

铀钼型燃料芯体发展现状

Current Development Status of Uranium Molybdenum Fuel Cores

刘伟^{1,3} 何亚斌^{2,3} 卢永恒^{1,3}

Wei Liu^{1,3} Yabin He^{2,3} Yongheng Lu^{1,3}

1. 中核反应堆辐照特种元件制备工艺重点实验室 中国·内蒙古 包头 014035
2. 中核新型材料研究与应用开发重点实验室 中国·内蒙古 包头 014035
3. 中核北方核燃料元件有限公司 中国·内蒙古 包头 014035

1. Key Laboratory of Preparation Technology for Radiation Special Components of China Nuclear Power Reactor, Baotou, Inner Mongolia, 014035, China
2. Key Laboratory of Research and Application Development of New Materials at CNNC, Baotou, Inner Mongolia, 014035, China
3. CNNC North Nuclear Fuel Element Co., Ltd., Baotou, Inner Mongolia, 014035, China

摘要: 论文的主旨是对铀钼金属型核燃料的研究进展进行调研, 对铀钼金属型燃料近年来的国内外发展进行查阅调研, 最后对金属型核燃料的发展进行总结与建议。

Abstract: The main purpose of this paper is to investigate the research progress of uranium molybdenum metal type nuclear fuel, review and research the domestic and international development of uranium molybdenum metal type fuel in recent years, and finally summarize and provide suggestions for the development of metal type nuclear fuel.

关键词: 铀钼金属型核燃料; 发展; 现状

Keywords: uranium molybdenum metallic nuclear fuel; development; status

DOI: 10.12346/etr.v6i3.9210

1 引言

金属型燃料具有铀密度高、导热性好等特点, 是快堆、研究试验堆等多种堆型的候选材料, 铀钼是典型的金属型材料, 具有重要价值, 是世界各国正在重点研发的一种先进燃料, 论文重点介绍了近年来国内外该领域的研制进展。

2 铀钼燃料芯体研究进展

2.1 国外进展

世界核新闻网站 2017 年 4 月 27 日报道, 一种板型铀钼燃料近期在美国完成性能测试。这种燃料是一种研究堆燃料, 将被用于替代具有扩散风险的高浓铀燃料。2012 年, 比利时、法国、韩国和美国签署协议, 决定使用韩国原子能研究所 (KAERI) 的离心雾化技术生产高密度低浓铀燃料, 其目标是减少并最终终结高浓铀燃料在民用研究堆中的使

用, 从而降低扩散风险。2013 年 6 月, 美国向韩原研提供 110kg 低浓铀, 用于制造 100kg 雾化铀钼粉末。2014 年 1 月, 这些粉末被运至法国, 由阿海珉集团 (Areva) 制造成燃料元件。2015 年 10 月, 开始在美国爱达荷国家实验室 (INL) 先进试验堆 (ATR) 对这种燃料进行辐照考验。2017 年 4 月 26 日, 韩原研宣布, 辐照考验已成功完成。铀钼燃料拥有比铀硅燃料更高的铀密度, 因此能够用于制造可替代高浓铀燃料的低浓铀燃料。韩原研表示, 铀钼燃料还能够提高研究堆的性能。韩原研表示, 此次辐照考验的结果将被用于拟在釜山建设的一座研究堆申请许可证。这座拟建研究堆有望成为首座使用铀钼燃料的反应堆。

铀钼合金还是一种优秀的空间堆燃料, 美国航空航天局发布的《空间核动力技术路线图》, 按功率等级对空间堆技术途径进行了分析, 其中, 1~4 千瓦电功率建议采用铀钼合

【作者简介】刘伟 (1983-), 男, 中国内蒙古包头人, 硕士, 正高级工程师, 从事核材料研究。

金燃料。除了空间探索，铀钼合金燃料还可用于具有显著军事应用前景的特种小堆，为其提供持续、安全、高效的能量保障。在军用可移动微堆方向，美国能源部洛斯阿拉莫斯国家实验室设计的 Mega Power 采用平均富集度为 12.5% 的铀-钼合金燃料，电功率为 2.25~17.5 兆瓦，换料周期为 12 年，使用二氧化碳闭式布雷顿系统。该设计相对较为成熟，反应堆部件的技术成熟度达到 6 级以上，可在五年内进行概念演示。2020 年 3 月 9 日，美国国防部已启动军用微型可移动反应堆“贝利”研发计划，相关进展值得关注。在特种核动力新型武器方向，铀钼合金燃料或可用于长航时巡航导弹需求的核动力系统，使其航时长、航程远，能够机动变轨，可突破反导系统的拦截，具有极强的突防能力。

俄罗斯国家原子能集团公司网站 2022 年 4 月 16 日报道，大宇工程建设公司 2022 年 4 月 7 日宣布中标韩国原子能研究所 (KAERI) 1.5 万千瓦研究堆建设项目。该研究堆将位于釜山市，使用铀-235 丰度为 20% 的铀钼板状燃料，由大宇工程建设、现代工程建设公司 (Hyundai E&C) 和 GS 工程建设公司合作建设，建设工期为 60 个月，合同金额约 3 亿美元。该研究堆建成投运后，韩国将实现医用放射性同位素自主供应，摆脱对进口的依赖。

俄罗斯核燃料产供集团网站 2022 年 5 月 19 日报道，俄罗斯核燃料产供集团 (TVEL) 2022 年 5 月 19 日宣布，核反应堆研究所 (RIAR) 近日利用 MIR 研究堆启动首批两个耐事故燃料试验组件的第四个辐照周期测试。这两个组件由新西伯利亚化学浓缩厂 (NCCP) 制造，含有 2 种燃料芯块和 2 种包壳：燃料芯块分别是传统二氧化铀芯块和具有更高铀密度和导热性的铀钼合金芯块；包壳分别是带铬涂层的锆合金包壳和铬镍合金包壳。这些芯块和包壳组成了 4 种燃料棒。每个燃料组件包含 24 根具有不同材料组合的燃料棒。这些燃料组件于 2019 年 1 月装入 MIR 研究堆，在“尽可能接近”商业压水堆机组运行工况的条件下进行测试。罗斯托夫核电厂 2 号机组 2021 年 9 月在装填了首批耐事故燃料棒后重启，正式启动了耐事故燃料在商业机组中的首次辐照测试。在此次装填的燃料组件中，有 3 个组件含有耐事故燃料试验棒，每个组件 12 根：6 根使用铬镍合金包壳，另外 6 根使用带有铬涂层的标准锆合金包壳。罗斯托夫 2 号是一台 2010 年投运的 VVER-1000 机组。

韩国、俄罗斯和欧盟正在主攻弥散型燃料技术。其中，韩国和俄罗斯进度较快，已率先完成全尺寸先导燃料组件的辐照试验，计划未来几年投入工程应用。韩国的弥散燃料采用铝硅基体，最大铀密度为 8 克铀/立方厘米。2 根全尺寸试验组件于 2017 年 4 月在美国先进试验堆中结束辐照试验并取得成功，试验组件在结构完整性和燃料性能方面表现稳定。正在开展辐照后检验，以便为燃料认证工作。2019 年 5 月，韩国批准建造一座新的 15 兆瓦研究堆 (KJRR)，预计 2024 年完成建设，将用于生产医疗和工业用途的放射性同

位素，该研究堆有望成为全球首座使用铀钼合金燃料的研究堆。但是，受制于韩国内反核运动，其研究进度与设施建造工程面临很大不确定性。俄罗斯的弥散燃料采用铝基体，最大铀密度为 5.4 克铀/立方厘米，应用对象是中通量研究堆。全尺寸试验组件（铀钼合金燃料芯块，2 种包壳材料分别为镀铬锆合金或铬镍合金）辐照试验于 2019 年 10 月结束，燃料组件均未出现燃料棒几何形状变化和包壳材料表面损伤问题。目前，俄罗斯正开展进一步的辐照后检验，相关结果将被用于确定最佳的材料组合。俄罗斯还计划 2020 年利用商业核电机组对铀钼合金燃料进行辐照测试。欧洲的研发活动由法国、德国、比利时三国共同实施。2019 年启动燃料认证工作，正在进行辐照试验工作，预计持续到 2025 年才能完成。当前面临的主要问题是铀钼合金颗粒包覆工艺尚达不到大规模生产的要求。

美国开展了单片型铀钼合金燃料研发活动，牵头的是阿贡国家实验室，爱达荷国家实验室、橡树岭国家实验室、Y-16 工厂还有若干燃料技术公司都有参与。目前，研发计划已进入关键的燃料认证阶段，并计划在 2025 年完成认证后大规模推广使用。单片型铀钼合金燃料制造工艺流程：首先，采用真空感应熔炼的方法，按一定比例混合高浓铀、贫铀、钼金属铸造铀钼合金铸锭，然后，对铸锭进行均质化处理，最大程度降低合金铸锭的化学偏析（即，保证合金中铀钼质量分布的均匀性）；此后，将合金铸锭和锆金属薄板（用作中间层）一起包裹在低碳钢罐中，675℃至少预热 1 小时后进行多次热轧至总压下率 75% 左右，同温退火 45 分钟；接着，热轧箔去罐、清洗、存储；最后阶段，冷轧至 0.25~2mm 厚度以后，在 650℃下真空退火并进行气体淬火；最后使用 A6061- 铝覆层对合金燃料箔片进行热等静压，产出单片型铀钼合金（钼的质量分数 10%）燃料板^[1]。

2.2 国内进展

中南大学张玺在刘华山导师的指导下在 2009—2011 年开展了 U-Mo 二元合金热力学优化，对 U-Mo-Al 三元合金进行了热力学推算，获得了不同温度下的 U-Mo-Al 三元合金等温截面图。

贾建平博士在武胜老师的指导下，于 2009—2012 年期间，针对聚变裂混合堆应用背景，分析了次临界能源包层中裂变核燃料材料的技术要求，从成分和结构两个方面开展了材料设计工作。选择了铀钼系二元或三元合金作为研究对象，以合金为重点，设计并验证了一条真空熔炼铸造氢化去氢制粉真空固相烧结的技术路线，成功地制备了含一定孔隙度的核燃料材料。在研究过程中主要探讨了铀钼系合金的相稳定性、合金氢化反应机理、粉末冶金工艺对制品孔隙度的影响规律以及孔隙对合金力学热物理性能的影响规律。利用不同的工艺参数开展了含孔隙合金粉末冶金制备方法研究，确定了制备适当密度样品的工艺方法。

2009 年，中国核动力研究设计院反应堆燃料及材料国

家重点实验室陈建刚等采用粉末冶金法制备了 U-Mo 合金燃料弥散芯块,工艺主要包括氢化-破碎-脱氢法制备 U-Mo 合金粉末、配料计算、混料、压制、除气和烧结、检测等工序。原材料为 U-wt%Mo 合金,采用真空感应熔炼法制备,合金液经浇注形成 Y 相铸锭。块状金属铀在 250℃ 时与氢迅速反应,生成黑色粉末状氢化铀,温度高于 400℃ 时,氢化铀开始分解,得高活性细粉末状的铀。确定了公斤级 Y 相 U-Mo 合金铸锭的氢化参数,氢化温度为 100℃~200℃,氢压为 0.14~0.4MPa,保温时间为 10~15h。铸锭大部分呈层片状碎裂,氢化效果好。将氢化物装入自主设计的充有高纯氢气的破碎手套箱中机械破碎成粉末,然后对氢化物粉末进行脱氢处理,脱氢温度 300℃~500℃,保温 2~6h。合金燃料颗粒的形貌对改善弥散芯块的流动性和芯体的均匀性有较大的影响。颗粒长短轴比较大时,在加工元件时有较大变形抗力,容易造成芯体铀分布不均匀,同时颗粒产生破碎,增加芯体孔隙率。燃料颗粒的长短轴比越大,燃料相越不均匀。将 U-Mo 粉、Al 粉、Si 粉进行均匀混合,3 种粉末的混料均匀性是改善弥散燃料芯体均匀性的重要前提。为保证铀面密度分布均匀性,要求芯块中 U-Mo 粉末尽可能均匀分布在铝基体中。U-Mo 合金燃料弥散芯块采用液压机进行单向压制,成型压力为 6~10MaP,保压 5~10S,为避免模具和芯块产生“抱死”现象,模具工作面上需涂刷合理厚度的润滑剂(硬醋酸锌),成型好的芯块尺寸为 30×60×4.05mm。U-Mo 合金燃料芯块在压制过程中因为使用了一定的润滑剂,同时形成一些孔隙,在孔隙中存留一定量的气体,由此芯体需要进行除气处理。此外,由于弥散芯体为混合物,为使两相扩散形成冶金结合便于流变成形,需要进行烧结。除气和烧结均在真空热处理炉中进行,温度都为 350℃~500℃,保温时间为 2~4h。

厦门大学李林阳在王翠萍老师的指导下,于 2014—2017 年对部分金属型燃料在辐照条件下的相图进行了模拟分析,建立了辐照条件下的有效自由能模型,研究了不同辐照条件对缺陷浓度、自扩散系数、自由能和平衡相图的影响,并计算了不同辐照条件下 U-X (X: Mo, Zr) 各二元合金的平衡相图。结果表明辐照对高温部分的平衡相图影响很小,但是在低温部分,U-Mo 和 U-Zr 合金相图中分别出现了连续固溶相,发生了两个不变系反应,即在辐照条件下,原本在高温时稳定存在的 Y 相也能在低温时稳定存在。

2015 年,中国核动力研究设计院反应堆燃料及材料国家重点实验室陈建刚等对 (U-Mo)-Al 燃料板芯体铀分布

均匀性改进进行了研究,研究了混料方式和芯坯端部形状对芯体铀均匀性的影响。采用转盘式混料机和特制三维混料机对 U-Mo 粉和 Al 粉进行混合对比试验,采用传统平角和特制削角芯坯成型模具压制了三种部形状不同的 (U-Mo)-Al 燃料芯坯。采用氧化还原滴定法测定混合粉的铀含量;采用 7 射线吸收法检测燃料板铀均匀性。结果显示,相对二维混料,三维混料提高了粉末均匀混合程度,极大改善了燃料板均匀区的铀均匀性,但对“狗骨”区铀均匀性没有积极作用。芯坯端部形状对 (U-Mo)-Al 燃料板“狗骨”区铀均匀性具有重大影响。平角芯坯制成的燃料板“狗骨”程度较严重;双面削角芯坯制成的燃料板“狗骨”程度加剧;单面削角芯坯制成的燃料板芯体端部厚度渐薄,无断裂和较长的燃料拖尾,“狗骨”程度得到明显改善。验证试验结果表明:采用三维混料和单面削角芯坯,(U-Mo)-Al 燃料板均匀区铀均匀性全部控制在 ±12% 以内,“狗骨”区铀均匀性全部控制在 20% 以内^[2]。

3 总结与建议

近年来,国内外对于金属型燃料的研究从未停止,研究工作包括燃料设计、合金制备、芯体加工、辐照考验等方面,取得了较为明显的进展,未来金属型燃料芯体依旧是各类研究堆的主要候选材料,随着技术的不断进步,甚至在可能在商业堆中获得使用。

建议在后续的研究工作中,密切关注国内外相关进展,针对各类金属型燃料关键技术开展攻关,包括合金制备、燃料颗粒制备,燃料成型等方面,掌握核心技术并注重申请知识产权保护。

铀钼合金燃料技术具有典型的需求导向性,中国已积累了一定研究基础和经验,建议以弥散燃料板路线为重点,进行铀钼合金燃料的研发工作,并根据应用需求,探索掌握单片型铀钼合金燃料技术。在以上基础上,同时开展铀钼合金燃料的制备^[3]。

参考文献

- [1] 李正宏,黄洪文,王真,等.聚变-裂变混合堆总体概念研究进展[J].强激光与离子束,2014,2016(10):1-7.
- [2] 潘建均,王毅初,李筱珍,等.我国核燃料循环标准化发展战略研究[J].中国工程科学,2021,23(3):53-59.
- [3] 孙荣先,解怀英.研究堆燃料的发展现状与前景[J].原子能科学技术,2011,45(7):847-851.