处的粒子辐射环境不同。对于以铀为燃料的裂变反应堆, 粒子辐射主要是中子、高能裂变碎片; 而对于聚变反应堆, 粒子辐射主要是高能中子、He粒子。反应堆第一壁材料必须工作在非常苛刻的环境中, 包括长时效( $>10$  a)、高温、化学相互作用、随时间变化的热和机械负载, 以及强辐射(强中子流、 $\alpha$ 粒子、裂变碎片等)的不同组合。随着核反应堆功率的不断提高, 结构材料的辐射损伤问题, 如辐照肿胀与蠕变现象、辐照硬化与脆化、辐照疲劳与蠕变相互作用、断裂韧度与裂纹生长以及微观结构变化、相稳定性、偏析现象、辐照应力腐蚀/侵蚀等开始显现出来, 成为影响反应堆运行安全的非常重要的因素。研究和寻找具有优异的力学、机械、抗辐射性能和化学稳定性的材料受到了世界各国科学家的广

收稿日期: 2005-11-20; 修改日期: 2006-01-09

\* 基金项目: 国家杰出青年科学基金资助项目(10125522); 国家自然科学基金资助项目(10475012)

作者简介: 王志光(1963-), 男(汉族), 山东青州人, 博士, 研究员, 博士生导师, 从事高能重离子束材料科学研究;

E-mail: zhgwang@impcas.ac.cn

泛关注,有条件的国家都投入很大的人力物力来开展这方面的研究。

## 2 反应堆结构材料中载能粒子辐射损伤的产生

辐射引起的材料微观结构改变的详细特征是了解 and 预测辐射损伤诱发的物理机械性能下降的关键。反应堆结构材料的辐射损伤主要来自于载能粒子引起的原子位移损伤和直接  $\alpha$  粒子轰击或者核反应产物掺杂特别是  $(n, \alpha)$  反应产生的 He 掺杂及其演化产物。

自 20 世纪 50 年代末期开始,实验科学家利用反应堆中子和 MeV 电子等载能粒子在不同温度(液氮温区至室温或更高温度)下辐照,在线实验监测单质材料特别是纯金属中辐照缺陷的产生及其演化,获得了非常系统的实验数据<sup>[1]</sup>。理论科学家则从载能粒子与物质相互作用的基本原理出发,结合已经获得的实验数据,初步建立了辐照引起位移损伤的基本理论,如 Norgett 等<sup>[2]</sup>在总结分析前人工作的基础上,提出了应用比较普遍的 NRT 模型以解释载能粒子在固体中产生的原子位移缺陷损伤。该模型给出能量为  $E_T$  的初级击出原子(PKA)引起的位移原子数目  $N_d(E_T)$  的表达式为

$$N_d(E_T) = \begin{cases} 0 & E_T < E_d \\ 1 & E_d \leq E_T < 2.5E_d \\ 0.4E_d(E_T)/E_d & E_T \geq 2.5E_d \end{cases} \quad (1)$$

其中,  $E_d$  为原子移位阈能,  $E_D$  为损伤能,是入射载能粒子和靶原子的原子序数、质量数以及 PKA 能量的复杂函数。能量为  $E_1$  的入射粒子通过弹性碰撞引起缺陷产生的原子位移截面

$$\sigma_d(E_1) = \int_{E_d}^{E_{Tmax}} N_d(E_T) d\sigma(E_1, E_T) \quad (2)$$

载能粒子辐照在材料中产生缺陷的状态及其分布依赖于入射粒子的特性,原子位移截面表征了载能粒子在材料中产生缺陷的能力。如 MeV 能量的电子在材料中主要产生弗伦克尔(Frenkel)对,而能量为 1 keV/u 量级以上的离子在材料中产生分离缺

陷以及空位或间隙子的聚积。由载能粒子辐照产生的缺陷,在高温、化学相互作用、随时间变化的热和机械负载等的作用下,经过较长时间的累积,会发生迁移、团聚,从而形成位错、空洞等材料损伤。

在研究材料中由载能粒子引起的原子位移损伤的同时,对反应堆辐射环境下直接  $\alpha$  粒子轰击或者核反应产物掺杂特别是  $(n, \alpha)$  反应产生的 He 的掺杂行为,如材料的表面和内部 He 泡形成、表面开裂剥落、He 脆以及增强空洞肿胀等也进行了深入系统的研究,探索了 He 迁移、团聚、与缺陷相互作用的机理及其与材料宏观性能的关系,建立了物理模型<sup>[3-10]</sup>。

另外,从 20 世纪 60 年代开始,辐射损伤和掺杂引起材料微观结构和宏观性能变化的研究从未间断<sup>[1]</sup>。目前研究主要集中在评价已经使用的和候选的反应堆结构材料,试图探索发现可用于裂变反应堆、裂变/聚变混合堆、聚变堆的性能优异的抗辐射材料。

## 3 利用高能离子束开展模拟研究的优势

不同类型反应堆中结构材料所处的粒子辐射环境不同,损伤和嬗变掺杂速率随之不同。表 1 给出了可能的聚变堆候选结构材料及其耐受辐射环境条件,图 1 给出了具有不同能量的载能粒子在 316L 不锈钢中的位移损伤截面随粒子穿透深度的变化。考虑到反应堆结构材料的中子辐照损伤截面、中子流负载及其与之相应的原子位移率,到目前为止,反应堆结构材料的辐照损伤问题不可能在实际的反应堆环境中真实再现,必须寻求其它解决方法。

实验和理论分析发现,载能离子辐照具有实验条件可控等独特优势。表 2 和表 3 分别给出了载能离子辐照与其它环境条件下 He 掺杂速率和损伤速率的比较。从图 1、表 2 和表 3 可以看出,载能离子注入/辐照引起的 He 掺杂速率可比反应堆高 8 个数量级,损伤速率高 3 个数量级以上。也就是说,利用载能离子注入/高能重离子辐照不仅可以很容易在实验室快速实现反应堆结构材料的辐照损伤水平,也可以达到核反应掺杂的效果。

(1) 参考 J Nucl Mater, 1959, Vol. 1: 1—2005, Vol. 247: 1。

表 1 聚变堆候选结构材料及其耐受辐照环境条件

区域	材料	条件
高辐射 通量区	低活性材料	铁素体-马氏体 (ODS) 钢
		250—650 °C, 150 dpa*
		钒基合金
		350—650 °C, 150 dpa
中、低辐射 通量区	第一壁和包层结构材料	SiC/SiC 复合材料
		600—1 100 °C, 150 dpa
		难熔金属 (如钨合金)
		650—1 100 °C, 80 dpa
中、低辐射 通量区	陶瓷绝缘体	RT—500 °C, 0.1—10 dpa
	射频频窗材料	RT—400 °C, 0.001—1 dpa
	陶瓷增殖材料	300—700 °C, 1—60 dpa
	中子倍增器 (Be 合金)	300—900 °C, 1—60 dpa
	超导材料	80—100 K, <0.1 dpa

\* dpa 为每个原子的位移次数。

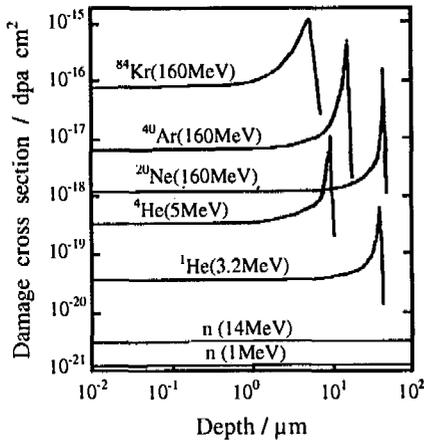


图 1 不同能量的载能粒子在 316L 不锈钢中的位移损伤截面随粒子穿透深度的变化

表 2 He 掺杂速率比较<sup>[3]</sup>

He 产生方式	嬗变/掺杂 He 速率 (原子比)
快中子增殖堆 (n, α)	$5 \times 10^{-6} - 15 \times 10^{-6}/a$
聚变堆 (n, α)	$50 \times 10^{-6} - 300 \times 10^{-6}/a$
散裂中子源 (p, α)	$\sim 100 \times 10^{-6}/d$
离子注入 α	$\sim$ 几个 $10^{-2}/h$

表 3 损伤速率比较

	第一壁负载	原子位移率
裂变堆	$10^{14}$	<3
(中子, $E \leq 1$ MeV)	$/(n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1})$	dpa/a
聚变堆	2.0	$\sim 20$
(中子, $E \approx 14$ MeV)	MW/m <sup>2</sup>	dpa/a
高能重离子辐照	$5 \times 10^{11}$	0.002—0.1
(如 <sup>40</sup> Ar)	ion/(cm <sup>2</sup> · s)	dpa/h

在材料结构性能的测试分析中,小尺寸的标准试样可以等价于宏观大块材料,图 2 给出了材料结构性能测试所要求的标准试样尺寸。对于载能离子辐照,作为举例,图 3 给出了 He 和 Ne 离子在纯 Fe 中的穿透厚度随能量的变化。可以看出,能量为 40 和 60 MeV/u 的 He 离子在纯铁中穿透深度分别达到约 2.7 和 5.8 mm,能量为 80, 100 和 120 MeV/u 的 Ne 离子在纯铁中穿透深度分别达到约 2.0, 2.9 和 4.0 mm,可以满足图 2 所示的材料结构性能测试对样品尺寸的所有要求。

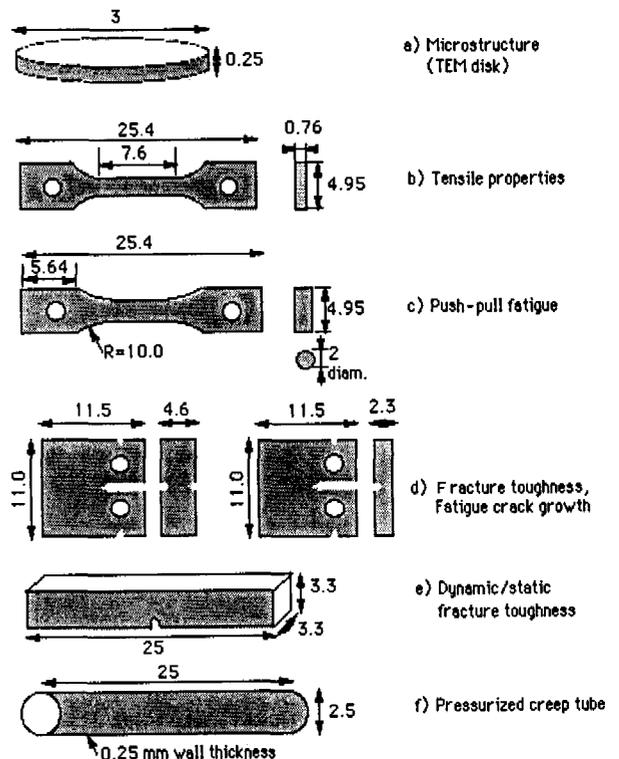


图 2 材料结构性能测试所要求的标准试样尺寸 (mm)

从上述的图表和分析可以得到结论, 载能离子特别是高能离子辐照非常适合用于模拟研究反应堆结构材料中由粒子辐射引起的材料微观结构和宏观性能变化, 是模拟研究反应堆结构材料辐射效应的非常有效的手段。

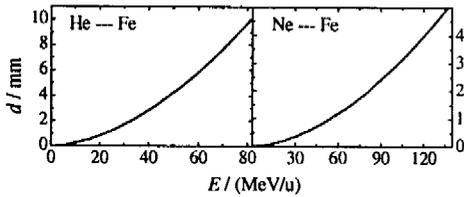


图 3 He 和 Ne 离子在纯 Fe 中的穿透厚度  $d$  随能量的变化

He 离子轰击可引起非晶态合金表面 He 泡的形成、单次与多次起皮剥离现象等<sup>[10]</sup>。另外, 通过模拟计算对 He 的迁移、团聚及泡形核机制进行了初步的理论解释<sup>[8, 9]</sup>。

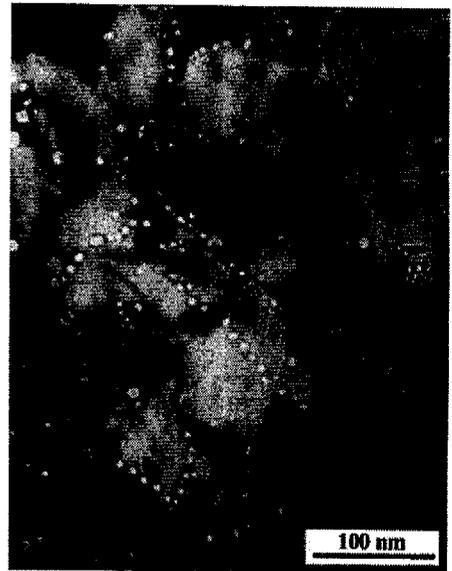


图 4 316L 不锈钢中 He 气泡分布 TEM 照片<sup>[7]</sup>  
辐照条件: 2.5 MeV He 离子, 500 °C, 剂量  $2 \times 10^{17}$  ion/cm<sup>2</sup>。

#### 4 国内利用高能重离子模拟研究反应堆结构材料辐射效应进展举例

中国科学院近代物理研究所和中国原子能科学研究院拥有高能重离子加速器。表 4 给出了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的高能重离子加速器参数。从表 4 可以看出, 兰州重离子加速器(HIRFL-CSR)所提供的束流条件完全适合于开展反应堆结构材料中粒子辐射效应的模拟研究。事实上, 自 20 世纪 80 年代末期开始, 国内即开始了相关研究。如中国科学院近代物理研究所在国家自然科学基金、国家 863 项目子课题、中科院‘八五’和‘九五’重点基础研究项目基金等的资助下, 利用离子注入/辐照技术开展了一系列反应堆结构材料中粒子辐射效应的模拟研究, 并取得了许多有意义的成果<sup>[7-16]</sup>。

表 4 兰州重离子加速器(HIRFL-CSR)参数

	SFC	SSC	CSRm
离子种类	P-U	P-U	P-U
$E/(MeV/u)$	~10	~100	2 800—500

在金属/合金中 He 行为的研究方面, 实验发现 He 泡优先在位错处形成<sup>[7]</sup>(如图 4 所示)且在不同的温区存在不同的 He 泡形核机制<sup>[8, 9]</sup>(如图 5 所示): 在低温区( $< 350$  °C), He 泡在点阵中均匀成核, 由 He 通过间隙子扩散机制控制; 在高温区( $> 350$  °C), He 泡优先在位错处异相成核, 由 He 自间隙子/He 替位扩散机制控制。实验还发现, keV 的

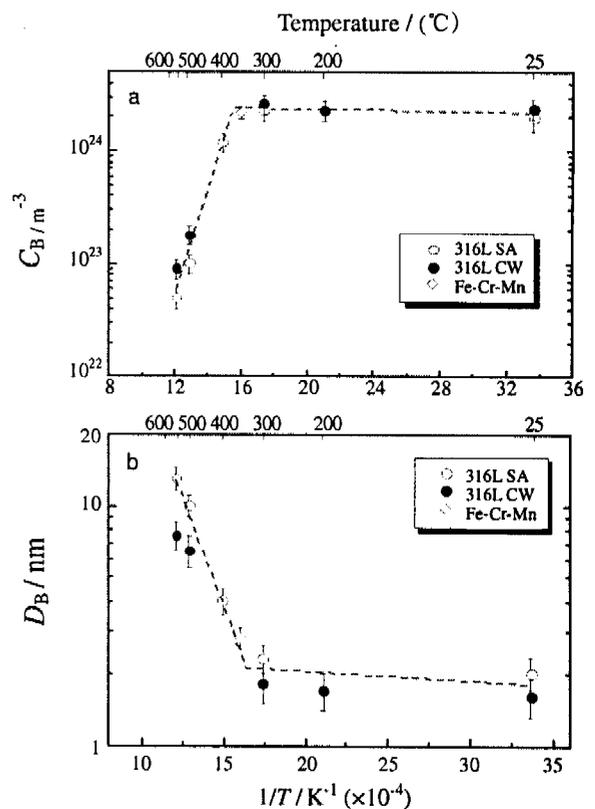


图 5 He 气泡浓度 (a) 和平均尺寸 (b) 随辐照温度的变化<sup>[8, 9]</sup>

在利用高能重离子辐照模拟研究反应堆候选结构材料中的辐射位移损伤方面, 重点研究了 316L 不锈钢和 Fe-Cr-Mn 合金。实验发现大剂量的高能重离子辐照 (损伤水平高) 不仅可以在材料内部产生大尺寸的空洞损伤<sup>[13, 14]</sup> (如图 6 所示), 而且还

会导致表面开裂、表层脱落等严重的表面损伤<sup>[14, 15]</sup> (如图 7 所示)。高能 Ar 离子辐照 316L 不锈钢和 Fe-Cr-Mn 合金的实验还表明, 掺入惰性气体 Ar 原子增强了离子-靶原子碰撞引起的位移损伤效应<sup>[13, 16]</sup>。

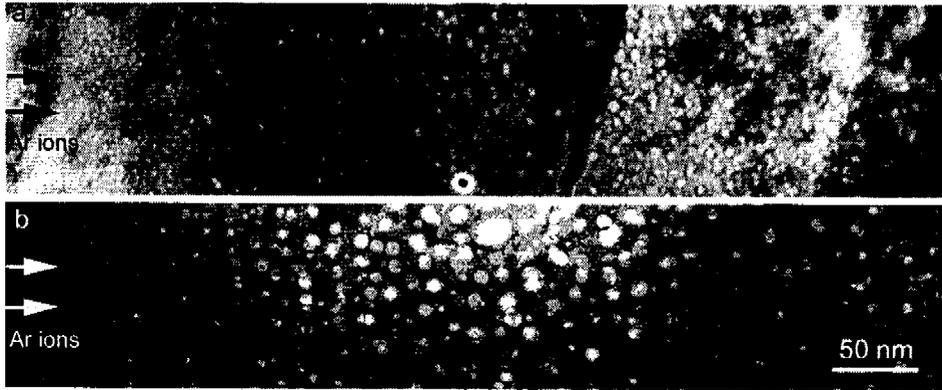


图 6 Fe-Cr-Mn 合金内部引起空洞的形成随 Ar 离子穿透深度的变化<sup>[13]</sup>  
 掺杂原子含量与损伤水平; (a) 2.4 %, 50 dpa, (b) 4.8 %, 100 dpa。

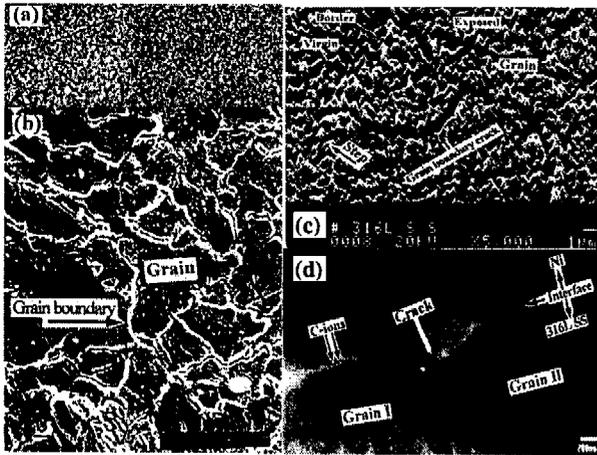


图 7 51 MeV 的 C 离子轰击引起的 316L 不锈钢表面开裂与剥落<sup>[14, 15]</sup>  
 500 °C, 表面损伤水平约 0.9 dpa。(a) 为未轰击表面; (b), (c) 和 (d) 分别为 C 离子轰击表面的 SEM、Y 调制和 TEM 照片。

### 5 结论

反应堆结构材料的辐射损伤主要来自于载能粒

子引起的原子位移损伤和直接  $\alpha$  粒子轰击或者核反应产物掺杂, 特别是 (n,  $\alpha$ ) 反应产生的 He 掺杂及其演化产物。随着核反应堆功率的不断提高, 结构材料的辐射损伤问题, 如辐照肿胀与蠕变、辐照硬化与脆化、辐照疲劳、裂纹生长与断裂、辐照应力腐蚀/侵蚀等成为影响反应堆运行安全的非常重要的因素。到目前为止, 反应堆结构材料的辐照损伤问题不可能在实际的反应堆环境中真实再现, 必须寻求其它解决方法。已有的实验结果和理论分析表明, 载能离子特别是高能离子束辐照是模拟研究反应堆结构材料中由粒子辐射引起的材料微观结构和宏观性能变化的非常有效的手段。利用高能离子束模拟研究反应堆结构材料中粒子辐射效应, 评价在不同辐射环境下候选材料的行为, 确认其极限特性, 可为反应堆生产、制造和系统设计的需要提供非常有用的科学依据。

### 参考文献:

[1] Ullmaier H (Ed). Atomic Defects in Metals. Landolt-Börnstein; Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology - New Series Group 3, Vol. 25, 1991, Springer.  
 [2] Norggett M J, Robinson M T, Torrens I M. Nucl Eng Des, 1975, 33: 50.  
 [3] Ullmaier H. Radiat Eff, 1983, 78: 1.

- [4] Mansur L K, Coghlan C A. *J Nucl Mater*, 1983, **119**: 1.
- [5] Trinkaus H. *Radiat Eff*, 1983, **78**: 189.
- [6] Ullmaier H. *Nucl Fusion*, 1984, **24**: 1 039.
- [7] Zhang C H, Chen K Q, Zhu Z Y. *Nucl Instr and Meth*, 2000, **B169**: 64.
- [8] Zhang C H, Chen K Q, Wang Y S, *et al.* *J Nucl Mater*, 1997, **245**: 210.
- [9] 张崇宏, 陈克勤, 王引书等. 原子核物理评论, 2001, **18**(1): 50.
- [10] Hou M D, Liu J, Zhang Q X, *et al.* In: *Proc 7th China-Japan Symp on Mater for Adv Energy Sys & Fission and Fusion Eng.* eds: Wang Z G, Zhu Z Y, Jin G M, Singapore: Word Scientific, 2003, 377—384.
- [11] Zhu Z Y, Chen K Q, Chen J C, *et al.* *Nucl Instr and Meth*, 1991, **B61**: 72.
- [12] Chen K Q, Yang S H, Wang Z G, *et al.* *J Nucl Mater*, 1992, **191**: 737.
- [13] Zhang C H, Chen K Q, Wang Y S, *et al.* *J Nucl Mater*, 2000, **283—287**: 259.
- [14] Wang Z G, Chen K Q, Li LW, *et al.* *J Nucl Mater*, 1999, **272**: 306.
- [15] Wang Z G, Chen K Q, Hou M D, *et al.* In: *Proc 7th China-Japan Symp on Mater for Adv Energy Sys & Fission and Fusion Eng.* eds: Wang Z G, Zhu Z Y, Jin G M, Singapore: Word Scientific, 2003, 285—294.
- [16] Zhang C H, Chen K Q, Wang Y S, *et al.* *J Nucl Mater*, 1998, **263**: 1 623.

## Simulation of Radiation Effects in Structural Materials of Reactors Using High-energy Heavy-ion Irradiations\*

WANG Zhi-guang

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

**Abstract:** Radiation damage in structural materials of fission/fusion reactors is mainly attributed to the evolution of intensive atom displacement damage induced by energetic particles ( $n$ ,  $\alpha$  and/or fission fragments) and high-rate helium doping by direct  $\alpha$  particle bombardments and/or ( $n$ ,  $\alpha$ ) reactions. It can cause severe degradation of reactor structural materials such as surface blistering, bulk void swelling, deformation, fatigue, embrittlement, stress erosion corrosion and so on that will significantly affect the operation safety of reactors. However, up to now, behavior of structural materials at the end of their service can hardly be fully tested in a real reactor. In the present paper, damage process in reactor structural materials is briefly introduced, then the advantages of energetic ion implantation/irradiation especially high-energy heavy ion irradiation are discussed, and several typical examples on simulation of radiation effects in reactor candidate structural materials using high-energy heavy ion irradiations are introduced. Experimental results and theoretical analysis suggested that irradiation with energetic particles especially high-energy heavy ions is a very useful technique for simulating the evolution of microstructures and macro-properties of reactor structural materials.

**Key words:** reactor; structural material; high-energy heavy-ion irradiation; radiation effect

\* **Foundation item:** National Natural Sciences Funds for Distinguished Young Scholar (10125522); National Natural Science Foundation of China (10475012)