



·研究堆应用技术专题·

铍组件堆内长期服役后的尺寸测量^{*}

刘 晓, 杨万奎, 王 浩, 王 健, 张松宝, 张新荣, 李文华

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

摘 要: 铍是核反应堆内的重要反射层材料, 其辐照后的尺寸变化对反应堆的安全性具有重要的影响。为获得铍组件堆内长期服役后的尺寸变化, 以对其堆内的服役性能评价提供基础数据, 设计并加工了一套高放样品远程转运平台, 使用三坐标测量机完成了绵阳 SPRR-300 堆内铍组件的尺寸变化测量实验。实验测量结果表明, SPRR-300 堆的铍组件在服役 29 a 后, 在最高中子通量高达 $6.78 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ 的辐照环境下, 铍组件外形尺寸总体上保持良好, 截面有微量的收缩变形, 最大形变约 0.13 mm, 这表明在长期中子辐照环境下, 辐照蠕变是导致铍组件尺寸变化的主要原因。

关键词: SPRR-300 堆; 铍组件; 中子辐照; 长期服役; 辐照蠕变

中图分类号: TL342

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202234.210516

Size measurements of beryllium assemblies after long term service

Liu Xiao, Yang Wankui, Wang Hao, Wang Jian, Zhang Songbao, Zhang Xinrong, Li Wenhua

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, CAEP, Mianyang 621900, China)

Abstract: Beryllium is an important material as neutron reflection layers in nuclear reactors. The size change of beryllium after long term neutron irradiation has a great influence on the reactor safety. To obtain the size change of beryllium assemblies after long-time irradiation for the assessment of service performance, a set of special tools were designed and manufactured. The size change of post-irradiation beryllium assemblies was examined on a three coordinate measuring machine. The measurement results indicate that beryllium assemblies of the SPRR-300 reactor have excellent stability after 29 a irradiation, even under the maximum neutron fluence of $6.78 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$. The section dimension has little change in local part of beryllium assemblies and the largest change is about 0.13 mm, which indicates that irradiation creep is the main reason for the dimension change of beryllium assemblies during the long-time service.

Key words: SPRR-300 reactor, beryllium assemblies, neutron irradiation, long term service, irradiation creep

近几十年核裂变反应堆的运行经验表明, 反应堆寿期的限制, 究其原因多数是因中子辐照而导致堆内材料性能恶化而引起的, 堆内材料在经受长期中子辐照后性能的变化直接关系到反应堆的寿期、经济性和安全性。金属铍具有密度低、熔点高、中子吸收截面小等优点, 在聚变堆、压水堆、研究堆等各型核反应堆上均具有广泛的应用^[1-4], 通常被作为慢化剂和反射层的重要材料而在堆内长期使用。但铍金属在堆内长期服役过程中, 容易发生辐照生长、辐照肿胀等现象^[5-6] 进而使其材料性能下降, 影响反应堆服役寿命甚至危及反应堆的运行安全。为评估铍材料在堆内的辐照性能, 通常采取小样品的铍材料进行短期快速辐照实验来进行考核^[7-9], 但由于小样品和部件级样品制造工艺存在差异, 短期考验与长期服役条件也有所不同, 因此, 短期辐照考验无法真实反映铍部件长期服役后的性能变化, 这给铍部件在反应堆中的长期服役性能评价带来了困难。到目前为止国际上尚无铍在反应堆中使用的统一准则, 而铍部件长期服役后的尺寸变化十分重要但相关研究十分匮乏。由于铍部件在堆内长期辐照后, 活化程度很高, 同时该材料又具有很强的毒性, 难以测量和表征分析, 使得有关铍组件在反应堆内长期辐照后的尺寸变化实验数据鲜有报道。

* 收稿日期: 2021-11-24; 修订日期: 2022-03-30

基金项目: 国家自然科学基金项目 (11675154, 41630315); 国防科工局核能开发项目

联系方式: 刘 晓, liuxiao6161@163.com。

本研究采用的铍组件在绵阳 SPRR-300 堆内已服役近 29 a, 为获得铍组件长期服役后尺寸变化情况, 我们对相应的辐照后铍组件开展尺寸测量分析工作。为解决高放射性铍组件尺寸变化测量问题, 我们设计并加工了一套远程转运工具, 在三坐标测量机上远程完成了对高放射性铍组件的尺寸测量, 获得了铍组件长期服役后的尺寸变化真实数据。我们的研究表明在中子注量高达 $6.78 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ 的长期服役条件下, 铍组件的尺寸形变不超过 0.13 mm, 这可能是由于长期中子辐照蠕变导致的。我们的研究为铍组件长期服役后的尺寸变化评估提供了基础数据, 对堆内其他正在服役的铍部件具有较好的工程应用参考价值。

1 绵阳 SPRR-300 研究堆铍组件的服役环境

中国工程物理研究院核物理与化学研究所的绵阳 SPRR-300 研究堆是一座由轻水慢化、冷却, 使用 U^{235} 富集度为 10% 的 UO_2 燃料元件作为核燃料的池式热中子反应堆, 其额定功率为 3 MW, 于 1979 年首次达到临界工作状态。铍组件在 SPRR-300 反应堆上用作反射层和慢化剂, 布置于燃料组件的外围, 通过下端的底座插入栅格板支撑固定, 如图 1 所示, 中心为燃料组件, 向外依次为铍盒、石墨盒。300# 堆的堆芯装载在几十年内, 根据实验和任务运行需要, 已进行过几十次调整, 堆内的服役时间也不相同, 最长的服役时间达 29 a, 相应的服役历史如表 1 所示。我们首先通过对历史溯源之后的铍组件进行逐一统计, 选取典型堆芯装载位置, 利用蒙特卡洛程序进行建模, 获得了典型位置处铍组件的中子注量^[10-11]。为获得不同中子注量辐照下的铍组件尺寸变化数据, 我们选取了 4 个典型的中子注量点铍组件, 分别为 C3, F4, J3 和 E1 铍组件(由于堆芯装载变化, 铍组件编号与图 1 中编号不是一一对应, 实际中采用的存储铍组件的格架编号标识), 其中子注量分布如图 2 所示, 铍组件中间部分位于堆芯中心, 上升部分位于堆芯上部, 下降部分位于堆芯下部, 中间部分中子注量高, 向两端逐渐降低。堆芯上半部分布置有控制棒, 对中子有着较强的吸收作用, 使中子注量上升部分相对较为缓慢。最大中子注量样品为 E1 组件, 其最大中子注量为 $6.78 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ 。

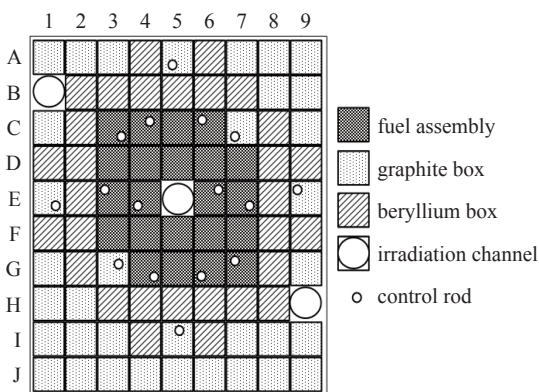


Fig. 1 Scheme of assemblies for SPRR-300 reactor

图 1 绵阳 SPRR-300 反应堆装载示意图

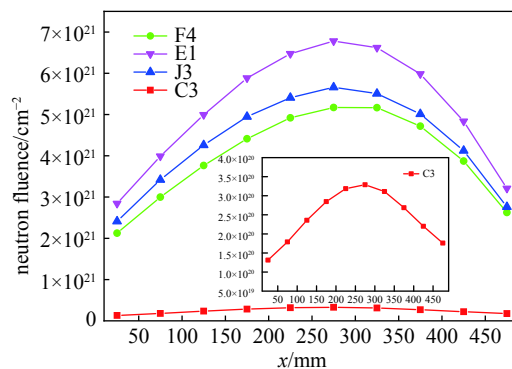


Fig. 2 Neutron fluence of beryllium assemblies along x axial segment

图 2 铍组件沿 x 轴向的中子注量分布

表 1 测量所用铍组件的服役时间与最大中子注量

Table 1 Service-time and maximum neutron fluence of beryllium assemblies

No.	service-time/a	service duration	maximum neutron fluence/cm ⁻²
C3	14	1995—2008	3.29E+20
F4	29	1979—2008	5.17E+21
J3	29	1979—2008	5.66E+21
E1	29	1979—2008	6.78E+21

2 高放铍组件转运与测量平台

铍组件具有较强的毒性, 且辐照后具有很强的放射性, 因此对于辐照后的铍组件外观尺寸检测, 一般都要在热室内进行, 并配备机械手、吊装台架、测试仪表、样品转运系统等或者在池水内搭建检测台架, 利用特制的电感测微仪对铍组件的尺寸进行测量。绵阳 SPRR-300 研究堆没有专门的测量热室, 而将铍组件转运到有热室条件的地方, 存在着很高的长距离转运风险; 若在堆内水下利用特制的电感测微仪测量, 仪器的设计和生产周期很长, 费用也非常昂贵。为了解决铍组件无法转运的难题, 我们把测量仪器三坐标测量机转移到反应堆大厅来进行相应尺寸

测量。

对于样品尺寸测量,在精度要求不太高的情况下,可以用千分尺或游标卡尺近距离手动测量。而对于放射性铍组件,由于具有很强的放射性,为了测量人员的安全,需要进行远距离或屏蔽条件下的测量,此时千分尺和游标卡尺就无法使用。三坐标测量机是在一个六面体的空间范围内,能够远程、自动测量样品的几何形状、尺寸的仪器,它是测量和获得尺寸数据的最有效的方法之一,可以代替多种表面测量工具及昂贵的组合工具,且可快速准确地获得样品的尺寸数据,这与所有的手动测量设备有着很大的区别。所使用的三坐标测量机的测量精度为 $2\ \mu\text{m}$,远高于传统的手动测量设备。因此,本工作采用三坐标测量机远程测量辐照后具有放射性的铍组件尺寸变化。

铍组件的铍方块镶嵌在上下端头之间,上下端头为合金铝材,上端头有一个凸起,其结构示意图如图3所示。铍是易脆的金属材料,轻微的磕碰即有可能导致破碎。根据铍组件结构,只有上端头的凸起可以用来抓取铍组件。为了防止铍组件测量转运过程中可能出现的跌落或磕碰,我们设计并加工了一套转运工具:长杆吊钩和转运吊篮,如图4所示。长杆吊钩用于铍组件的取放,转运吊篮用于铍组件的转运。在转运吊篮上系有长绳,方便转运过程中的远距离操作。

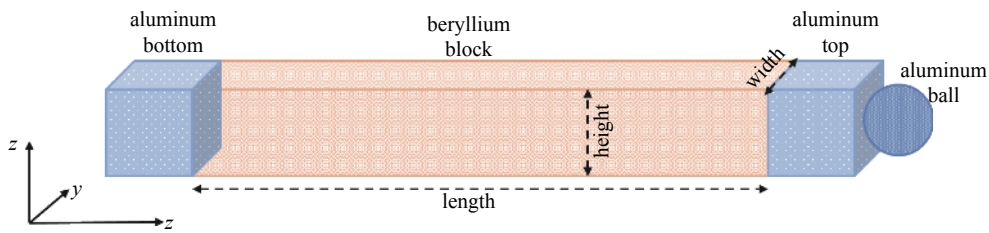


Fig. 3 Structure scheme of beryllium assemblies

图3 铍组件结构示意图

在正式测量前,我们加工了一个铍组件模拟件,模拟正式样品的转运和测量过程。利用该套工具,先用长柄吊钩在堆芯水池处把铍组件勾取后慢慢放入转运吊篮内,借助吊篮上的长绳,操作人员站在吊车上把铍组件缓缓转运到三坐标机上放平到位,随后测量铍组件的尺寸,如图5所示,测量完成后按反向顺序再把铍组件缓缓转运回堆水池。

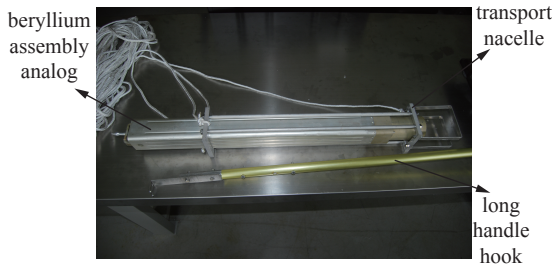


Fig. 4 Transport nacelle and long handle hook

图4 转运吊篮和长柄吊钩

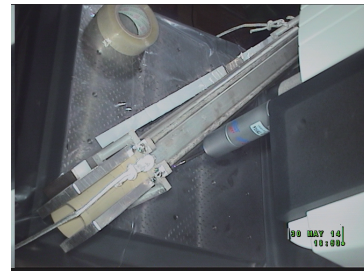


Fig. 5 Measurement of beryllium assemblies

图5 铍组件的测量

3 尺寸测量结果与分析

三坐标测量机记录的是样品在空间位置的坐标点信息,通过软件自动拟合坐标信息后可给出样品平面度和面间距信息。对于选取的4种典型铍组件样品,分别测量了4个面,在每个面上选取了3条直线路径。利用三坐标测量机获得了每个面的平面度数据,如表2所示。从测量的平面度图数据可以看出,辐照后的铍组件仅有微量的

表2 铍组件的平面度

Table 2 Plane degree of beryllium assemblies

No.	the average neutron fluence of measuring position/cm ⁻²	xz/mm	-xz/mm	+xy/mm	-xy/mm
C3	2.68E+20	0.061 2	0.004 5	0.056 3	0.047 8
F4	4.33E+21	0.120 2	0.000 4	0.132 8	0.119 8
J3	4.71E+21	0.059 8	0.020 3	0.071 7	0.107 4
E1	5.60E+21	0.025 1	0.000 1	0.059 7	0.060 0

Note: the x-axis, y-axis and z-axis parallel the direction of length, width and height, respectively.

形变,最大形变为F4组件,约0.13 mm。典型面的测量数据如图6所示,铍组件的不同部位,其形变也有所不同,如图6的E1组件+xy面和-xy面所示,某一面向外弯曲,相对另一面的位置向内弯曲,其它的铍组件也有类似的规律。其主要原因是铍组件在堆内服役期间,铍组件发生辐照蠕变导致的。

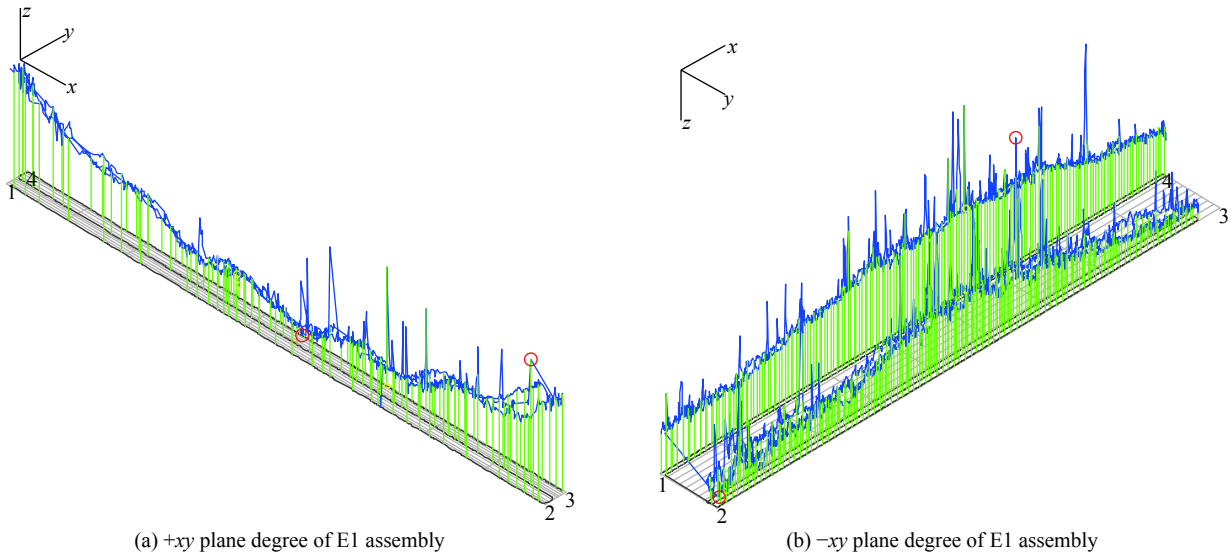


Fig. 6 Plane degree of E1 beryllium assembly

图6 E1铍组件平面度测量结果

铍组件原设计文件中,铍组件面间距为67.850 0 mm。根据三坐标测量的铍组件辐照后的数据点,对铍组件宽度、长度和长度和宽度的平均值进行了统计,如表3所示。从表3测量的结果可以看出,铍组件的平均面间距由初始的67.850 0 mm增加到68.066 1 mm,随后下降到67.460 5 mm,然后又回升到67.710 7 mm,其形变量(为铍组件辐照后的宽度或高度与原始宽度或高度的差异)也是先增大,后减小,然后又增大,即随着铍组件平均中子注量的增加,铍组件截面先增大,然后出现了轻微的收缩后又开始增大。

表3 铍组件辐照前后的截面尺寸
Table 3 Section of beryllium assemblies

No.	the average neutron fluence of measuring position/cm ²	width/mm	height/mm	the average distance of width and height/mm	deformation degree/mm
original	0	67.850 0	67.850 0	67.850 0	0
C3	2.68E+20	68.123 8	68.008 3	68.066 1	0.216 1
F4	4.33E+21	67.435 3	68.046 1	67.740 7	-0.109 3
J3	4.71E+21	67.463 8	67.457 2	67.460 5	-0.389 5
E1	5.60E+21	67.533 9	67.887 4	67.710 7	-0.139 3

铍在堆内辐照,导致其形变的原因主要是辐照蠕变和辐照肿胀。辐照蠕变产生的主要原因是铍是HCP型的六方密排晶体结构^[12],其辐照性能如同Zr的辐照蠕变,辐照时出现各向异性,从而产生一定的形变^[13]。V. P. Chakin等^[14]在对铍的短期中子辐照实验发现,*a*轴长度随着中子注量的增加而增加,但是*c*轴长度随着中子注量的增加,先增加然后呈下降的趋势(*a*,*c*轴是HCP型六方密排晶体结构的晶胞在晶向方向上的长度,即晶格参数),总体积随着中子注量的增加,先增加,后呈下降的趋势,当快中子($E > 0.1$ MeV)注量达到 3.0×10^{22} cm⁻²左右时体积开始出现收缩。

辐照肿胀主要是由于铍与中子反应,有氦原子产生,氦原子若聚集,将产生氦泡,导致铍的辐照肿胀^[15-16]。国外曾对铍材料进行了一些辐照实验。如苏联曾在SM-3研究堆上开展了铍材的辐照实验,发现在低温(130~180 ℃)辐照时, 5.5×10^{21} cm⁻²快中子($E > 0.1$ MeV)注量下,样品几乎没有发生肿胀,在高温时(650~700 ℃),其肿胀不超过0.1%^[17]。在中子累积注量 2.4×10^{22} cm⁻²下,总肿胀率小于1%^[18]。美国曾在HFBR堆上开展了铍的低温(100~300 ℃)辐照实验,在注量 1.0×10^{21} cm⁻²下时,其肿胀小于0.02%^[19]。这些先前的研究结果与本文观测结果基本一致,铍组件的辐照肿胀变化量很小。

铍组件在堆内服役时,同时经历辐照蠕变和辐照肿胀这两个过程。辐照蠕变由于是各向异性变化,会使铍组件的尺寸先增加后收缩,而辐照肿胀主要是由于核反应生成的惰性气体不断累积造成的,会导致铍组件服役时尺寸逐渐增大。SPRR-300堆的铍组件随堆辐照了29 a,经历了真实的堆内辐照环境,辐照的最大平均中子注量为 $5.60 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ 。从长期堆内辐照后的测量结果来看,SPRR-300的铍组件在长期服役过程中,由于辐照蠕变,铍组件截面尺寸经历了先增加后收缩的过程,而后随着核反应产生的惰性气体逐渐累积到一定程度后造成辐照肿胀,其尺寸随后开始出现增加的过程。在目前的辐照注量下,铍组件没有发生明显的辐照肿胀,外观总体上没有改变,较好地保持了结构的稳定性。从平面度的测量数据来看,铍组件长期辐照后出现了轻微的弯曲。国外的铍短期辐照数据表明,当中子注量达到 $3.0 \times 10^{22} \text{ cm}^{-2}$ 左右时体积开始出现收缩,而SPRR-300堆的铍组件在 $4.33 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ 平均中子注量左右已开始出现了收缩。与国外铍组件短期辐照数据相比,SPRR-300堆铍组件长期服役时其收缩注量点明显提前,其原因可能由辐照的中子能量、辐照温度和辐照时间、工艺等导致。铍组件出现收缩现象,主要是由辐照蠕变导致的。辐照蠕变是由辐照缺陷的产生和缺陷的演化引起的。缺陷的产生与中子辐照注量和辐照的中子能谱相关。对于铍而言,中子能量越低,与铍的反应截面越大,其产生的缺陷也将会越多。SPRR-300堆是池式热中子堆,铍由能量较低的热中子辐照,而国外采用的是快中子辐照,在相近中子注量下,SPRR-300堆的铍组件核反应程度将会更大些,产生的缺陷也可能更多些。同时缺陷的演化与温度、演化时间密切相关,一般温度越高,缺陷更容易恢复;时间越短,缺陷演化得越慢。SPRR-300堆的铍组件服役温度与环境温度基本相同,与国外辐照温度相比,其温度更低些,相近注量下产生的缺陷将更难恢复。国外的铍样品是短期辐照的,辐照完成后即进行测量,SPRR-300堆的铍组件经过了几十年的长期辐照,缺陷的迁移和演化将更多些。另外,国外铍样品尺寸较小,只有几mm,SPRR-300堆的铍组件是实际工程件,尺寸达几百mm,其制备工艺也可能存在差异,也有可能导致辐照后的样品性能存在差异。这些因素,都有可能导致SPRR-300堆铍组件辐照后的收缩点明显提前。SPRR-300堆的铍组件服役的尺寸测量数据表明,在长期低注量低温辐照情况下,辐照蠕变是导致其形变的主要原因。

4 结 论

绵阳SPRR-300反应堆的铍组件在经历29 a的长期服役随堆辐照后,通过对铍组件的外观尺寸测试表明,组件外观总体上没有改变,较好地保持了结构的稳定性,但局部出现了较轻微的形变,中子注量较高的部位,发生了弯曲变形。因此在实际堆运行过程中,可通过定期换向的方法使铍组件接受均匀的辐照,以减少其异向变形的程度。此外我们的研究表明铍组件在长期的低温低注量辐照下,铍的辐照蠕变是导致其尺寸变化的主要原因。虽然绵阳SPRR-300反应堆内铍组件承受的最大中子注量比国外研究堆上同类材料加速辐照的最大中子注量水平低,但这些样品均处于真实反应堆工作环境中,其辐照后的性能数据对评估反应堆结构材料服役性能和寿命、新反应堆的设计、在役反应堆的运行管理、老化及延寿等具有重要指导意义。

参考文献:

- [1] 单润华, 王日清, 李满昌, 等. 高通量工程试验反应堆铍孔道在辐照上的综合利用[J]. 核动力工程, 1983, 4(5): 7-15. (Shan Runhua, Wang Riqing, Li Manchang, et al. General uses of the holes in beryllium slugs in HFETR on irradiation[J]. Nuclear Power Engineering, 1983, 4(5): 7-15)
- [2] Hoyer A. Lifetime analysis of irradiated beryllium in research reactors[D]. Columbia: University of Missouri, 2017: 1-10.
- [3] Snead L L, Zinkle S J. Use of beryllium and beryllium oxide in space reactors[J]. AIP Conference Proceedings, 2005, 746(1): 768-775.
- [4] Nie Y, Ren J, Ruan X, et al. The benchmark experiment on slab beryllium with D-T neutrons for validation of evaluated nuclear data[J]. Fusion Engineering and Design, 2016, 105: 8-14.
- [5] Harmsen A G, Hoover M D, Seiler F A. Health risk implications of using beryllium in fusion reactors[J]. Journal of Nuclear Materials, 1984, 122(1/3): 821-826.
- [6] Gelles D S, Heinisch H L. Neutron damage in beryllium[J]. Journal of Nuclear Materials, 1992, 191/194: 194-198.
- [7] Nankov N, Troev T, Petrov L, et al. Positron lifetime calculations of defects in fusion irradiated beryllium[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2008, 266(15): 3392-3396.
- [8] Ishitsuka E, Kawamura H. Beryllium neutron irradiation study in the Japan materials testing reactor[J]. Fusion Engineering and Design, 1998, 41(1/4): 195-200.
- [9] 王文利. 重水堆燃料铍材国产化及入堆验证试验[J]. 核动力工程, 2015, 36(5): 208-210. (Wang Wenli. Beryllium localization and verification test of PHWR fuel[J]. Nuclear Power Engineering, 2015, 36(5): 208-210)
- [10] 张松宝, 杨万奎, 窦海峰. SPRR-300堆寿期后关键结构材料辐照注量的理论计算[R]. GF-A0183454G, 2013. (Zhang Songbao, Yang Wankui, Dou Haifeng. The integral flux calculation of the structural of No. 300 reactor after commission[R]. GF-A0183454G, 2013)
- [11] 杨万奎, 曾和荣, 冷军, 等. 300#研究堆首炉中央孔道中子通量密度计算[J]. 强激光与粒子束, 2012, 24(12): 3001-3005. (Yang Wankui, Zeng Herong, Leng Jun, et al. Neutron flux calculation for central channel in first cycle of SPRR-300[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2012, 24(12): 3001-3005)

- [12] 李婷婷. 铍和氧化铍电子、弹性性质的第一性原理计算[D]. 银川: 宁夏大学, 2015: 1-20. (Li Tingting. First principle calculation of electronic and elastic properties of beryllium and beryllium oxide[D]. Yinchuan: Ningxia University, 2015: 1-20)
- [13] Savino E J, Laciana C E. Radiation induced creep and growth of zirconium alloys[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 1980, 90(1/3): 89-107.
- [14] Chakin V P, Posevin A O, Obukhov A V, et al. Radiation growth of beryllium[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2009, 386/388: 206-209.
- [15] Scaffidi-Argentina F. Tritium and helium release from neutron irradiated beryllium pebbles from the EXOTIC-8 irradiation[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2001, 58/59: 641-645.
- [16] Möslang A, Pieritz R A, Boller E, et al. Gas bubble network formation in irradiated beryllium pebbles monitored by X-ray microtomography[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2009, 386/388: 1052-1055.
- [17] Kupriyanov I B, Melder R R, Gorokhov V A. The effect of neutron irradiation on beryllium performance[J]. *Fusion Engineering and Design*, 2000, 51/52: 135-143.
- [18] Chakin V P, Kazakov V A, Melder R R, et al. Effects of neutron irradiation at 70-200 °C in beryllium[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2002, 307/311: 647-652.
- [19] Snead L L. Low-temperature low-dose neutron irradiation effects on beryllium[J]. *Journal of Nuclear Materials*, 2004, 326(2/3): 114-124.