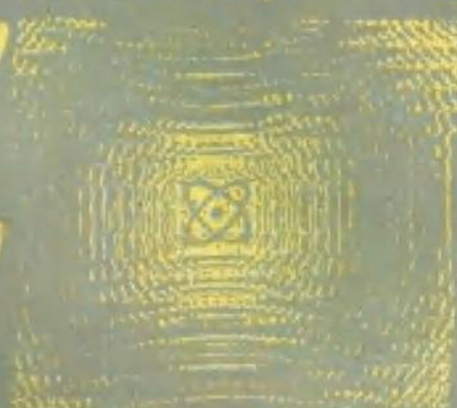


反应堆材料学

[苏]Д.М.斯科洛夫 等编著



原子能出版社

内 容 简 介

本书的着眼点是叙述各种类型反应堆的核燃料、结构材料和包壳材料；讨论金属、陶瓷和弥散型核燃料的物理性能和机械性能，以及在运行过程中这些性能的变化。

书中就结构材料和包壳材料的性能、包壳与燃料的相容性，以及材料与各种冷却剂间的相互作用列举了主要的资料。书中还讨论了元件制造工艺中的一些重要问题，阐述了核能经济学的基础。

本书可供在核动力领域及相近的科技领域中工作的科学工作者、工程师和技术人员阅读，也可供相应专业的大学生和研究生阅读。

Реакторное материаловедение

(Издание второе переработанное и дополненное)

Д. М. Скоров

Ю. Ф. Бычков

А. И. Дашковский

反应堆材料学

李耀鑫 马风藻 译

侯守峰 彭文琳

原子能出版社出版

(北京2108信箱)

重庆印制一厂印刷

新华书店总店科技发行所发行·新华书店经售

☆

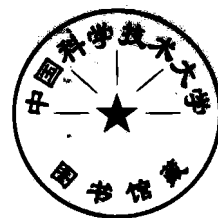
开本 787×1092 1/16 印张 16 字数 399千字

1989年12月重庆第二版 1989年12月重庆第一次印刷

印数 1—790

ISBN 7-5022-0170-X

TL·69 定价：15.80元



再 版 前 言

1968年出版的专著《反应堆材料学》很快售罄一空，这说明了读者对该书很感兴趣。该书出版后的岁月里，在苏联及国外又发表了很多著述。这些著述使我们对于反应堆材料性能的了解以及在使用期间这些材料中所发生的变化机理的概念得到很大的丰富。

奉献给读者《反应堆材料学》第二版是考虑了有关铀、钚、钍及其合金的物理、机械性能方面的最新资料进行修订的。

与第一版相同，本书的着眼点仍是叙述核燃料、结构材料及在辐照和与运行有关的其他因素影响下，这些材料中发生的变化。同时，更为全面地讨论了一些极重要性能的变化问题，阐明了这些变化的规律，以期找到改善材料使用性能的途径。较为详尽地阐述了包壳（结构）材料的稳定性问题，特别是强度性能的意义、强度与辐照中形成和析出氢的关系及腐蚀问题等等。

鉴于出现了大量新资料，以及必须更为详细地阐述反应堆材料的材料学和金属物理学方面的知识，作者认为，删去有关反应堆活性区的物理和热物理的几节是合适的。

第二版基本上保存了原书的整体结构和一些章、节的顺序及名称，但是内容全部更新了，大部份章节按照新出现的资料重新编写，余下的章节则进行了大量的修订和补充。

作 者

目 录

再版前言

第一章 核能源的前景与问题	1
1. 能源发展问题	1
2. 裂变材料、燃耗	2
3. 燃料元件材料	4
4. 燃料元件结构	5
5. 核反应堆的主要类型	6
第二章 金属核燃料	9
1. 纯金属铀	9
2. 铀合金	18
3. 钍及其合金	30
4. 钷及其合金	34
5. 提高燃料元件的工作能力	38
第三章 燃料元件用的陶瓷核燃料	42
1. 氧化物燃料材料	42
2. 碳化物核燃料	75
3. 氮化物核燃料	84
4. 磷化物和硫化物核燃料	89
5. 辐照下陶瓷材料的行为	91
第四章 弥散体核燃料	98
1. 由二氧化铀及金属基体制成的弥散体元件	100
2. 由碳化铀、二氧化铀及燃料材料基体制成的弥散体元件	107
3. 由铀的硫化物、碳化物、氮化物、二氧化物或其它化合物和难熔金属及陶瓷材料基体所 制成的弥散体元件(陶瓷金属)	107
4. 燃料颗粒的包层	115
5. 制造球形燃料颗粒的一些方法	122
6. U-Mg 弥散体系	126
7. 由铝和铝合金作基体, UO_2 、 U_3O_8 、UC和U-Al合金作芯体的弥散体系	126
8. 由铝和铝合金作基体, U-Al合金作芯体的弥散体元件	128
第五章 辐照对结构材料的影响	130
1. 辐照对金属和钢性能的影响	130
2. 辐照对锆的影响	138
3. 辐照对难熔金属性能的影响	140
第六章 包壳与芯体材料的相容性	143
1. 铀与铝的相容性	145
2. 铀与锆的相容性	146
3. 铀与不锈钢的相容性	148
4. 铀合金与难熔金属的相容性	148
5. 陶瓷燃料与金属包壳的相容性	149

第七章 核燃料和包壳材料与冷却剂的相容性	152
1. 铀在水中的腐蚀	152
2. 铝合金在水中的腐蚀	154
3. 锆在水和水蒸气中的稳定性	157
4. 金属与液态钠、钾、铯的相互作用	161
5. 金属与液态锂的相互作用	167
6. 钢和镍合金与水及CO ₂ 的相容性	171
7. 与有机冷却剂的相容性	175
8. 铀及铀合金的腐蚀	176
第八章 芯体与包壳制备和连接的几个问题	180
1. 芯体与包壳的制备方法	180
2. 芯体与包壳接触的特性	182
3. 芯体与包壳连接的几种方法	189
4. 导热夹层	218
5. 燃料元件的密封	221
第九章 燃料元件的质量监督和检验方法	227
1. 概述	227
2. 元件检验与监督方法的物理基础	227
3. 辐照考验(堆内考验)	229
4. 元件零部件的生产监督	232
5. 成品元件的检验	235
6. 检验及其结果评价的标准化问题	239
文献目录	241

第一章 核能源的前景与问题

1. 能源发展问题

当代社会生产力的发展与能源的发展及保证这种能源所需的资源开发紧密相关。

世界的能源资源，特别是在苏联，是很丰富的，但不是无限的。表1.1和1.2中给出了全世界有机燃料储量及能源的估计数据，并已换算成在估算世界能源储量时所惯用的单位Q。
 $[Q=10^{21}\text{J}=10^{18}\text{BTU}$ 或 $2.9 \times 10^{11}\text{MW}\cdot\text{h}$ 或 $3 \times 10^{14}\text{kW}\cdot\text{h}$ ($\text{BTU}=0.252\text{kcal}$)]

表 1.1 世界的矿物燃料储量 (以Q为单位), 保证生产电能的价格低于
 $(1.7-4.0) \times 10^{-3}$ 美元/(kW·h) 的燃料储量 (估计值)

燃料种类	已知的经济上具有开采价值的储量	潜在储量	可期望开采量
煤	18.0	320	200
石油	3.8	46	100☆
页岩	—	12000	0.1
沥青砂	0.2	6	0.2
	~22.0	~12400	~300

☆ 原文如此, 可能有误。

表 1.2 能源及其利用可能性的估计

能源种类	能源生产量 Q/a	能源价格 10^{-3} 美元/(kW·h) (电能)
水力	0.1	3—6
太阳热能	0.05	2—20
木柴及农业废物	0.02	12
地热能	0.01	4—6
水热能	0.001	12
太阳能电站	0.001	12
潮汐	0.001	8—24
其他能源	微小	—

显然, 矿物燃料的资源是有限的, 未必能满足最近一百年内全世界的需求。采用新型能源, 如核能 (裂变和聚变能), 供动力使用, 能够在长时期内解决人类的能源问题。

核燃料释放出的热能与燃烧相同数量的任何一种化学燃料得到的热能相比, 要大几百万倍。但是由于必须保证人身工作安全, 用于获取核能的设备就相当昂贵, 比热电站生产动力的设备价格要高得多。

尽管如此, 几种类型的动力堆还是在经济上达到了必要的水平, 一些技术-经济指标, 特别是燃料循环价格低廉, 甚至超过了用有机燃料的电站。从前景看, 由于标准化生产会进一步降低元件制造的成本; 生产厂能力的扩大, 工艺的简化会降低燃料再生的成本; 从而可以认为, 燃料循环的成本还将进一步降低。

降低基本建设投资也是可能的，例如，可以提高核电站的总功率。在苏联，这个问题已在苏共24大决议中考虑到，而且从第十个五年计划已开始逐步实现^[1,2]。

表 1.3 中列举了热电站、核电站及根据热核聚变堆原理工作的热核电站的对比数据。从表中可看出，尽管电能成本中基本建设经费部份核电站比热电站高，但生产每一千瓦·小时电能的总经费，核电站比热电站的低。

核能不仅是新的电能来源，而且它有助于促进国民经济中许多部门的飞速发展。核能可

表 1.3 各类电站生产单位电能所需费用的对比

经 费	热电站	核电站（裂变）		热核电站 （轻核聚变）
		轻水热中子堆	增殖堆	
基建费 美元/kW·h（电）	95	124	150—180	140—200
运营费 美分/kW·h	0.210	0.272	0.30—0.36	0.28—0.40
燃料费 美分/kW·h	0.452	0.188	0.04—0.06	0.0006
管理费 美分/kW·h	0.04	0.050	0.03	0.03
总运行费，美分/kW·h	0.702	0.510	0.37—0.45	0.31—0.43

以大规模地应用于各种经济领域，例如，农业与交通的电气化、机械化，冶金与化学工业的电气化，以及建造双重用途的海水淡化装置等等。

2. 裂 变 材 料、燃 耗

含有易裂变原子的材料是核燃料的基础。在中子作用下，重核的分裂伴生新的、能引起下一次分裂的自由中子，同时释放自由能。 ^{235}U 的每一次裂变要以热能形式释放出 $\sim 200\text{MeV}$ 的能量。以1公斤反应过的 ^{235}U 计算，释放出的能量为 $5 \times 10^{26}\text{MeV} = 1.94 \times 10^{10}\text{kcal} = 8.1 \times 10^{13}\text{J} = 22500\text{MW} \cdot \text{h} = 1 \cdot 10^5\text{MW} \cdot \text{d}$ 。

此能量的大部份以裂变碎片运动的动能释放，但有一部份是消耗在 γ 和 β 辐射上，使处于激发态裂变碎片回到稳态。

由于某些俘获了中子的核未发生裂变（如生成 ^{236}U ），因此燃烧掉的核燃料数量总大于已裂变核燃料的数量。1公斤 ^{235}U 在一天中全部燃烧，给出的热功率约为790MW，为了得到 $1 \times 10^5\text{MW} \cdot \text{d}$ 的能量，需要烧掉1.28kg ^{235}U 。这样，燃烧一公斤的裂变核燃料，可在一年期间内提供2MW热功率；但在反应堆实际运行条件下，核燃料不会烧尽；实际上燃耗不会超过0.5—1%，因而相对于它的总质量来讲，核燃料有效的热转换能力是它的一百到二百分之一，仅能达到 $(4-8) \times 10^{11}\text{J}$ 。因此燃耗深度就成为燃料的最重要特性。

能保证至关重要的自持裂变反应的主要裂变材料是放射性同位素 ^{235}U ， ^{233}U ， ^{239}Pu 和 ^{241}Pu ，其中只有 ^{235}U 在自然界存在可观数量：天然铀中它的含量为0.714%。其他裂变同位素非常稀少，因此为了实际应用只能用人工方法获得，即用中子辐照自然界中广泛存在的、被称为燃料原材料的 ^{238}U 和 ^{232}Th 的方法来获得。

衡量一定数量核燃料所释放出的能量时，可采用不同单位。因此对数据进行比较时，需要对所得结果进行换算。实践中最常采用的有每 cm^3 中裂变次数，兆瓦·天/吨和相对燃耗%。其中，第一个单位使用不甚方便，另外两个则依赖于燃料的化学成份、选择测量质量的单位

等等。采用“每立方厘米燃料中燃烧掉物质的克数”[已燃掉物质的 g/cm^3]这种单位是可取的,尽管它也不能消除所有难题。(1MW·d/吨=国际单位中86.4MW·s/kg)。为便于计算,表1.4中给出了各种单位的换算系数^[4]。

引起其他核裂变的中子数 k 称为倍增系数 $\star$ 。只有 $k \geq 1$ 时链式反应才有可能。在固定功率下运行的反应堆中倍增系数总是准确地等于1。差值 $k-1$ 称为反应堆的后备反应性,对于动力堆 $k-1$ 一般在0.015—0.03范围内。反应堆运行时由于裂变物质的燃烧,形成新的裂变同位素,反应性要发生变化。

表 1.4 1g裂变掉物质/ cm^3 的能耗当量单位[4]

单 位	燃 料			
	氧化物 ⁽³⁾	碳化物 ⁽⁴⁾	固体金属 ⁽⁵⁾	液态金属 ⁽⁶⁾
1g裂变掉物质/ cm^3 ⁽¹⁾	1.0	1.0	1.0	1.0
1g裂变掉物质/ cm^3 对于“名义” 密度 ⁽²⁾	0.95	0.95	0.80	0.95
重核燃耗%	12.17	9.09	6.54	25.0
MW·d兆瓦·天/(吨重核)	114100	85200	61200	234200
兆瓦·天/(长吨重核 ⁽⁷⁾)	115900	86600	62200	238000
兆瓦·天/(短吨重核 ⁽⁷⁾)	103500	77300	55500	212500
兆瓦·天/(吨燃料)	100600	81100	55100	100500
兆瓦·天/(长吨燃料)	102200	83000	56000	102000
兆瓦·天/(短吨燃料)	91300	73600	50000	91200
裂变数/(cm^3 重核)	$25.3 \cdot 10^{20}$	$25.3 \cdot 10^{20}$	$25.3 \cdot 10^{20}$	$25.3 \cdot 10^{20}$
裂变数/(cm^3 燃料)	$22.8 \cdot 10^{20}$	$24.0 \cdot 10^{20}$	$20.2 \cdot 10^{20}$	$24.0 \cdot 10^{20}$

(1) 基于199MeV/裂变= 3.2×10^{-7} MW·s/裂变= 8.1×10^4 MW·s/裂变物质克数=0.937MW·d/裂变物质克数

(2) “名义”(smeard)密度——燃料质量与燃料元件内部总体积之比。

(3) 密度9.315g/ cm^3 (理论密度的85%); 名义密度8.384g/ cm^3 (90体积%)

(4) 密度11.56g/ cm^3 (理论密度的85%), 名义密度10.98g/ cm^3 (95体积%)

(5) 密度17.0g/ cm^3 (90%重核) 名义密度13.6g/ cm^3 (80体积%)

(6) 密度9.32g/ cm^3 (每 cm^3 燃料中4g Pu)

(7) 长吨等于1.016吨, 短吨等于0.907吨。

反应堆炉期除了取决于燃料装载方法,往往还取决于反应堆开始工作时的剩余反应性数值。随着易裂变同位素的燃耗以及吸收中子的裂变产物的积累,剩余反应性要靠移动控制棒来补偿。但后备反应性的存在总伴随着反应堆运行中的某些缺陷。例如,当控制棒系统出现事故损坏时,就会面临危险的局面。此外,控制棒附近的中子通量密度被降低了,这就引起释放热量和同位素燃耗的不均匀性。

在大型转换堆-反应堆中由于设计中考虑了可转换材料向易裂变燃料的有效转换,就不一定要有后备反应性。在这类堆中易裂变同位素的燃烧与生成几乎以同一速度进行。但是以天然铀为燃料、石墨为慢化剂的大型反应堆中,在开始运行的一段时间内,反应性要增长。对于比较小的反应堆,倍增系数相对来讲也比较小——一部分由于中子逃逸大,部份由于活性区中不能装载足够的可转换材料。

由于后备反应性而产生的难题可以用在燃料中添加可燃毒物的方法解决。属于可燃毒物的有中子吸收截面高(或中等),并且在吸收中子后,生成中子吸收截面小的同位素。

★ 我国对此系数的表达参见国标GB4960-85第1201条

3. 燃料元件材料

运行过程中在中子与裂变碎片作用下，元件内部发生深刻变化。在元件的材料中生成裂变产物——既有气体，又有固体。这些产物有的释放出来并散射出去，有的留在元件中，从而使元件的化学成份、性能和组织都遭到很大破坏。 α 相组织的金属铀及合金经受辐照生长，即在一个结晶方向上伸长，而在另一方向上缩短。

所有的裂变材料都经受肿胀，也就是说，由于气体或固体裂变产物的积累而引起体积增大。结构材料由于生成空洞也会肿胀。在中子辐照作用下所有的材料在不同程度上会降低甚至丧失塑性(脆化)。在辐射条件下会发生芯体材料与元件包壳之间的相互作用，并会产生冷却剂的腐蚀作用。上述这些现象都是有害的，防止它们的危害是一项主要任务。对这些过程控制和消除得越成功，元件运行寿命越长。

表征元件使用可能性的重要参数是：与冷却剂的相互作用，最高工作温度、比功率和燃耗的设计值。以天然铀为燃料的反应堆，燃耗可达 $86,4 \times 10^4 \text{ MW} \cdot \text{s/kg}$ ，主要是受裂变产物积累的限制。使用加浓燃料的压水堆和沸水堆，燃耗有的可达 $43,2 \times 10^5 \text{ MW} \cdot \text{s/kg}$ 。具有和金属一样导热能力的燃料是最好的，因为它可以大大提高元件的功率。

在过去经验的基础上，目前已确定了能以最好方式满足反应堆正常运行条件的元件用材料。对于大多数堆来说，这种材料就是二氧化铀——既包括纯二氧化铀，也包括它与氧化钚或其他化合物的混合物。即使这样一种最有效的材料——二氧化铀也有一系列的缺点（导热性能差，铀浓度低等），因此还要继续寻求新的元件用材料^[10]。

在辐照作用下元件中发生的一个最不期望的现象是肿胀。从物理上讲，肿胀是由两个过程引起的：在生成的裂变产物作用下晶格常数增大（这些产物残留在晶格中）；以及生成充满气体裂变产物的气泡。

随着温度升高，气体裂变碎片的活动性增大，它们聚集成气泡的可能性也增加，肿胀效应增大。在更高温度下，气泡在温度场中迁移，然后从元件芯体中心线方向上排出。因此对于高温区来说，肿胀很快趋于一定值，而肿胀的进一步增长仅仅是由于固体裂变产物的积累。

工业用 UO_2 本身含有孔隙，这使得肿胀过程有段孕育期。这类效应可用烧结过程中气孔收缩的现象来解释。气孔收缩与 UO_2 本体的肿胀同时进行。此二现象相互交叉引起体积的宏观变化。肿胀孕育期的存在在技术上是至关重要的，例如对于热堆的燃料，这种现象使我们有可能根据所需燃耗来改变原始密度。在热堆未来的发展中，越来越频繁地遇到在堆中采用 Pu 和 Th 的氧化物的问题，尤其是氧化钚。U，Th 和 Pu 的氧化物组成连续固溶体。纯氧化物的熔化温度为： UO_2 —— 2800°C ， PuO_2 —— 2390°C ， ThO_2 —— 3250°C 。这些氧化物及其各种成分的固溶体的热导相差不大。这就导致原则上可用 ThO_2 使元件的功率提得更高而燃料不致熔化。这样，相应地发生晶粒长大、气泡聚合等组织变化的温度值也会发生变化。

快堆元件一般装在转换区、活性区和气体收集区。这种元件周围是液态金属、气体或蒸汽，其圆管形包壳用不锈钢或钒合金制成，燃料与包壳之间存在一个充满氦或钠的间隙。包壳内装有铀和钚的氧化物、碳化物或氮化物制成的烧结块。

随 O/M 比增大或燃耗加深，氧化物燃料的热导降低。熔化温度强烈依赖于钚含量、化学

成分和燃耗。最大线功率密度为 $6,5 \cdot 10^3 \text{W/m}$ ，该值取决于熔化温度，并与燃耗有关。

用碳化物做燃料时的重要问题是保证燃料与不锈钢包壳的相容性，这是由于它们的化学活性不同以及热力学上可能产生相互作用所引起的。生成碳化铬使包壳的强度增加，塑性降低。单相铀-钒碳化物与不锈钢包壳的相容性最好，在正常运行温度下采用这种碳化物不会引起任何问题。

在碳化物燃料的最佳工作温度 1500°C 下，最大线功率密度可达 $\sim 15 \times 10^4 \text{W/m}$ （若间隙被钠所填充）。

烧结块与包壳间的充钠环形间隙要选得足够大，这样，辐照时由肿胀引起的燃料体积增大可由间隙来补偿，从而避免燃料对包壳施加任何可观的压力。为抵消辐照肿胀，除环形间隙外还利用（在较小程度上）混合碳化物燃料内的孔隙体积。

不期望超过最高温度（ 1500°C ）还有另外一个原因。随温度升高，碳化物的肿胀速度加大。亚化学计量与超化学计量成分的碳化物，在行为上的差别特别明显地显示出来。碳化物燃料的蠕变速度比氧化物燃料的要小，氧化物燃料的蠕变速度大致与肿胀速度相等。因此由于肿胀填充内部间隙的过程，碳化物燃料进行得比氧化物燃料慢得多。裂变气体的释放会进一步降低肿胀速度。

所有上述问题在设计含碳化物燃料的元件时都要加以考虑。

以天然铀为燃料的热堆，其活性区内可用作结构材料的只有四种金属：Be, Mg, Al 和 Zr——它们具有最小的中子俘获截面。采用 ^{235}U 同位素加浓的金属铀可扩大使用结构材料的范围，包括那些具有更高中子吸收截面的金属及其合金。

沸水堆和压水堆的燃料元件一般是包装在锆合金或不锈钢包壳内。采用锆合金从节省中子上是可取的，但温度提高时锆合金要经受腐蚀及氢化，因此国外采用Zr-4合金作包壳，它的氢化倾向比Zr-2的小。

不锈钢在中子辐照下同样产生辐照损伤。在快堆工作温度范围内发生奥氏体不锈钢的高温脆化。主要是由 (n, α) 反应引起的。这些反应的结果是产生氦原子，后者逐渐聚合成气泡，主要分布在晶粒边界上，影响拉伸时的塑性和强度，引起晶间断裂和材料塑性丧失。快中子轰击金属时会产生大量空位与间隙原子。当能量高于 $1,6 \times 10^{-3} \text{J}$ (1MeV) 的积分通量大于 10^{20} 中子/ m^2 时，不锈钢中出现孔隙。随燃耗加深，这些孔隙使密度降低，相应地材料体积增大，也就是材料肿胀。

包壳材料肿胀速度对通量和温度的强烈依赖关系，意味着在元件的不同部位处体积变化不同。这会引起结构上不期望的应力和弯曲。除一般奥氏体不锈钢外，最近开始采用诸如12R72HV之类的含硼钢，这种钢的特点是持久强度和蠕变性能很好。当温度在 700°C 以上，使用期限更长时，与一般奥氏体钢相比，这种含硼钢的优势更明显。钒合金也比奥氏体不锈钢表现好，主要由于它们的强度高，高温脆化倾向小。钒合金的缺点在于腐蚀稳定性稍差，因为在工作温度高时它们吸收冷却剂中的杂质氧、氮和碳。

4. 燃料元件结构

元件的结构和制造工艺取决于反应堆的使用目的，所选择的燃料，冷却剂的种类，活性区结构等等^[5,9]。研制元件时要保证良好的热物理性能：如高热导值，为使放热最大所需要

的大的表面积，没有不被冷却剂所浸润的部位，燃料与结构材料数量的最佳比值等等；此外还需保证足够的机械强度和刚度，以使元件在工作条件下不改变其几何形状。结构和制造工艺简单也是至关重要的。元件的结构可能有各式各样的，但在反应堆建造和发展过程中已制定出了几种主要的元件几何方案，目前大多数反应堆中都采用这些方案。

在现有的和正在设计的反应堆中主要采取三种类型的元件：板状，圆柱状和管状，球状。有时活性区是由具有不同特点的几种元件组成的。

板状元件可保证单位燃料体积有较大的换热面积，而且制造工艺简单。但平板的强度低，刚度不够。为提高机械强度采用弯板，平板与波纹板的组合，螺旋带板或窄的扭曲板。组装成束的扭曲板元件其优点在于，它们没有面接触，只是在个别点上接触，这就改善了换热条件。一般，板状元件组装成盒，盒中每块板固定在一定的位置上。

圆柱和管状元件具有较大的表面与体积比值，元件棒包壳抵抗外部压力和燃料肿胀、气体释放等引起的内部压力的能力比较强。圆柱状和管状元件的刚度比板状元件的高。直径逐级减小的几个管，以一定的间隙一个套入另一个内，这样组成的套管元件具有大的比表面积，其间隙就作为冷却剂的流道。

圆柱形元件冷却剂除纵向流动外，还允许采用横向流动，后者在冷却剂中等流速下能够给出高的放热系数，但由于元件棒正面阻力，伴随着产生较大的压降。当需要降低燃料内部的温度梯度时，例如用具有低热导的 UO_2 作燃料的元件时，横向流动很有前途。目前用棒状或管状元件组成的工艺管，通常采用的结构方案是冷却剂纵向流动，为改善放热条件人为地搅动冷却剂使之湍化。

球形元件的特点是比表面积最大。一般这种元件是含有裂变材料的石墨球。燃料种类取决于堆的用途。球形元件可具有一层用电解方法镀上的，例如，镍的涂层，它可保护元件不受侵蚀和磨损，而冷却剂回路则不会受裂变产物的沾污。

球形元件中也包括微型元件，这是一种直径为 $10-1000\mu\text{m}$ 的核燃料颗粒，外面包敷一层金属的、氧化物的或热解碳制成的密实保护层^[8]。作为颗粒芯体的材料采用 UO_2 ， UC ， $(\text{UTh})\text{C}_2$ ， PuC 。微型元件涂层的选择取决于涂层与芯体材料和冷却剂间的物理和化学相容性。涂敷可用几种方法：机械方法，各种沉积方法（化学沉积，电解沉积，真空喷镀等）。目前广泛采用的是气相化学沉积涂层法。微型元件可独立使用于沸腾床反应堆内，或者可以作为燃料的基础，加入到难熔母体中以形成弥散体燃料。

5. 核反应堆的主要类型

根据引起燃料核裂变的中子的能量，反应堆可分为快堆、中能堆和热堆，而根据所用燃料的种类可分为铀堆，钚堆、钍堆和混合堆。根据用于慢化中子的材料，反应堆可称为水堆，重水堆，石墨堆及有机介质堆。近来，人们对各种材料的氢化物极为注意，其中氢化锆被广泛采用作为慢化剂^[6,8]。冷却剂是区分反应堆的一个重要特征，可采用水、液态金属、重水、气体、有机介质作冷却剂。在水-水堆中慢化剂和冷却剂都用水（轻水），在钠-石墨堆中石墨作为慢化剂，液态钠作为冷却剂。

根据目的和用途，反应堆有动力堆和生产放射性同位素用堆。动力堆本身又有固定式的（核电站）和移动式的（船舶用堆，飞机与火箭用堆）。目前应用最广泛的是水冷却（主要

是轻水)，加浓铀作燃料的核电站，它已证实自己不仅技术上是可靠的，经济上也是有竞争能力的。在美国，对于2000年以前核电发展的预测使人相信，在最近十年内水冷电站将仍是使用最广泛的。

轻水堆在日本，联邦德国，意大利，西班牙，瑞士，瑞典和其他国家中广泛地被采用。法国政府已通过了决定，把方向转到建设轻水堆核电站上来。最广泛用的是压水冷却堆。压力的选择主要考虑防止在给定温度下，活性区内水冷却剂沸腾。进入汽轮机的蒸汽在冷却剂循环流过的热交换器内生成。这样一个系统会使活性区结构复杂化，对元件提出苛刻的要求。

在直接循环沸水堆中，水在活性区内沸腾，生成饱和蒸汽，直接进入汽轮机。沸水堆需要的投资少，能保证生产出成本更低的电能。在动力堆中，采用重水作有效的冷却剂可避免使用浓缩铀，用天然铀即可作为核燃料。

由于重水价格昂贵，目前重水电站仅在加拿大建造，加拿大有丰富的重水资源和廉价的天然铀。用重水作慢化剂时，一般用轻水作冷却剂。

气冷堆中最常采用的冷却剂是氦、空气和二氧化碳，此外还可采用氮和氘。

石墨气冷堆在英国和法国得到了很大发展，先是用天然铀镁合金(magnox)包壳型元件。用这种堆装备的核电站为两用堆。由于建造成本和电能价格高，这种堆达不到竞争所需要的水平。于是英国就转向了研制改进型石墨气冷堆，采用 UO_2 形式的加浓核燃料和不锈钢包壳，这样就可以把元件不锈钢包壳的工作温度提高到 700°C ，从而使核电站效率提高到40~41%。

在许多国家中(英国，美国，联邦德国)正在进行高温气冷堆方面的工作。这种堆的优点在于，采用陶瓷体元件使元件表面温度达到 1000°C ，反应堆出口处气体冷却剂温度可提高到 800°C ，从而保证蒸汽循环装置的效率达到45%，而采用氦冷却剂的燃气透平循环时甚至能达到50%。

美国提出了高温气冷堆(HTGR)的设计。HTGR的优点在于自身需要的经费不高，铀消耗需求量低，运行费用低廉，反应堆与闭路循环的气体汽轮机可直接连接。

对铀的和钍的燃料循环的对比表明，在起始燃料装载上铀循环的HTGR比钍循环的HTGR燃料消耗要少一些，而在以后的供料中恰恰是在钍循环的堆中燃料消耗量显著地低。

有机冷却剂的优点在于，它们可以在比较低的堆内压力下，生产温度相当高的蒸汽。此外，辐照时有机液体中不生成派生放射性，从而无需为冷却剂回路建造复杂的防护系统。

有机冷却剂堆的缺点在于：有机冷却剂一般传热性能都不佳，所以堆的比功率低。此外在辐照作用下有机冷却剂会分解与合成，这使放热条件变坏。但这种堆能以个别的紧凑组装块体组合建成，在难于操作的地方这些块体可以很容易地被更换。

快堆在许多国家中正在研制和建造。用液态金属冷却剂的快增殖堆(LMFBR)已在各种反应堆中占据了一个应有的席位，并被看作是最佳能源体系中的一个组成部份。这种堆能使我们更合理地使用铀资源，而且对周围环境不会产生不良影响。再过几十年，快堆与向它们提供首批钚装料的热堆的关系将更加密切。在许多场合可能会出现局部和暂时的易裂变材料供货不足。增殖堆发展较慢的原因主要是经济上的。水冷堆已花费了巨额的投资。因此以电业公司为一方，以反应堆设备制造公司为另一方，他们不大可能急转直下改变事态的现状。

作为增殖堆的冷却剂可采用钠或气体。气冷增殖堆前景良好。人们认为，这种堆在很大程度上可采用为高温气冷堆研制的工艺和为液态金属冷却增殖堆研究燃料的成果。气冷快堆的支持者主要考虑这类堆的几个特点：转换系数高，增殖时间短以及所生产的电能的成本低。

目前在所有国家中存在一致的观点：第一步先发展液态金属冷却增殖堆，因为这种堆已研究得相当充分。在苏联目前已有三座这样的堆。

目前活性区用碳化钚工作的BP-5反应堆，将再次改建成 PuO_2 装料^[7]。其功率将由5提高到10MW（热），这就使得燃料和材料的辐照时间缩短到原时间的三分之一到四分之一。BOP-60反应堆于1969年底投入运行，目前以40MW（热）功率运行并生产蒸汽。在舍甫琴柯城一个快堆已投入使用，其目的是生产电能和淡水。

无论生产核电的资源如何丰富，我们都要清晰地考虑发展能源的途径和未来的反应堆。目前应该认为，裂变堆与轻核聚变堆同时使用还需相当长的时间。当今应偏重于哪种堆的发展呢？从经济上的考虑出发，可以预见，能够竞争的只有快堆和轻元素聚变堆。

为了把快堆搞好并投入使用，需要积累相当数量的钚。反应堆建造和发展的全部过程可以保证，在当前十年（1980—1990）的末期可以积累相当数量的钚并能全部或几乎全部解决快堆的技术问题。到1990年或更早一些，当苏联的工业快堆和美国的LMFBR都投入使用时，实际上所有的天然铀贫矿、贫铀料等等都能加以利用。但是全部转入快堆，抛弃运行其他类型的堆（轻水，气冷及其他热堆，在本世纪末期这些堆的数目也会增加很多）的全部经验是否明智？这个问题难于回答。大概只能在同时使用所有经济上合算的各类堆中找到明智的途径。

至于热核堆的建造与投产，尽管聚变物理发展得相当快，但建造现实的堆的工程问题研究得还不够。从乐观的估计出发，人们假设到1990年，也就是说到快堆投产时，所有的问题可得以解决，热核堆可投入使用。在基于D—T反应的热核反应中，原材料几乎全部可在海洋中找到。应该假设到那时能找到廉价的提取方法，那么，聚变反应的原料资源就可以认为是无穷无尽的。与铀裂变堆相比，热核反应堆产生的放射性废物的危害要小得多。

这样，在本世纪末会出现一个问题，即为保证后代人的生活将保留哪种堆。可能，相互竞争的系统——裂变堆与聚变堆——将会长期共存，一直到它们的使用在经济上已不合算，或者出现一种全新的获取能源的经济途径为止。

第二章 金属核燃料

金属铀、钚及铀、钚合金，铀的化合物，铀盐溶液以及铀在各种液体介质中的氧化物悬浮体都可用来作核燃料。每种类型燃料都是优点和缺点，确定的性能与应用范围。

金属核燃料单位体积内易裂变原子浓度高，热导率大，俘获截面小，易于加工，这些特性可以使之能制造尺寸公差小，各种形状的燃料元件^[1,28,31,98]。正是由于这些性能的缘故，金属燃料最适于在石墨气冷堆中，同样适于在有极大前途的快中子堆中及运输动力堆中应用^[31]。

金属燃料的主要缺点是燃耗深度只有0.3—0.35%，而陶瓷（氧化物）燃料的燃耗值可达百分之几。

1. 纯金属铀

1.1 物理性质

根据反应堆的类型及其工作条件，在生产燃料元件时，可采用同位素²³⁵U质量含量为0.714%的天然铀或经富集提高²³⁵U含量的浓缩铀。铀中同位素含量（丰度）的变化不会改变它的物理-化学性质及其机械性能（这在设计燃料元件时具有重要意义），但却极大地提高了燃料的价值。

铀的一些性质，诸如密度、热容、热导率、熔化潜热和蒸发潜热、蒸气压等与前期的加工处理关系较小；当铀含少量杂质时，则会影响相变温度。但同时另一些性质，（热膨胀系数、弹性模量、机械和电学性能）却与前期的加工处理有极为密切的关系。

当杂质的质量含量不大于 $10^{-2}\%$ 时，铀的熔点为 $1130 \pm 1^\circ\text{C}$ ^[53]，而沸点为 3818°C ^[102]。

在熔点以下，铀有三种同素异形体。 α 铀具有斜方晶格，晶胞上有四个原子。25℃时，其晶格常数值为^[84]： $a_0 = 0.28541 \pm 3 \cdot 10^{-5} \text{nm}$ ， $b_0 = 0.58692 \pm 15 \cdot 10^{-5} \text{nm}$ ， $c_0 = 0.49563 \pm 4 \cdot 10^{-5} \text{nm}$ 。图2.1表示了 α 铀的原子排列。它的晶格可被看成是在 b 轴方向上伸长了的、变了形的六方晶系^[44]，而它的每一个顺序排列的原子层平行于底层晶面，但在 $[010]$ 方向上或向前或向后错动一定距离。因此， α 铀的结构可以看作是由平行于 (010) 晶面的波形层构成的。 α 铀晶格中的原子间隙按刚球模型计算可能有两种类型，一种有四个最近邻原子，另一种有五个最近邻原子。大空隙的直径为0.136nm，而小空隙直径为0.110nm^[44]。这些间隙对裂变产物原子的行为起着极为重要的作用。

β 铀是一典型的四方系晶格，每一晶胞包含30个原子。在720℃时晶格常数的值为： $a_0 = 1.0579 \pm 1 \cdot 10^{-4} \text{nm}$ ， $c_0 = 0.5656 \pm 1 \cdot 10^{-4} \text{nm}$ ^[138]。

γ 铀是体心立方晶格，每个晶胞包含2个原子。805℃时，晶格常数 $a_0 = 0.3524 \pm 2 \cdot 10^{-4} \text{nm}$ ^[138]。

α — β 相变温度为 $667 \pm 1.3^\circ\text{C}$ ， β — γ 相变温度为 $774 \pm 1.6^\circ\text{C}$ ^[53]。相变具有扩散性质^[130]。用定向结晶制得的高纯金属铀在25℃时密度为 $(19.05 \pm 0.02) \cdot 10^3 \text{kg/m}^3$ ^[52]。技术纯铀的密度取决于杂质含量和孔隙度，从 $18.7 \cdot 10^3$ 到 $19 \cdot 10^3 \text{kg/m}^3$ ^[30]。

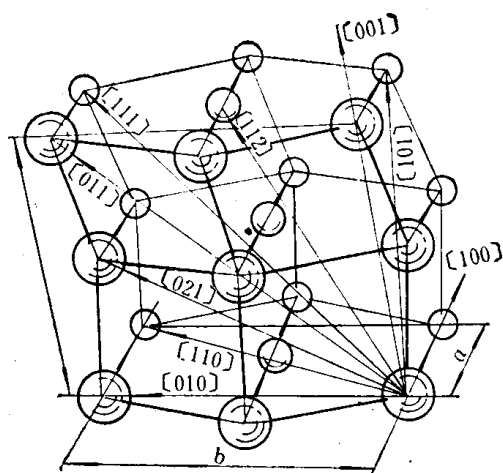
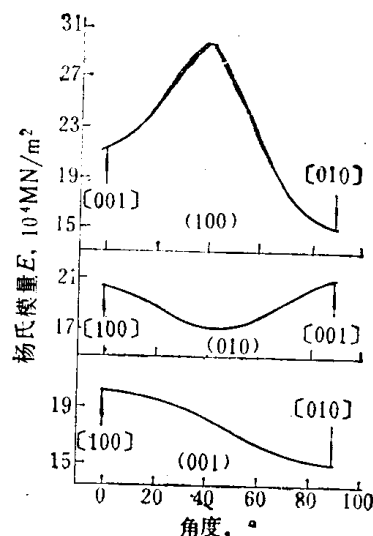
图2.1 α 钛晶格中的原子位置

图2.2 多晶钛的杨氏模量与晶向的关系 (25°C 时)

α 钛的一些性质与晶格中的晶体学方面关系密切。在温度为 25—250°C 之间, α 钛沿 [100], [010] 和 [001] 方向, 即相应地平行于 a 、 b 、 c 方向的热膨胀系数的平均值, 按文献 [41] 的计算应为:

$$\alpha_a = +33,24 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}; \alpha_b = 6,49 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}; \alpha_c = +30,36 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}.$$

因此, 加热时, α 钛的晶格将沿晶向 [100] 和 [001] 显著膨胀, 而沿晶向 [010] 的膨胀却很小, 在高温时, 甚至发生收缩。由于这个缘故, 加热时, ac 平面, 也即晶面 (010) 的波形度会减小。多晶钛的线膨胀在很大程度上与晶粒的择优取向有关。温度变化时, 各个晶粒的形状将由于膨胀的各向异性而发生变化, 从而在多晶 α 钛中产生了极大的内应力。无序排列晶体的 α 钛的热膨胀系数在 20—100°C 的温度区间内为 $16,3 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ [20]。

β 相也有类似的性能差异, 在 [100] 和 [010] 方向的热膨胀系数为 $23,4 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$, 而在 [001] 方向则为 $6,0 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。 γ 相钛各向同性, 其热膨胀系数为 $22,5 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ [65]。

钛的弹性性质表现出极明显的各向异性 (图 2.2)。下面列举用动力法测定的表征钛多晶体弹性性能的各物理量在室温下的平均值: 杨氏模量 $E = 209000 \text{ MN/m}^2$, 剪切模量 $G = 85000 \text{ MN/m}^2$, 泊松比 $\mu = 0,23$ [70]。对 β 钛, 在 727°C 时, $E = 93600 \text{ MN/m}^2$, $G = 31600 \text{ MN/m}^2$; 对 γ 钛, 在 827°C 时, $E = 23000 \text{ MN/m}^2$ [46]。 α 钛的热导率和电阻率同样各向异性, 并与金属的纯度和状态有关。热导率与温度的关系见图 2.3。

钛的内耗与剪切模量跟温度的关系示于图 2.4。 α 钛的内耗与热处理有关, 且在 β 和 γ 相区退火后减小。在等温晶形转变时, 内耗会发生变化。从 α 变 β , γ 变 β 时, 伴随内耗减小, 而从 β 变 γ , β 变 α 时, 内耗增加。钛的每种晶形变体在其存在的温度范围内, 都具有其固有的内耗 [61]。

液态钛的表面张力在熔点时为 $1,55 \text{ N/m}$ (1550 dyn/cm) [63]。固态钛的表面张力有很大意义, 这是因为表面张力在该金属被辐照下所产生的肿胀和脆化过程中能起重要的作用 [24]。但至今仍未取得令人信服的数据。理论计算固态钛在熔点的表面张力为 $1,07 \text{ N/m}$ (1070 dyn/cm) [70]。

钛的机械性能与其制造工艺, 热处理, 及杂质含量有密切关系。室温下铸态钛的抗拉强

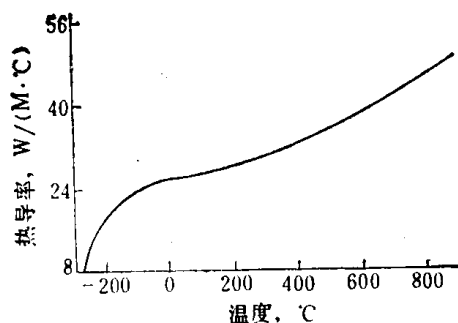
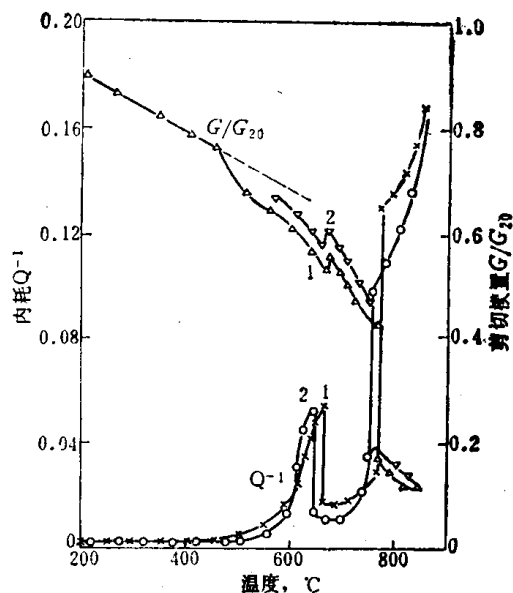


图2.3 铀的热导率与温度的关系

图2.4 铀的内耗和剪切模量与温度的关系
1—加热；2—冷却

度极限约为 300MN/m^2 。随着温度提高，强度迅速减低；当转变到 β 相区时强度提高，而转变到 γ 相区时，强度减低到很小值。在 β 相，铀发脆，而在 γ 相，铀有很高的塑性^[8,9,30,31,44]。

温度低于 400°C 时， α 铀原子间作用着很强的共价键，其形变主要是由孪晶作用而发生的。晶面(010)沿晶向[100]滑移时，共价键并没有断裂，所以在 -100°C 之前观察到沿波形层的滑移。低于此温度，发生变形时主要靠孪晶的作用^[30,31,44]。

在温度低于 450°C 长时间辐照的情况下， α 铀会产生辐照长大，也就是说形状变化，但密度变化不大。铀的最大辐照长大发生在 $300\text{—}350^\circ\text{C}$ ^[22,27,57,60]。在 $400\text{—}450^\circ\text{C}$ 时，发生与辐照长大有关的气蚀肿胀。在温度高于 $450\text{—}500^\circ\text{C}$ 时进行辐照，可观察到所谓的铀的气体肿胀现象。肿胀表现为燃料体积增大，且伴随着铀密度的显著减小。肿胀与填充气体裂变产物的小孔的集聚和长大有关。肿胀的大小与燃耗深度，燃料元件的温度及铀的成分及结构有关。

此外，对于无织构及无宏观尺寸变化的从 β 相淬火的材料来说，可能发生引起表面粗糙（特别是大晶粒金属）的表面晶粒变形。这种粗糙度，即所谓的起皱纹现象，是沿[010]晶向垂直于表面的单独晶粒辐照长大所造成的。为了减小起皱纹的现象，燃料元件的铀芯应该有细晶粒结构，且晶粒尺寸不应超过 0.3mm 。

辐照时发生的另一个效应是铀的蠕变速度比在同一应力下不辐照的蠕变速度提高2—3个数量级。

在辐照的作用下，铀的机械性能和物理性能要发生变化。铀将变得更硬、更脆，其热导率减小，电阻率及腐蚀稳定性也都起了变化。

用低合金铀制造燃料元件时最好具有细晶粒，无序取向结构，没有辐照及热循环（由于温度循环变化）长大，抗辐照肿胀的稳定性，及与工作条件相适应的机械及抗腐蚀性能。

1.2 尺寸不稳定性

在辐照作用下铀的长大 燃料元件的尺寸稳定性是非均匀堆中一个最为重要的条件，因为尺寸变化可能导致限制或堵塞水流，引起燃料元件的过热和损伤。尺寸的变化可能破坏燃

料元件的包壳，这将沾污冷却剂。很遗憾，铀是各向异性的金属，对于铀，尺寸不稳定性表现得特别明显，特别是当它的晶粒有择优取向时。辐照长大的大小以其尺寸相对变化的对数表示，且与燃耗深度的关系为

$$\ln(L/L_0) = G_i(\Delta m/m),$$

式中， L_0 和 L —样品的起始和终止长度； G_i —辐照长大速度常数（辐照长大系数）； Δm —裂变原子数； m —原子总数。 G_i 与辐照温度及金属中的织构有关^[25]。

铀的最大增长发生在[010]晶向，最大缩短发生在[100]晶向，并且在数值上 $G_{[100]}$ 等于 $G_{[010]}$ 。晶向[001]尺寸变化很小。两种指数的取向，取决于取向的种类和程度，可能会促进或阻止长大或缩短。

在辐照的作用下，铀单晶会变形，但在热循环下不变形。无序取向的多晶铀在辐照及热循环作用下比有织构的材料要稳定。辐照长大是注量 $\star$ 的直接函数。

对在75℃辐照过的个别晶体进行的早期研究^[22]给出如下结果： $G_{[100]} = -420$ ， $G_{[010]} = +420$ ， $G_{[001]} = 0$ 。稍后的研究^[23]表明，在一些场合 $G_{[010]}$ 的值达1600。

据文献[57]的数据，有[010]织构的单晶和多晶 α 铀各向异性的增长速度竟一样，且在-196℃时存在最大值。文中还谈到，辐照前发生的塑性变形对长大速度没有影响。但是据文献[60]给出的更为精确的数据，在温度300—350℃时发生最大长大。

在文献[66]中研究了晶粒尺寸和择优取向对 α 铀辐照长大的影响。发现，细晶粒（ $\sim 100\mu\text{m}$ ）样品在样品表面有一定粗糙度的情况下，能保持起始的形状，而标准颗粒的样品（ $\sim 250\mu\text{m}$ ）出现弯曲，粗晶样品（ $\sim 500\mu\text{m}$ ）几乎完全损坏。几乎与样品轴一致的[010]晶向的假单晶长度大约扩大了两倍。所有这些样品都在200℃经辐照，其燃耗到0.2原子%，而假单晶一到0.35原子%。

热循环情况下铀的长大 由热循环引起的尺寸不稳定性，与辐照下造成的尺寸不稳定性是不相同的。对单晶来说，不发生热循环长大，但是在辐照下却出现长大。就辐照及热循环来说，长大与织构之间同样也没有直接一致的关系。

在热循环时，长度相对变化的自然对数是循环数的函数：

$$\ln(L_n/L_0) = f(n)$$

对于固定的 n 可以写成 $\ln(L_n/L_0) = G_i n$ ，式中 G_i —瞬时长大系数（相当于该 n 时）。因此可写成关系式[29]

$$G_i = \frac{d\ln(L_n/L_0)}{dn} = \frac{1}{L_n} \left(\frac{dL_n}{dn} \right).$$

如果 $\ln(L_n/L_0)$ 与很宽范围的 n 值呈线性关系，那末

$$G_i = (1/n) \ln(L_n/L_0).$$

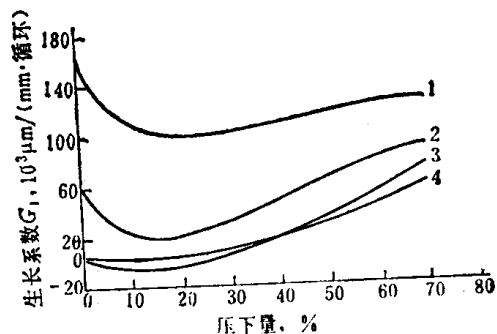


图2.5 轧制压下量对长大系数 G_i 的影响

轧制温度：对曲线4为600℃，对其余曲线为300℃。样品的预加工为轧制曲线1：为在300℃下进行，其余曲线为在600℃下进行；1—在550℃下于 α 相区退火；2—压下量80%，无随后退火；3—在 β 相区随既退火；4—在 β 相区退火

☆ 注量，即以前所说的积分中子通量，本书中据GB3102.10—86统称注量。