

文章编号: 1007-4627(2017)03-0302-08

## 先进核能系统结构材料辐照性能研究

朱升云, 袁大庆

(中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413)

**摘要:** 首先简要介绍第一代到先进的第四代核能系统的发展、与核能系统发展密切的抗辐照结构材料研发进展、第四代核能系统结构材料辐照性能研究新方法。第四代核能系统发展中, 辐照引起材料性能退化是一个需要研究和解决的瓶颈问题。现有中子源都不能满足第四代核能系统结构材料高剂量中子辐照性能研究的要求。为此, 发展了用于核能系统结构材料高剂量辐照性能快速检测加速器重离子辐照方法和第四代核能系统实际辐照工况模拟的重离子与氢和氦三束同时辐照新方法, 文中进行了详细的介绍。最后介绍了中国原子能科学研究院核能系统结构材料辐照性能研究现状和近期发展计划。该院在 HI-13 串列加速器上建立了多种不同用途的重离子辐照装置、三个独立加速器构成的重离子与氢和氦三束同时辐照实验平台, 开展了一系列核能结构材料, 例如国产改进型奥氏体钢、CLAM 钢、1515 钢、钽、钨等的辐照性能的系统测试和研究。为了更好地开展核能结构材料性能研究, 从国外引进了一台超导直线加速器和一台可变能量重离子回旋加速器。结合现有  $2 \times 13$  MeV,  $2 \times 1.7$  MV 串列加速器、30 MeV 和 100 MeV 质子回旋加速器、高压倍加器, 中国实验快堆、中国先进研究堆、微堆等, CIAE 将建成一个比较完整和先进的核能系统结构材料辐照实验平台系统供国内外用户使用。

**关键词:** 第四代核能系统; 结构材料; 加速器; 重离子辐照; 三束同时辐照

**中图分类号:** TL375.6 **文献标志码:** A **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.34.03.302

### 1 引言

核能系统从 20 世纪 50 年代的第一代到现在已经发展到了先进的第四代<sup>[1,2]</sup>。第一代核能系统 (GEN-I) 是 20 世纪 50 年代到 20 世纪 60 年代前期开发的轻水堆 (Light Water Reactor, LWR) 核能系统, 例如美国希平港 (Shipping Port) 压水堆 (Pressurized Water Reactor, PWR) 和德累斯顿 (Dresden) 沸水堆 (Boiling Water Reactor, BWR)、英国镁诺克斯 (Magnox) 石墨气冷堆 (Graphite Gas Cooled Reactor, GGCR) 等; 第二代核能系统 (GEN-II) 是 20 世纪 60 年代到 21 世纪 10 年代前期在第一代基础上开发的大型商用核能系统, 例如加拿大坎度 (CANDU) 堆、前苏联 VVER/RBMK 压水堆, 21 世纪初, 世界上大多数核电站都属于第二代核电系统; 第三代核能系统 (GEN-III) 是 1990 年后到 2010 年开始运行的先进轻水堆 (Advanced Light Water Reactor, ALWR) 核能系统, 例如先进沸水堆 (Advanced Boiling Water Reactor, ABWR)、AP1000 系统 (电功率 1250 MWe, 安全系统采用非能动设计)、欧洲压水堆 (European Pressurized Water Re-

actor, EPR) 等; 第四代核能系统 (GEN-IV) 是 1996 年 6 月提出、现在正在开发的核能系统, 预期 2030-2040 年有望达到实用化, 这一代核能系统的主要反应堆有钠冷快堆 (Sodium Cooled Fast Reactor, SFR)、熔盐堆 (Molten Salt Reactor, MSR)、加速器驱动系统 (Accelerator Driven System, ADS)、国际热核聚变实验堆 (International Thermonuclear Experimental Reactor, ITER) 等。

第四代核能系统结构材料工作在  $300 \sim 1000$  °C 高温, 受到  $100 \sim 200$  dpa 或更高辐照损伤剂量的中子辐照。第四代核能系统发展中, 材料是一个影响其发展的瓶颈问题, 而在材料问题中, 辐照引起的材料物理和力学性能的退化又是一个需要研究和解决的关键问题。

核能系统结构材料包括燃料组件包壳、堆芯构件、反应堆容器、热交换器和主回路管道材料等。第四代核能系统结构材料在堆内受到快中子辐照产生的辐射损伤导致材料微观结构变化, 引起材料力学和物理等宏观性能退化, 例如辐照肿胀。结构材料宏观性能退化会引起核能系统工作障碍, 严重的或发生事故。材料抗辐照性能对燃料包壳材料尤为重要, 燃料包壳材料能够忍受的辐

收稿日期: 2016-12-25; 修改日期: 2017-04-07

资助项目: 国家自然科学基金重大项目 (91126002); 压水堆重大专项 (2012ZX06004-005); IAEA CRP (15165/R0); 国家重点基础研究发展计划 (973 计划) (G1999022600, 2007CB209900)

作者简介: 朱升云 (1941-), 男, 浙江余姚人, 研究员, 从事原子核物理研究; E-mail: zhusy@ciae.ac.cn.

照损伤剂量越高, 燃耗越大, 堆的安全性和经济性越好。

辐照导致材料性能退化是限制结构材料使用寿命的决定因素, 材料辐照性能在使用前, 必须针对实际工作环境进行检测和筛选。第四代核能系统发展中, 抗辐照新材料的研发是一个极具挑战性的问题, 抗辐照新材料研发始终是核能系统成功地持续发展的一个重要的关键技术问题, 尤其是第四代核能系统的发展<sup>[3-6]</sup>。迄今已经研发了能忍受~150 dpa 辐照损伤剂量的奥氏体不锈钢, 能承受~300 dpa 辐照损伤剂量的铁素体马氏体不锈钢, 既能承受~300 dpa 损伤剂量的辐照又能耐更高温度的氧化物弥散强化铁素体钢 (ODS钢) 等。

中子辐照产生的辐射损伤与中子能谱、中子与材料原子核反应、辐照温度和辐照剂量等密切相关。第四代核能系统的快堆中子能谱是裂变中子谱 (中子能量小于 1~3 MeV), 聚变堆中子能谱是 d-T 聚变中子能谱 (中子能量小于 14 MeV), ADS 的中子能谱是散裂中子能谱 (中子能量可以达到几百 MeV)。核能系统中结构材料长期受到快中子辐照, 中子与材料原子级碰撞产生严重的位移损伤, 例如, 第四代快堆~200 dpa、聚变示范堆 (DEMO)~150 dpa, ADS~100 dpa。快中子与材料原子核的核反应还会产生 H (质子) 和 He ( $\alpha$ 粒子), 例如中子与 Fe 的核反应 $^{56}\text{Fe}+n=^4\text{He}+^{53}\text{Cr}$ 和 $^{56}\text{Fe}+n=^1\text{H}+^{56}\text{Mn}$ 。第四代核能系统结构材料的辐照损伤是原子位移损伤和 H 与 He 共同作用产生的, 例如, 快堆材料在~200 dpa 时, 同时受到 40 appm He 和 240 appm H 的作用; 聚变示范堆 (DEMO) 在 150 dpa 时, 同时受到 1500 appm He 和 6750 appm H 的作用; ADS 同时受到 H 和 He 的浓度更高, 分别是 500 appm/fpy 和 50 000~100 000 appm/fpy<sup>[7]</sup>。

原子位移与 H 和 He 的同时辐照在材料中产生的辐射损伤不是它们三个的简单叠加, 同时辐照存在一个“协同效应”, 它可以增强或抑制辐射损伤的产生。原子位移、氢和氦的不同次序的依次辐照都不能模拟第四代核能系统实际工况的辐照环境, 必需同时辐照才能真实地模拟实际辐照环境。

第四代核能系统结构材料工作在高温、高辐照剂量或高 dpa 位移损伤与 H 和 He 同时辐照的环境中, 核能材料的辐照性能的实验室研究或检测必须要建立高位移损伤剂量辐照与 H 和 He 的三束同时辐照实验装置。

## 2 第四代核能系统结构材料辐照性能研究方法和进展

### 2.1 加速器重离子辐照模拟

现有反应堆中子源产生的位移损伤率都较低, 达到

第四代核能系统高辐照剂量或高 dpa 辐照损伤的辐照要很长很长的时间, 例如, 热堆中子辐照的年位移损伤率一般低于 10 dpa、快堆一般不超过 30 dpa。100~200 dpa 的辐照, 热堆需要 10~20 a, 快堆需要 3~7 a, 研究或测试周期太长。这样长的测试周期, 核能系统结构材料辐照性能的研究或检测及新材料的研发是不能接受的, 必须要大大缩短辐照时间。

与中子辐照相比, 重离子辐照产生的位移损伤率比中子高 3~5 个量级, 因此, 采用加速器产生的重离子辐照能够在几小时~几天达到几十~几百 dpa, 且辐照温度、辐照损伤剂量与剂量率等参数可以严格控制。中子辐照会使材料活化而产生很强的放射性, 中子辐照后需要经过很长时间的冷却后或在热室中进行检测, 重离子辐照不会使材料活化, 辐照后不需要冷却就可以进行检测。重离子辐照模拟可以极大地缩短实验研究或检测周期<sup>[8-14]</sup>。

国际上发展了重离子辐照模拟高损伤剂量中子辐照的技术。美国材料测试学会 (ASTM) 在 ASTM E521 发布了带电粒子辐照模拟中子辐照损伤的标准技术《Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged Particle Irradiation》<sup>[15]</sup>, 将重离子辐照方法作为一种标准方法。国际原子能机构 (IAEA) 也极力推广加速器重离子辐照模拟方法, 并为先进核能系统结构材料的发展, 组织了一系列加速器重离子辐照模拟合作研究项目。国外, 美国橡树岭国家实验室 (ORNL) 和劳伦斯利弗摩尔国家实验室 (LLNL)、德国重离子研究中心 (GSI) 和卡尔斯鲁厄研究中心、法国原子能委员会萨克莱辐射材料研究所 (CEA-Saclay)、俄罗斯库尔恰托夫研究所、乌克兰哈尔科夫研究所、日本原子能研究所 (JAEA) 等都建立了加速器重离子辐照模拟装置, 开展先进的第四代核能系统结构材料的高损伤剂量辐照性能快速测试和材料筛选。国内中国原子能科学研究院 (CIAE)、中国科学院近代物理研究所, 北京大学, 武汉大学、台湾清华大学等都建立了重离子辐照装置。

重离子辐照模拟方法已是一种得到国际公认的、不可或缺先进核能系统结构材料研究和检测的方法, 对奥氏体钢、铁素体马氏体钢和氧化物弥散强化铁素体钢等新型材料的辐照性能进行了大量的研究<sup>[16-20]</sup>, 例如这些新型材料的辐照肿胀随辐照损伤剂量和温度的变化的研究, 测试的辐照损伤剂量已经高达~800 dpa。加速器重离子辐照方法是唯一的实验室材料高损伤剂量辐照性能的快速检测方法。此外, 如果材料的辐照性能不能通过重离子辐照检测, 这种材料没有必要再进行几年的

堆内辐照考验,基本上是没有实用价值的。

重离子辐照模拟技术得到广泛的采用,但是其可行性缺少实验验证。朱升云等<sup>[21]</sup>进行了等效辐照损伤剂量重离子和中子辐照在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 中产生的辐照损伤对比测量,实验验证了重离子辐照模拟中子辐照的可行性。实验中, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 的85 MeV F重离子辐照在CIAE HI-13串列加速器上进行,辐照剂量 $5.28 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ;  $E_n > 1 \text{ MeV}$ 中子辐照在JAEA JJR-2反应堆进行,辐照剂量 $3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-2}$ 。重离子和中子辐照的等效损伤剂量都是 $\sim 0.8 \text{ dpa}$ 。辐照后采用正电子湮灭寿命测量方法检测产生的辐射损伤及其热退火行为。等效损伤剂量重离子和中子辐照的 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 中正电子湮灭寿命及其随退火温度变化都符合得很好,说明等效损伤剂量重离子和中子辐照在 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 中产生的辐射损伤及其热退火行为相同。对比测量的实验结果很好地表明重离子辐照可以模拟中子辐照。

## 2.2 重离子与氢和氦三束同时辐照

快中子与材料原子核反应产生H(质子)和He( $\alpha$ ),先进核能系统的结构材料在实际工况下同时受到中子产生的位移损伤和H和He的作用。位移损伤和H和He三者同时作用存在协同效应,依次位移损伤、H、He辐照不能模拟实际核能系统的辐照环境。为研究实际辐照环境中的第四代核能系统结构材料的辐照性能,国际上发展了重离子与H和He三束同时辐照技术,其中重离子辐照模拟高剂量中子辐照产生的位移损伤<sup>[22-26]</sup>。加速器三束辐照方法中,辐照温度、辐照损伤剂量和剂量率等都可以精确控制,特别是相应不同核能系统环境下每dpa损伤的H和He浓度可以方便地调节。美国材料测试学会(ASTM)在ASTM E521发布的带电粒子辐照模拟中子辐照标准技术指出<sup>[15]</sup>,多束同时辐照可以最真实地模拟核能系统的辐照环境。IAEA组织了许多合作研究项目,以促进采用三束辐照技术研究第四代核能系统结构材料的辐照性能。加速器三束同时辐照是目前能够快速达到100 dpa以上和相应氢、氦浓度的高剂量辐照的唯一实验手段。法国原子能委员会萨克莱辐射材料研究所(CEA-Saclay)、乌克兰哈尔科夫研究所、JAEA、日本京都大学先进能源所等都建立了重离子、氢、氦三束同时辐照装置,国内CIAE和台湾清华大学都采用串列加速器、H注入器和He注入器建立了重离子、氢、氦三束辐照装置<sup>[27-31]</sup>。

Voyevodin等<sup>[32]</sup>对12% Cr铁素体马氏体钢(EP-450)进行了50 dpa Cr离子单束辐照、50 dpa Cr和10 000 appm H双束同时辐照、50 dpa Cr与1 000 appm

He和10 000 appmH三束同时辐照研究。实验得到单束、双束和三束辐照产生的辐照肿胀不同,分别是0.02%、0.37%和0.17%。三束同时辐照产生的辐照肿胀比双束同时辐照小,三束同时辐照对辐照肿胀有抑制作用。

Tanaka等<sup>[33]</sup>在510°C研究了Fe-9Cr和Fe-12Cr钢的三束辐照的协同效应。在他们的实验中,Fe离子的辐照损伤剂量是50 dpa、氢和氦的浓度分别是10 appm/dpa和40 appm/dpa。实验得到,单Fe离子辐照在二种钢中产生的辐照肿胀差不多都是 $\sim 0.5\%$ ,说明这二种钢的抗辐照性能都比较好;Fe-He双束辐照在Fe-12Cr钢中的肿胀是0.4%,而Fe-9Cr几乎没有肿胀;Fe-H双束辐照在二种钢中都没有产生肿胀,说明氢对肿胀没有影响;Fe-He-H三束同时辐照,Fe-12Cr钢的肿胀达到3.2%,Fe-9Cr钢肿胀是4.8%。从他们的实验可以清楚地看到,三束同时辐照的协同效应对辐照肿胀的产生有很大的增强作用。

Voyevodin等<sup>[32]</sup>对18Cr10NiTi钢做了450~650°C辐照温度范围协同效应的温度变化研究。实验中Cr重离子辐照损伤剂量是50 dpa,He浓度是1 000 appm,H浓度是2 000 appm。图1是18Cr10NiTi钢三束辐照协同效应随辐照温度变化。在550~650°C辐照肿胀峰温度范围,Cr+He双束同时辐照的肿胀小于单一重离子Cr辐照肿胀,Cr+He+H三束同时辐照的肿胀大于单一重离子辐照产生的肿胀,但小于Cr+H双束同时辐照产生的辐照肿胀;低于肿胀峰的温度范围,Cr+H双束辐照肿胀最小,Cr+He+H三束辐照肿胀最大。从他们的实验结果可以看到,在肿胀峰温度范围He对肿胀有抑制作用,低于肿胀峰温度范围He对肿胀有增强作用;H在肿胀峰温度范围对肿胀有很大的增强作用;Cr+He+H三束辐照在肿胀峰温度范围,由于He的作用,同时辐照的肿胀比Cr+H双束辐照的小,但仍有较

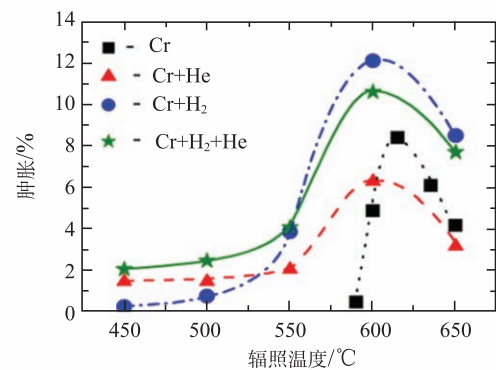


图1 (在线彩图) 18Cr10NiTi钢协同效应与氢氦作用的辐照温度变化

大的增强作用, 低于肿胀峰温度范围三束辐照肿胀最大, 而Cr+H双束辐照的肿胀最小, 单Cr离子辐照几乎没有肿胀。Voyevodin等<sup>[32]</sup>实验结果表明, 辐照温度对协同效应有很大的影响。

Sekimura等<sup>[34]</sup>采用12 MeV的Ni离子和1 MeV的He离子或与350 keV的H离子, 在30 dpa研究了V合金辐照肿胀的协同效应随H和He注入量或浓度的变化, 他们的实验观察到H和He的注入量都是10 appm/dpa时辐照肿胀最大, 协同效应产生的肿胀增强最大。

### 3 原子能核能系统结构材料辐照性能研究现状和进展

20世纪80年代中期CIAE开始进行核能系统结构材料辐照性能研究, 建立了多种不同用途的重离子辐照装置、重离子与氢和氦三束辐照实验平台、辐照损伤微观和宏观检测设备, 开展了许多核能系统结构材料的辐照性能研究。图2(a)是HI-13串列加速器重离子辐照终端和三束辐照终端平面分布图, 图2(b)是在HI-13串列加速器上建立的重离子与氢和氦三束辐照实验平台。

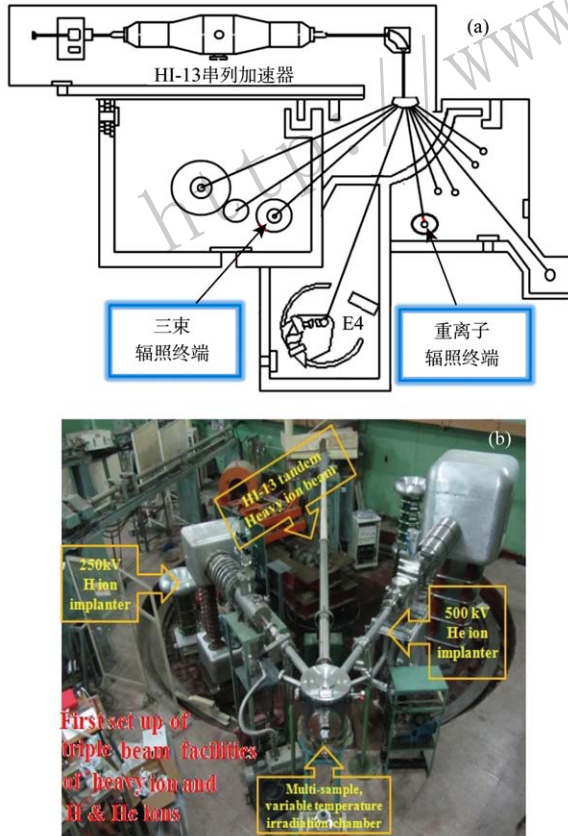


图2 (在线彩图) CIAEHI-1 串列加速器辐照实验终端(a)和三束辐照实验平台(b)

#### 3.1 重离子辐照模拟研究装置

HI-13串列加速器可以提供质量到Au的各种质量的重离子。表1是HI-13串列加速器4种重离子的能量、不锈钢中射程、可以产生的每个微安小时的辐照损伤率。

表1 HI-13串列加速器4种重离子在不锈钢中产生的辐照损伤率

重离子	能量/MeV	射程/ $\mu\text{m}$	辐照损伤率/(dpa $\cdot\mu\text{Ah}^{-1}$ )
$^{12}\text{C}$	70	41	2.1
$^{19}\text{F}$	80	21	3.9
$^{36}\text{Cl}$	70	7.7	11.7
$^{129}\text{I}$	100	6.6	26.5

在HI-13串列加速器重离子辐照终端上建立了用于核能系统结构材料辐照的室温 $\sim 1000^\circ\text{C}$ 可变温度多样性重离子辐照靶室、室温多样性重离子辐照靶室、水冷大剂量单样品重离子辐照靶室等<sup>[35]</sup>。

#### 3.2 重离子氢氦三束辐照实验平台

三束同时辐照一般需要有产生重离子束流、H束流和He束流的三台加速器或注入器。在HI-13串列加速器上建立了国内首台三束辐照实验平台(图2(b)), 该装置由HI-13串列加速器提供重离子束流、一台250 kV H注入器(H implanter)提供H离子束流、一台500 kV He注入器(He implanter)提供He离子束流。辐照在三束辐照靶室中进行, 辐照靶室可以安装6个样品, 在不打开靶室下可以逐个辐照, 样品温度在室温 $-850^\circ\text{C}$ 间连续可变, 温度精度 $\pm 5^\circ\text{C}$ 。在实验测量中, 需要适当选择重离子、氢、氦能量使三者材料中路径重合或有一段区域重合区, 通过三者的束流调节, 达到相应位移损伤或dpa的氢和氦浓度。

#### 3.3 第四代核能系统结构材料辐照性能研究

采用重离子辐照方法和重离子与H和He三束辐照方法, 开展了一系列核能结构材料的辐照肿胀研究, 例如国产改进型奥氏体钢、CLAM钢、1515钢、钼、钨等。

##### 3.3.1 材料辐照性能的重离子辐照研究

(1) 国产改进型316奥氏体不锈钢辐照性能随辐照温度和辐照损伤剂量变化

国产改进型316奥氏体不锈钢是第四代快堆的一种候选材料。采用重离子辐照模拟方法在21 dpa和33 dpa二个辐照损伤剂量(辐照剂量率均为每小时2.1 dpa)和室温到 $802^\circ\text{C}$ 温度范围, 测量了国产改进型316奥氏体不锈钢辐照肿胀随辐照温度变化<sup>[36]</sup>。辐照后采用正

电子湮没方法检测产生的辐照损伤，由测量的正电子湮没寿命得到辐照产生的空位团包含的空位数和平均直径，图 3 (a) 是 21 和 33 dpa 辐照损伤剂量条件下的空位团的平均直径随辐照温度的变化。由图可见，空位团平均直径在 580°C 处呈现峰值，即辐照肿胀温度峰，在这个温度处肿胀最大。对于 21 和 33 dpa 辐照剂量条件的不锈钢，温度峰值处相应的空位团所含的空位数分别为 14 和 19，空位团的平均直径分别为 0.68 和 0.8 nm。实验结果表明，虽然国产改进型 316 奥氏体不锈钢的辐照损伤较普通不锈钢小很多，但是在 580°C 附近还是呈现辐照肿胀温度峰。比较 21 和 33 dpa 辐照损伤剂量条件下的温度变化，可以看到低于肿胀峰温度，辐照随温度升高，辐照损伤产生的空位团的平均直径随辐照损伤剂量的变化增大。

室温下 ~100 dpa 的辐照损伤剂量范围测量了国产改进型 316 奥氏体不锈钢辐照肿胀随辐照损伤剂量的变化<sup>[36]</sup>。图 3 (b) 可以看到，辐照产生的空位团平均直径随辐照损伤剂量增加而增大，75 dpa 后随剂量增加有饱和趋势。在 100 dpa 时，空位团所含的空位数为 8、空位团直径 0.55 nm，比没有辐照的仅增大 0.1 nm。实验结果也可看到国产改进型 316 奥氏体不锈钢具有很好的抗辐射损伤的性能。

(2) CLAM 钢辐照性能随辐照损伤剂量和温度变化  
CLAM 钢是中国自主研发的低活化马氏体钢，也是第四代核能系统结构材料的一种候选材料。在 15 dpa 辐照损伤剂量和室温到 700°C 温度范围内，测量了它的辐照肿胀随温度的变化；在室温和 0~85 dpa 的辐照损伤剂量范围测量了它的辐照肿胀随辐照损伤剂量的变化<sup>[37]</sup>。辐照后辐照损伤的检测采用正电子湮没寿命和多普勒展方法。图 4(a) 是 CLAM 钢中辐照产生的空位团尺度随辐照损伤剂量的变化，由图可见随着辐照损伤剂量增加空位团尺度增大，在剂量 85 dpa 时辐照产生的空位团含有 9 个空位、直径是 0.60 nm。

图 4(b) 是 CLAM 钢辐照产生的空位团尺度随辐照温度变化，由图可见，在 500°C 出现辐照肿胀温度峰，在这个温度空洞含有 9 个空位，它的平均直径是 0.59 nm。

辐照损伤的温度和剂量变化都表明 CLAM 钢具有很好的抗辐射损伤的性能。

(3) CLAM, F82H 和 T91 马氏体不锈钢辐照性能比较  
重离子辐照可以很好地用于材料辐照性能的快速比较或材料筛选。在损伤剂量 10 dpa 时进行了国产低活化马氏体不锈钢 (CLAM) 和 F82H 和 T91 二种国外马氏

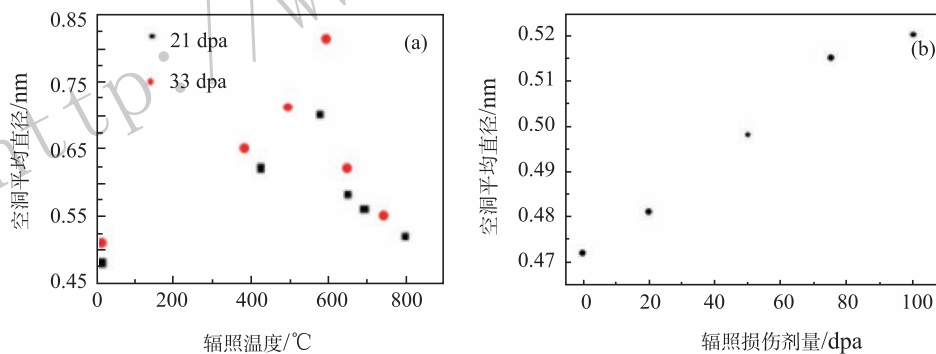


图 3 (在线彩图) 国产改进型 316 奥氏体不锈钢中产生的空位团尺度随辐照温度 (a) 和损伤剂量 (b) 变化

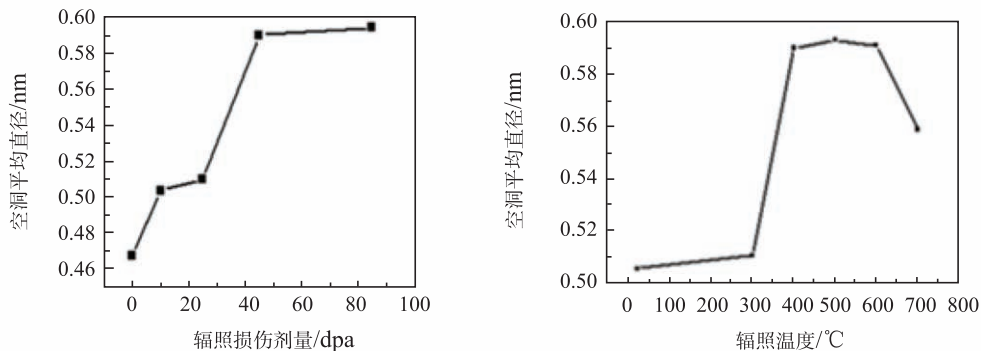


图 4 CLAM 钢辐照产生的空位团尺度随辐照温度和损伤剂量变化

体不锈钢的辐照性能对比研究<sup>[38]</sup>。图 5 是实验测量的 3 种不锈钢辐照前和后的正电子湮没寿命  $\tau_1$  和  $\tau_2$ 。由图可见, 国产低活化马氏体不锈钢 CLAM 辐照前后正电子湮没寿命  $\tau_2$  变化很小, F82H 辐照后的  $\tau_2$  增大最大, T91 比 F82H 的小。实验测量的正电子湮没寿命可以得到, CLAM 钢的抗辐照性能优于 F82H 和 T91, 在测量的 3 种材料中, F82H 的抗辐照性能是最差的。

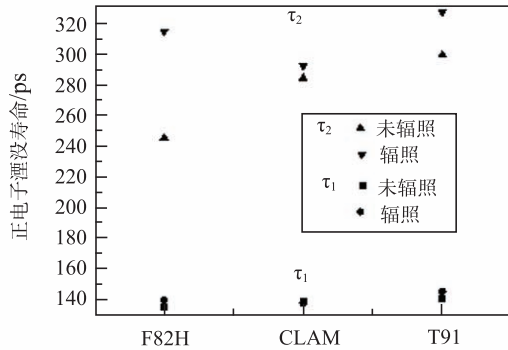


图 5 CLAM, F82H 和 T91 马氏体钢辐照前后正电子湮没寿命变化

### 3.3.2 材料辐照肿胀三束辐照研究

#### (1) CLAM 钢辐照肿胀

采用 CIAE 建立的三束辐照实验平台, 进行了 CLAM 钢辐照肿胀的三束辐照研究<sup>[39]</sup>。辐照在室温下进行, 100 keV H 注量  $4.84 \times 10^{16} / \text{cm}^2$ , 200 keV He 注量  $1.66 \times 10^{16} \text{ Ion/cm}^2$ , 109 MeV Au 注量  $1.07 \times 10^{14} \text{ Ion/cm}^2$ 。在材料表面到 270 nm 的区域, Au、H 和 He 的路径重合。辐照后样品中产生的辐照肿胀采用可变能量的慢正电子束多普勒展宽测量方法检测, S 参数越大, 产生的空位团尺度越大。测量的多普勒展宽 S 参数如图 6 所示, 由图可见, 没有辐照的 S 参数最小, 依次辐照的最大, 三束同时辐照的比依次辐照的小、比未辐照的大。实验结果表明, CLAM 钢在 Au 与 H 和 He 的三束同时辐照时, 由于氢与氦的协同作用效应, 辐照肿胀受到了抑制。

#### (2) 不同成分 1515 钢辐照肿胀研究

核能系统结构材料的辐照性能与材料中掺杂的微量元素密切相关。掺杂元素成分和含量不同的材料, 它们中产生的辐照损伤不同, 有的微量元素的掺杂可以有效地提高材料抗辐照性能。采用 Fe, H 和 He 三束辐照, 研究了 7 种不同掺杂的 1515 钢的辐照性能。三束辐照在 580°C 和 82 dpa 及相应 H 和 He 浓度下进行, 辐照后进行透射电镜和电子能损谱测量, 由测量的空洞数及相应的空洞区体积, 得到材料辐照肿胀率。表 2 是 7 种不同成分 1515 钢辐照后的相对辐照肿

胀率, 可以看到 1# 样品的肿胀最小, 2# 样品的肿胀最大。在这 7 中材料中, 抗辐照性能的优差程度依次是 1# > 5# > 6# > 4# > 7# > 3# > 2#。

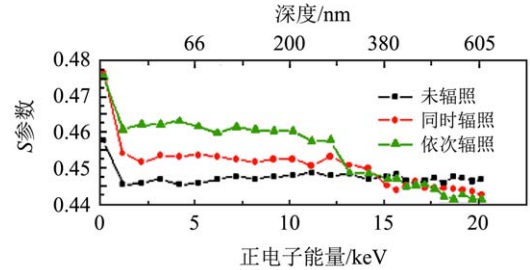


图 6 (在线彩图) CLAM 钢三束同时、依次辐照以及未辐照样品的 S 参数深度变化

表 2 Fe, H 和 He 三束辐照的 7 种不同成分材料的相对肿胀率

样品号	相对肿胀率	样品号	相对肿胀率
1	1.00	5	1.05
2	1.48	6	1.11
3	1.25	7	1.22
4	1.17		

## 4 CIAE 核能系统结构材料辐照性能研究近期发展计划

CIAE 核能系统结构材料辐照性能研究和材料筛选目前主要基于 HI-13 串列加速器。为了更好地开展这方面的工作, 从美国引进了一台超导直线加速器和从瑞士引进了一台多粒子可变能量回旋加速器。

超导直线加速器用作 HI-13 串列加速器的后加速器, 离子通过二次加速器提高能量, 质量 ~200 的重离子能量可以达到 1 GeV。HI-13 串列加速器-超导直线加速器产生的不锈钢自辐照 Fe 离子能量能够达到 0.5 GeV, U 离子可以达到 1.1 GeV, 它们的辐照损伤剂量率分别为 1.28 dpa/ $\mu\text{Ah}$  和 7.36 dpa/ $\mu\text{Ah}$ 。大质量重离子能量的提高, 为实现损伤均匀分布的近中子辐照提供了条件。

多粒子可变能量回旋加速器主要专用于核能系统结构材料辐照性能的测试和筛选。这台回旋加速器加可以加速器质量到 U 的各种重离子, 它们的能量界于串列加速器与串列加速器-超导直线加速器产生的重离子能量之间。回旋加速器产生的 Fe 离子的能量能够达到 0.37 GeV, U 离子达到 0.29 GeV, 它们的辐照损伤剂量率分别为 1.85 dpa/ $\mu\text{Ah}$  和 8.32 dpa/ $\mu\text{Ah}$ 。这台回旋加速器重离子束流可以达到 20  $\mu\text{A}$ , 可以在很短的时间达到很高的辐照剂量。HI-13 串列加速器超导直线加速器和

回旋加速器的重离子终端上都分别建立三束辐照实验平台。

利用 CIAE 已有的 100 MeV 质子回旋加速器提供的质子束流、HI-13 串列加速器超导直线加速器提供的高能重离子束流和多粒子可变能量回旋加速器提供的高能 He 离子束流, 有望建成国际上能量最高的三束辐照装置。

CIAE 现有  $2 \times 1.7$  MV 串列加速器、30 MeV 和 100 MeV 质子回旋加速器、高压倍加器, 中国实验快堆、中国先进研究堆、微堆等, 结合正在建的超导直线加速器或多粒子回旋加速器, 将构成一个比较完整和先进的辐照实验平台系统, 开展第四代核能系统结构材料、行波堆结构材料、含能材料等的辐照与辐照效应研究。

**致谢** 本项目得到国家自然科学基金先进核裂变能的燃料增殖与嬗变重点项目“原子位移与氢和氦协同作用下材料辐照效应和微观结构演变机理研究”、压水堆重大专项、国家重大基础研究发展计划项目“加速器驱动洁净核能系统物理及技术基础研究”和“嬗变核废料加速器驱动临界系统关键技术研究”、国际原子能机构 IAEA 的 CRP 项目“Accelerator Simulation and Theoretical Modeling of Radiation Effects (SMoRE)”等支持。先后参加本项目的有郑永男、左翼、徐勇军、范平、周冬梅、张乔丽、马海亮、温阿利、白若玉、肖自强等, 作者在此向他们表示衷心的感谢。

#### 参考文献:

- [1] 百度百科, 第四代核能系统[EB/OL]. [2016-11-10]. <https://baike.baidu.com/item/%E7%AC%AC%E5%9B%9B%E4%BB%A3%E6%A0%B8%E8%83%BD%E7%B3%BB%E7%BB%9F/355515?fr=aladdin>
- [2] RACHKOV V I, KALYAKIN G, KUKHARCHUK O F, *et al.* Thermal Engineering, 2014, **61**(5): 327.
- [3] ZINKLE S J, BUSBY J T. Materials Today, 2009, **12**: 12.
- [4] YVON P, CARRE F. Journal of Nuclear Materials, 2008, **385**: 217.
- [5] ALLEN T, BUSBY J, MEYER M, *et al.* Materials Today, 2010, **13**: 14.
- [6] MURTY K L, CHARIT I. Journal of Nuclear Materials, 2008, **38**: 189.
- [7] KULCINSKI G L, DORAN D G, ABDON M A. ASTM Report 74-28, 1977: 329.
- [8] PACKAN N H, FARRELL K, STIEGLER J O. Journal of Nuclear Materials 1978, **78**: 143.
- [9] KULCINSKI G L, LAIDLER J J, DORAN D G, *et al.* Radiation Effects, 1971, **7**(3-4): 195.
- [10] NELSON R S, MAZEY D J, HUDSON J A, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 1970, **37**(1): 1.
- [11] ABROMEIT C. Journal of Nuclear Materials, 1994, **216**: 78.
- [12] LEWIS M B, PACKAN N H, WELLS G F, *et al.* Nucl Instr Meth, 1979, **167**(2): 233.
- [13] NEKLYUDOV V Z I, OZHIGOV L, VOYEVODIN V, *et al.* Proceedings of ACC Appl 2007: 275.
- [14] ZELENSKIJ V F, NEKLYUDOV I M. Trans Tech Publications, 1992, **97**: 429.
- [15] ASTM E521, 2009, “Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-Particle Irradiation,” ASTM International, West Conshohocken, PA, doi: [10.1520/E0521-96R09E01](https://doi.org/10.1520/E0521-96R09E01).
- [16] GARNER F A, SHAO L, OLOCZKO M B, *et al.* Use of Self-Ion Bombardment to Study Void Swelling in Advanced Radiation-Resistant Alloys[EB/OL]. [2016-11-10]. <https://www.researchgate.net/publication/281188208>.
- [17] BRYK V, BORODIN O, KALCHENKO A, *et al.* Ion Issues on Irradiation Behavior of Structural Materials at High Doses and Gas Concentrations[EB/OL]. [2016-11-10]. <https://www.researchgate.net/publication/259294088>.
- [18] GETTO E, SUN K, MONTERROSA A M, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2016, **480**: 159.
- [19] CHEN TIANYI, AYDOGAN E, JONATHAN G, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2015, **467**: 42.
- [20] ZHU Shengyun, LUO Qi, FAN Zhiguo, *et al.* Phys Lett, 1997 **14**: 535
- [21] ZHU Shengyun, IWATA T, XU Yongjun, *et al.* Modern Physics Letters B, 2004, **18**: 881
- [22] FARRELL K, LEWIS M B, PACKAN N H, *et al.* Scripta Metallurgica, 1978, **12**(12): 1121.
- [23] SERRUY S Y, RUAULT M O, TROCELLIER P, *et al.* Comptes Rendus Physique, 2008, **9**(3-4): 437.
- [24] TROCELLIER R P, SERRUYS Y, MIRO S, *et al.* Nucl Instr Meth B, 2008, **266**(12): 3178.
- [25] BECK L, SERRUYS Y, MIRO S, *et al.* Journal of Materials Research, 2015, **30**(09): 1183.
- [26] SERRUY S Y, TROCELLIER P, MIRO S, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2009, **386**: 967.
- [27] LEWIS M B, ALLEN W R, BUHL R A, *et al.* Nucl Instr Meth B, 1989, **43**(2): 243.
- [28] SERRUYS Y, RUAULT M, TROCELLIER P, *et al.* Nucl Instr Meth B, 2005, **240**(1): 124.
- [29] PELLEGRINO S, TROCELLIER P, MIRO S, *et al.* Nucl Instr Meth B, 2012, **273**: 213.
- [30] KOHYAMA A, KATOH Y, ANDO M, *et al.* Fusion Engineering and Design, 2000, **51**: 789.
- [31] HAMADA S, MIWA Y, YAMAKI D, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 1998, **258**: 383.
- [32] VOYEVODIN V, KUPRIYANNOVA Y, BRYK V, *et al.* Proceedings of IWSMT-12, Bregenz, Austria, 19-23 October, 2014.
- [33] TANAKA T, OKA K, OHNUKI S, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2004, **329-333**: 294.
- [34] SEKIMURA N, IWAI T, ARAI Y, *et al.* Journal of nuclear materials, 2000, **283**: 224.
- [35] Final Report on IAEA CRPSMoRE: “Accelerator Simula-

- tion and Theoretical Modelling of Radiation Effects”, 2012.
- [36] ZHENG Yongnan, YI Zuo, XU Yongjun, *et al.* Problems of Atomic Science and Technology, 2009, **4**: 89.
- [37] ZHENG Yongnan, HUANG Junying, PENG Lei, *et al.* Plasma Science and Technology, 2012, **14**: 629.
- [38] HUANG Junying, LI Chunjing, LI Yanfen, *et al.* Journal of Nuclear Science and Engineering, 2007, **27**: 41. (in Chinese) (黄郡英, 李春京, 李艳芬, 等, 核科学与工程, 2007, **27**: 41.)
- [39] YUAN Daqing, ZHENG Yongnan ZUO Yi, *et al.* Chin Phys Lett, 2014, **31**: 046101.

## Study of Radiation Properties of Structural Materials for Advanced Nuclear Energy Systems

ZHU Shengyun<sup>1)</sup>, YUAN Daqing

(*Department of Nuclear Physics, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China*)

**Abstract:** This paper introduces briefly the development of nuclear energy systems from the GEN I to the advanced GEN IV, the progress of manufacturing radiation resistant materials associated with the development of nuclear energy systems and the new methods of investigating radiation properties of the structural materials for the GEN IV nuclear energy systems at first. Irradiation induced deterioration of materials properties is a bottle neck problem, which must be investigated and solved for the development of the GEN IV nuclear energy systems. Unfortunately, all the currently available neutron sources cannot meet the requirements of investigating radiation properties of structural materials irradiated by high dose neutron irradiation in the GEN IV nuclear energy systems. Therefore, two new methods of the accelerator heavy ion irradiation that simulates the high-dose neutron irradiation and the triple beam irradiation that mimics the real neutron irradiation environment in the GEN IV nuclear energy systems have been developed. These two methods are introduced in this paper. The present status of the study on radiation properties of structural materials for nuclear energy systems of the new generation and the near future development plan at China Institute of Atomic Energy (CIAE) are described also. The accelerator heavy ion irradiation facilities for different applications and the simultaneous triple beam irradiation platform with three separate accelerators or implanters have been established at the HI-13 tandem accelerator of CIAE. A series of structural materials for nuclear energy systems, such as the home-made modified austenitic steel, CLAM steel, 1515 steel, Tantalum, Tungsten, *etc.* have been tested and investigated systematically. A superconducting linear accelerator and a variable energy heavy ion cyclotron have been imported from abroad for a better performance of the study. Combined with the currently existing facilities of  $2 \times 13$  MeV and  $2 \times 1.7$  MV tandem accelerators, 30 and 100 MeV proton cyclotrons, China experimental fast reactor, China advance research reactor, Miniature neutron source reactor, *etc.* a comprehensive and advanced system of experimental irradiation platform for structural materials of nuclear energy systems will be established in the near future for both domestic and foreign users.

**Key words:** GEN IV nuclear energy system; structural material; accelerator; heavy ion irradiation; triple beam irradiation

**Received date:** 25 Dec. 2016; **Revised date:** 7 Apr. 2017

**Foundation item:** Major Program of National Natural Science Foundation of China (91126002); Major Program of Pressurized Water Reactor(2012ZX06004-005); IAEA CRP(15165/R0); National Basic Research Program of China (973 Program)(G1999022600, 2007CB209900)

1) E-mail: [zhusy@ciae.ac.cn](mailto:zhusy@ciae.ac.cn).