核燃料领域颠覆性技术识别

北京正乙科技有限公司 二零二零年十月

目 录

摘	要.	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	1
— ,	绪	论	1
=,	检	索策略及分析方法	3
	2.1	数据来源与分析工具	3
		2.1.1 检索策略	3
		2.1.2 分析工具	9
	2.2	颠覆性技术识别方法	9
三、	核	燃料基本概念	12
	3.1	核燃料概念	12
	3.2	核燃料类型	12
		3.2.1 固态核燃料	13
		3.2.2 液态核燃料	15
	3.3	核燃料研究关键技术	16
		3.3.1 制备技术	16
		3.3.2 结构设计	20
四、	核	燃料领域发展概况——文献视角	26
	4.1	论文数量与趋势分析	26
	4.2	主要国家演化分析	28
		4.2.1 国家论文数量	28
		4.2.2 主要国家论文趋势	28
	4.3	主要机构演化分析	31
		4.3.1 机构论文数量	31

I

		4.3.2	主要机构论文趋势	32
		4.3.3	机构合著关系	35
	4.4	研究	· 热点分析	36
		4.4.1	核聚变研究	39
		4.4.2	ATF	40
		4.4.3	反应堆的安全性研究	41
		4.4.4	核燃料后处理技术	43
五、	核	燃料	领域发展态势——专利视角	46
	5.1	专利	数量与趋势分析	46
		5.1.1	专利数量分析	46
		5.1.2	专利趋势分析	46
	5.2	主要	国家演化分析	47
		5.2.1	国家专利数量	47
		5.2.2	主要国家专利趋势	48
		5.2.3	重点国家的技术发展	51
	5.3	主要	机构演化分析	56
		5.3.1	机构专利数量	56
		5.3.2	主要机构专利趋势	57
		5.3.3	重点机构的技术发展	60
	5.4	研究	热点分析	64
		5.4.1	核燃料组件结构	67
		5.4.2	核燃料芯块	67
		5.4.3	核燃料包壳	69
		5.4.4	不同类型核反应堆燃料	69
		5.4.5	反应堆的安全性研究	71
		5.4.6	乏燃料后处理	74

77	六、核燃料潜在颠覆性技术识
77	6.1 核燃料颠覆性技术识别
77	6.1.1 文献/专利趋势分析
79	6.1.2 高被引论文分析
80	6.1.3 颠覆性技术识别结果
80	6.2 ATF 的发展概况
80	6.2.1 ATF 的来源
81	6.2.2 ATF 的概念
82	6.2.3 ATF 的特点
82	6.2.4 ATF 的性能特征
82	6.2.5 ATF 的设计理念
83	6.3 ATF 当前研究热点
83	6.3.1 文献技术主题分析
91	6.3.2 专利技术主题分析
100	6.4 ATF 发展趋势分析
109	七、 结论

图目录

图 1 核燃料相关论文数量及增长率变化	26
图 2 国家数量分布图—论文	28
图 3 国家演化趋势图—论文	29
图 4 机构演化趋势图—论文	33
图 5 机构合著关系图—论文	35
图 6 主题分布图—论文	38
图 7 核燃料相关专利数量变化	46
图 8 国家数量分布图—专利	48
图 9 国家演化趋势图—专利	50
图 10 美国专利数量变化趋势	52
图 11 德国专利数量变化趋势	53
图 12 日本专利数量变化趋势	54
图 13 中国专利数量变化趋势	56
图 14 机构演化趋势图—专利	59
图 15 主题分布图—专利	66
图 16 事故容错燃料论文数量年度变化	78
图 17 事故容错燃料专利数量年度变化	78
图 18 事故容错燃料主题词分布—论文	84
图 19 事故容错燃料主题词分布—专利	92

表目录

表 1	核燃料领域论文/专利检索式
表 2	核燃料类型12
表 3	机构论文数量表 3′
表 4	机构专利申请数量表56
表 5	核燃料领域高被引论文79

核燃料领域颠覆性技术识别

摘要

近年来,颠覆性技术这一概念在国家层面被日益关注,因为颠覆性技术容易造成技术突袭,改变游戏规则,为实现弯道超车带来机遇。如今世界范围内新一轮先进核燃料竞争已经开始,对核燃料颠覆性技术识别已经迫在眉睫。因此本报告基于文献、专利等公开信息来源,以文献分析工具 ITGInsight 为主,开展核燃料领域的热点、前沿技术识别,并结合文献调研方法分析核燃料技术的发展历程、当前的发展状况,识别核燃料领域颠覆性技术,预计其未来的发展趋势,以期对未来的研究提出建议,为科研人员提供借鉴。

从国家角度来看,美国以绝对的技术优势名列前茅,中国、韩国正崛起成为 国际科研的中心,德国、法国等老牌核电技术强国则处于衰落、发展停滞之际。 **从机构角度来看**,韩国原子能研究院和中科院等机构取代日本原子能研究机构成 为核燃料领域的领军机构,中科院的科研实力很可能在未来相当长一段时间内处 于 top1。传统核电巨头的西屋公司、通用电气公司、阿海珐公司等强势布局,通 用电气/日立公司、株式会社东芝等表现不俗,中国的核电技术公司更是异军突 起,在激烈争夺中近几年遥遥领先于其他核电技术公司。**从研究热点角度来看**, 研究新的核燃料系统或提高现有核燃料的事故容错性能是该领域的研究热点和 发展趋势,最有潜力成为核燃料领域的颠覆性技术。美国提出事故容错燃料概念 之后,欧洲国家、中国、日本、韩国等均开展研究。目前事故容错燃料芯块有若 干技术路线,如掺杂型高热导率 UO_2 芯块、大晶粒 UO_2 芯块、铀硅合金(U_3Si_2) 芯块、氮化铀(UN)芯块、全陶瓷微密封芯块(FCM)以及惰性基弥散燃料芯 块(IMDP)等。对事故容错燃料包壳材料的研究主要集中在锆合金涂层和替代 材料上,锆合金涂层包括 MAX 相(Ti₂AIC、Ti₃SiC₂)、碳化物(SiC、ZrC)、 氮化物(TiN)、金属涂层(FeCrAl、Cr)以及复合物涂层(Cr-Zr/Cr/Cr-N)等, 替代材料主要包括陶瓷基复合材料(SiC 复合包壳、MAX 相材料等)和金属包壳 (FeCrAI 合金和 Mo 合金等难熔金属)等。由于目前的事故容错燃料芯块与包壳 研究技术尚不成熟,因此各个国家纷纷制定了涵盖近期、中远期的发展与应用路 线图,规定事故容错燃料未来研究仍集中于相应的可行性评估、材料工艺优化、 性能验证及辐照等考验方面。

事故容错燃料正深刻影响核能科技的发展方向,是未来潜在的颠覆性技术。当前国际事故容错燃料正处于概念选型阶段,美、法等核电强国尚未形成大规模技术垄断,因此中国应积极部署事故容错燃料等先进燃料研发工作,积极开展高熵合金、材料基因工程、核燃料多尺度研究,大力提升我国革命性核燃料和材料技术创新及产业发展能力,早日实现我国自主品牌先进核燃料和材料的应用,引领国际先进核燃料和材料发展。

核燃料领域颠覆性技术识别

一、绪论

世界各国经济、社会的快速发展和对能源需求与日俱增,供需缺口日益增大, 在很大程度上影响着国民经济持续发展的步伐。以煤炭为主的高碳黑色能源造成 的环境问题引起了各方高度关注,低碳发展已成为时代的需要和人们对生活质量 提高的渴求。核能以其持久、经济、安全和清洁等优势被人们认为是当前最具开 发价值和发展潜力的新型能源,利用核能进行发电不仅能保证国民经济的平稳发 展,还对国家安全具有重要的战略意义。

核电的高技术和成就,离不开核燃料这个重要的行业。核电安全、高效、可持续发展需要安全可靠的核燃料供应保障体系,核燃料产业高质量发展也需要依靠核电发展的带动,一台核电机组投运到退役通常需要 40—60 年的核燃料供应保障。因此,核燃料产业体系与核电产业体系之间不是一种单纯的市场买卖关系,而是相互依存利益一致的,需要长期相伴、相互依赖,是共荣共生、共生共赢的生态体系,两者实质上是命运共同体。核燃料是核反应堆中通过核裂变或核聚变产生实用核能以发电的材料,经过加工后形成一定的形状并通过使用相应的材料进行包覆,形成核燃料元件,成为核电站反应堆中的核心材料及主要能量来源。经过半个多世纪的发展,核燃料的工业化发展及应用逐步成熟,其安全性、技术水平与经济性得到不断提高。如今,保证核安全是核电发展的基础,而核安全的本质是核燃料的安全性。尤其是 2011 年的福岛核事故后,世界对核电站及核燃料元件的安全性、可靠性和抗事故能力提出了更高要求。

近年来,颠覆性技术这一概念在国家层面被日益关注,因为颠覆性技术容易造成技术突袭,改变游戏规则,为实现弯道超车带来机遇。美国国防高级研究计划局不断推动新的颠覆性技术产生,已然成为颠覆性创新的标杆。日本决定推行颠覆性技术创新计划找寻颠覆性技术,促进社会产业变革;中国更是将颠覆性技术创新写入十九大报告,将之作为一项重点工作。如今新一代高安全性、高可靠性核燃料的研发正在推进之中,新一轮核燃料技术革命正在孕育兴起,正在并将持续改变世界核燃料格局,对人类社会带来巨大影响,因此识别核燃料颠覆性技

术具有重要意义。

本报告开展全球核燃料领域颠覆性技术识别研究,主要研究内容如下:首先对核燃料的定义、类型、制备方法进行简单介绍,以制定核燃料领域文献和专利检索策略。随后,基于文献、专利等公开信息来源,以文献分析工具 ITGInsight为主,结合其它公开或商用分析软件(如 Excel等),从国家、机构等不同角度对核燃料文献和专利进行计量分析,展示核燃料发展概况。然后利用趋势分析和高被引文献调研确定核燃料领域颠覆性技术,进而使用技术主题分析法识别核燃料颠覆性技术的研究热点,分析其发展现状,预计其未来趋势。通过开展全球核燃料领域颠覆性技术识别研究工作,以期提升我国核燃料的自主创新和产业发展能力,创建我国先进核能系统的燃料自主品牌,为先进核能系统的发展提供更高性能的燃料,使我国先进核能系统燃料尽快达到国际先进水平,引领国际先进核能系统燃料发展。

二、检索策略及分析方法

2.1 数据来源与分析工具

技术领域的科学研究进展可以该领域的科技论文发表以及专利申请情况为 依据,通过分析核燃料领域的科学论文和专利技术文献,可以全面了解该领域的 科学和技术研究进展,并通过热点主题聚类的深度解读,识别出该技术领域的热 点、前沿技术,从而为该领域颠覆性技术识别提供参考依据。

2.1.1 检索策略

通过文献调研,本报告将与核燃料有关的领域分为 5 个方向: (1) 核燃料的基本原料; (2) 传统核燃料; (3) 核反应堆; (4) 事故容错燃料 (Accident Tolerant Fuel, ATF); (5) 核燃料循环。具体检索式如表 1 所示。为保证数据的完整性和准确性,本报告以Web of Science 的科学引文索引扩展版数据库(SCIE)中的文献作为文献数据来源,搜索时间为 2020 年 6 月 12 日,文献类型为 ARTICLE和 REVIEW, 共检索到 20013 篇论文。专利文献数据来源为智慧芽平台,检索时间为 2020 年 6 月 16 日,检索包含欧洲专利局、世界知识产权组织、美国、中国、德国、日本、台湾地区等 7 个地区或组织的专利文献数据,共检索到 14940条专利数据。

表 1 核燃料领域论文/专利检索式

		论文		
方向 文献检索式 (主题、文献类型: ARTICLE OR REVIEW; 时间跨度: 不限)			检索记录	备注
1.核燃料基本原料 及概念	#1	TS=(uranium OR Urania OR plutonium OR thorium OR Thoria) AND TS=("nuclear fission")	198	铀、钚、钍和核裂变
	#2	TS=(deuterium OR deuteron OR tritium) AND TS=("nuclear fusion")	880	氘、氚和核聚变
	#3	合计: #1 or #2	1076	方向一
2.传统核燃料	#4	TS=("Uranium-zirconium" OR "U-Zr" OR "U-Al" OR "Uranium-aluminum" OR "U-Mo" OR "Uranium-molybdenum" OR "uranium silicide" OR "Uranium Nitride" OR "Nitride Nuclear Fuel" OR "uranium-plutonium nitride" OR "Lithium-Uran-Nitride" OR "uranium carbide" OR "Uranium Monocarbide" OR "Uranium with Silicon Carbide" OR "uranium and plutonium carbides" OR "uranium mono-carbide" OR "uranium dioxide-silicon carbide" OR "uranium oxides fuel" OR "uranium and thorium oxide" OR "solid fuel" OR "Metal* Fuel" OR "Alloy Fuel" OR "Oxide Fuel" OR "Dispers* Fuel" OR "liquid nuclear fuel" OR "Non-Oxide Fuel") AND TS=(uranium OR Urania)	1971	传统核燃料类型
	#5	TS=(uranium OR Urania) AND TS=("mechanical ball milling" OR "thermal decomposition" OR "Chemical Vapor Deposition" OR "Vapor Decomposition" OR "Water extraction gelation" OR "External gelation" OR "gel supported precipitation" OR "Internal gelation" OR "Total gelation" OR impregnation)	385	传统核燃料制备方法
	#6	合计: #4 OR #5	2328	方向二
3.核反应堆 #7 TS=("light water reactor*" OR "light water nuclear reactor*" OR "pressurised water reactor*" OR "pressurized water reactor*" OR "boiling water reactor*" OR "gas-cooled				核反应堆

		fast reactor*" OR "liquid metal cooled-fast reactor*" OR "molten salt reactor*" OR		
		"Fluoride salt-cooled High temperature Reactor*" OR "very high temperature gas-		
		cooled reactor*" OR "very high temperature reactor*" OR "supercritical water-cooled		
		reactor*" OR "supercritical water reactor*")		
	#8	合计: #7	10413	方向三
4.事故容错燃料	#9	TS="accident tolerant fuel*" AND TS=("fuel pellet*" OR pellet* OR "fuel cladding*"	251	ATTE
		OR cladding*)	231	ATF
	#10	TS=(BeO OR "Beryllium oxide" OR SiC OR "Silicon carbide" OR Molybdenum OR		
		Mo OR diamond OR "Carbon nanotubes" OR CNT OR doping OR doped OR Al2O3		
		OR "aluminium oxide" OR TiO2 OR "Titanium Dioxide" OR Cr2O3 OR "chromic	CEE	
		oxide" OR SiO2 OR "Silicon dioxide" OR Graphene OR GaN OR "micro cell" OR	655	UO ₂ 基 ATF 芯块
		"large-grained" OR ("thermal conductivity" AND increase)) AND TS= (UO2 OR		
		"uranium dioxide") AND TS=fuel		
	#11	TS=(U3Si2 OR U3Si OR U3Si5 OR "uranium silicide" OR "uranium nitride" OR U-		
		Mo OR "fully ceramic microencapsulated" OR FCM OR IMDP OR "matrix dispersion	975	其他类型 ATF 芯块
		pellet" OR "accident tolerant") AND TS= fuel		
	#12	TS=(SiC OR "Silicon carbide" OR "SiC/ SiC" OR "SiCf/ SiC" OR "coating		
		Zirconium" OR "Zirconium coating" OR "Stainless steel" OR "Ceramic coating" OR		
		"Metallic coating" OR "Composite coating and composite cladding" OR "MAX	420	ATF 包壳
		coating" OR "carbide coating" OR "oxide coating" OR "nitride coating" OR Cr OR	438	AIF 也冗
		FeCrAl OR "NFA" OR "ODS ferritic steel*" OR "ODS steel" OR Molybdenum OR		
		Mo) AND TS= "fuel cladding*"		
	#13	合计: #9 or #10 or #11 or #12	1815	方向四
5.核燃料循环	#14	TS=("spent fuel" OR "spent nuclear fuel")	5106	乏燃料后处理

	#15	TS=("nuclear fuel cycle" OR (("once-through cycle" OR "open fuel cycle" OR "open	1220	拉牌料纸环
		cycle" OR "closed fuel cycle" OR "Closed cycle") AND "nuclear fuel"))	1239	核燃料循环
	#16	合计: #14 OR #15	6106	方向五
领域合计	#17	#3 OR #6 OR #8 OR #13 OR #16	20013	领域
		专利		
		专利检索式		
方向	序号	(时间跨度不限、智慧芽专利搜索、116个数据库涵盖了中、美、英、法、德、	检索记录数	备注
		俄罗斯、日本、WO、EP)		
1.核燃料基本原料	S 1	TA: (uranium OR Urania OR plutonium OR thorium OR Thoria) AND TA: ("nuclear	148	铀、钚、钍和核裂变
及概念		fission") AND IPC: ("G21C")		一 一
	S2	TA: (deuterium OR deuteron OR tritium) AND TA: ("nuclear fusion") AND IPC:	32	氚、氚和核聚变
		("G21C")		川、川(四)(水)文
	S12	合计: S1 OR S2	180	方向一
2.传统核燃料	S3	TA: ("Uranium-zirconium" OR "U-Zr" OR "U-Al" OR "Uranium-aluminum" OR "U-	1040	
		Mo" OR "Uranium-molybdenum" OR "uranium silicide" OR "Uranium Nitride" OR		
		"Nitride Nuclear Fuel" OR "uranium-plutonium nitride" OR "Lithium-Uran-Nitride"		
		OR "uranium carbide" OR "Uranium Monocarbide" OR "Uranium with Silicon		
		Carbide" OR "uranium and plutonium carbides" OR "uranium mono-carbide" OR		传统核燃料类型
		"uranium dioxide-silicon carbide" OR "uranium oxides fuel" OR "uranium and thorium		
		oxide" OR "solid fuel" OR "Metal* Fuel" OR "Alloy Fuel" OR "Oxide Fuel" OR		
		"Dispers* Fuel" OR "liquid nuclear fuel" OR "Non-Oxide Fuel") AND TA: (uranium		
		OR Urania) AND IPC: ("G21C")		
	S4	TA: (uranium OR Urania) AND TA: ("mechanical ball milling" OR "thermal	89	在 统拉姆到40夕元汗
		decomposition" OR "Chemical Vapor Deposition" OR "Vapor Decomposition" OR		传统核燃料制备方法

		"Water extraction gelation" OR "External gelation" OR "gel supported precipitation"		
		OR "Internal gelation" OR "Total gelation" OR impregnation) AND IPC: ("G21C")		
	S13	合计: S3 OR S4	1111	方向二
3.核反应堆	S5	TA: ("light water reactor*" OR "light water nuclear reactor*" OR "pressurised water	8144	
		reactor*" OR "pressurized water reactor*" OR "boiling water reactor*" OR "gas-cooled		
		fast reactor*" OR "liquid metal cooled-fast reactor*" OR "molten salt reactor*" OR		拉丘应拢
		"Fluoride salt-cooled High temperature Reactor*" OR "very high temperature gas-		核反应堆
		cooled reactor*" OR "very high temperature reactor*" OR "supercritical water-cooled		
		reactor*" OR "supercritical water reactor*") AND IPC: ("G21C")		
	S14	合计: S5	8144	方向三
4.事故容错燃料	S6 TA: ("accident tolerant fuel*") AND IPC: ("G21C") AND TA: ("fuel pellet*" OR		16	ATE
		pellet* OR "fuel cladding*" OR cladding*)		ATF
	S7	TA: (BeO OR "Beryllium oxide" OR SiC OR "Silicon carbide" OR Molybdenum OR	273	
		Mo OR diamond OR "Carbon nanotubes" OR CNT OR doping OR doped OR Al2O3		
		OR "aluminium oxide" OR TiO2 OR "Titanium Dioxide" OR Cr2O3 OR "chromic		UO2 基 ATF 芯块
		oxide" OR SiO2 OR "Silicon dioxide" OR Graphene OR GaN OR "micro cell" OR		UU2 荃 AIF 心块
		"large-grained" OR ("thermal conductivity" AND increase)) AND TA: (UO2 OR		
		"uranium dioxide") AND TA: (fuel) AND IPC: ("G21C")		
	S8	TA: (U3Si2 OR U3Si OR U3Si5 OR "uranium silicide" OR "uranium nitride" OR U-	220	
		Mo OR "fully ceramic microencapsulated" OR FCM OR IMDP OR "matrix dispersion		其他类型 ATF 芯块
		pellet" OR "accident tolerant") AND TA: (fuel) AND IPC: ("G21C")		
	S 9	TA: (SiC OR "Silicon carbide" OR "SiC/ SiC" OR "SiCf/ SiC" OR "coating	267	
		Zirconium" OR "Zirconium coating" OR "Stainless steel" OR "Ceramic coating" OR		ATF 包壳
		"Metallic coating" OR "Composite coating and composite cladding" OR "MAX		

		coating" OR "carbide coating" OR "oxide coating" OR "nitride coating" OR Cr OR		
FeCrAl OR "NFA" OR "ODS ferritic steel*" OR "ODS steel" OR Molybdenum OR				
		Mo) AND TA: ("fuel cladding*") AND IPC: ("G21C")		
	S15	合计: S6 OR S7 OR S8 OR S9	745	方向四
5.核燃料循环	S10	TA: ("spent fuel" OR "spent nuclear fuel") AND IPC: ("G21C")	5211	乏燃料后处理
	S11	TA: ("nuclear fuel cycle" OR (("once-through cycle" OR "open fuel cycle" OR "open	99	
		cycle" OR "closed fuel cycle" OR "Closed cycle") AND "nuclear fuel")) AND IPC:		核燃料循环
		("G21C")		
	S16	合计: S10 OR S11	5291	方向五
	S17	合计: S12 OR S13 OR S14 OR S15 OR S16	14940	领域

2.1.2 分析工具

随着信息技术的发展,文本挖掘和信息可视化技术已被广泛应用到情报分析 领域。本报告应用 Excel 和文献分析工具 ITGInsight 进行文献计量分析。 ITGInsight, 全称为"通用科技文本可视化挖掘系统", 也称"科研关系构建与 可视化系统",由北京正乙科技有限公司设计开发,该软件是一款高级的科技文 本挖掘与可视化分析工具,主要针对科技文本,如论文、专利、报告、报刊等进 行可视化的分析与挖掘,也可应用于微博、微信等互联网文本数据,可视化挖掘 有合著关系可视化、同现关系可视化、耦合关系可视化、关联关系可视化、引证 关系可视化、演化分析可视化,可视化输出包括网络图、热力图、世界地图、矩 阵图、演化图、聚类图。该工具增强了对大规模数据的处理,将聚类分析、技术 热力图、技术地形图、技术气象图整合到系统中。用户可应用该工具对中英文论 文,如 SCI、中国知网、万方论文数据或专利数据进行可视化挖掘,进而开展学 术评价、技术监测、技术机会分析、竞争态势分析等科研管理与情报分析任务。 同时,该工具也是一款综合的情报分析平台,提供除文本挖掘和可视化分析以外 的基本维度统计、Excel 和 Word 报表、PPT 自动报告等辅助功能。该系统支持 用户自定义格式的任何文本数据、图形数据,并提供与情报分析工具 VOSviewer、 复杂网络工具 Pajek、Ucinet 的数据接口。

相较目前常用的文献计量软件,ITGInsight 采用两种特殊的处理方式以提高输入数据的准确性。一是建立数据过滤器,过滤器中存储了有关数据源结构特征的信息。情报分析人员可根据数据自行构建过滤器,使外部数据源字段信息与软件嵌入字段信息的字段映射关系,当对数据进行清洗和关系计算时,系统根据映射关系进行相应字段的提取。二是提供自动和人工数据清洗功能,分析工具可以自动进行作者、机构、关键词等相似度计算,科研人员也可自行进行相似记录合并,以提高输出结果的精确性。

2.2 颠覆性技术识别方法

专利和论文蕴含丰富可挖掘的技术信息,创新思想和前沿技术往往会先通过 学术论文(包括会议论文、期刊论文等)呈现出来,专利则是将科学研究成果和

创新思想转化为实用技术的结果体现。因此,本报告拟选用论文和专利两种数据源,进行整合,深度挖掘,充分结合文献外在特征和内容特征,通过文献调研和共词分析等对核燃料领域颠覆性技术进行识别。

(1) 文献调研法

文献调研方法指围绕研究项目及课题(核燃料)的需要而有目的有计划地查阅文献情报资料的一种科学研究方法。它是完成科研任务经常采用的一种基本方法。在研究之前,首先查阅大量的相关文献资料,对其进行分析、归纳、总结,了解其发展现状、存在的问题以及研究的空白区域。在所有学术研究过程中,文献调研都是有机组成的研究步骤。因为学科知识都是逐步积累起来的,研究人员必须站在前人的肩膀上,从而研究的更深入。文献资料的种类繁多,同样内容的文献信息可从纸版、载体版软盘、光盘、磁卡等不同载体上获取,也可从图书馆、情报机构、专门的文献数据库服务商、各种专题网站中得到。

本报告的核燃料相关文献来源包括 Web of Science 的科学引文索引扩展版、中国知网、商业化全球专利数据库"智慧芽"、北京理工大学图书馆以及网络新闻等。首先对核燃料的研究现状进行归纳总结,以确定核燃料相关研究领域。随后对来自 Web of Science 的科学引文索引扩展版数据库和智慧芽专利数据库的文献进行计量分析,并通过文献调研提供大量的实例。高被引论文的研究方向往往具有突破性和重大贡献,开创一片新的领域,对该领域的颠覆性研究具有导向性。因此,高被引论文是本报告关注的重点。

(2) 共词分析

共词分析是文献计量学中常用的方法。所谓共词是指两个或更多的关键词在一篇文档中同时出现。其方法基础来源于观点——关键词的共现描述了文件中文档的内容,它通过描述文档集中词与词之间的关联与结合,更好地反映概念之间的关系,从而可以揭示某一科技领域研究内容的内在相关性和学科领域的微观结构,通过网络分析可以展示科技发展动态和趋势。共词分析试图直接从文本内容中抽取科学技术主题和发现这些主题间的关系,而不是依赖于先前定义的科学技术研究主题。技术主题图是共词分析结果的一种表现形式,通过类似地理信息系统中的等高线图实现对科技文本数据的可视化,通过颜色的深浅区别数据的多少

以及数据间的关系。就技术主题图的绘制来说,有典型的等高线地形图、热力图、彩虹图等,定量、可视化以地反映技术发展的热点领域和趋势。

三、核燃料基本概念

3.1 核燃料概念

核燃料是指在核反应堆中通过核裂变或核聚变产生实用核能的材料。重核的裂变和轻核的聚变是获得实用铀棒核能的两种主要方式。核燃料在核反应堆中"燃烧"时产生的能量远大于化石燃料,1 千克铀 235 完全裂变时产生的能量约相当于 2500 吨煤。已经大量建造的核反应堆使用的是裂变核燃料铀 235 和钚239,很少使用铀 233。由于至今还未有建成使用聚变核燃料的反应堆,因此通常说到核燃料指的是裂变核燃料。

重核裂变核燃料: 铀 233、铀 235、铀 238,和钚 239 是能发生核裂变的核燃料,又称裂变核燃料。其中铀 235 存在于自然界,而铀 233、钚 239 则是钍 232 和铀 238 吸收中子后分别形成的人工核素。铀 238 和钍 232 是转换成易裂变核素的原料且它们本身也可以产生少量裂变,广义上,也称之为核燃料。

轻核聚变核燃料: 氘和氚等能发生核聚变的核燃料,又称聚变核燃料。氘存在于自然界, 氚是锂 6 吸收中子后形成的人工核素。氚是氢的稳定同位素,存在于普通水中的重水(D₂O)内,但含量很低,需要利用电解、蒸馏或化学交换等分离方法制得。氚是氢的放射性同位素。氚在自然界极少,主要是利用金属锂 6 或它的含金,在核反应堆内经中子照射而制得。氚化锂是由锂 6 和氘直接反应化合而成的固态化合物。

3.2 核燃料类型

核燃料是核反应堆内最重要的一种材料。为适应核反应堆工程的发展需求, 核材料科技界不断寻求突破,研发了各种各样的核燃料,取得了显著成果。迄今 为止,核燃料的发展也随着四代核反应堆的发展经历了不同类型,具体如表 2 所 示。

 燃料形式
 形态
 材料
 适用堆型

 U
 石墨慢化堆

 U-Al
 快堆

 U-Mo
 快堆

表 2 核燃料类型

		U-ZrH	脉冲堆
		U_3Si	重水堆
	高性能陶瓷	(U, Pu)N	快堆
		(U, Pu)C	快堆
	复 Av Alm	$(U, Pu)O_2$	快堆
	氧化物	UO_2	轻水堆、重水堆
		UAl ₄ -Al	重水堆
	弥散体	UO ₂ -Al	重水堆
		(U, Th)O ₂ -(热解石墨, SiC)-石墨	高温气冷堆
	水溶液	(UO ₂)SO ₄ -H ₂ O	沸水堆
375 1米 1444-147	悬浊液	U_3O_8 - H_2O	水均匀堆
液体燃料	液态金属	U-Bi	-
	熔盐	UF ₄ -LiF-BeF ₂ -ZrF ₄	熔盐堆

3.2.1 固态核燃料

固态核燃料是目前常用的核燃料,根据堆型的不同其形式也不同。金属燃料在这个漫长的发展过程中曾辉煌一时,但到今天除含钚的三元合金在许多快中子增殖堆具有一定前景,铀-钼(U-Mo)合金有可能成为新一代先进弥散型燃料外,其他应用的进展并不明朗。包覆颗粒燃料和 U₃Si₂-Al 弥散性燃料分别是当今高温气冷堆和研究试验堆的实用核燃料。二氧化铀(UO₂)和铀-钚(U-Pu)混合氧化物是目前动力堆应用最普遍的核燃料,而二氧化钍(ThO₂)是氧化物核燃料的重要成分。除此之外,碳化物和氮化物也是具有潜力的先进核燃料。

(1)金属型燃料。金属型核燃料拥有最高的裂变原子密度,其热导率高,制造简单,但因为一般燃料本身熔点较低或晶体相变温度低,反应时温度不能太高。235U 是唯一的天然易裂变核素,金属铀自然是最基本的核燃料。在核反应发展初期,铀及其合金曾经是最重要的核燃料,被广泛应用于热中子研究试验堆、钚生产堆、动力堆和快中子实验增殖堆,后来被它的氧化物所取代。研究试验堆不断向高功率(100MW)、高中子注量率[>1014n/(cm²·s)]和高功率[约10MW/kg(U)]指标跃升,又开发了板状弥散性燃料。而后钚生产堆陆续退役,从20世纪60年代,金属核燃料一直受到冷落。只有美国阿贡国家实验室(Argonne National Laboratory,ANL)在建设实验增殖堆2号(EBR-II)快中子堆时,坚持

开展 U-Pu-Zr 三元合金的研究和随堆考验,并在 20 世纪 80 年代对金属燃料重新做出评价,表明使用金属燃料可以在一定限度内提高燃耗,预防燃耗超标时产生的安全问题。

(2)氧化物燃料。现有商用核电厂、核动力装置基本上都采用氧化物燃料,其制造工艺、性能数据,以及使用经验等方面都使其成为动力堆的首选核燃料。目前,UO2陶瓷核燃料是氧化物核燃料中应用最广、研究最深的一种,被广泛用于压水式反应堆(Pressurized Water Reactor, PWR)和沸水式反应堆(Boiling Water Reactor, BWR)。作为核燃料,UO2陶瓷具有高熔点,合理的铀密度,而且具有各向同性的晶体结构,高温下具有高强度,低温下不存在相变。此外,UO2与加压下的水以及高温下的 CO2和 Na等反应堆冷却剂不发生化学作用。但是,由于它的热导率低,为避免燃料在实际发热率下有过高的中心温度,不得不采用较小截面积(即较小直径)的芯块。UO2是一种脆性材料,在反应堆中使用时容易发生碎裂等。

近年来, 钚铀氧化物混合燃料(U、Pu)O₂不仅在快中子堆内得到广泛使用, 并且在轻水堆(Light Water Reactor, LWR)核电厂内替代了部分 UO₂燃料。在欧洲习惯上称轻水堆所采用的(U、Pu)O₂为 MOX 燃料。(U、Pu)O₂在快堆中的首次应用要追溯到 1967年,由于该燃料含有易裂变核素 239Pu 和可转换核素 238U,在快中子作用下 239Pu 发生裂变,产生更多的裂变中子,这些中子把 238U转换成 239Pu,使 239Pu 得到增殖,进而提高铀资源的利用率。从那时起,(U、Pu)O₂被作为快中子堆的核燃料。1987年,法国在 Stain-LaurentB 核电厂的 PWR 中部分换装了(U、Pu)O₂燃料。之后在比利时、德国、瑞士等国也纷纷在 PWR 或 BWR 实施钚的再循环计划。

(3) 弥散型燃料。弥散型燃料是颗粒状燃料均匀弥散在非裂变的基体材料中所构成的一种混合物燃料。在这种混合物燃料中,燃料颗粒称为燃料相,它可以采用铀合金、铀的化合物制成燃料的基体,又叫做基体相,它可以是金属、石墨等材料。设计这类燃料的初衷是用基体去隔离燃料颗粒,使裂变损伤局限于燃料颗粒本身和临近的基体内。基体的损伤取决于裂变碎片在基体材料中的射程。所以,基体可抑制燃料的肿胀,包括裂变产物,从而允许燃料达到更高的燃耗。

弥散性燃料的开发大致可划分三个时段。20 世纪 50 年代为建造材料实验堆研发了 U-Al 合金板块元件。U-Al 合金就是由 UAl_x(X=3、4)沉淀颗粒在铝基体中均匀分布的弥散性燃料。20 世纪 60 年代,有多种弥散性燃料如 UO₂-不锈钢、U-ZrH₂-X、UO₂-Zr,以及 U₃O₈-Al 和包覆燃料颗粒-石墨等被用于各种特殊用途的反应堆。到了 20 世纪 80 年代,美国主持了研究和试验堆核燃料低浓化计划,专门开发了高铀密度燃料颗粒(如 U₃Si、U₃Si₂、U₆Fe 等)的铝弥散型燃料。目前,U₃Si₂-Al 燃料已成功取代了高富集铀弥散型燃料。

(4) 高性能陶瓷型燃料(碳化物、氮化物燃料)。碳化物是最早被公认的最具有吸引力的快增殖堆燃料,到了 20 世纪 80 年代中期,尽管对碳化物燃料的使用性能尚未做出满意的评价,但一种(U_{0.3}Pu_{0.7})C 陶瓷燃料在快中子增殖试验堆(FBTR)中得到了使用。

3.2.2 液态核燃料

在均匀堆中,核燃料悬浮或溶解于水、液态金属或熔盐中,从而成为液体燃料。液体燃料从根本上消除了因辐照造成的尺寸不稳定性,也不会因温度梯度而产生热应力,可以达到很深的燃耗。同时,核燃料的制备和后处理也都大大简化,并且还提供了连续加料和处理的可能性。液体燃料与冷却剂或慢化剂直接接触,所以对放射性安全提出较严的要求,且腐蚀和质量迁移也往往是一个严重问题。这种核燃料尚处于实验阶段。

液态核燃料主要指熔盐核燃料。通过将核燃料溶解入熔盐冷却剂中可制得液态熔盐核燃料。使用熔盐核燃料的核反应堆如液体氟化钍反应堆(Liquid Fluoride Thorium Reactor,LFTR),是与仅以熔盐作为冷却剂(而没有将核燃料溶于熔盐中)的反应堆不同的。熔盐堆中的液态核燃料是锂、铍、钍和铀等金属的氟化物的混合物。熔盐反应堆技术起源于 20 世纪 40 年代的美国橡树岭国家实验室,他们将反应堆应用于飞行器实验中,该反应堆使用的核燃料是可裂变四氟化铀(UF4),且 UF4 溶解在 NaF-ZrF4中。到了 20 世纪 50 年代后期,熔盐堆被视为可进行 232Th 增殖(232Th 转化为 233U)的理想堆型,并且该技术开始被用于民用核反应堆的试验中。美国橡树岭国家实验室首先进行了熔盐实验堆的建造,

该实验堆选用了 UF4(其中 U 元素为 233U 和 235U)和三氟化钚(PuF3)作为核燃料,慢化剂为石墨,熔盐为含有 5%四氟化锆(ZrF4)的氟锂铍盐(LiF-BeF2),该实验堆运行功率为 8MW(1965 年运行至 1969 年)。在此之后,美国橡树岭国家实验室于 1970 至 1976 年期间进行了熔盐增殖堆的试验。在原先熔盐实验堆的基础上,熔盐增殖堆的燃料盐(LiF-BeF2-ThF4-UF4)中加入 ThF4,燃料盐中四种成分的摩尔比例依次为 72%、16%、12%和 0.4%。该增殖堆的慢化剂同样为石墨,二次冷却剂采用了 NaF-NaBF4。

氟化熔盐具有较高的热容、热导和沸点,以及较低的蒸汽压。得益于此,熔 盐堆具有高温、高功率密度、可常压操作等优点,在安全性以及经济性上具有极 大的优势和潜力。因这些独特的优势,如今熔盐反应堆已成为第四代新型核能系 统中的六个候选堆型之一。

3.3 核燃料研究关键技术

3.3.1 制备技术

裂变核能的燃料可分为铀基和钍基两类,目前的核电工业使用的燃料基本都是铀基核燃料,研究历史最长远,制备技术最成熟,因此本报告主要介绍铀基核燃料的制备技术。从矿石中提取铀以制备核纯级铀化合物主要包含 4 个步骤,铀矿石的破碎、焙烧预处理、浸取、铀的提取与浓缩、铀的纯化与转化等。

(1)将开采的铀矿石破碎和磨细,到达浸取工序所需的粒径。然后是选择合适的溶剂将铀矿石溶解,使铀元素从固体矿石内转移到液体中。工业上选择浸取剂时,主要有两种方法即**酸法浸取与碱法浸取。**可以选用的酸性浸取剂有硝酸、盐酸与硫酸,例如采用硫酸作为浸取剂时,六价的铀可以铀酰离子的形式直接转入溶液,其方程式如下:

$$UO_{3}+H_{2}SO_{4}\rightarrow UO_{2}SO_{4}+H_{2}O$$

$$UO_{2}SO_{4}+SO_{4}^{2-}\rightleftharpoons [UO_{2}(SO_{4})_{2}]^{2-}$$

$$[UO_{2}(SO_{4})_{2}]^{2-}+SO_{4}^{2-}\rightleftharpoons [UO_{2}(SO_{4})_{3}]^{4-}$$

而对于四价的铀,通过加入氧化剂(如 MnO_2),使得四价铀变成六价铀,以提高其浸取率。其反应方程式为:

$MnO_2+2FeSO_4+H_2SO_4 \rightarrow Fe(SO_4)_3+MnSO_4+2H_2O$ $UO_2+Fe_2(SO_4)_3 \rightarrow 2FeSO_4+UO_2SO_4$

- (2) 浸取之后的矿浆需要进行固液分离,将固体矿渣去除,得到含铀的溶液。在酸浸法得到的液体中,除了含有大量的硫酸根离子,还有铁、磷、锰等杂质离子,因此铀的含量比较低,需要从中提取和浓缩铀。常用的方法有化学沉淀法、离子交换法以及溶剂萃取法。
- 1) 化学沉淀法: 化学沉淀法开发的时间较早,但其缺点较多,除了用于某些碱性溶液和反萃液外,目前已经被离子交换法与溶剂萃取法所取代。从经济上来考虑,对于铀浓度高的清液适合采用溶剂萃取法,而对于铀浓度较低的清液适合采用离子交换法提取铀。
- 2) 离子交换法:对于含铀浓度较低的浸取液可以采用离子交换法提取铀, 其步骤是先用离子交换树脂吸附铀,待饱和之后再用淋洗剂将铀从树脂上淋洗下 来。离子交换法的优点是选择性好,可以循环使用,而且试剂的消耗比较少。但 其也具有一些缺点,比如萃取速度较慢,树脂对铀的吸附较少,不利于连续操作 等。
- **3) 溶剂萃取法:** 为弥补离子交换法的不足,人们又开发了溶剂萃取法来提取铀,常用的两种萃取工艺分别是 AMEX(Amine Extraction)流程与 DAPEX(Di-Alkyl-Phosphate Extraction)流程。
- (3) **铀的纯化与转化。**从铀水冶厂得到的化学浓缩物,一般为重铀酸盐或三碳酸铀酸盐,不能满足于工业上的应用,需要做进一步的纯化与转化,一般是先用硝酸将浓缩物溶解,然后用萃取剂(如 TBP)将其中的铀萃取,再用水(或硝酸,或反萃取液)洗涤载有铀的有机相,可以得到核纯级的硝酸铀酰溶液。
- (4) 将硝酸铀酰制备成燃料芯块,以用于反应堆进行裂变。从制备流程上来考虑,核燃料芯块的制备方法可以分为两种,一种是粉末成型法制备芯块,另一种是微球压制法制备芯块。
- 1) 粉末成型法: 粉末成型法制备的过程是先制备陶瓷燃料的粉末, 然后通过一定的成型技术使得粉末具有一定的形状、尺寸、孔隙度以及强度, 以得到所需要的燃料芯块。而微球压制法制备芯块是指先通过一定的方法制备出核燃料微

球,然后通过将微球进行压制烧结,得到所需要的芯块。其中,在粉末成型法制备过程中,为得到所需要的粉末,常见的制备方法有**机械球磨法、化合反应法、热分解法、高温自蔓燃法、化学气相沉积法、气相分解法、溶剂蒸发法、化学沉淀法以及水热合成法等。**

机械球磨法又称为机械粉碎法,包括碾碎机、双辊滚碎机等一些粗粉碎设备,和各种球磨机等细磨设备。例如行星式球磨机,在一个旋转盘上含有四个球磨罐,当大转盘在公转时,球磨罐中心轴作行星式运动,罐中的磨球在高速运动中进行研磨和混合粉末。

化合反应法是指利用单质元素进行加热和发生化学反应,直接得到化合物粉末。例如在制备碳化铀的过程中,在 1400°C 的温度下合成 UC 粉末的反应方程式为:

UO₂+3C=UC+CO↑

热分解法是指将无机盐(包括硝酸盐、硫酸盐、草酸盐、金属氢氧化物等)加热分解,最终得到金属氧化物的一种方法。例如,要制备 UO_2 粉末,可以采用 先将硝酸铀酰热分解,得到 UO_3 粉末,然后用氢气还原成 UO_2 粉末。

$$UO_2(NO_3)_2=2UO_3+4NO_2\uparrow+O_2\uparrow$$

 $UO_3+H_2=UO_2+H_2O\uparrow$

化学气相沉积法(Chemical Vapor Deposition)是指在远高于热力学计算临界反应温度条件下,高挥发性的金属化合物原料形成很高的过饱和蒸汽压,并通过气相化学反应自动凝聚成大量的晶核,晶核不断长大、聚集、晶化,最终得到陶瓷微粒粉末。而根据加热的方式,又可以分为热化学沉积法、等离子体化学沉积法以及激光化学沉积法等。

气相分解法(Vapor Decomposition)一般是以金属有机物作为原料,通过气相状态下的热分解而制得的粉末。与常规的热分解法相比,气相分解法是通过气体分子发生反应,因此得到的粉末要更加均匀和细小。例如国内外生产 UO₂ 粉末

的主流生产工艺是 IDR 干法,其主要步骤包括 UF₆ 的汽化、转化、稳定及均匀化、尾液处理。首先第一步是将固态的 UF₆ 在汽化罐内经过加热变成气体形式,

并进入转炉。第二步是转化过程,其中包括水解和还原这两个反应。水解是指 UF6 气体与水蒸气在温度大于 110°C 的条件下发生水解反应而生成 UO₂F₂ 粉末,其反应方程式如下:

$$UF_6(g)+2H_2O(g)=UO_2F_2(s)+4HF(g)$$

之后, 炉管内的 UO_2F_2 粉末与炉尾处通入的氢气发生还原反应, 生产 UO_2 粉末, 方程式如下:

$$UO_2F_2(s)+H_2(g)=UO_2(s)+2HF(g)$$

粉末成型法制备芯块的过程中,通常是属于干法制备,因此不可避免的会产生粉尘扩散问题,漂浮在空气之中的粉尘可能会产生放射性物质的泄漏,对操作人员与周围的环境产生一定的危害。因此,为克服这个危险,研究人员又开发出一种不使用粉末,而是通过液体原料制备燃料微球,再将微球压制烧结成芯块的方法。

2)核燃料微球制备方法。常见的核燃料微球制备方法有溶胶脱水法、外凝胶法、内凝胶法、全凝胶法、炭黑粉末凝胶法与浸渍法等。由于微球在制备的过程通常是采用湿法制备,而且在压制成芯块的过程中也不会出现粉尘的扩散问题,并且可以实现对具有极高放射性核素(如钚及次锕系)的远程制备,因此具有环境友好性与操作安全性等优点。

溶胶脱水法可以分为两步,首先需要得到稳定的胶体溶液,然后通过一定的方法将胶体溶液进行脱水,形成固体燃料微球。而为得到胶体溶液,可以采用两种方法。一种方法是通过燃料的硝酸盐溶液,如硝酸铀酰、硝酸钍、硝酸钚等与氨水发生反应,从而形成溶胶;与沉淀反应不同的是,也可以通过某种方法移除70%-80%的硝酸根,如溶剂萃取法,从而形成溶胶溶液。得到溶胶之后,需要对其进行脱水化处理,通过将胶体溶液与一种吸水性有机溶剂如异辛醇进行接触,发生逆向吸水现象,使得溶胶溶液中的水分被异辛醇吸取,从而形成凝胶微球。最后通过将凝胶球进行干燥、烧结,得到密实的金属氧化物微球。

外凝胶法(External gelation process)制备的流程使用的是 SNAM 流程,最 开始是由意大利科研人员提出来的。外凝胶法是通过将金属硝酸盐与氨水接触, 从而发生沉淀反应。但由于生成的这种胶体非常脆弱,不能提供足够的强度,因 此需要在原料液中添加一种具有一定粘度的水溶性有机聚合物。例如,为了制备氧化铀燃料微球,在硝酸铀酰溶液中可以选择加入羟丙基甲基纤维素、聚乙烯醇及四氢糠醇等作为原料液。当原料液滴滴入氨水溶液中,由于氨水的碱性条件使得硝酸铀酰液滴外面形成一层坚固的外壳,从而形成凝胶微球。最后通过热处理,形成密实的氧化铀微球。

全凝胶法(Total gelation process)是指一种结合内凝胶法与外凝胶法的制备流程,最开始是从清华大学高温气冷堆(HTR-10)的燃料制备研究发展而来。在这种流程中,先按照外凝胶法的工艺将硝酸铀酰溶液、尿素、聚乙烯醇及四氢糠醇混合,与此同时也参照内凝胶法在原料液中加入六次甲基四胺和尿素,使得液滴可以同时跟外部的氨气以及内部的铵根离子反应形成凝胶微球。凝胶球经过真空干燥,接着在氢气氛围条件下高温煅烧以获得接近 98%理论密度的氧化铀微球。

炭黑粉末凝胶法制备碳化铀的流程,首先是在原料液的配制阶段将炭黑粉末加入溶液中并搅拌混合,形成炭黑均匀分散的胶体溶液。然后经过液滴成型技术形成凝胶微球,之后将其在惰性气氛条件下燃烧以形成碳化铀微球或在氮气条件下燃烧以形成氮化物微球。

浸渍法是指对于制备某些具有放射性成分(如 Am, Cm 及 233U)的燃料微球时,如果直接制备需要用到远程操作装置。但由于这些放射性成分的浓度非常低,因此如果通过先制备基体材料,然后将放射性成分浸渍并吸附在基体上面的方法,就可以避免远程遥控操作带来的复杂性与危险。例如,Pai 等人通过将 ThO2 凝胶球浸渍在硝酸铀酰溶液中,最终制备出(Th, U)O2 微球。对于一些需要高燃耗的燃料微球来说,需要用到一些惰性基体的燃料。通过将惰性材料的凝胶球浸渍在放射性核素的溶液中,是其中一种方法。例如,将具有多孔结构的氧化钇锆微球浸渍在钚、镅或锔的硝酸溶液中,并经过高温煅烧使得金属硝酸盐转化成氧化物,最终得到具有高密度的燃料微球。

3.3.2 结构设计

核燃料组件是由一组燃料棒(片)和其他构件组成的堆内释热部件,是反应

堆燃料装卸料单元,有棒束型、套管型、片组型等几种结构形式。一般由燃料棒(片)、定位件、支撑件等构件组成,组体内元件数量、排列和结构形式随堆型而不同。不同的反应堆使用的燃料元件也不同。按其形状来区分,有棒状、管状、板状和球状等。按其核燃料状态来区分,有金属型、陶瓷型、弥散型等。燃料组件则是组装在一起并在堆芯装卸料过程中不需拆开的一组燃料元件。燃料元件在堆内受到强中子辐照、高温和高流速冷却剂的冲刷和腐蚀以及由于温度、压力变化而引起的应力应变的机械负荷等因素的作用,因此燃料元件必须具有物理、力学、化学等方面的稳定性。

核燃料组件设计的目标,是要确保在堆芯安全运行及燃料和燃料部件零部件的性质之间取得一个合适的平衡。核燃料组件的性质取决于: (1)辐照效应: 生长和脆性等; (2)与冷却剂的化学反应: 腐蚀、氢化等; (3)流动引起的振动,进而导致整个组件的轴向和横向移动或局部效应,或在燃料棒和格架交接面的腐蚀; (4)由于堆芯运行及操作处理(包括有关的事故)所引起的机械负荷。

目前世界上在运核电站多属于轻水反应堆(包括压水堆和沸水堆),所生产的核燃料主要包括压水堆燃料组件和沸水堆燃料组件。压水堆堆芯核燃料组件由若干燃料元件、上管座、下管座、控制棒导向管和定位格架等部件组成。压水堆燃料组件通常由 14 根×14 根到 18 根×18 根的燃料棒按照一定的间隔装配而成。燃料棒主要由锆合金包壳管和氧化铀芯块组成,内部装有压紧弹簧以限制燃料芯块的跳动,组装完成后充以高压氦气以减小入堆后冷却剂的压应力。沸水堆采用与压水堆类似的燃料棒,其燃料组件外部包围有一层薄管道,可以改善反应堆的热工水力特性和减小局部密度变化对堆芯内中子的影响,其目前多采用 9 根×9 根和 10 根×10 根的结构。

世界核燃料的设计和生产主要集中于少数行业巨头,如英国核燃料有限公司(BNFL)、美国西屋电气公司(Westinghouse)、全球核燃料公司(GNF)、法国法玛通公司(Framatome ANP)、俄罗斯燃料公司(TVEL)等,这些行业巨头通过兼并和重组在全球范围建立了众多的核燃料加工厂,为全球大多数商业核反应堆提供核燃料。中核集团研发的 CF3 燃料组件采用 17×17 排列方式,包括264 根燃料棒、24 根导向管、1 根仪表管、11 个定位格架(2 个端部格架、6 个

结构搅混格架以及 3 个跨间搅混格架)、上管座部件、下管座部件等。CF3 燃料组件设计目标燃耗为 55000MW•d/t(U), 完全满足大型商用核电厂 18 个月长循环的使用要求。CF3 燃料棒采用先进国产 N36 锆合金作为包壳材料,具有抗腐蚀能力及吸氢性能好、辐照生长速率低、力学性能好等优异的综合性能。燃料棒气腔及弹簧优化设计,可更好地包容高燃耗下释放的裂变气体。CF3 燃料组件采用了强化冷却剂有效搅混特征的高热工水力性能定位格架,也改善了格架外条带防勾挂能力。增强型导向管设计增加了结构强度,具有良好的力学性能,满足"华龙一号"等三代核电堆型 0.3g 抗震能力要求。上、下管座均为流场均匀化和低压降设计思路,可有效控制燃料棒受冷却剂流动影响带来的流致振动及磨蚀破坏风险,具有更好的防异物磨蚀能力,有效提高了燃料组件堆内运行的可靠性。

法国法玛通公司主要产品包括压水堆燃料组件 AFA 3G、HTP 及 Mark-BB/BW 和沸水堆燃料组件 ATRIUM。其中 AFA 3G 型产品主要面向欧洲市场,CPR1000 堆型面向中国市场,Mark-BW 型可作为 Westinghouse 公司压水堆的替代燃料,Mark B 型主要用于美国 B&W 型反应堆。Westinghouse 公司主要产品包括压水堆燃料组件 CENP、ASEA-Atom 及 RFA 和沸水堆燃料组件 SVEA。CENP系列主要用于美国 Combustion Engineering 公司所建的核反应堆,ASEA-Atom 系列由 Westinghouse 公司在原 ABB-Atom 公司产品的基础上改进而来,RFA 系列由 Westinghouse-US 公司在 V5HP+型产品的基础上研发而来。

近年来,结构设计改进主要是围绕提升燃料组件的可靠性展开,主要包括提高热工安全裕量、提升燃料防异物能力,降低压降、提高燃料组件抗事故能力,适应高燃耗的要求、提升防钩挂能力等。例如,AFA 3G AA(又称全 M5 AFA 3G)设置了中间搅混格架(MSMG)提高热工安全裕量,采用 MONOBLOCTM 变径导向管提升燃料组件结构强度,缓解控制棒不完全插入风险等。当前燃料组件主要代表有美国西屋公司的 AP1000燃料组件、法国阿海珐的 AFA 3G 系列燃料组件以及俄罗斯的 TVS 系列燃料组件,除 TVS-2M 组件以六角形方式排列外,其他均为正方形排列的棒束型燃料。

美国西屋公司在 RFA/RFA-2 的成熟技术基础上改进的 AP1000 燃料组件, 继承了 RFA/RFA-2 的优秀设计,如整体型管座设计、设置保护格架、首次在 14

英尺(4.2672m)燃料中设置中间搅混格架(IFM),并采用 15 个格架(2 个端部格架,1 个底部保护格架,8 个搅浑格架,4 个 IFM),进一步提升热工水力学性能,提高安全裕量。采用基于 Inconel-718 合金的端部格架,在保证堆芯中子经济性的同时,保证了寿期末对燃料棒的有效夹持,并采用三重防异物磨蚀措施;格架与导向管的连接采用胀接的方式,减少焊接的缺陷,增强了结构稳定性。全锆合金的搅混格架带有优化性能的搅混翼,添加了中部混流设计,能促进冷却剂流过格架时的搅混效果,提高了组件的热工水力性能。由于 PWR 燃料的搅浑格架(尤其是中间搅浑格架 IFM)对于强化燃料包壳表面传热的重要性,西屋公司已经开发了具有双层 IFM 的下一代燃料组件(NGF),可使得热工安全裕度在现有燃料组件的基础上再提高 10%左右。中广核研究院也取得类似的发明专利。这种组件的优点是显而易见的,缺点是流动阻力会有所增加。

法国阿海珐最新研发的燃料组件 GAIA, 它吸收了 AFA 系列及原西门子 HTP 燃料组件的优点,如定位格架使用 AFA 3G 搅混翼(热工水力特性好)和 HTP 弹 簧设计特征(机械性能优良); GAIA 燃料组件在改进抗异物磨蚀能力、增强抗 格架——燃料棒振动磨蚀能力、加强结构稳定性等方面进行了进一步改进。GAIA 组件的格架中的弹簧为燃料棒提供了八个方向的线接触支持,使得格架栅元与燃 料棒的夹持更加紧固,提高了抗格架与燃料棒磨蚀性能。更重要的是,GAIA组 件采用"二元"结构设计,即包壳与骨架采用不同的新锆合金材料(M5、Q 合 金),发挥各自的优势(M5抗腐蚀性能更好,O合金抗蠕变性能更强)。GAIA 燃料组件是阿海珐未来 10─20 年力推的主要高性能燃料组件。ATRIUM™ 11 是 阿海珐最先进的沸水堆燃料,通过提高铀的使用效率,满足高能量燃料循环的需 求,提高成本收益和更高的运行灵活性。该燃料特点是 11×11 燃料棒布置,非 常适用于已实施功率提升和优化容量因子运营策略的核电站。目前全球已有5座 反应堆采用 ATRIUM™ 11 燃料。另一个核设施将采用阿海珐改良的 HTP™燃料 组件,以推进核电站在 2030 年前向更长的燃料循环过渡。全球约有 20000 套 HTP ™燃料组件装入了 50 座反应堆, 其中近一半的组件在美国。这些燃料组件将在位 于华盛顿州里奇兰的 Horn Rapids Road 燃料制造厂生产。

俄罗斯基于 TVSA 燃料组件及 VVER-1000 燃料组件研制开发的 TVS-K 燃

料组件由 VVER 传统的六边形演变为四边形,采用的是 17×17 方形设计。TVS-K 燃料组件的定位格架由带导向翼的围板、带搅混翼的条带和带刚凸的栅元组 成。其中, 栅元为燃料棒提供了足够的夹持力, 并且防止了燃料棒与搅混翼发生 接触: 搅混翼和导向翼提高了格架的搅混性能。TVS-K 燃料组件的所有定位格 架中均含有搅混翼的设计。在 TVS-K 燃料组件的定位格架之间,设置了 3 个搅 混格架,其功能是使流体充分混合,降低燃料棒表面的温度。通过试验表明,加 入搅混格架的燃料组件的热工水力性能高于没有搅混格架的燃料组件。TVS-K燃 料组件的最下端为不含搅混翼的底部格架,其主要功能为固定燃料棒,保证燃料 棒只产生轴向位移。底部格架的上端,为 TVS-K 燃料组件的抗磨蚀格架,抗磨 蚀格架的主要功能是减少燃料棒的振动、提高燃料组件的抗磨蚀性能。TVS-K燃 料组件的导向管是具有缓冲段的变径导向管。导向管部件与燃料组件的上、下管 座进行焊接,保证燃料组件完整性的同时也提高了燃料组件的抗弯曲能力。TVS-K燃料组件的导向管与 AFA 3G 相比,导向管壁厚大幅增加,极大地提高了整个 燃料组件的刚度及抗辐照变形性能,也极大提高了燃料组件抗极端事故能力。 TVS-K 燃料棒中的燃料芯块采用了掺杂工艺(Al₂O₃+SiO₂)。芯块掺杂之后其晶 粒尺寸变大,减小了裂变气体释放,极大地提高了燃料芯块的性能,提高燃料棒 的可靠性。燃料棒包壳的合金具有优异的抗腐蚀性能,进一步提高了燃料棒的可 靠性。

光桥公司研发的 Lightbridge 燃料组件是新一代燃料组件,与传统的燃料组件设计相比,Lightbridge 燃料组件做出了重大的技术改进。Lightbridge 燃料组件采用铀-锆金属合金燃料,合金中的锆含量接近 50wt%。铀-锆合金的材料极大地改善了燃料棒的辐照稳定性,减少了燃料棒的肿胀率,并且提高了燃料棒的熔点和抗腐蚀性能。Lightbridge 燃料组件的燃料棒采用了多叶片螺旋形式的结构,此种结构设计使得燃料棒本身就对冷却剂有着很好的搅混效果。与传统燃料棒结构相比,此种结构设计的燃料棒与冷却剂的接触面积大幅提高,进一步增强了燃料棒与冷却剂的热交换能力,降低了燃料棒表面的温度。Lightbridge 燃料棒由包壳管、燃料和中心金属区三个部分构成,其中,包壳与燃料紧密贴合在一起无任何间隙。包壳与燃料紧密贴合在一起的结构设计使得燃料棒具有更高的机械强度以

及抗弯刚度。中心金属采用锆合金材料,极大提高了燃料中心的导热率。由于Lightbridge 燃料组件中的燃料棒具有良好的搅混能力,Lightbridge 燃料组件中并无定位格架设计。与传统燃料组件相比,这样的设计方式降低了燃料组件的压降。Lightbridge 燃料组件的结构设计极大地提高了燃料组件安全性能,虽然目前Lightbridge 燃料组件只是处于初步设计阶段,燃料组件性能需要通过堆内辐照试验进行判断,但是Lightbridge 燃料组件的设计方向为未来燃料的发展提供了宝贵的参考价值。

四、核燃料领域发展概况——文献视角

4.1 论文数量与趋势分析

衡量某领域发展的重要指标就是研究论文数量的变化,统计文献数量并绘制相应的增长曲线,对于评价该领域所处阶段,预测其发展态势起着重要作用。在1900-2020年间,SCIE 共收录核燃料相关 Article 和 Review 类型论文 20013篇,从整体来看,核燃料领域相关文献除个别年份有小幅下降外,基本呈平稳快速增长状态,具体情况如图 1 所示。

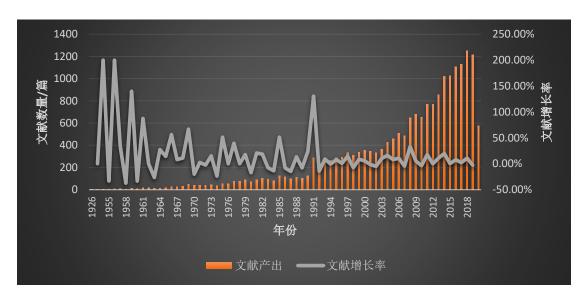


图 1 核燃料相关论文数量及增长率变化

由图 1 可知,核燃料领域相关发文的发展历程可分为三个阶段:

(1)初步探索阶段(—1990年)。1926年,Heusler, O率先对碳化铀展开研究,但并未引起科研人员的关注,领域文献断断续续。在核电发展的初期阶段,世界上大多数国家的核电站都由政府主导和建设。

从 20 世纪 50 年代初开始,美、苏、英、法等国把核能部分转向民用,都制订了庞大的核电发展计划。1954 年,美国国会通过《原子能法案》,促进和平利用核能,同年成立原子能委员会指导核能发展,提出"核反应堆五年发展规划"。1956 年,日本政府做出引进技术发展核电的规划,成立原子能委员会,并制定关于核能研发和应用的长期规划。我国核能发展起步较晚,1983 年,我国由国家科委组织牵头,在回龙观召开核电技术政策论证会,确定了我国的核电发展技术路线。会上制定了《核能发展技术政策要点》,指明我国核电发展方向,通过引进

国外先进技术、国内消化吸收、进行研发二次创新的方式发展我国核电。

随着国家对于核电的重视,作为产生核电的重要资源,科研人员对于核燃料的研究逐步走上正轨。此时虽然仅有小部分科研人员加入研究核燃料的队伍,论文产出增长缓慢,但整体上呈上升趋势。由于此阶段文献量较低,文献增长率不足以说明科研人员对于核燃料领域的关注程度,因此本报告对该阶段的文献增长率不做赘述。

- (2) 平稳发展阶段(1991—2002年)。20世纪 90年代初,美国用户要求文件(URD)和欧洲用户要求文件(EUR)对第二代改进型和第三代核电厂的经济性、可靠性和安全性提出更高的要求,燃料组件也朝着提高燃耗、延长换料周期、提高安全裕度和可靠性等方向持续改进和发展。各国对于核燃料的重视,引起科研人员的注意。1991年,与核燃料相关的文章突增,增长率高达 130%,标志核燃料相关研究进入新的发展阶段,但在之后的十年内各年的发文量波动较小。
- (3)快速增长阶段(2002年—至今)。以美国为首的几个国家,在借助多边或双边平台,倡导实施多国商业性燃料循环供应与服务机制,来确保更广泛地获取核电利益,同时降低核扩散风险。在美国发起的国际核能合作框架活动下,从 2009年起提议实施核燃料综合性服务(CFS)机制,倡导由供应方向用户提供包括燃料供应、乏燃料管理和最终处置等在内的综合性商业服务。2020年,美国核燃料工作组发布《恢复美国核能竞争优势》报告,概述了对开发下一代技术和先进核燃料的支持,并提出系列行动建议和相关计划,意欲使美国在这一领域保持竞争力。此外,美国森图斯能源公司 2019年11月与美国能源部签订了一份为期3年的合同,在俄亥俄州使用离心机,以示范生产先进反应堆的高丰度低浓铀核燃料。美国能源部发布《核燃料工作组战略》的报告,其中就重塑核燃料循环前端技术实力、强化本国铀开采冶炼和转化能力等作出明确建议和指示,旨在重振美国铀产业。

为响应国家号召,科研人员也积极投身于核燃料相关研究。从文献产出来看,有关核燃料研究的文献产量逐年增多,呈指数型增长,其中2018年文献量高达1251篇,创历史新高;从文献增幅来看,2002—2020年各年文献增长量呈波动态势,其中2008年、2014年文献增幅最大,分别相对前一年增长161、170篇。

由上述年论文量及增幅分析可知,核燃料领域如今依旧处于成长期,是科研人员研究关注的重点。

4.2 主要国家演化分析

4.2.1 国家论文数量

通过对文献的来源国家(地区)分析,可以了解不同国家对于某个研究领域的关注度与贡献度。统计主要国家论文发表量如图 2 所示。由图可知,美国发文量远超其它国家(地区),居于第一位,发文量为 4433 篇。日本、中国、韩国、法国和德国发文量在 1000—2000 篇,其中日本发文量最高(1943 篇),德国最低(1371 篇);俄罗斯、瑞典、印度和英国发文量在 600—1000 篇,其中俄罗斯发文量最高(848 篇),英国发文量最低(642 篇)。通过分析可知,整体上发文量呈现幂律分布,大部分文章主要集中于美国,可见美国对核燃料相关领域研究的重视。中国发文量排名第 3 位,与美国相比较差距较大,接近日本。

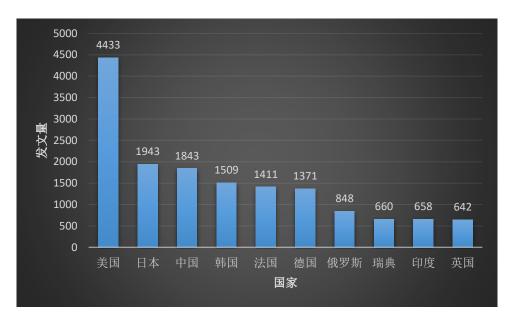


图 2 国家数量分布图—论文

4.2.2 主要国家论文趋势

总体来看(如图 3 所示),美国的发文量要远高于其他国家;中国、韩国正崛起成为国际科研的中心,说明中国、韩国科研水平有较大提升。

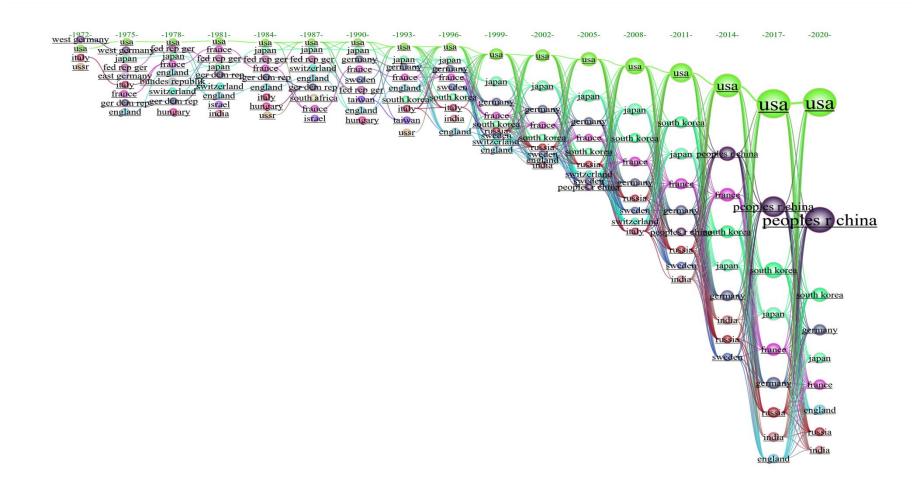


图 3 国家演化趋势图—论文

由图 3 可得到以下结论:

- (1)美国长期稳居首位。1972年,曾经存在于欧洲中部的社会主义国家—东德核燃料发文量排名第一,美国居于第二位。1975年,东德退居第二位,之后便再未出现,此时美国超越东德成为第一并维持至今。2020年,美国能源部发布《核燃料工作组战略》的报告,其中就重塑核燃料循环前端技术实力、强化美国铀开采冶炼和转化能力等作出明确建议和指示,旨在重振美国铀产业。此外,特朗普政府拟议的 2021 财年预算中,有 354 亿美元划拨给能源部,其中约 1.5 亿美元被指明用于建立国内铀储备区,该储备区旨在保证国内核反应堆燃料稳定供应,并首先从本土矿山购买铀资源和转化服务。由此可见美国对于核燃料的重视,同时也印证了其在核燃料领域全球领先,引领该领域的发展趋势,处于领军地位的事实。
- (2) 日、法、德三国排名近期有下滑趋势。日本、法国和德国是三个值得注意的国家,一直以来这三个国家在核燃料领域都保持着重要地位。日本 1975 年发文量排名第三位,1984 年开始超越西德成为发文量第二的国家并一直保持该状态,但近十年,日本相较其他国家发表核燃料相关文章的数量逐渐减少。法国和德国长期处于第三、第四位,但近阶段有下降趋势,整体排名走势与日本相似。
- (3)中国和韩国都属于后起之秀。韩国整体上发展比较稳定,1993年,韩国在核燃料领域崭露头角并稳定在第五位的位置,2008年时超越法国、德国成为发文量排名第三的国家,2011年超越日本成为第二,近几年回归到第四名的位置。韩国原子能委员会制定的至2030年原子能发展长期规划中明确,实现在遵守不扩散核武器原则下的核燃料循环技术研发,以完成核燃料国产化的目标。

相比韩国,中国出现时间较晚,但成长速度较快。2005年中国出现在 top10内,2011年排在第六位,2014年以惊人的速度成为了核燃料领域发文量排名第二的国家并维持至今。由此可见中国核燃料领域的成长速度非常快,随着时间的推移,在国际舞台上中流砥柱地位也愈发凸显。2016年,中国国家能源局印发《能源技术创新"十三五"规划》(2016-2020)称,十三五期间,核电技术创新将在先进核电燃料领域取得突破,未来将重点推进核能安全利用。同年,国家发

展和改革委员会、国家能源局联合发布《能源技术革命创新行动计划(2016—2030年)》,行动计划将先进核能技术创新放在显著位置,核燃料系统作为核反应堆的核心系统,对提升和保证核电站的经济性和安全性具有非常重要的作用。中国对于核燃料领域的重视也会引起大量相关科研人员的关注,依照当前的成长速度,未来中国的实力不容小觑。

4.3 主要机构演化分析

4.3.1 机构论文数量

对研究机构进行分析可以展示一个领域的研究核心地,突显其研究的重要力量。统计核燃料领域机构论文总量如表 3 所示,与国家(地区)的结果稍有差异。本研究将基于核燃料领域发文量前 20 个重点研究机构划分为三大梯队:第一梯队为韩国原子能研究院,发文 854 篇,位列第一;第二梯队包括橡树岭国家实验室、爱达荷州国家实验室等,发文量介于 200—500 篇,其中橡树岭国家实验室发文最多 (482 篇),麻省理工学院发文最少 (251 篇);第三梯队分别是密歇根大学、皇家理工学院、韩国科学技术院等,发文量介于 150—200 篇,其中密歇根发文最多 (196 篇),上海交通大学发文最少 (161 篇)。这些重点机构的国别分布主要是美国、中国、韩国,是该领域研究较为成熟的国家。核燃料领域发文量排名前 20 的机构均是科研机构和高校,可见高校和科研机构是国家和地区知识创新、理论创新和技术创新集散中心。中国工程物理研究院,是国家科研计划单列的中国唯一的核武器研制生产单位,是以发展国防尖端科学技术为主的集理论、实验、设计、生产为一体的综合性研究院,共发文 87 篇,由 2005 年的 3 篇文章增至 2020 年的 15 篇。

表 3 机构论文数量表

所属国家	机构	论文数量
	橡树岭国家实验室	482
	爱达荷州国家实验室	467
	阿贡国家实验室	375
美国 (7)	洛斯·阿拉莫斯国家实验室	262
	麻省理工学院	251
	密歇根大学	196
	加州大学伯克利分校	176

山団 (4)	中国科学院	448
	西安交通大学	273
中国 (4)	清华大学	172
	上海交通大学	161
日本 (2)	日本原子能机构(JAEA)	357
	东京工业大学	175
印度 (1)	巴巴原子研究中心	346
法国 (1)	法国原子能委员会	329
共団 (2)	韩国原子能研究院	854
韩国(2)	韩国科学技术院	191
俄罗斯(1) 俄罗斯科学院		186
瑞士 (1)	保罗·谢尔研究所	323
瑞典 (1)	皇家理工学院	192

4.3.2 主要机构论文趋势

机构的演化图能够反映不同年份各机构发表文章数量,了解每个机构的发文情况对于衡量一个机构的科技产出和科研实力具有重要参考价值,可以借此识别出核燃料领域发文核心机构,也可以动态观察机构演变情况。提取历年主要机构论文趋势如图 4 所示。总体来看,核心机构较为固定,第一阶段日立、日本原子能研究所(JAERI)居最重要的位置;随着时间的推移以及各国发文量的增大,韩国原子能研究院和中科院等机构取代了日本原子能研究所(JAERI)的核心位置。可以看出一旦成为核心位置的机构下一阶段还将位于核心地位的可能性很大,因此中科院在未来一段时间内很可能一直是年发文量最多的机构。

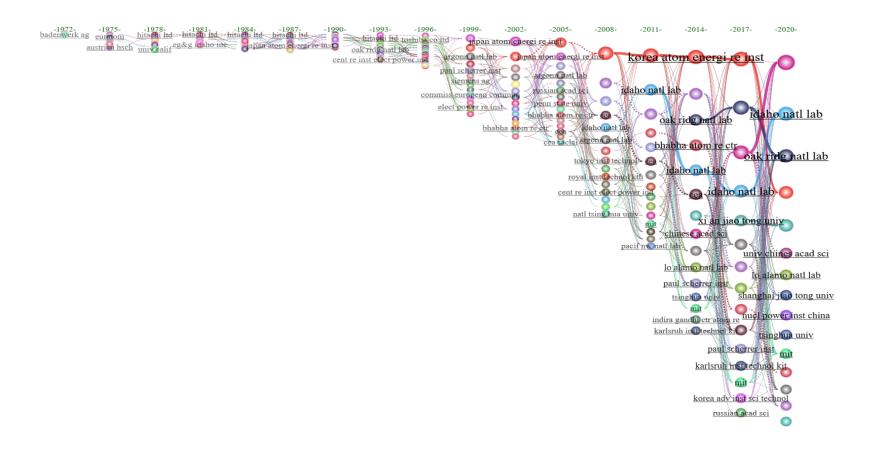


图 4 机构演化趋势图—论文

由图 4 可得到以下结论:

- (1) 20 世纪末,日本科研机构是核燃料领域的主力军,日立、日本原子能研究所(JAERI)接连占据核燃料领域发文量第一的位置。其中,日本原子能研究所(JAERI)于 2005 年合并日本核燃料循环开发机构后成为日本原子能机构(JAEA)。但由于核电事故频频发生,致使日本核燃料产业兴起一段时间后逐渐走向低迷。2011 年福岛核事故及其影响更是进一步激活了日本国民对核电恐惧的"文化认知","放弃核电或减少对核电的依赖"已普遍成为日本民众对核电的"基本认识"和"共同理解",从而导致日本核燃料领域各大机构遭到挫败。
- (2)中科院和韩国原子能研究院是当前核燃料领域的中流砥柱。21世纪初,韩国原子能研究院超越日本原子能研究所(JAERI)成为发文量最大的机构并维持至2017年。韩国原子能研究院创建于1959年,是由政府提供支持唯一开展核能和平利用为研究导向的核能源研究设计机构,其目标是通过核技术实现能源独立,实现核燃料国产化。在近几年该机构带领韩国核燃料技术走在世界前列,为提高韩国竞争力做出了巨大贡献。2020年,中科院异军突起。正如历经8年,将核燃料利用率从"不到1%"提高到"超过95%"的中国科学家一样,中科院今日的成就是无数科学家甘做科研冷板凳,一朝一夕的努力所取得的成果。中科院拥有众多科研院所、重点实验室和工程中心,在这些机构中,中国科学院上海应用物理研究所、中国科学院金属研究所、中国科学院高能物理研究所是隶属于中科院的核燃料领域主要发文机构。除中科院外,中国其它机构也如雨后春笋般成长起来,比如中科院大学、清华大学、上海交通大学也跻身前列。
- (3) 美国橡树岭国家实验室、爱达荷州国家实验室两大机构发文量排名有些波动,但依然在核燃料领域扮演着重要角色。美国橡树岭国家实验室、爱达荷州国家实验室、阿贡国家实验室、洛斯·阿拉莫斯国家实验室均是属于美国能源部的著名核相关实验室,但阿贡国家实验室、洛斯·阿拉莫斯国家实验室发文量排名则呈下降趋势。此外,法国原子能委员会和印度巴巴原子研究中心也与其排名走势相似。

4.3.3 机构合著关系

学术论文是科技活动的重要产出,论文的合著发表正是科技合作中的一个重要方面,它从一定角度体现了机构之间的科技交流合作关系以及合作发展水平,展现国际科技合作研究的基本格局。机构合著关系如图 5 所示,图中节点大小与论文数量多少成正比,节点红、绿、黄色分别表示署名第一、第二、第三及以后的论文文献数量。图中连线粗细与合著数量多少成正比。总体来看,美国、日本、韩国机构在科研合作交流上表现最好,具有良好的开放式科研交流基础;中国、印度机构对外科研合作现状不佳,但发展速度快,具有良好的科研开放交流潜力。各国机构相较于对外合作更倾向于选择国内合作,因此可见核燃料领域相关机构不具有较好的科研开放交流氛围,需要加强科学研究的开放性,以推动自身科研水平的提升。

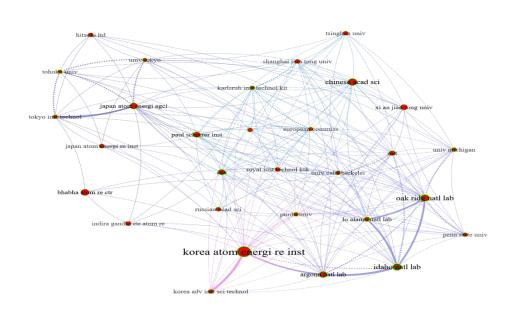


图 5 机构合著关系图—论文

通过机构合著图可以发现:

(1) 合著关系显著的橡树岭国家实验室、爱达荷州国家实验室、洛斯·阿拉莫斯国家实验室,形成了一个较为明显的三角形,可见这三个机构在核燃料领域交流较为频繁。2015年,美国能源部重启自 1988年以来停止的钚 238 生产,橡

树岭国家实验室、爱达荷国家实验室和洛斯阿拉莫斯国家实验室合作共同为美国深空探测生产钚 238。爱达荷州国家实验室是美国能源部在核研究和开发领域的首席实验室,因此与美国能源部的其他实验室交流较多,例如美国能源部的阿贡国家实验室。但阿贡国家实验室与能源部其他两大实验室合作次数较少,更多是与韩国原子能研究院联系。

- (2)日本原子能机构(JAEA)和日本东北大学、韩国原子能研究院和韩国科学技术院合作较多。日本东北大学材料研究所国际核材料研究中心与 JAEA 关系密切,而且经常与来自其他国家的研究团队一起在试验反应堆上开展研究工作。韩国科学技术院作为韩国最重要的科技大学,现有三个校区,一个在首尔,两个在大田市的大德研发特区中心。大德研发特区是韩国最大的科技研发集群,由政府机构、私人研究机构、初创企业和创业公司组成,韩国原子能研究院便是其中之一。韩国科学技术院是韩国唯一一所从事能源等高风险高回报类研究的高校,其与韩国原子能研究院地理位置距离并不远,因此交流合作相较与其它机构较为频繁。这些机构有着明显的合作能力,但与国外其他机构的合作并不明显,因此这些机构应该走出国门,寻求与其他国家相关机构合作共赢的机会。
- (3)中国科学院、巴巴原子研究中心、保罗·舍勒研究所、上海交通大学节点较大,但与周围机构之间的连线却并不明显,可见这些机构更倾向于机构内部合作。但科研合作可以促进学者的科研产出,而且能提高科研成果的质量和影响力,因此这些机构应加强与其他机构之间的合作。

4.4 研究热点分析

技术主题图是进行技术主题布局分析的典型文本挖掘方法之一,可以识别 出技术领域的热点前沿技术。绘制核燃料领域文献主题分布如图 6 所示,科研 人员对核燃料领域的研究主要分为 4 个方面:核聚变研究(包层中子学分析; 包层热工水力学性能分析);ATF的研究以及相关技术(传统燃料以及包壳的 优化;ATF 芯块及燃料包壳的选择;ATF 表面化学行为的研究);反应堆的安全 性研究(压力容器的可靠性及完整性;核电结构材料应力腐蚀;失水事故分 析;第四代核能技术);核燃料后处理技术(裂变产物的分离;乏燃料的存 储; 乏燃料的后处理)。

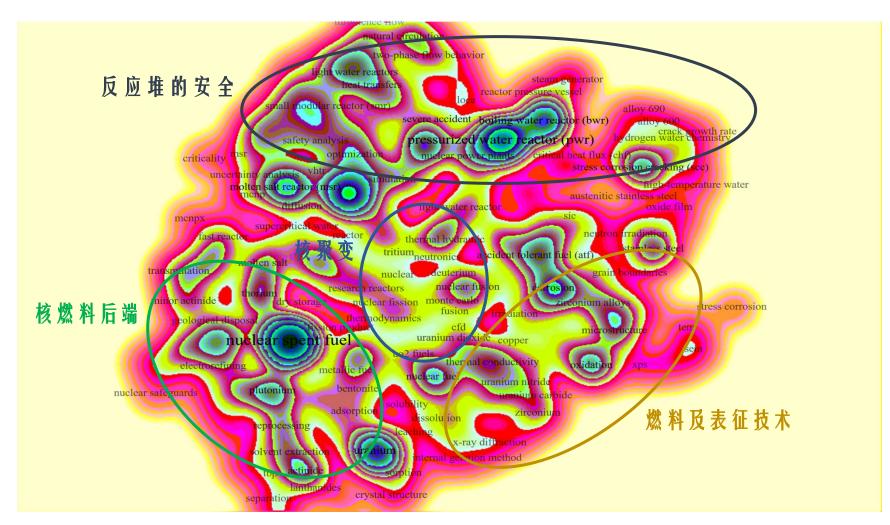


图 6 主题分布图—论文

4.4.1 核聚变研究

从图 6 可以看到,"核聚变、氚、氘、氢、中子学、蒙特卡罗方法;热工水力、数值模拟、计算流体动力学"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映了以下热点和前沿技术方向:包层中子学分析;包层热工水力学性能分析。核聚变的原理早在 1933 年就被提出,它是由较轻的原子核聚合成较重的原子核而释放出能量。由氢的同位素氘和氚聚合成较重的原子氦而释放出能量,是自然界中最容易实现的核聚变反应。实现核聚变反应需要将反应物质加热到等离子态,上亿摄氏度的温度使氘和氚的原子核的布朗运动达到一个疯狂的水平,赤裸裸地发生碰撞,产生新的氦核和新的中子,从而释放出巨大的能量。实现可控核聚变反应的难点就在于该把这个高达上亿摄氏度的反应体放在何处,为了解决这一难题,研究人员设想了多种方案,其中一种就是使用足够强大的环形磁场将高温等离子体约束住,而在环形磁场之外建立一个大型的换热装置,把反应体的能量以热辐射的方式传到换热体,然后把热能转换成电能。目前,世界各国的可控核聚变研究主要集中在这个领域。

各国研究者对于聚变堆的包层较为频繁,主要包括两个方面(1)包层中子学分析,主要关键词有"核聚变、中子学、蒙特卡罗方法"。包层作为聚变反应堆的核心部件和功能载体,承担着三大重要作用:一是氚增殖,发生氘氚聚变反应的原材料之一氘在自然界中含量丰富,但是另一种原材料氚在自然界中几乎不存在,因此必须通过人工反应来得到,包层的设计思路就是利用氘氚聚变反应释放的高能中子与特定的氚增殖剂发生反应生成氚,从而实现氚原料的自给自足;二是能量增殖,将聚变粒子的能量进行放大,转化成可利用的能量;三是辐射屏蔽,防止放射性物质泄漏,降低辐射对反应堆部件和外部环境的影响。聚变堆包层的首要目标是实现原料氚自持,目前针对各包层概念中子学分析研究的基础和重点就是包层的氚增殖能力。中子学分析对聚变堆尤其是其氚增殖包层的设计和安全运行具有重要意义,针对各国提出的增殖包层概念,国内外科研单位先后展开了相关中子学分析研究,基于蒙特卡罗方法的模拟是聚变中子学分析的常用手

段。在包层方案满足氚自持的前提下,包层中子学分析研究还包括对中子通量及 其响应量的研究,验证包层设计的中子屏蔽能力和辐射防护能力是否达标,保障 包层的安全运行。(2)包层热工水力学性能分析,主要关键词有"热工水力、 数值模拟、计算流体动力学"。包层直接面对等离子体,而引发聚变需要将等离 子体加热至1亿多度,稳定运行时,直接面向等离子体的第一壁会有兆瓦级别的 热流密度,所以要求其能承受高温和高热流密度及中子辐照,这不仅仅对包层材 料提出了高要求,更是要求包层具有很好的热工水力学特性。对包层进行热工水 力分析为包层优化设计提供了数据支持及参考,对包层工程设计的进一步完善具 有重要意义和应用价值。

4.4.2 ATF

从图 6 可以看到,"核燃料、ATF、ATF包壳、氧化铀、二氧化铀燃料、锆合金、热导率;氮化铀、碳化铀、SiC; XPS(X 射线光电子能谱)、SEM 扫描电镜、微观结构、氧化"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映了以下热点和前沿技术方向:传统燃料以及包壳的优化;ATF 芯块及燃料包壳的选择;ATF 表面化学行为的研究。

(1) 传统燃料以及包壳的优化,主要关键词有"氧化铀、二氧化铀燃料、锆合金、热导率"。UO2 是半导体,电阻率随温度的变化而变化,受到强辐射时不会发生异性形变,在高温下晶格结构不发生变化,并且不挥发,不和水发生化学反应等,因为具有这些特性,UO2 已广泛用作核反应堆燃料元件,主要在轻水核反应,重水堆以及快中子增殖堆中应用。锆合金具有优异的耐腐蚀性能、良好的抗辐照生长特性以及适中的力学性能等,主要用于制备核反应堆燃料包壳管。在核反应堆失水事故工况下,锆管温度急剧上升并与水蒸气发生剧烈反应,在随后的淬火过程中锆管可能会发生破裂,导致核泄漏。虽然在日本福岛核事故后各国开始研究 ATF,但改进和开发以现有 UO2-Zr 燃料系统为基础的燃料力度并没有减弱。对现有的 UO2-Zr 燃料系统为基础的研究主要考虑到 UO2 是目前在核反应堆中得到大规模应用的核燃料,在不影响 UO2 中子特性的前提下提高其热导率成为近期最有可能得到应用的技术,可以直接针对目前运行的大量反应堆进行直

接改进,提高其安全性能,因此得到了全世界核能领域科研工作者的广泛关注。维持包壳材料为锆合金,主要通过改变合金中微量元素的配比来提高合金的强度和抗氧化性能,或者在锆合金包壳管外侧进行涂层以提高包壳的抗氧化性能。

- (2) ATF 芯块及燃料包壳的选择,主要关键词有"氮化铀、碳化铀、SiC"。 反应堆的安全运行是核工业发展的重要保障,因此如何提高反应堆的安全性一直 是核电科研人员追求的目标之一,而对于目前已经运行的反应堆来说,通过改变 反应堆的设计与结构来实现安全性的显著提高是很困难的。因此,设计一种新型 的 ATF 能够在极端事故条件下(如反应堆回路出现破口失去冷却剂)依然能够提 供足够稳定的安全性是一件非常有意义的事情。在对 ATF 进行概念设计的时候需 要考虑两个方面,一方面是从燃料芯块的角度进行考虑,使得芯块的设计能够提 高其固有安全性。而另一方面,也需要从燃料包壳的角度出发,使得包壳能够满 足与芯块相匹配的一些要求。
- (3) ATF 表面化学行为的研究,主要关键词是"XPS(X射线光电子能谱)、 SEM 扫描电镜、微观结构、氧化"。目前核燃料领域的科研人员提出许多相比于 传统的 UO₂ 燃料具有高的铀密度和良好的导热性等优点的极具潜力的下一代核 燃料候选。但目前对这些核燃料的氧化机理的研究仍有待深入开展,因此部分学 者使用 SEM 表征了样品的表面形貌和结构,通过原位 XPS 分析研究了核燃料的 表面氧化行为。

4.4.3 反应堆的安全性研究

从图 6 可以看到,"轻水堆、压水堆、沸水堆、反应堆压力容器、临界热流密度;应力腐蚀开裂、裂纹扩展速率、蒸汽发生器、奥氏体不锈钢、腐蚀、600合金、690合金;失水事故、严重事故、模拟;熔盐堆、传热、超高温气冷反应堆系统、扩散、超临界水"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映了以下热点和前沿技术方向:压力容器的可靠性及完整性;核电结构材料应力腐蚀;失水事故分析;第四代核能技术。轻水堆是目前世界上使用最广泛的堆型,主要被划分为压水堆和沸水堆。压水堆核电厂具有功率密度高、

结构紧凑、安全易控、技术成熟、造价和发电成本相对较低等特点,占轻水堆核电机组总数的3/4,是目前国际上最广泛采用的商用核电厂堆型。

- (1) 压力容器的可靠性及完整性,主要关键词有"反应堆压力容器、临界热流密度"。反应堆压力容器是用于支承和密封反应堆堆芯的高压安全边界。冷却剂按照一定的流量速率通过堆内构件。反应堆容器和顶盖构成了反应堆压力容器,它一般在高温、高压流体冲刷和腐蚀,以及强烈的中子辐照等恶劣条件下运行。因此对反应堆压力容器材料要求极高,即正常、异常、紧急和事故工况下都能保证其可靠性和结构完整性,杜绝发生容器无延性断裂破损和放射性物质泄漏等事故,主要从反应堆压力容器结构选型、材料选择、结构失效模式、结构尺寸初算、分析法设计等方面进行研究。通过压力容器外部冷却实现熔融物堆内滞留已经成为先进非能动压堆核电站的一项重要的严重事故管理措施。在严重事故发生后,来自换料水箱的水会淹没压力容器,利用自然循环带走堆芯衰变热量,防止压力容器失效。这种措施能够成功的关键是压力容器下封头局部热流密度小于对应位置的临界热流密度值。在压力容器外部冷却过程中,压力容器下封头壁面的临界热流密度不仅决定了压力容器外部冷却的最大冷却能力,还会影响压力容器的承压、承重等完整性功能。现在主要通过实验手段对下封头临界热流密度值进行测量,对这种情况下临界热流密度进行机理研究。
- (2)核电结构材料应力腐蚀,主要关键词有"应力腐蚀开裂、裂纹扩展速率、蒸汽发生器、奥氏体不锈钢、腐蚀、600 合金、690 合金"。目前大部分国家民用核电站的一、二回路运行环境为高温高压水,其中一回路还具有放射性,导致在该环境中服役的关键部件材料不可避免地会发生腐蚀或失效。蒸汽发生器传热管历年来的失效原因中,应力腐蚀开裂是其主要的失效形式。应力腐蚀开裂的发生,不仅造成时间长、耗费大的停堆和修复,甚至产生核泄露等核安全问题,因而已成为影响整个核反应堆系统运行经济性和安全性的主要问题之一。通常是合金会发生应力腐蚀开裂,因此以不锈钢和镍基合金应力腐蚀开裂为代表的环境促进开裂成为了是轻水堆构件失效的主要原因。针对应力腐蚀开裂,目前在全世界范围内,研究工作的重点依然主要集中在应力腐蚀开裂的纹扩展速率检测方面,

获得的核电关键材料在高温高压水中纹扩展速率可以作为评价带裂纹部件剩余寿命的关键参数,对核电安全运营起到了重要作用。304、316 奥氏体不锈钢、INCONEL600MA、INCONEL600TT、INCOLOY800Mod、INCONEL690TT 曾经用作压水堆蒸汽发生器传热管的材料。304 和 316 不锈钢曾经在 20 世纪 60 年代用于早期的西方压水堆蒸汽发生器,目前俄罗斯的 SG 仍然采用 304 奥氏体不锈钢来制造,但奥氏体不锈钢对含 Cl⁻的介质晶间腐蚀和应力腐蚀比较敏感。在经过热加工(如焊接)或长期的高温运行,600MA 会出现晶界附近贫 Cr 问题,从而导致晶间应力腐蚀倾向。针对 600 合金晶界贫 Cr 问题,更进一步开发了 690合金,其 Cr 含量被提高到 28%以上,使其耐晶间腐蚀性能大大提高。

- (3) 失水事故分析,主要关键词"失水事故、严重事故、模拟"。冷却剂丧失事故是指反应堆冷却剂系统管道或与系统相连的在第一个隔离阀以内的任意管线的破裂而导致冷却剂丧失的事故,对压水堆也叫失水事故。因为失水事故现象复杂后果严重,在反应堆安全分析中予以特殊重视。失水事故的基准是在三里岛事故前为大破口失水事故,在三里岛事故后,小破口失水事故受到了研究人员的广泛重视。在压水堆热工水力安全分析中,常常要求分析主冷却剂系统的小破口失水事故,从破口处喷放出的流量对于确定事故危害程度及设计事故缓解系统非常重要。
- (4) 第四代核能技术,主要关键词有"熔盐堆、传热、超高温气冷反应堆系统、扩散、超临界水"。第四代核反应堆是目前正在研发的、在反应堆概念和燃料循环方面有重大创新的下一代反应堆,其主要特征是安全可靠性高、废物产生量小、具有更好的经济性、具备多用途功能、可防止核扩散。第四代核反应堆包括3种快堆系统和3种热堆系统。3种热堆系统是超临界水冷堆、超高温气冷堆和熔盐堆;3种快堆系统是带有先进燃料循环的钠冷快堆、铅冷快堆和气冷快堆。根据《第四代核能系统技术路线图更新》(2014版),钠冷快堆、铅冷快堆、超临界水冷堆和超高温反应堆很有可能成为首批被验证的第四代核反应堆技术。

4.4.4 核燃料后处理技术

从图 6 可以看到,"**裂变产物、分离、镧系元素、再处理**; 干式存储; 电精制法、嬗变、高温处理"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映了以下热点和前沿技术方向: **裂变产物的分离**; 乏燃料的存储; 乏燃料的后处理。

乏燃料含有大量大约 95%的 U、1%的 Pu、0.1%的次要锕系元素 MA(Np、 Am 和 Cm)和 3%的长寿命裂变产物(LLFP),具有放射性,如果不加以妥善 处理,会严重影响环境与接触它们的人的健康,因此相关研究人员针对乏燃料展 开了研究,主要分为乏燃料的存储和后处理。(1)**裂变产物的分离,主要关键 词有"裂变产物、分离、镧系元素、再处理"。**乏燃料中占其质量 3%的物质是 235 铀和 239 钚的裂变产物及它们的衰变链的间接产物。这些物质被认为是放射 性废物,但是由于他们可能有多种工业上和材料上的用途,仍然可能需要将它们 进一步分离出来,主要有沉淀法、萃取法、离子交换法。(2)乏燃料的存储, 主要关键词有"干式存储"。从核反应堆中移除的乏核燃料通常会储存在装满水 的乏核燃料池中,需要保存一年甚至更长的时间以使其冷却,同时对其放射性提 供屏蔽。冷却到一定程度的乏核燃料会从乏核燃料池中移出,放入特制的干式贮 存桶或湿式中间贮存设备之中长期储存,以腾出乏核燃料池的空间,是作为乏燃 料最终处置前的替代方案。(3)乏燃料的后处理,主要关键词有"电精制法、 **嬗变、高温处理"。20**世纪40年代以来,出现了多种乏燃料后处理技术,如共 沉淀法、溶剂萃取法和高温化学法等。目前乏燃料主要后处理技术包括水法、干 法两种。水法后处理技术是比较成熟的技术, 当前主要研究集中于尽量减少待处 胃废物总体积和活度: 回收长寿命的放射性核素供特殊的处置或嬗变: 提高防扩 散能力;无盐流程开发和减少循环数等方面。随着全世界大部分核电站卸出的乏 燃料数量已经接近或超过在堆贮存水池容量,再加上先进核燃料循环中,需对高 燃耗的热堆乏燃料、快堆乏燃料或者嬗变系统辐照后靶件中的 U, Pu 和 MA (锕 系元素)进行分离,传统的以 TBP 为萃取剂的水法后处理流程难以满足分离需 要,研究人员将目光转向干法后处理。干法后处理具有耐辐照、低临界风险、放 射性废物少等优点,适宜处理高燃耗、短冷却期乏燃料,有希望满足先进核燃料

循环中对乏燃料或者嬗变靶件的分离需要。因此世界上核能大国(美国、俄罗斯、日本等)都加大了乏燃料的干法后处理技术研究,目前研究比较活跃的干法后处理技术是高温处理技术,如熔盐电精制法、氧化物电沉积法、氟化挥发法等。

五、核燃料领域发展态势——专利视角

5.1 专利数量与趋势分析

5.1.1 专利数量分析

截止到 2020 年 6 月 16 日,智慧芽平台共收录 14940 条核燃料相关专利。图 7 展示了 1939—2019 年度核燃料专利数量年度变化。整体上看,核燃料专利申请的数量呈现稳定发展并波动上升趋势。1939—1965 年,核燃料专利数量较低,年均不足 150 件。1966—1996 年,核燃料专利数量增长较快,从 1966 年的 84 件增长至 1996 年的 377 件。1997—2010 年,核燃料专利数量比较平稳,围绕 300 上下浮动。2011—2019 年,受核电事故的影响,全球核燃料研究进入冷冻期,核燃料专利数量呈下降趋势。2012 年是专利数量最多的一年,达到 625 件。

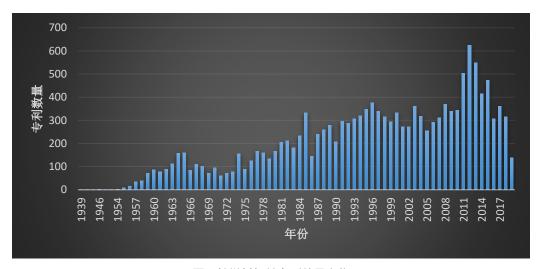


图 7 核燃料相关专利数量变化

5.1.2 专利趋势分析

从核燃料领域专利文献数量随时间的变化趋势(如图 7 所示),本报告将核燃料发展史划分为以下 4 个阶段:

(1) 1939—1965 年,核燃料领域专利申请量和申请人数都较少,领域内研究者不多,研究成果较少,处于技术引入期。20 世纪 40 年代到 50 年代,各国开始勘查铀资源,用于制造核武器,即制造威力巨大的原子弹,但由于当时社会与政治条件的影响和制约,使得许多国家的核武器研究、生产等过程是十分机密的,因此核燃料领域专利文献数量较少。20 世纪 50 年代到 60 年代中期,核燃

料从为军事服务走向和平利用,此时有一小部分科研人员加入核燃料的研究队伍,因此专利文献数量呈缓慢增长趋势。

- (2) 1966—1996年,核燃料领域专利数量快速增长,较多力量进入该技术市场,属于技术成长阶段。20世纪70年代初到90年代末是核电大发展的时期,1973年世界第一次石油危机后,使得各国将核电作为解决能源问题的有力措施,因此在世界范围出现找核燃料高潮,关于核燃料的技术研究速度加快。在澳大利亚、加拿大相继发现了不整合脉型铀矿床,储量大、品位富;在美国、澳大利亚、巴西、非洲和欧洲等地也发现了新的铀矿床,如含铀钠长岩型、砂岩型、花岗质角砾岩型(Cu-U-Au-Ag型)及钙结岩型等。1980年以后,铀矿勘查和生产走向低潮。这一时期铀矿勘查投入减少,但仍取得一些新的成果,如加拿大西加湖矿床,澳大利亚奥林匹克坝矿床(属世界上规模巨大的Cu-U-Au-Ag矿床,铜储量3200万吨,铀120万吨,金1200吨),引起世界地质工作者的瞩目。
- (3)1997—2010年,核燃料专利数量进入缓慢增长阶段,属于技术成长期。 第一大铀工业国苏联解体、美俄高浓铀稀释协议、美国浓缩铀公司从能源部剥离 出来并施行私有化等一系列事件的发生使全球核燃料工业随之步入寒冬。并且受 1979年3月美国发生的三哩岛核电厂事故及1986年4月苏联发生的切尔诺贝利 核电厂事故影响,公众和政府对核电的安全性要求不断提高,导致核电站设计更 加复杂、政府审批时间加长、建造周期加长、建设成本上升,核电竞争性下降, 核燃料专利数量增长缓慢。
- (4)2011 年一2019 年,核燃料专利数量呈下降趋势,但仍属于技术成长期。 2011 年日本福岛核燃料泄露事故发生后,世界有核国家纷纷重新审视本国核发展政策,使得核电发展在一段时期处于停滞状态,核燃料专利文献数量下降。但进入 21 世纪,由于核电安全技术的快速发展、燃烧化石能源导致的严重环境污染和气候变暖现实,对核燃料的研究再次获得重视。

5.2 主要国家演化分析

5.2.1 国家专利数量

图 8 展示了主要的优先权国家专利数量情况,可以发现各个国家在核燃料领域的分布情况。美国(US)作为世界超级核电强国,核燃料专利数量为 3511 件,占全球核燃料专利数量的 23.5%,远超其他国家,居领导地位。德国(DE)、法国(FR)等国作为世界传统核电强国,专利数量较多。其中,德国(DE)的专利数量为 1057 件,占比 7.1%;法国(FR)的专利数量为 789 件,占比为 5.3%。新兴核电强国,日本(JP)的专利数量为 772 件,占比为 5.2%;瑞典(SE)的专利数量为 553 件,占比为 3.7%。而英国(GB)、世界知识产权组织(WO)、欧洲专利局(EP)、韩国(KR)等 4 个组织、地区或国家的专利数分别为 364 件、212 件、167 件、160 件。

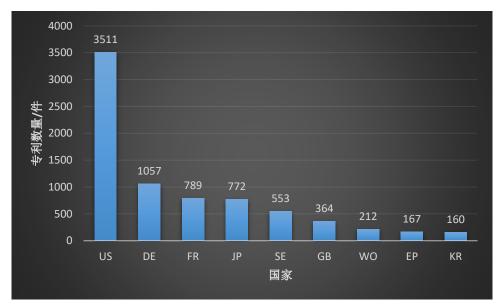


图 8 国家数量分布图—专利

5.2.2 主要国家专利趋势

图 9 为主要国家核燃料专利数量年度趋势变化。其中,1954 年—1965 年验证示范阶段,第一代核电站在美苏等强国陆续投建。1966 年—1985 年为高速发展阶段,更加经济安全的第二代核电站成为欧美工业化进程中能源的重要来源,特别是美国轻水堆核电的经济性得到验证之后,形成核电厂建设的一个高潮,联邦德国、日本、巴西、法国等国也加入了发展核电的行列;1985 年—2012 年为滞缓发展阶段,石油危机后,发达国家经济减速导致电力需求下降,加上受1979年美国三里岛核事故和1986 年前苏联切尔诺贝利核泄漏的影响,公众对核电站

抵制情绪增加,全球核电发展速度明显放缓。虽然全球核燃料发展技术进入一个小低谷,但美国和日本的专利数量还在继续并保持较高规模。2012—2019年,本世纪初的核能复兴进行十余年后,各国的核燃料发展似乎又要从春天步入寒冬。2011年日本福岛核泄漏事故迫使各国重新评估核电事故影响,调整核电发展规划,提高核反应堆的安全性,改进和创新核燃料技术。但这并未从根本上改变全球发展核电的态势,只是对核电机组的设计和运行安全提出了更加严格的要求。核燃料作为一种经济、稳定、可持续的能源,其复苏发展的趋势并没有改变。

可以看出,除堆型研发外,核燃料研发是各国在核能领域竞争力的重要体现,世界核燃料行业正经历着"地壳运动"。美国作为超级核电强国,在其专利以及知识产权保护制度相对完善成熟的环境下,核燃料技术的专利数量除在 1960 年和 2005 年暂居第二名,2002 年暂居第三名外,其余时间都以绝对优势居于前茅。德国(DE)、法国(FR)、瑞士(SE)等国作为老牌的核电技术强国,专利数量历来较多,排名较前,但是处于纷纷衰落、发展停滞之际。日本(JP)、韩国(KR)等国家迅速发展,瞄准新兴核电强国的位置。其中,日本核燃料专利数量排名从 1963 年的第十名攀升至 2002 年的第一名,并稳定在前四名。韩国于1996 年首次出现在前十名内,并于 2014 年攀升至第二名。除这些传统大国外,出于对生态和世界能源供应等的考虑,越来越多的国家正考虑或启动建造核电站计划。中国(CN)、俄罗斯(RU)等发展中大国也都积极增加核电,加快对核燃料的研究速度,核燃料专利数量虽较少但排名呈上升趋势。其中,中国于 2011 年首次挤进全球核燃料专利数量前十,保持在第五名左右。俄罗斯于 1999 年首次挤进全球核燃料专利数量前十,保持在第五名左右。俄罗斯于 1999 年首次挤进全球核燃料专利数量前十,保持在第五名左右。俄罗斯于 1999 年首次挤进全球核燃料专利数量前十,

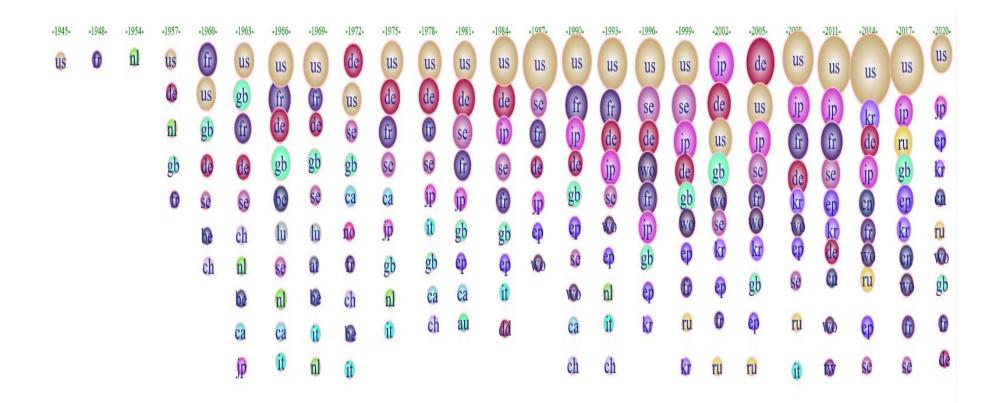


图 9 国家演化趋势图—专利

5.2.3 重点国家的技术发展

本报告选取几个典型国家的核燃料发展情况进行总结,如下:

(1) 超级核电强国—美国

美国是世界核电发展先驱,也是核电发展超级大国。20 世纪 40 到 60 年代 中期,美国核电开始发展,核燃料专利数量增加,但此时年均专利量仍不到 50 件。1942年12月,美国在芝加哥大学建成世界上第一座核反应堆,证明了实现 受控核裂变链式反应的可能性。但当时正处于第二次世界大战期间,核能主要为 军用服务。1950年,在联邦政府补贴的推动下,美国拥有数量巨大的铀矿业,核 燃料研究专利量继续增长。20 世纪 70 年代到 90 年代末,美国核电站数量呈井 喷式增长, 带动了核燃料产业快速发展, 核燃料专利量围绕 50 件上下波动。1970 年以来,美国核燃料峰值产量是 1980 年的 16800 吨铀,当时有 250 多个矿在开 采。1979年,美国三里岛核泄漏事件发生以来,美国有近30年时间未批准建造 新的核电站,导致核燃料产业发展滞缓。1979年至1984年,核燃料矿井个数猛 降至 50 个,产量为 5700 吨铀,然后到 2003 年都是平稳下降,同时美国绝大部 分的铀需求都通过进口解决。1986年,切尔诺贝利核事故发生,进一步阻碍了美 国核燃料产业的发展,核燃料研究力度下降,核燃料专利量骤减。进入21世纪, 面对电力需求增长、保障能源安全核应对气候变化的战略需求以及核技术进步的 影响,美国发展核电的兴趣和势头增加,核电重新成为美国能源结构的一个重要 选项,核燃料产业开始复苏,核燃料专利量年均百件,并于2013年达到历史最 **高点为 241 件。**2010 年 4 月,美国能源部向国会提交了《核能研究发展路线图》, 表示在实现干净、可担负及利用国内能源资源等能源目标方面,核能将继续成为 关键组成部分,将开发可持续核燃料循环定位为一项发展目标。2011 年日本福 岛事故发生后,美国核电发展放缓速度,核燃料专利量大幅度下降。但美国政府 态度明确仍坚守"核电复兴"能源战略,新的核电建设仍按原计划进行,同时将 尽一切努力确保核设施的安全与可靠。2016年6月,美国能源部为ATF的研发 制定了可行性研究(2012-2015)、开发与资格认证(2016-2021)和商用(2022)

3个阶段。第一阶段的工作是试水,包括建模、制造小比例设备原型、辐照测试、蒸汽反应测试、机械性能测试、熔炉测试等等,具体就是用个实验室级规模的小组件试水,然后评估它的经济性、安全性,及对运行动态、核燃料循环和环境等方面的影响。第二阶段主要是挑选燃料棒的材料,再对工业级规模的试验反应堆进行瞬态辐射测试、铅组件测试等一系列复杂测试,并且拿下相应的"学历"和资质。第三阶段自然就是要拿出万事俱备的成品在正规商用核电站服役。2020年4月23日,美国能源部发布《重塑美国核能竞争优势:确保美国国家安全战略》报告,认为美国在核电领域的竞争劣势已威胁其国家安全利益。为重塑其核能领导地位,美国能源部发布的报告从核燃料供应链安全、先进技术研发、核技术出口以及政府职能等方面提出了具体措施。美国的核燃料专利量年度变化趋势如图10。

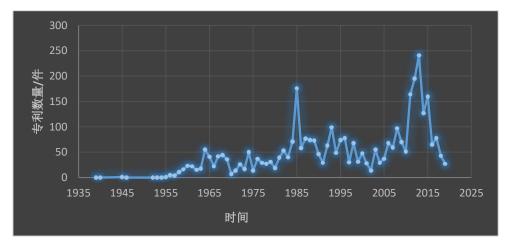


图 10 美国专利数量变化趋势

(2) 传统核电强国—德国

20 世纪 50 年代中期到 80 年代中期,德国作为老牌的工业国家便开始从事核电研究,并建造了多座用于实验的反应堆,加快了核燃料的研究速度,专利量增长较快。1969 年,德国建成了第一座商用核电站。1974 年,中东石油危机爆发,德国政府大力支持发展核电,德国核工业进入了一个快速发展时期。20 世纪80 年代中期至今,德国走上了反核、延核、弃核之路,核燃料专利量缓慢上升后又大幅度下降直至几乎停止。1986 年,切尔诺贝利核电事故发生,几乎所有的欧洲国家都受到了影响,这场事故对德国影响尤其深远,民众觉得核能不安全,

一旦出事故风险太大。当时大多数人还没想到要彻底放弃核电,但所有人对核电风险的意识都升级了,要不要核电的讨论从此继续下去,此时核燃料专利量继续上升。2002年,当时的德国政府通过一项"核电逐步退出"的法令,确定到2022年左右关闭德国境内所有核电站,核燃料专利量在2003年达到最高后骤降。但迫于能源公司的压力和经济形势考虑,默克尔领导的中右联合政府于2010年决定退出原定的"核电逐步退出"计划,推出了一项着眼2050年的能源新方案,其中包括延长核电站运营期限。新方案将德国关闭最后一座核电站的时间由2022年前后推迟到大约2035年,此时核燃料专利量略微上升。但这一能源政策的反向调整在德国引起极大争议,绿色组织和反核人士游行抗议不断。2011年,德国执政联盟在经过漫长磋商后就关闭国内核电站的最后期限达成一致。德国的17座核电站将分批关闭,预计在2022年底之前德国国内所有核电站都将关闭。德国成为首个彻底放弃核电这一能源方式的经济大国。因此,德国近五年的专利数量几乎为0。德国的核燃料专利量年度变化趋势如图11。

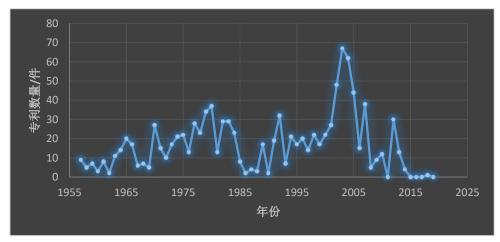


图 11 德国专利数量变化趋势

(3) 新兴核电强国—日本

20 世纪 70 年代到 21 世纪初,日本核燃料产业迅猛发展,核燃料研究速度加快,力度加强,核燃料专利量飞速增长。同美、苏、英、法相比,日本在发展核电方面是个后起国家。由于日本能源资源缺乏,工业发展较快,能源的持续稳定供应是日本政府最关注的问题之一。日本政府认为由于核燃料便于储备,核电可视作"半国产的能源",有助于减少石油的进口,对实现能源多样化、克服脆

弱的能源供应结构有重要作用。因此日本政府一贯积极推进发展核电,70 年代 石油危机之后也并未因世界核电发展进入低潮而动摇。20 世纪 90 年代初伴随其 国内核电站大批量的建设,通过引入技术、消化技术、发展技术三个阶段,比如 日本的株式会社东芝高价控股美国传统的核电制造商——美国西屋电气等,其进 一步促进了日本在核电技术方面的发展,俨然成为当下核电技术的新兴力量。受 2004 年日本关西电力公司的反应炉涡轮式蒸汽外泄和 2005 年美国要日本无限期 搁置在六所村建造乏燃料再处理厂的影响,日本核燃料专利量短暂下降后继续快 速上升。2011 年,福岛核危机不仅对日本核电产业发展、电力结构转型后进口燃 料成本及发电成本等诸多方面带来负面影响,也对日本能源安全框架中的"核电 立国"战略的思想、目标、步骤、方针及相关制度设计产生了巨大冲击。特别是 日本围绕核电站存续问题展开的激烈的全民大争论以及"脱核派"对核电的安全 神话、清洁减排、成本低下等方面的质疑无疑顿挫了核电产业的发展。日本迎来 了两年的零"核电"时代,此时专利量呈下降趋势。日本的核燃料专利量年度变 化趋势如图 12。

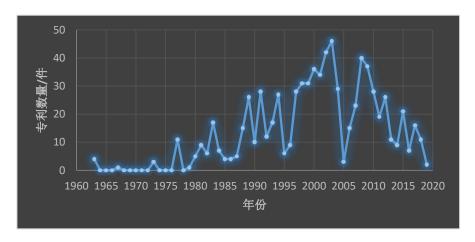


图 12 日本专利数量变化趋势

(4) 核电大国—中国

中国的核燃料产业起步于 20 世纪 50 年代。经过 70 多年的发展,核燃料实现了发展转型,突破了关键技术,形成了新的产业体系,得到了快速发展。20 世纪 70 年代末,国家对国民经济特别是国防工业进行了大幅调整。核燃料产业作为我国国防工业的重要组成部分,调整幅度非常大。到 20 世纪 80 年代中后期,

核燃料系统的军工任务锐减,一些重要核设施关停,一些在建项目下马,全系统 经历了令人难以想象的阵痛。从 20 世纪 90 年代后期配套核电发展以来,核燃料 产业走出了困境,实现了快速发展,实现了从纯为核军工服务到军民融合式发展 的转型,逐步建立了更加先进的产业体系,巩固了在国家国防和经济发展中的重 要战略地位,核燃料专利量实现了快速增长。日本福岛核事故后,被国际核能界 普遍寄予厚望的核电大国一中国,核电的安全高效发展也遇到了挫折和挑战,暂 停审批核电项目包括开展前期工作的项目,因此核燃料的研究也处于停滞状态。 **2014 年是核电重启呼声**最大的一年,不仅首次写入政府工作报告,而且多次得 到高层表态和推动,但受制于技术选型等问题,直至年底也未有新项目启动。但 随着技术的不断进步,加之我国能源危机逐渐加重,政府逐渐加强了对核燃料产 业的政策扶持力度,2015年核燃料专利量达到最高16件。2016年3月,国家发 展和改革委员会、国家能源局联合发布《能源技术革命创新行动计划 (2016— 2030年)》,明确了ATF研发任务,设立了重大科研专项,由中广核牵头,联 合国家电投、中科院、中国工程物理研究院等业内主要企事业单位,以及清华大 学、西安交通大学等高校,组织起一支国家级研发团队和产业联盟,拟在10-15 年内为该项目投入企业自有资金超过 20 亿元人民币,确保项目成功。2017 年 2 月,国防科工局发布《"十三五"核工业发展规划》,表明"十三五"期间,我 国将加强乏燃料后处理技术研究,补齐核燃料循环后端短板,进一步优化产能布 局,构建合理核燃料保障供应体系;积极参与核燃料产业国际市场分工,推进核 安保中心、地区核燃料中心等项目建设、积极打造我国地区核能力服务中心等。 2017年3月,国务院正式批复《核安全与放射性污染防治"十三五"规划及2025 远景目标》,确立了我国采用乏燃料后处理的闭式核燃料循环政策。中国的核燃 料专利量年度变化趋势如图 13。

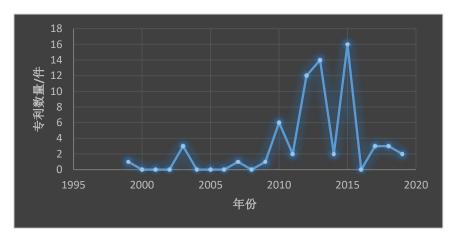


图 13 中国专利数量变化趋势

5.3 主要机构演化分析

5.3.1 机构专利数量

表 4 为核燃料专利量较多的主要机构的申请情况。据表可知,排序前 5 位的 机构分别为美国西屋电气公司、株式会社东芝、日立、美国通用电气公司、法玛通公司,专利量分别达到 1420 件、1006 件、737 件、644 件、441 件。其中,美国核燃料专利申请量最多的机构是西屋电气公司,为 1420 件,远超其他公司;其次是通用电气公司,专利申请量为 644 件。日本核燃料专利申请量较多的机构为株式会社东芝,为 1006 件;其次是日立公司,申请量为 737 件。法国核燃料专利申请量最多的机构为法玛通公司,为 441 件;其次是法国原子能委员会,申请量为 362。德国专利申请量最多的机构是阿海珐公司,为 414 件;其次是西门子公司,申请量为 302。中国核燃料专利申请量最多的机构是中国广核集团有限公司,为 230 件;其次是中国核动力研究设计院,申请量为 223 件。

表 4 机构专利申请数量表

机构所属国家	机构英文名称	机构中文名称	专利数量/件
	Westinghouse Electric Corporation	美国西屋电气公司	1420
美国 (2746)	General Electric Company	美国通用电气公司	644
	Babcock & Wilcox Company	巴布科克-威尔科克斯公司	257
	GE-Hitachi	通用日立核能公司	186
	Holtec International	霍尔台克国际公司	134
	United States Atomic Energy	美国原子能委员会	105

	Commission		
	Toshiba Kk	株式会社东芝	1006
	Hitachi	日立	737
日本	Hitachi-GE	日立通用核能公司	341
(2889)	Mitsubishi	三菱重工	411
	Nuclear Fuel Industries	核燃料工业公司	282
	Japan Nuclear Cycle Develop Institute	日本核循环开发研究所	112
德国	Areva	阿海珐	414
(884)	Siemens AG	西门子股份公司	302
	Kraftwerk Union AG	[德国]电站联盟公司	168
	China General Nuclear Power Group	中国广核集团有限公司	230
	Nuclear Power Institute of China	中国核动力研究设计院	223
中国 (859) Sh R	China General Nuclear Power Company, Limited	中国广核电力股份有限公司	115
	Shanghai Nuclear Engeering Research & Design Institute Co,Ltd	上海核工程研究设计院	91
	China Nuclear Power Engineering Company, Limited.	中国核电工程有限公司	91
) 사 I	Framatome	法玛通公司	441
法国 (803)	Commissariat a l'Energie Atomique	法国原子能委员会	362
韩国 (422)	Korea Atomic Energy Research Institute	韩国原子能研究院	287
Ī	한국수력원자력 주식회사	韩国水力原子能公司	135
英国 (289)	United Kingdom Atomic Energy Authority	英国原子能管理局	185
	British Nuclear Fuel PLC	英国核燃料公司	104
瑞士(173)	ASEA	阿西亚原子能公司	173

5.3.2 主要机构专利趋势

图 14 为主要机构的历年申请趋势。总体而言,世界核电这一巨大的"蛋糕" 引起各大核电技术公司的激烈争夺,并呈现出巨头衰落,新人崛起的态势,核电 市场呈现出"强弱易位"的新格局。美国西屋电气公司、美国通用电气公司、日立公司、株式会社东芝、通用电气/日立、阿海珐、法玛通等公司纷纷亮相,基本

体现了目前世界核电市场"群雄逐鹿"的竞争态势。但从新兴核电市场的竞争情况来看,作为传统核电巨头的西屋公司、通用电气公司、阿海珐公司等强势布局,而通用电气/日立公司、株式会社东芝、韩国原子能研究院等表现不俗,中国的核电技术公司更是异军突起,在激烈争夺中近几年遥遥领先于其他核电技术公司。

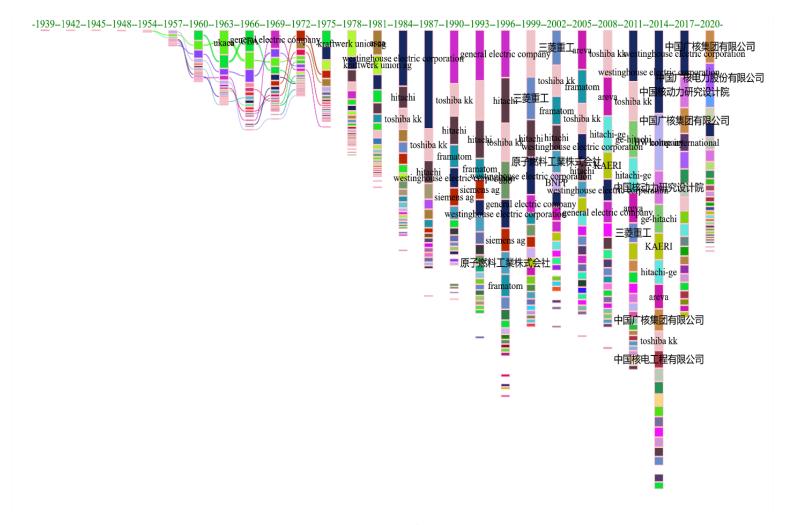


图 14 机构演化趋势图—专利

5.3.3 重点机构的技术发展

(1) 核燃料巨头机构强势布局——以美国西屋电气公司和德国阿海珐公司为例

西屋电气公司是压水堆技术的先行者,在 1960—1970 年代,西屋公司的压 水堆及其燃料组件技术引领全世界,曾占领世界一半以上的核电市场。进入21 世纪, 西屋公司主推的 AP1000 机组以非能动安全、模块化和简化的设计理念而 著称。在世界各国的安全评审中, AP1000 取得了不俗业绩, 先后获得欧盟、美 国、英国和中国核安全监管部门的认可。当前,全球 AP1000 的在建机组有 8 台, 分别为中国三门和海阳的 1、2 号机组, 美国的 Vogtle 的 3、4 号机组和 VC. Summer 的 2、3 号机组。尽管西屋公司 2006 年在中国核电技术路线招标中获胜, 但近年来在新兴的核电市场竞争中,AP1000 几乎一无所获,显得后劲不足。由 于一直以来宣传的 AP1000 经济性并没有在实际建设中得到体现, 其技术成熟性 和先进性也遭到质疑。西屋公司在立陶宛、白俄罗斯和英国的多个项目竞争中纷 纷落败,AP1000 技术甚至未能成为芬兰和约旦的核电项目候选对象,发展前景 堪忧。2011年1月,西屋公司与CNNFC签署合同,将生产AP1000燃料组件的 设计、制造和设备安装转让。2014年7月,西屋公司的乏燃料池远程监测系统 被美国核电站首次采用,该系统采用主要和后备两套固定安装的导波雷达传感器。 每一套测量装置由一个悬浮在乏燃料池中的活动不锈钢缆探头,以及探头尖端的 接触燃料架的探针组成。传感器的电子器件被安置在相邻的房间以保护仪器,防 止因乏燃料池中的水减少而产生的辐射和高温影响设备。传感器的电子模块与带 有备用蓄电池的不间断电源和一个发射器相连,发射器可以将乏燃料池的水位读 数发送至远程接收端。每一个燃料池都将安装两套这样的独立系统,一套作为主 系统,另一套作为备用系统。2017 年 6 月,西屋电气公司推出 ATF 解决方案一 一EnCore 燃料,旨在帮助西屋公司的核燃料客户提高基于设计变更的燃料安全 性,提供更高的铀使用率和高达数亿万美元的经济效益。EnCore 燃料的产品交 付分成两个阶段。第一阶段的 EnCore 燃料产品由带涂层的包壳管内填充硅化铀

芯块组成。这一设计使得它不同于其他 ATF 解决方案, 因为其燃料芯块的密度 更高,导热性更高。在正常运行期间(250°C-350°C),涂层包壳的抗氧化和降 低吸氢的优点可延长包层寿命,增强耐磨性和增加裕量。带涂层的包壳管在冷却 剂失水事故(LOCA),反应性引发的事故(RIA)和超设计基准事故的工况下, 还可延长燃料暴露于高温蒸汽和空气中(1300°C—1400°C)的时间。EnCore 燃 料第二阶段的特点是碳化硅(SiC)包壳管。该设计在发生超设计基准事故的工 况下有效地提高安全性,例如在极高的熔点(2800°C或更高)和最小限度地与 水发生反应的情况下,会最小限度地释放热量和氢气。2019 年 1 月, 西屋电气 公司已从美国能源部获得 9360 万美元的资金, 用于开发 EnCore 耐事故燃料计 划。该公司表示, 将与通用原子公司及国家实验室和大学合作伙伴共同利用这笔 资金,在 2022 年之前加快将碳化硅覆层铅测试棒放入美国商用反应堆。这笔资 金还将支持首批安装装有 EnCore 燃料铅测试棒的燃料组件,这些燃料组件将于 2019 年初放入拜伦 2 号反应堆。**2019 年 2 月**,宣布名为 Triton11 的新一代沸水 堆燃料组件即将在商业核电机组中接受测试,目的是大大降低燃料循环成本,提 高燃料整体可靠性。Triton11燃料组件有3个中央水通道,称为"水棒",燃料 优化后在 12 个月和 24 个月的循环周期内提高了效率,也适用于功率更大的堆 芯和更高的燃耗。该燃料组件包括91根全尺寸燃料棒、10根三分之一长的燃料 棒和 8 根三分之二长的燃料棒,以及 3 根水棒。2019 年 9 月,美国西屋电气公 司和爱克斯龙电力公司首次在美国拜伦核电站 2 号机组安装完成了西屋电气公 司的 EnCore 耐事故核燃料。此次先进核燃料的安装是在核电站计划内的春季换 料停堆期间进行的。这标志着商用反应堆首次安装 EnCore 核燃料棒组件。两个 铅测试组件包含增强抗氧化和耐腐蚀能力的镀铬锆合金包壳、改进燃料经济性的 高密度 ADOPT™芯块,以及硅化铀芯块。

阿海珐集团是一家法国核工业公司,作为全球 500 强企业,AREVA 在核能源建设领域全球首屈一指。其主要业务是包括核燃料采矿、核燃料提炼和销售、核反应堆制造、废料回收(拥有回收核废料再加工销售的核心技术)。阿海珐 ATF 阵营中主要包括 ATRIUMTM11 先进沸水堆燃料,以及 GAIA 和 HTPTM 压水堆

燃料。据了解,作为阿海珐最先进的沸水堆燃料,ATRIUMTM11 通过提高铀的使用效率,满足高能量燃料循环的需求,提高成本收益和更高的运行灵活性,尤其适用于已实施功率提升和优化容量因子运营策略的核电站。截止2018年8月,全球已有 5 座反应堆采用 ATRIUMTM11 燃料;GAIA 压水堆燃料设计中包括了能够提高燃料组件结构稳定性的 Q12 锆合金结构材料,使燃料具备更高的热性能和改良的机械性能,目前全球有两座反应堆采用该燃料;HTPTM 燃料组件将推进核电站在 2030 年前向更长的燃料循环过渡,目前全球约有 20000 套 HTPTM 燃料组件装入了 50 座反应堆,近一半组件在美国。

(2) 日本核燃料机构形成战略联盟,表现不俗——日立公司为例

2006年,美国通用电气公司和日本日立公司成立通用电气/日立公司,融合 了两家公司在沸水堆的技术优势,主推 ABWR 和 ESBWR 两种机型,其主要特 点是安全、简化和经济。ABWR 和 ESBWR 均是基于二代 BWR 技术改进的革新 型三代技术。世界范围内已有 4 台 ABWR 机组在日本运行,还有 4 台 ABWR 反 应堆在分别日本和台湾建设。在新兴核电市场的竞争中,通用电气/日立公司表 现不俗。2012 年 12 月, 在英国 Horion 出售招标中, ABWR 再次击败 AP1000, 成功获得在英国建设的机会。ESBWR 尽管还没有建设先例,但其在未来新建项 目中已抢得先机。2013年5月,美国 Dominion 电力公司最终选定 ESBWR 作为 其 North Anna 核电站 3 号机组的堆型, 预计 2019 年将实现 FCD。 **2015 年 3 月**, 通用一日立核能公司公布了一个远程操作工具,使核技术人员能够更快速和安全 地完成反应堆底部的任务。该工具显示出在解除控制棒与相关装置偶联时可以减 少辐射剂量多达 60%。2017 年 8 月,通用电气一日立和先进反应堆概念公司 (ARC) 宣布双方将合作推进 ARC-100 先进小堆开发和取证的下一步工作。 ARC-100 是一种钠冷快堆。通过双方签署的一份开发协议,通用电气一日立准备 将其与 Prism (一种钠冷快堆)设计相关的知识产权授予先进反应堆概念公司, 同意该公司接触与质量、安全文化、培训、工艺流程、程序和工具相关的核基础 设施项目,并通过协议,以提供工程和设计专门知识的形式,为 ARC-100 的开 发作出实物贡献。**2018 年 2 月,**通用电气—日立核能公司(GEH)、全球核燃 料公司(GNF)和美国霍尔台克国际公司(Holtec International)签署谅解备忘录, 未来将合作推进霍尔台克 SMR-160 小堆的商业化。在合作初期,将共同在全球 核燃料公司的支持下开展核燃料研发,并推进通用电气—日立设计的控制棒驱动 机构的研究。未来,将在其他领域开展合作。2018年10月,日立制作所和美国 通用电气公司(GE)联手研发新型核电站。该核电站类型为美国等国家作为下 一代核反应堆进行研发的小型模块化核反应堆(SMR),将争取在 2030 年至 2039 年间投入使用。2020年5月,总部位于威明顿的通用电气一日立核能公司开发 的先进核反应堆技术正被美国能源部用于价值数百万美元的拨款项目。2020 年 7月,通用电气—日立核能美洲公司已获得《商用发电简化沸水堆》专利。该专 利指出,核反应堆包括的系统越少,发生故障的可能性越小。专利中的核反应堆 是沸水堆,有形成自然循环的高度,可以在0-350兆瓦电力范围内灵活输出能量。 在反应堆外面有一个不透水的高压安全壳。安全壳内没有冷却剂池、散热器、有 源泵或其他应急流体源。安全壳外有应急冷却系统,如隔离冷凝器系统。与反应 堆压力容器成一体的隔离阀通过安全壳向反应堆提供工作流体和应急流体。安全 壳可以完全建在地下,并做防地震处理,以最大程度减少占地面积和地面可以成 为受攻击目标的面积。

(3)中国核燃料机构崭露头角,成为合作热点——以中国广核集团有限公司为例

中国机构的核燃料专利量后来居上,主要包括中国广核集团有限公司、中国广核电力股份有限公司、中国核动力研究设计院、中广核研究院有限公司、上海核工程研究设计院、大亚湾核电运营管理有限责任公司等机构。2009 年 8 月,中国广核集团有限公司为确保中国核燃料供应安全,成立了"核燃料研发中心",启动了自主品牌核燃料元件研发工作,之后,该中心获国家能源局"国家能源先进核燃料元件研发(实验)中心"授牌,并承担了国家核能开发项目"压水堆燃料元件设计制造技术研究(第二阶段)"的研制。2014 年 4 月,中国广核集团有限公司在核燃料组件自主研发方面取得重大进展,具有自主品牌的 8 英尺、12 英尺、14 英尺核燃料组件,高性能核级锆合金,核燃料性能分析软件包等产品,已

由中国广核集团有限公司(简称"中广核")研发完成。2015 年,中国广核集团有限公司牵头了"事故容错燃料关键技术研究"——国家科技重大专项,中广核研究院有限公司 ATF 燃料研究所集中开展了陶瓷基弥散燃料、耐事故包壳材料等方面的研究。2015 年 11 月,中广核联合江苏核工业格林水处理有限责任公司成功研制出新型"整体骨架+模块化贮存套筒"式乏燃料贮存格架,在有效降低成本的同时,还有效避免了目前中国核电项目普遍采用高密集乏燃料贮存格架所出现的格架变形等问题。2016 年,上海核工程研究设计院与中核北方核燃料元件有限公司合作共建的"核燃料材料联合实验室"通过在普通 UO2 燃料芯块中添加具有高热导率的 BeO 第二相材料,制备出具有高热导的新型 UO2-BeO 燃料芯块材料。2017 年 12 月,中国广核集团有限公司事故容错燃料(ATF)候选材料正式进入研究堆进行中子辐照测试,事故容错燃料从概念、材料研究开始转向工程示范研究。本次入堆辐照是事故容错燃料研发的关键步骤,将通过中子辐照优选出事故容错燃料包壳与芯块的候选材料,获取大量宝贵的堆内性能数据,为后续研制以及入堆安全审查等提供强有力的支撑。

5.4 研究热点分析

技术主题图通过类似于地理信息系统中的等高线图实现对科技文本数据的可视化,通过颜色的深浅区别数据的多少以及数据之间的关系。技术主题图是进行技术主题布局分析的典型文本挖掘方法之一。图中每个点表示一个技术热点词,词与词之间的平面距离与词之间的关系强度成正比;颜色深浅度形成等高线,表示该词词频数量多少与密集程度;等高线中心山峰区域表示一个技术主题聚类。可以看出,图 15 展示了全球核燃料专利技术主要研究热点大体围绕以下五个方面进行: (1) 对不同类型核燃料的研究,涉及到的主题词有燃料包壳、燃料芯块、氧化铀、二氧化铀、碳化铀、一碳化铀、氮化铀、钍燃料、锆合金、裂变产物、碳化硅、不锈钢、热解碳涂层。(2) 对不同类型反应堆核燃料的研究,涉及到的主题词有轻水堆、水堆、压水堆、沸水堆、熔盐堆、液态核燃料、熔盐核燃料。(3) 对核电站的工作设备和运行原理的研究,涉及到的主题词有蒸汽发生器、安全壳、一次围阻体、堆芯应急冷却系统、反应堆冷却剂、一次冷却剂、

一回路、冷却剂流量、二次冷却剂、二回路。 (4) 对核反应堆的组成结构与运行原理的研究,涉及到的关键词有反应堆堆芯、堆芯吊篮、堆芯围桶、燃料棒、控制棒板、控制组件、控制棒驱动、燃料棒、中子通量、中子吸收剂、中子探测器。 (5) 对乏燃料的后处理的研究,涉及到的主题词有乏燃料核燃料池、乏燃料池、水池、乏燃料棒、贮存格架、贮存桶、燃料储存格架。

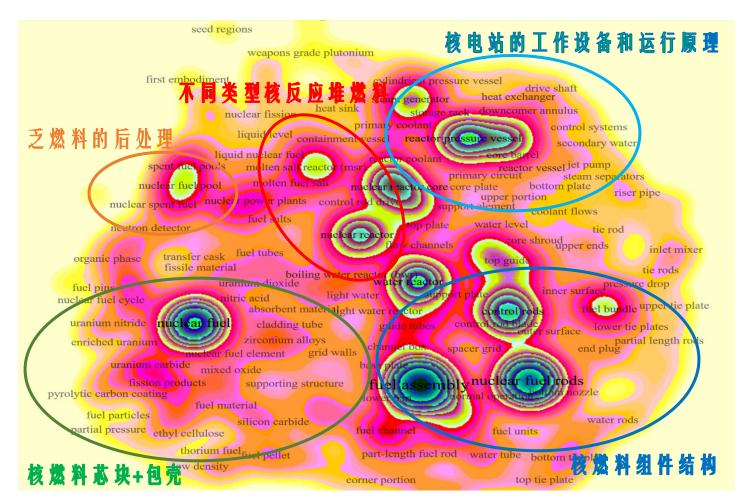


图 15 主题分布图—专利

5.4.1 核燃料组件结构

由图 15 可知,"燃料元件、导向管、控制棒导向管、定位格架、燃料元件 包壳管、燃料棒束、燃料棒、燃料通道"等主题词成为该技术领域的研究热点方 向之一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向:燃料组件的制造与组装 的研究。

核燃料组件指组装在一起的整组燃料元件。它由若干燃料元件、上管座、下 管座、控制棒导向管和定位格架等部件组成。随着美国用户要求文件(URD)和 欧洲用户要求文件(EUR)对第二代改进型和第三代核电厂的经济性、可靠性和 安全性提出更高要求,燃料组件也朝着提高燃耗、延长换料周期、提高安全裕度 和可靠性等方向持续改进和发展。燃料组件设计技术的发展与材料技术的发展紧 密相关、相互影响。先进的设计可以扬长避短、有利于充分发挥材料的特性,良 好的材料性能可以解放设计思路、有利于设计目标的顺利实现。开发先进的核燃 料组件及其相关材料是保证核电安全高效发展的最关键问题。例如,以美国、法 国、俄罗斯等为主的核电先进国家针对大型商用压水堆形成以 ROBUST、AFA 3G、TVS-2M 等为主的商用燃料组件品牌,设计目标燃耗已普遍提升到约 60GWd/tU, 换料周期达到 18 个月或更长, 燃料可靠性要求不断提高。中国目前 的核电先进燃料组件技术,是以法国引进的 AFA(Advanced Fuel Assembly)系 列燃料和 AP1000 燃料为主,虽然基本实现了国产化,但燃料组件所用主要材料, 特别是锆合金材料仍然依赖进口。此外中国正在研发的燃料组件型号还有: CF 系列燃料组件、STEP系列燃料组件、CAP1400燃料组件。其中,CF系列燃料组 件的研发较快, CF2 燃料组件将用于 K2/K3 首炉: CF3 燃料组件采用了自主研 发的 N36 锆合金包壳材料,最大燃耗 52GWd/tU, CF3 研制完成后将用于 K2/K3 的换料。

5.4.2 核燃料芯块

由图 15 可知, "氧化铀、二氧化铀、碳化铀、一碳化铀、氮化铀; 钍燃料" 等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和 前沿技术方向: 传统核燃料芯块的改进以及 ATF 燃料芯块的开发; 钍基核燃料的开发。

- (1) 对传统核燃料芯块的改进以及 ATF 燃料芯块的开发, 相关主题词包括 **"氧化铀、二氧化铀、碳化铀、一碳化铀、氮化铀"等。**作为反应堆能量的来源 和反应堆的第一道安全屏障,燃料元件的核心组成部分之一——燃料芯体的辐照 稳定性及导热性能将直接影响事故条件下燃料元件的行为,进而决定反应堆的安 全。目前广泛使用的 UO2 燃料芯块由于具有熔点高、热稳定性和化学稳定性好、 辐照肿胀率低等优点,在过去一直处于集中研究和优化改进之中。但是,UO2热 导率相对较低,且还会随着温度和燃耗的增加而进一步降低,这将带来一系列的 风险。一方面,在正常运行工况下,热导率低将严重阻碍由燃料芯块向包壳和冷 却剂的热传递过程,从而导致燃料芯块中心温度升高、温度梯度增大,并随之引 起晶粒长大、燃料芯块开裂和裂变产物的迁移,终导致裂变气体释放:另一方面, 在事故条件下上述现象将在温度升高的情况下更为严重:燃料芯块温度升高伴随 着热导率进一步降低,将显著增大燃料元件熔毁和裂变气体释放的风险。因此, 理论上从结构和成份出发,开发具有更好热力学性能和裂变产物保持能力的新型 燃料芯块,就能通过缓解或改变事故进程,从而达到从根源上缓解燃料元件破损 后放射性释放后果的目的。目前 ATF 燃料芯块的研究方向主要包括 UO: 基复合 燃料(含 UN、 U_3Si_2 等高热导率掺杂相的 UO_2 燃料)、高铀密度燃料(UN、 U_3Si_2 、 UN/U₃Si₂、UN/U₃Si₅、微封装燃料等。
- (2)对钍基核燃料的开发,相关主题词包括"钍燃料"。目前核电工业使用的燃料基本都是铀基核燃料,由于能源需求的高速增长,对核燃料需求越来越大,要解决燃料短缺的问题,降低对铀资源的需求,一方面可以走快堆模式,提高铀基核燃料的利用率,但是也会带来潜在的核扩散问题;另一方面可开发利用储量大于铀基核燃料的钍基核燃料。使用钍基核燃料与使用铀基核燃料技术上有相似之处,但不完全相同,具有一些独特的优势与挑战,钍基核燃料使用的技术关键是开发合适的反应堆型。半个世纪多以来,关于钍在核能方面的利用研究取得了许多成果,目前全世界运行过的加钍反应堆超过10座,例如美国希平港的

轻水增殖堆,它是第一座使用钍达到增殖的反应堆;美国橡树岭国家实验室的 MSRE,它是迄今为止唯一一座长期稳定运行的熔盐堆。

5.4.3 核燃料包壳

由图 15 可知,"锆合金包壳、裂变产物、碳化硅、不锈钢、热解碳涂层" 等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和 前沿技术方向:**燃料包壳的研究。**

2011 年 3 月日本福岛核事故暴露目前使用的锆合金在极端情况下的安全可靠性存在严重缺陷。核反应堆失水事故(LOCA)发生时,与高达 1200℃ 的水蒸气快速反应产生大量氢气,氢气极易引起爆炸,燃料包壳破裂而造成的释放和扩散。因此,锆合金与高温水蒸气发生腐蚀反应的实质是高温氧化。包壳管是防止放射性物质泄漏的第一道保护屏障,须具有很高的可靠性,研究新的核燃料系统或者提高现有核燃料的事故容错性能是该领域的研究热点和发展趋势。因这一事故的警示,世界核工业界和科学界意识到,有必要对核燃料包壳材料的安全性提出新的要求,特别是防止反应堆因缺乏冷却而过热,于是提出了事故容错燃料的研究方向,希望研制出一种更能扛得住事故、显著降低堆芯熔毁概率、避免或延缓氢气产生和放射性物质泄漏的燃料系统,替代现役的二氧化铀-锆合金燃料系统。目前常见的 ATF 包壳包括 SiC/SiCf 复合包壳材料,FeCrAl(含 ODS 化FeCrAl)包壳,钼合金包壳和 Zr 合金包壳涂层等。

5.4.4 不同类型核反应堆燃料

由图 15 可知, "轻水堆、水堆、压水堆、沸水堆;熔盐堆、液态核燃料、熔盐核燃料"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向: 轻水堆核燃料的研究: 熔盐堆核燃料的研究。

(1) 对轻水堆核燃料的研究,相关主题词包括"轻水堆、水堆、压水堆、 沸水堆"。轻水堆是压水堆和沸水堆的通称,是当今世界核电厂的主要和较成熟 的堆型。其中,压水堆,全称"加压水慢化冷却反应堆"。以加压的、未发生沸 腾的轻水(light water)作为慢化剂和冷却剂的反应堆,由燃料组件、慢化剂(兼 作冷却剂)、控制棒组件、可燃毒物组件、中子源组件、堆芯吊篮和压力壳等组 成,是核电站中应用数量最多、容量最大的堆型。对于压水堆,通过化学成分、 加工步骤和热处理方式的优化来获得更先进的包壳。同时,堆芯材料,为燃料组 件支撑的导向管和各种先进包壳的优化又会促进燃料设计的改进,提升燃料的换 料经济性。多年来,组件设计的调整已经允许工程师将铀的装量增加两倍并使燃 料换料周期从12个月增加到24个月。空间支架栅格的使用也发生了改变。这些 支架最初只提供隔离燃料棒和抗震功能。如地震冲击等造成的燃料棒弯曲可能会 导致燃料棒之间的接触,因此燃料棒之间设计了合理的间隙,这些间隙能最小化 燃料棒弯曲的风险。优化了的现代栅格提升了燃料棒热工性能和最小化碎片捕集 风险。沸水堆,全称"沸腾水反应堆",是以沸腾轻水为慢化剂和冷却剂并在反 应堆压力容器内直接产生饱和蒸气的动力核反应堆。在裂变反应活性区,沸水堆 最初选择了一些中子学特性较差的材料,例如不锈钢,这些材料已经被优化了的 锆合金所替代。沸水堆过去通常按照 6×6 的燃料棒排列形式,后来,工程技术改 讲逐步增加了反应堆操作的燃料数量,变成了 7×7 的排列,然后是 8×8, 9×9, 10×10 ,现在是 11×11 。与最初的 6×6 、 7×7 设计相比,类似阿海珐核电的 ATRIUMTM 11 高阶燃料棒排列,改进后的技术显著增加了单盒燃料组件内的燃 料棒总长度, 使得燃料棒表面积增加, 从而减少了表面热流密度和改善了冷却剂 交混现象。缩小的燃料棒尺寸不仅降低了燃料棒温度,同时也改善了热交换速率。 事实上, 每根燃料棒的平均功率在逐步降低, 而燃料芯块温度和燃料棒功率水平 有一个必然地相互增长关系。通过燃料棒束实现一个更加优化的水和燃料分布, 类似 ATRIUMTM 11 的燃料棒排列具有更高的中子效率。在燃料组件设计和制 造方面,不同的操作环境驱动了燃料组件补偿特征的创新,包括为了燃料的经济 性,对搁架截面的轴向和径向进行分区;或者发展燃料棒和燃料组件的自动组装 技术,使操作更加方便。例如,沸水堆燃料设计已发展到能够最小化每炉燃料装 量和提高铀效率。为了探索更高效的燃料循环方案,核设计人员开始改进线功率 密度、最小临界功率比和冷停堆裕度等性能。燃料通道是另一个改讲的重要区域。 这些通道迫使燃料棒束内部生成的蒸汽仅向一个方向移动,这是稳定的功率环境 所必需的。 告合金用来避免寄生中子吸收和抵抗腐蚀。 现在的先进燃料通道设计最小化了通道表面的金属总量,用来提高沸水堆燃料经济性。 减少一个 100 mm标准通道壁的四分之一,可改善 235U 富集度利用率约 0.02wt%。

(2) 对熔盐堆核燃料的研究,相关主题词包括"熔盐堆、液态核燃料、熔 盐核燃料"。2000年,美国 DOE 牵头发起第四代反应堆国际论坛(Generation IV International Forum, GIF),目标是开发出一种或若干种革新性核能系统,GIF 将第四代先进反应堆的定义扩大为包括核燃料前处理、反应堆技术、核燃料后处 理的反应堆核能系统,提出了更高的经济性、安全性、核废料最小化和防扩散性 要求,并筛选出了6种最有希望的第四代候选堆型,熔盐堆是其中唯一的液态燃 料反应堆。液态燃料熔盐堆(MSR-LF)将燃料盐直接溶于氟盐冷却剂中,其中 液态氟化盐既用作冷却剂,也作为核燃料的载体。燃料可以为 235U、233U、239Pu 以及其他超铀元素的氟化物盐:冷却剂熔盐一般为如下盐中两种或者多种盐的共 晶混合物: LiF、BeF2、NaF、KF、RbF、ZrF4、NaBF4,其中 2LiF-BeF2 的共晶混 合物由于具有较好中子吸收和慢化特性,被认为是一回路盐的首选目标。经过几 十年的发展, 熔盐堆在原有液态燃料堆概念基础上扩展出来固态燃料熔盐堆 (MSR-SF, 也称为氟盐冷却高温堆——FHR)的概念, 仅将氟化熔盐作为冷却 剂传输热量,采用碳化硅密封、石墨包覆的燃料颗粒(TRISO)作为核燃料,继 承了来自多种反应堆的包括非能动池式冷却技术、自然循环衰变热去除技术和布 雷顿循环技术等,技术成熟度高,其商业化在当前技术基础条件下具有极高的可 行性。

5.4.5 反应堆的安全性研究

由图 15 可知, "蒸汽发生器;安全壳、一次围阻体;堆芯应急冷却系统、反应堆冷却剂;一次冷却剂、一回路、冷却剂流量、二次冷却剂、二回路、蒸汽发生器;反应堆堆芯、堆芯吊篮、堆芯围桶;反应堆压力容器、圆筒形压力容器、压力容器顶盖,压力容器封头;燃料棒、控制棒板、控制组件、控制棒驱动;中子通量、中子吸收剂、中子探测器"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之

一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向:对核电站运行设备与工作原理的研究,包括蒸汽发生器、核反应堆安全壳、应急堆芯冷却系统、核电站内部工作原理;对核反应堆的组成结构与运行原理的研究,包括核反应堆压力容器、核反应堆控制棒、原子核理论中子物理。

(1) 核电站运行设备与工作原理

1) 对蒸汽发生器的研究,相关主题词包括"蒸汽发生器"。蒸汽发生器是 压水堆一回路、二回路的枢纽,它将反应堆产生的热量传递给蒸汽发生器二次侧 的给水,产生蒸汽推动汽轮机做功。按照二回路工质在蒸汽发生器流动方式,可 分为自然循环蒸汽发生器和直流(强迫循环)蒸汽发生器;按传热管形状,可分 为 U 形管、直管、螺旋管等。在压水堆中以 U 形管自然循环蒸汽发生器应用最 为广泛。2)对核反应堆安全壳的研究,相关主题词包括"安全壳、一次围阻体"。 核反应堆安全壳,或称反应堆安全壳、安全壳建筑或安全壳、围阻体、安全厂房、 安全掩体,是构成压水反应堆最外围的建筑,指包容了核蒸汽供应系统的大部分 系统和设备的外壳建筑, 用以容纳反应堆压力容器以及部分安全系统(包括一回 路主系统和设备、停堆冷却系统),将其与外部环境完全隔离,期望能实现安全 保护屏障的功能。3)对应急堆芯冷却系统的研究,相关主题词包括"堆芯应急 冷却系统、反应堆冷却剂"。应急堆芯冷却系统的功能是确保在事故工况下,提 供足够可靠的堆芯冷却, 使堆芯燃料包壳表面的最小不小于 DNBR1.5。即在事 故工况下,当发生丧失热阱事件时,由冷却剂出口温度过高信号触发反应堆紧急 停堆,主循环泵自动停止运行,此时反应堆进堆总管压力降低,应急泵将堆池水 输送到堆冷却剂进堆总管,保证堆内至少有骊冷却流量从上至下流经堆芯并带出 堆芯放出的热量。**4) 对核电站内部工作原理的研究,相关主题词包括"一次冷** 却剂、一回路、冷却剂流量、二次冷却剂、二回路、蒸汽发生器"。核电站的内 部它通常由一回路系统和二回路系统组成。反应堆是核电站的核心。反应堆工作 时放出的热能,由一回路系统的冷却剂带出,用以产生蒸汽。因此,整个一回路 系统被称为"核供汽系统",它相当于火电厂的锅炉系统。为了确保安全,整个 一回路系统装在一个被称为安全壳的密闭厂房内,这样,无论在正常运行或发生

事故时都不会影响安全。由蒸汽驱动汽轮发电机组进行发电的二回路系统,与火电厂的汽轮发电机系统基本相同。一次冷却剂系统使反应堆冷却剂在规定压力、温度的条件下进行循环的系统,亦称反应堆冷却剂系统、一回路主系统。一次冷却剂系统是压水堆核电厂中的核心系统,其功能为:①在核电厂正常运行期间,由反应堆冷却剂冷却堆芯,同时导出堆芯产生的热量,通过蒸汽发生器加热二回路侧水产生蒸汽发电;在其他工况下为堆芯提供冷却条件。②控制一次冷却剂中的硼含量以补偿和控制反应性。③以一次冷却剂系统的压力边界作为防止放射性物质向外释放的一道重要屏障。④冷却剂兼作慢化剂和反射层。二次冷却回路,又称蒸汽和动力转换系统,是指将以此冷却系统导出的堆芯热能转变为蒸汽,并进一步通过汽轮发电机组转换为电能的一系列设备组合的整体。

(2) 核反应堆的组成结构与运行原理的研究

1) 对核反应堆压力容器的研究,相关主题词包括"反应堆压力容器、圆筒 形压力容器、压力容器顶盖,压力容器封头"。反应堆压力容器是核电站核岛中 的心脏设备, 它主要用来盛装反应堆堆芯, 使高温高压的冷却剂保持在一个密封 的壳体内,同时起辐射屏蔽作用。反应堆压力容器在安全等级上属于I级设备, 须具备极高的可靠性和安全性,以保证其在各种工况条件下均能保持安全可靠运 行,不致发生容器破坏或放射性冷却剂外泄的事故。2)对核反应堆控制棒的研 究,相关主题词包括"燃料棒、控制棒板、控制组件、控制棒驱动"。控制棒是 由硼和镉等易于吸收中子的材料制成的。核反应压力容器外有一套机械装置可以 操纵控制棒。控制棒完全插入反应中心时,能够吸收大量中子,以阻止裂变链式 反应的进行。如果把控制棒拔出一点,反应堆就开始运转,链式反应的速度达到 一定的稳定值;如果想增加反应堆释放的能量,只需将控制棒再抽出一点,这样 被吸收的中子减少,有更多的中子参与裂变反应。要停止链式反应的进行,将控 制棒完全插入核反应中心吸收掉大部分中子即可。控制棒也组装成组件的形式。 反应堆不运行时,控制棒插在堆芯内。开堆时将控制棒提起,运行中根据需要调 节控制棒的高度。一旦发生事故,全部控制棒会自动快速下落,使反应堆内的链 式裂变反应停止。3) 对原子核理论中子物理的研究,相关主题词包括"中子通

量、中子吸收剂、中子探测器"。中子通量是指单位时间内通过单位面积的中子 数,是衡量反应堆的一个重要指标。中子通量分布测量对反应堆的安全运行、燃 料管理、最大允许功率的确定、各项实验的进行以及样品的辐照都有极其重要的 意义。中子吸收剂指对中子吸收截面较大的一种物质。要求在俘获中子后放出的 次级γ光子能量低,易于防护。可以是固体(如锂、硼和铪等),也可以是液体 (如硼酸溶液)。在核反应堆中,中子吸收起着重要的控制作用。为了控制链式 反应的速率在一个预定的水平上,需用吸收中子的材料做成吸收棒,来吸收过多 的中子。比较有效的中子吸收剂包括: 硼、镉、铪。硼不仅中子吸收截面高,而 且吸收中子的能量范围较宽,一般以碳化硼或硼钢作为控制材料;镉的热中子吸 收截面比硼高,但是对超热中子的吸收截面小,一般制成银铟镉合金用于水冷堆; 铪不仅对热中子和超热中子都有高的吸收截面,而且是长寿命的中子吸收体,特 别适于水冷堆。但铪非常稀缺、昂贵,因而使用受到限制。如果用于封闭反应堆, 需要掺入大量的镉盐或者硼酸,用于吸收熔化后的核燃料中的中子。这些核燃料 仍在裂变,只是会逐渐进入亚临界,掺入中子吸收剂有助于降低链式反应,使熔 毁的堆芯放射性水平降低,并且发热量降低,易于处理**。中子探测器是**利用中子 与硼或铀相互作用后产生的带电粒子使气体电离或经中子照射作用后材料本身 的活化来探测中子的器件。中子探测器广泛用于反应堆核功率测量或堆芯中子注 量率分布测量。

5.4.6 乏燃料后处理

由图 15 可知, "核燃料池、乏燃料池、水池、乏燃料棒; 贮存格架、贮存桶、燃料储存格架"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向: 对乏燃料湿法存储的研究; 对乏燃料干法贮存的研究。根据国际原子能机构(IAEA)的统计, 截至 2019 年 5 月, 全球 30 个国家共有 449 台在运核电机组, 18 个国家正在建设 54 台核电机组。2020 年,全球乏燃料总量将达 44.5 万吨。截至目前,全球大部分核电反应堆运行时间都已超过 30 年。一般而言,从反应堆堆芯卸出的乏燃料必须先在反应堆场址的乏燃

料水池中贮存一段时间,再送去后处理、中间贮存或处置。许多核电厂的贮存水池都已满容或接近满容。根据国际原子能机构的统计,截至 2011 年底,在全球卸出的乏燃料中,只有 1/3 被后处理,剩下 2/3 都只能暂时贮存,约 24 万 tHM进行在堆或离堆贮存。乏燃料的贮存方式一般分为湿法贮存和干法贮存两种。湿法贮存是贮存在水池中,已经实施了 70 多年;干法贮存通常把乏燃料组件放置在封装容器中,在一些国家实施了 30 多年。

- (1) 对乏燃料湿法存储的研究,相关主题词包括"核燃料池、乏燃料池、 **水池、乏燃料棒"。**湿法贮存通常在厂房内建造乏燃料水池,将乏燃料放置在水 下的贮存格架或吊篮中,通过水循环冷却乏燃料并控制其反应性。湿法贮存发展 较早,技术成熟,具有冷却能力强、贮存密集大、易于操作等特点。这主要是因 为水有两个特性: 第一,良好的热传导性能,池水不断的循环冷却,可以排出乏 燃料衰变热;第二,良好的屏蔽特性,且透明度很高,可保证在直接目视观察条 件下,操作人员利用相关设备完成卸料、转运等工作。乏燃料贮存水池通常是带 有不锈钢衬里的钢筋混凝土结构,可在防泄漏的同时保持水质。池水为去离子水, 除了用来冷却,还为燃料池区域和邻近区域的人员提供辐射屏蔽。轻水堆乏燃料 池深约 12 米, 其宽度和长度各不相同。燃料贮存在格架或吊篮中, 燃料顶部浸 没约7米。水池没有盖板,但外部用栏杆围起,设有架子和其他设备。不同的燃 料元件对于贮存水池中水质的要求也不尽相同: 沸水堆乏燃料池使用软化水, 而 压水堆乏燃料池则使用硼酸化水。沸水堆和加压重水堆乏燃料贮存池要求池水 pH 值为 5.3—7.5, 而压水堆乏燃料贮存池的池水 pH 值为 4.0—6.0。乏燃料贮存 水池一直在不断的发展和完善中。现在新设计和建造的贮存水池有一些新特性, 例如: 在钢筋混凝土结构和不锈钢衬里之间留有间隙, 用以收集可能泄漏的去离 子水,增设抗震措施,水池结构中增加了胶质弹性垫板支撑;采用不同构型和不 同浓度的中子吸收剂来提高贮存容量。目前还倾向于将贮存池建成模块式的,因 此通过增加模块可以增加贮存量,也可以接收不同堆型的乏燃料。
- (2) 对乏燃料干法贮存的研究,相关主题词包括"贮存格架、贮存桶、燃料储存格架"。干法贮存将乏燃料贮存在封装容器内,用金属或混凝土作为屏蔽,

依靠气体对流实现乏燃料冷却。通常,乏燃料需要在水池中冷却至少5年,然后才能转移到干法贮存设施。与湿法贮存相比,干法技术相对简单;干法贮存的乏燃料不直接与水和环境空气接触,几乎不产生二次废物,环境污染较少;贮存容器能够承受较大的冲击和温度变化;干式贮存设施可由非能动系统组成,能在几十年内保障安全;有关乏燃料的运转和贮存操作相对简单;其运行和维修也比较简单,费用较低;模块化建造,可以避免大量的一次性投资,扩建的灵活性也较好;适于长期贮存;退役问题较少;但金属容器的制造费用较高。干法贮存可采用贮存室技术、简仓技术和容器技术。但对于干法贮存技术的具体分类,目前尚无一致意见。特别是容器贮存,有按使用材料来分类的,有按立式和卧式来分类的,也有按用途来分类的,如贮存专用容器、贮存和运输双用容器以及贮存、运输和处置三用容器。干法贮存已经达到成熟阶段,目前全世界有151座乏燃料干法贮存设施分布在27个国家。干法贮存的一些新方案以及现有方案的各种衍生体还处于开发之中,相关研究内容包括:燃料损伤机理研究、破损燃料棒行为研究、安全相关问题研究。

六、核燃料潜在颠覆性技术识别

美国三里岛(1979年)、苏联切尔诺贝利(1986年)和日本福岛(2011年)等 3 次重大核事故对核能的发展产生了深远影响,因此为了确保核燃料的安全,世界有关国家除了不断优化整个核电站安全系统的设计外,也从加强核燃料本身的安全特性出发,不断探索,不断研究各种新设计、新材料、新工艺,有些在原有的燃料体系基础之上进行改进,也有科研人员另辟蹊径开发事故容错燃料。美国工程院院士史蒂芬•津克尔教授指出,作为当代和下一代核反应堆设计的重要部分,事故容错燃料正深刻影响核能科技的发展方向,是核安全"游戏规则"的改变者,是核燃料领域的潜在颠覆性技术之一。而由 4.4 和 5.4 可知,ATF 事故容错燃料(燃料组件结构设计、包壳与芯块)正是核燃料领域的研究热点,但研究热点不一定是颠覆性技术。若某方向的文献或专利在近期呈井喷式增长并且产出多篇高被引论文,则可判定该方向的研究技术为颠覆性技术。

因此,本章通过**趋势分析和文献调研(高被引论文分析)**进一步确定核燃料 领域的颠覆性技术,并使用**主题词分布**研究颠覆性技术的发展现状。

6.1 核燃料颠覆性技术识别

6.1.1 文献/专利趋势分析

由 2.1.1 对 ATF 的文献检索式知,在 1900—2020 年间,SCIE 收录 ATF 相关的 Article 和 Review 类型论文 1815 篇。ATF 文献数量变化趋势主要分别以下三个阶段:(1)初步探索期(1963 年—1990 年)。在该阶段的一半年份里与事故容错燃料相关的文献并没有出现,其余年份相关文献量基本在 2 篇上下浮动,处于事故容错燃料的探索阶段。(2)平稳发展期(1991 年—2012 年)。虽然事故容错燃料相关文献量由 1990 年的 3 篇突增至 1991 年的 11 篇,但这样的增长速度并没有延续,在之后的二十年里相关文献量仅处于平稳增长状态。(3)快速上升期(2013 年—2020 年)。2013 年有关事故容错燃料的研究跃升至新的发展阶段,由 2012 年的 66 篇迅速增加至 105 篇,之后一直呈指数型增长态势,在2018 年事故容错燃料相关文章量达到顶峰 225 篇。具体情况如图 16 所示。

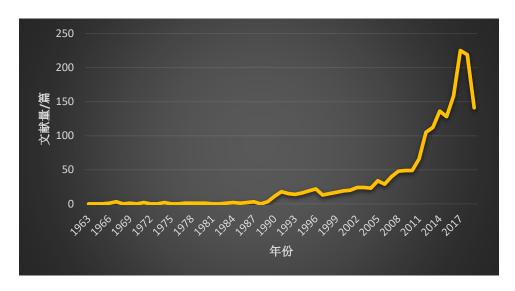


图 16 事故容错燃料论文数量年度变化

由 2.1.1 对 ATF 的专利检索式知,在 1939—2020 年间,智慧芽平台收录 745件事故容错燃料专利。事故容错燃料专利数量年变化趋势主要分别以下三个阶段: (1)快速增长期(1939—1964年)。该阶段事故容错燃料专利数量增长迅速,由最初的 1 件迅速增长至 1964年的 31 件。(2)快速下降期(1964—1979年)。该阶段事故容错燃料专利量迅速下降为个位数。(3)持续增长期(1979—2020年)。其中,1979—2010年,事故容错燃料专利量迎来第一波发展高峰,专利量围绕 12 件上下波动。2011—2020年,事故容错燃料专利量迎来第二波发展高峰,专利量围绕 12 件上下波动。2011—2020年,事故容错燃料专利量迎来第二波发展高峰,专利量迅速增加,并于 2017年达到事故容错燃料发展史最高值,为 41 件。具体情况如图 17 所示。

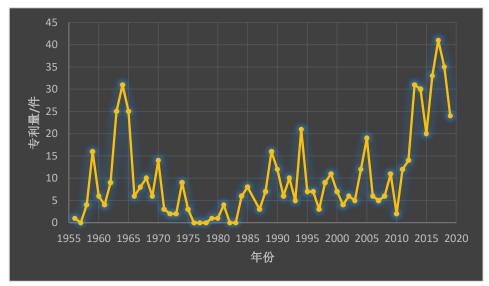


图 17 事故容错燃料专利数量年度变化

6.1.2 高被引论文分析

对核燃料领域近十年高被引文献进行分析,具体情况如表 5 所示。可知,核燃料领域 7 篇高被引文献的研究方向均为事故容错燃料,旨在提高燃料包壳的抗氧化和抗腐蚀性能以及燃料芯块对裂变产物的包容能力。

表 5 核燃料领域高被引论文

序		被引		
号	标题	次数	年份	研究方向
1	Accident tolerant fuels for LWRs: A perspective	342	2014	事故容错燃料:介绍了事故容错燃料的三条研究路线:改进锆合金包壳以进一步提高其抗氧化性能(如使用涂覆层),研究其他抗氧化高性能包壳,和寻找单片陶瓷氧化物燃料替代形式。
2	Advanced oxidation- resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding	203	2014	事故容错燃料:介绍了一种先进抗氧化铁合金在轻水堆燃料包壳,并且展示了在严重事故下使用高级抗氧化铁合金作为燃料包壳的安全边际收益。
3	High temperature oxidation of fuel cladding candidate materials	177	2013	事故容错燃料:在 1350°C 时 FeCrAl 合金和 SiC 包壳在蒸汽中具有较高抗氧化性,能显著提高燃料元件容错性。
4	Development of Al added high-Cr ODS steels for fuel cladding of next	165	2011	事故容错燃料: 从抗腐蚀性能的角度 介绍了不添加铝的高铬 ODS 合金在 超临界水反应堆应用的可行性。
5	Development and Property Evaluation of Nuclear Grade Wrought FeCrAl Fuel Cladding for Light	125	2015	事故容错燃料:介绍了一种具有增强 事故容错能力的轻水反应堆(LWR) 燃料包壳的核级铁基 FeCrAl 合金, 以替代锆基合金。在高温蒸汽环境 中,添加足够的铬和铝的铁素体合金 与锆基合金相比,能显着改善氧化动 力学。
6	Accident tolerant fuel cladding development Promise, status, and challenges	113	2018	事故容错燃料:介绍了三种事故容错燃料包壳:涂层锆基包壳,铁素体铝合金包壳,碳化硅纤维增强碳化硅基复合包壳

7		97	2016	事故容错燃料:介绍了事故容错燃料
	Development Status			芯块 UO2 燃料微球以及锆基包壳和
	of Accident-			SiC 复合燃料包壳。该燃料微球具有
	tolerant Fuel for Light			增强的高放射性和腐蚀性裂变产物
	Water Reactors in Korea			的保留能力。包壳能有效地抑制氢爆
				炸和放射性核素释放到环境中。

6.1.3 颠覆性技术识别结果

由 6.1.1 趋势分析可知,无论是论文还是专利角度,传统核燃料一直是科研人员关注的重点,但目前处于稳速发展期。事故容错燃料虽然起步较晚,但发展势头较猛,处于快速上升期,是核燃料领域的热点。可见科研人员更多地是关注事故容错燃料的发展,关注程度也有着继续加深的趋势。由 6.1.2 高被引论文分析可知,核燃料领域的关注重点是 ATF,据此可知核燃料领域具有颠覆性的技术是 ATF。

美国、法国、韩国、日本等国家的核能机构,都已经把事故容错燃料作为下一步重点发展方向。美国工程院院士、美国白宫核能领域政府顾问 Steven Zinkle 称,ATF 技术是近 50 年以来核燃料领域的一次重大技术革命,是美国能源部未来 10 年在核燃料领域投资和研发的重点,美国主要核能机构均已投身其中。可以说,这种高安全性技术已在国际核能业界掀起一股科技研发热潮。

6.2 ATF 的发展概况

6.2.1 ATF 的来源

自 20 世纪 50 年代核能技术转为民用后,主流的轻水堆核电技术已经经历几个代际发展,然而核燃料技术本质上却几乎没有大的改进,至今仍沿用早期的 UO₂ 陶瓷芯块+锆合金包壳,核燃料的燃耗和功率密度均受到限制。目前 UO₂-Zr 体系的问题主要包括包壳内外侧的氧化、包壳鼓包和爆裂、共熔反应、燃料的重定位和扩散以及燃料棒的熔化等多个方面。

2011 年 3 月日本福岛核事故暴露目前使用的锆合金核燃料包壳在极端情况下的安全可靠性存在严重缺陷。核反应堆失水事故(LOCA)发生时,锆合金包壳与高达 1200°C 的水蒸气快速反应产生大量氢气,氢气极易引起爆炸,燃料包

壳破裂而造成裂变产物的释放和扩散。因此,锆合金与高温水蒸气发生腐蚀反应的实质是高温氧化。包壳管是防止放射性物质泄漏的第一道保护屏障,须具有很高的可靠性,研究新的核燃料系统或者提高现有核燃料的事故容错性能是该领域的研究热点和发展趋势。

因这一事故的警示,世界核工业界和科学界意识到,有必要对核燃料包壳材料的安全性提出新的要求,特别是防止反应堆因缺乏冷却而过热,于是提出事故容错燃料的研究方向,希望研制出一种更能扛得住事故、显著降低堆芯熔毁概率、避免或延缓氢气产生和放射性物质泄漏的燃料系统,替代现役的二氧化铀-锆合金燃料系统。美国于2012年提出了针对轻水堆燃料和包壳优先考虑在事故下提高安全性的要求,提出了抗事故燃料概念。美国能源部提出了ATF的研发计划,目标是在2020年左右开始进行ATF燃料的反应堆试验和应用。

反应堆的安全运行是核工业发展的重要保障,因此如何提高反应堆的安全性一直是核电科研人员追求的目标之一,而对于目前已经运行的反应堆来说,通过改变反应堆的设计与结构来实现安全性的显著提高是很困难的。因此,设计一种新型的事故容错燃料能够在极端事故条件下(如反应堆回路出现破口失去冷却剂)依然能够提供足够稳定的安全性是一件非常有意义的事情。

国际上比较热门的一种事故容错燃料是一种能够极大的提高反应堆的固有安全性的核燃料,由于其材料本身固有特性,可以具有较高的导热性以及熔点,甚至能够在发生反应堆事故的极端情况下仍然保持完整的形态,所以能够有效的提高反应堆的固有安全性。

6.2.2 ATF 的概念

美国能源部定义:事故容错燃料与 UO₂-锆合金燃料系统相比,能够在更长时间内承受堆芯有效冷却的丧失,同时在核电厂正常运行和事故等各种工况下均能保持或提高燃料性能。ATF需要考虑两个方面,一方面是从燃料芯块的角度进行考虑,使得芯块的设计能够提高其固有全性;而另一方面,也需要从燃料包壳的角度出发,使得包壳能够满足与芯块相匹配的一些要求。

事故容错燃料(ATF)是通过提高燃料材料热物性或包壳材料抗高温氧化性能来加强核燃料的事故容错能力,从而使核燃料能长期忍受严重事故。目的在于降低严重事故时包壳材料与高温蒸气的反应速率,保持包壳在高温条件下的力学性能和结构完整性,为缓解严重事故后果并恢复应急冷却系统赢得宝贵时间。

6.2.3 ATF 的特点

- (1) 热学性能方面,ATF 燃料一般具有非常良好的热导性,以降低燃料棒的温度梯度,并且要具有较高的熔点,以减少燃料发生融毁的可能性。
- (2) 化学稳定性方面,需要能够具有一定的化学惰性,以避免在高温条件 下燃料棒中的某些组分与水蒸气发生化学反应,产生氢气等易爆气体。
 - (3) 在高燃耗条件下要能够包覆裂变气体,以减缓裂变产物的释放。

6.2.4 ATF 的性能特征

ATF主要考虑优化四个关键的性能特征来提高燃料棒的安全裕量,即降低包 壳与蒸汽的反应速率、降低氢气的产生速率、提高包壳的力学性能以及提高燃料 包容裂变产物的能力。

(1)降低芯块焓的输入,其主要目的是降低包壳被氧化的速度以及氧化产生的热量。(2)减少氢气的产生。因为传统的燃料其包壳主要是锆合金,而锆金属在高温下会与水蒸气发生锆水反应,生成可燃性的氢气,而这可能会导致化学爆炸的产生(如福岛核事故)。(3)增加燃料的冷却能力,这主要是因为在极端条件下,比如(回路出现破损),从而冷却剂大量流出,反应堆内的芯块温度无法及时排除,导致燃料芯块的温度急剧上升。如果燃料芯块具有较高的导热率,就可以能够及时将内部的热量导出,使得温度降低的更快。(4)对于裂变产物具有更好的包容性。因为核燃料在裂变的时候会产生一些裂变产物,而如果极端事故下包壳发生破裂会导致裂变产物外泄,从而对环境产生不可逆转的危害(如切尔诺贝利核事故)。因此,若容错燃料具有包容裂变产物的能力,可以显著降低极端事故对环境和社会带来的伤害。

6.2.5 ATF 的设计理念

开发 ATF 过程中重点关注的因素为: (1) 改善 ATF 芯块的热物性,如芯块的比热容及体现导热性能的热导率; (2) 改善 ATF 包壳的热—机械物性,用于确保芯块裂变产生的热量能被带走并得到充分冷却,包壳几何结构完整性得到维持,并防止放射性裂变产物释放; (3) 改善燃料包壳与水蒸气的氧化反应性能,提高包壳抗氧化性能,减少事故中的氧化释热量和产氢量。

基于 ATF 燃料的两种理念主要有以下三种思路: (1)维持包壳材料为锆合金,通过改变合金中微量元素的配比来提高合金的强度和抗氧化性能,或者在锆合金包壳管外侧进行涂层以提高包壳的抗氧化性能; (2)研发诸如碳化硅陶瓷及复合物、铁铬铝合金以及钼合金等新型燃料包壳材料; (3)研发具有高热导率和包容裂变产物能力的新型燃料,比如全陶瓷微封装芯块(Fully ceramic microen-capsulated fuel, FCM fuel)、碳化物燃料、氮化物燃料、硅化物燃料、BeO 弥散燃料和 CeO₂ 弥散燃料等。上述三种思路所需的研发周期依次增长。

6.3 ATF 当前研究热点

6.3.1 文献技术主题分析

绘制核燃料文献主题分布,如图 18 所示,科研人员对核燃料领域的研究主要分为 3 个方面:事故容错燃料芯块的研究(二氧化铀基事故容错燃料芯块;全陶瓷微囊燃料;UN 燃料/UN-U3Si2 复合燃料;U-Mo 金属燃料);事故容错燃料包壳材料的研究(锆合金涂层;SiC 陶瓷材料;不锈钢包壳);辐照环境下燃料微观结构研究(材料辐照的实验研究;材料辐照效应的模拟研究)。

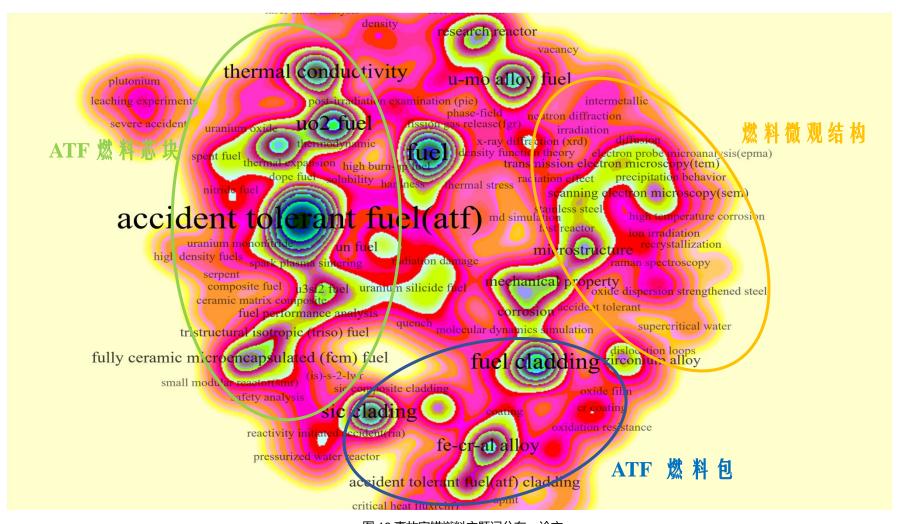


图 18 事故容错燃料主题词分布—论文

(1) 事故容错燃料芯块的研究

从图 18 可以看到, "燃料、事故容错燃料、高燃耗燃料、UO2燃料、热导 率、掺杂燃料、全陶瓷微胶囊燃料(FCM)、三结构同向性型(TRISO)燃料、 弥散燃料、UN燃料、U3Si2燃料、一氮化铀、硅化铀燃料、复合燃料、U-Mo合 金燃料、UMo/Al 弥散型燃料"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。 这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向:二氧化铀基事故容错燃料芯块研 究; 全陶瓷微囊燃料; UN 燃料/UN-U3Si2 复合燃料; U-Mo 金属燃料。2011 年福 岛核事故进一步引发了全世界对核电安全的关注。虽然其成因复杂,包括反应堆 老化、设计缺陷、应急处理措施不当等因素,但现有核燃料元件面对重大事故的 固有安全性不足还是引起了世界核能研究领域的高度重视。它暴露了目前在世界 上广泛应用的二氧化铀-锆(UO₂-Zr)轻水堆燃料体系在抵抗严重事故方面存在 重大安全风险。在该事故发生后,世界各国对核能安全又有了新的认识,核燃料 及其包壳材料在超基准事故条件下的本质安全性要求使得核燃料材料有了升级 换代的强烈驱动。在此背景下,事故容错燃料的概念应运而生,其具体是指与目 前的燃料体系相比,能够在较长时间内抵抗冷却剂丧失事故,同时还能保持或提 高其在正常工况下性能的燃料系统。为了提升核反应堆的安全性、改进核燃料的 燃耗、降低核电成本、制备新型事故容错燃料芯块具有重要的意义。目前有若干 技术路线,如掺杂型高热导率 UO_2 芯块、大晶粒 UO_2 芯块、铀硅合金 (U_3Si_2) 芯块、氮化铀(UN)芯块、美国橡树岭国家实验室提出的全陶瓷微密封芯块(FCM) 以及中国广核集团提出的惰性基弥散燃料芯块(IMDP)等。

1) 二氧化铀基事故容错燃料芯块研究,主要关键词有"UO2燃料、热导率、掺杂燃料"。UO2是目前在核反应堆中得到大规模应用的核燃料,在不影响 UO2中子特性的前提下提高其热导率成为近期最有可能得到应用的技术,可以直接针对目前运行的大量反应堆进行直接改进,提高其安全性能,得到了全世界核能领域科研工作者的广泛关注。目前,提高 UO2 核燃料热导率主要有以下 2 种技术路线。第一是添加高热导率第二相,制备热导率增强型 UO2 芯块。使用高热导率材料对 UO2 进行掺杂改性从而提高其热导率成为近年来的研究热点。综合考

虑掺杂改性材料与 UO_2 的化学相容性、稳定性、与锆合金包壳层的化学相容性、抗辐照性能、中子散射截面等性能,目前适合对 UO_2 核燃料进行掺杂改性的材料主要有氧化铍(BeO)、碳化硅(SiC)、金属材料、碳纳米材料等。**第二是制备大晶粒度的 UO_2 燃料芯块**,减少晶界处热传导损耗。制备大晶粒尺寸的 UO_2 成为除添加热导率增强相之外提高 UO_2 核燃料热导率的另一重要手段。同时,晶粒尺寸的增大还能够极大地改善燃料的裂变气体包容性,对改进燃料安全性能有着重要的作用。目前提高 UO_2 晶粒尺寸主要采用的方法是添加烧结助剂。目前应用于 UO_2 燃料制备的烧结助剂研究主要集中于各类金属和非金属氧化物,如氧化铝(Al_2O_3)、氧化钛(TiO_2)、氧化铬(Cr_2O_3)、二氧化硅(SiO_2)等。

- 2)全陶瓷微囊燃料,主要关键词有"全陶瓷微胶囊燃料(FCM)、三结构同向性型(TRISO)燃料、弥散燃料"。FCM 燃料最初概念由 ORNL 及 USNC 联合提出,并主要由 ORNL 进行开发。陶瓷包覆颗粒最初起源于 1960 年代核动力火箭开发中,后改进为 TRISO 颗粒应用于大型气冷堆中,在 1980 年代成功应用于高温气冷堆中,至今已有多年的成熟应用经验,它由燃料核芯及热解碳包覆层等组成。目前 FCM 被美国列为中期技术,美国橡树岭国家实验室已初步掌握FCM 燃料的相关制造工艺,并制定了相应辐照计划,预计将会在 15 年内实现。中国方面,中核、中科华及中广核均在进行 FCM 燃料相关方面探索,涉及燃及燃料制造工艺、燃料各方面性能分析以及后续燃料优化等等,目前已有一些初步研究成果,走通了部分制造工艺,开展了相关燃料分析工作,并设计了多种先进堆型,目前中核计划 2020 年左右入堆辐照。FCM 燃料以其优越的安全性能及裂变产物包容性能,在福岛核电事故后,得到了广泛的关注与研究,但技术成熟度较低,制造还存在一定难度与风险,从研究到实际应用困难较大,相应未来的优化空间也很大,需要大量资金及时间投入,未来还需大量探索与试验验证。
- 3) UN 燃料/UN-U₃Si₂复合燃料,主要关键词有"UN 燃料、U₃Si₂燃料、一**氮化铀、硅化铀燃料、复合燃料"。**UN 燃料最早被期望用于太空核反应堆,有一定的研究基础,它是 ATF(UN-USi_y)和快堆燃料(U-Pu-N)的重要候选之一。 UN 燃料具有高熔点、高热导率和高铀密度等优点,有利于改善芯块传热能力和

提高铀装量,在提高燃料循环长度方面具有潜力,并能有效降低芯块运行温度。降低运行温度和芯块内外温差对减少燃料辐照肿胀、裂变气体释放、芯块热应力及 PCI 效应等非常有利。UN 燃料由于防水性能差,目前一般考虑将 UN 和 U₃Si₂ 或 U₃Si₅ 混合制备成复合燃料,以改善 UN 的防水性能,其中 U₃Si₂ 的铀密度高于 UO₂,热导率很高(但低于 UN),与水的相容性好,辐照性能优秀(辐照肿胀、裂变气体释放等),与 UN 混合制备成复合燃料后,可以在不降低其他性能的前提下,提升燃料的防水性能。

4)U-Mo 金属燃料,主要关键词有"U-Mo 合金燃料、UMo/Al 弥散型燃料"。除 U-Zr 金属燃料外,还有 U-Mo 型金属燃料。U-Mo 金属燃料的铀密度高、γ 相稳定、辐照性能优良、后处理简单。最初 U-Mo 的提出是用于研究堆,使用 U-Mo 可以降低研究堆中 U 的富集度,有助于核不扩散,在 ATF 概念提出后,U-Mo 燃料由于其出色的特性,而成为 ATF 的备选燃料之一。美国西北太平洋国家实验室设计了 U-Mo 三层共挤压金属燃料,芯块主体为空心圆柱状 U-10 Mo 合金燃料(Mo 质量分数为 10%),最外层为包壳,在包壳与空心金属燃料之间有缓冲金属层,初步设计该层为含 Al、Cr 或 Nb 的合金。

(2) 事故容错燃料包壳材料的研究

从图 18 可以看到,"事故容错燃料包壳、燃料包壳、Zr 合金、涂层、Cr 涂层、SiC 涂层、SiC 复合涂层、FeCrAl 合金、apmt"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向: 锆合金涂层; SiC 陶瓷材料; 不锈钢包壳。各国对 ATF 包壳材料的研究集中在锆合金涂层和替代材料上。

1) 锆合金涂层,主要关键词有"Zr 合金、涂层、Cr 涂层"。目前在研究的涂层包括金属涂层(Cr 等)、化合物涂层(ZrSi、TiAlN、TiN、TiO₂等)、MAX 相涂层(Ti₂AlC、Zr₂AlC等)、SiC 涂层。在锆合金表面覆层方面,美国在涂层材料选择、涂层工艺研究、涂层与基体材料的相容性、涂层的堆外性能检测等方面开展了一些研究工作,制造出了部分涂层样品,开展了部分性能检测,取得了相当多的进展。但从目前研究成果看,锆合金涂层管材要应用于 ATF,还

有以下诸多问题待研究,如涂层的材料选择及制造工艺、涂层的稳定性、辐照数据等。

- 2) SiC 陶瓷材料,主要关键词有"SiC 涂层、SiC 复合涂层"。SiC 陶瓷材料因其具有高温强度高、抗蠕变、耐磨、耐腐蚀、高热导、中子经济性好、与水不反应等优点,成为 ATF 重点关注的包壳材料之一。由 SiC 纤维及 SiC 基体材料组成的 SiC 复合编织材料,即 SiC CMC(Ceramic Matrix Composite),是 SiC 包壳的基础。在 SiC CMC 内层增加一层高纯度 beta 相的单体 SiC 层就形成双层 SiC 包壳结构。beta 相的单体 SiC 层具有良好的中子特性、高温特性和导热性,而 SiC CMC 进一步提供强度和韧性。目前多层 SiC 设计是较为主流的碳化硅包壳研发方案,包括双层 SiC 结构、三层 SiC 结构、SiC+Zr 合金混合结构。典型的多层 SiC 包壳结构由三层组成,即连续纤维陶瓷复合材料(Continuous Fiber Ceramic Composite,CFCC)。CFCC 是目前被认为比较有前景的 SiC 制作压水堆包壳管的可行方案之一。虽然 SiC 包壳材料具有很多优势,然而当前 SiC 材料要达到商用程度,仍然需要解决很多技术问题,包括焊接加工问题、经济性问题、辐照参数问题和安全审评问题等。
- 3)不锈钢包壳,主要关键词有"FeCrAl 合金、apmt"。在传统奥氏体不锈钢中添加微量合金元素 Ti、Nb 或 Zr 和 Y, 经合金熔炼、铸造、锻造、热处理等一系列工艺过程得到的新型奥氏体不锈钢材料在 700°C 下抗拉强度达到 300MPa, 屈服强度达到 110MPa, 在提高合金力学性能和腐蚀性能的同时大大提高了抗辐照肿胀性能,具有耐高温、耐腐蚀和抗辐照肿胀的优异性能。掺杂微量钼、钇、钛和碳的 FeCrAl 合金具有良好的抗氧化性能。用于燃料包壳的 FeCrAl 合金包括坝塔尔合金 APMT, ODS 合金 PM2000 和耐热铬镍铁合金 MA956,其中氧化物弥散强化(ODS)合金可提高高温下的抗蠕变性能。此外,FeCrAl 合金的氧化率要低于锆合金,不会从冷却剂中吸收氢。作为包壳材料,其主要不足是熔点较低,在 120CTC 的蒸汽中添加 20%的 Cr₂O₃ 可形成辐射防护屏。现阶段最主要的问题是缺少更多的实验数据用以阐述 FeCrAl 合金的热物理性能和辐射蠕变行为。

(3) 辐照环境下燃料微观结构研究

从图 18 可以看到, "辐照、扩散、微观结构、离子辐照、辐照效应、扫描 电子显微镜(SEM)、透射电子显微镜(TEM)、x 射线衍射(XRD)、拉曼 光谱、微观结构、密度泛函理论(DFT)、分子动力学模拟、相场、析出行为、 再结晶"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以 下热点和前沿技术方向: 材料辐照的实验研究: 材料辐照效应的模拟研究。 反应 堆材料主要由晶体材料组成,辐照环境下材料内部的变化是极其复杂的物理过程。 整个过程涉及到多个时间和空间尺度,比如辐照碰撞级联过程中点缺陷的产生属 于飞秒量级和纳米尺度的问题,而长程扩散和宏观材料性能变化所涉及的尺度则 可以达到年和米的量级。复杂物理过程发生的同时还伴随着应力场、温度场的变 化,进一步增加了开展相关研究工作的难度。在实验研究中,样品在堆内进行辐 照,综合考虑辐照的强度和时间,当达到一定辐照剂量后,将样品转运到热室进 行分析表征,其中包括力学性能测试、物理性能测量以及微观结构表征等等,通 过与辐照前的数据进行对比,便可获得辐照导致的材料性能的变化情况,这种性 能的变化从微观上看反映的是辐照缺陷所带来的效应,包括辐照生长、辐照肿胀、 辐照硬化、辐照脆化以及热导和电导的下降等等。由于利用反应堆辐照开展实验 研究成本高昂,而且辐照后样品具有强放射性,对整个处理过程提出很高的要求。 因此,目前也有大量的工作采用离子辐照的方法来研究材料辐照效应的相关问题。 虽然离子辐照与中子辐照具有很大的差异, 但是通过进行系统的对比研究, 还是 可以在很大程度上加深人们对于辐照效应问题的认识。目前研究人员主要集中于 材料辐照问题的实验和模拟研究。

1) 材料辐照的实验研究,主要关键词有"扫描电子显微镜(SEM)、透射电子显微镜(TEM)、x射线衍射(XRD)、拉曼光谱、微观结构"。近年来,研究人员开展了大量有关材料辐照的实验研究工作,包含了核燃料材料和核结构材料在不同类型的辐射下的结构和性能变化等诸多问题。实验研究最主要的是借助不同类型的材料表征手段和技术,现有技术的提升以及新技术和新方法的发展,使得有关材料辐照的实验研究工作提升到了一个新高度,能够在原子尺度上对样品进行微观结构和化学特性的三维表征。辐照核材料研究领域所涉及的技术包括

原位光谱、聚焦离子束/扫描电子显微镜(FIB/SEM)、透射电子显微镜(TEM)、原子探针断层扫描(APT)、X 射线衍射(XRD)、正电子湮没光谱(PAS)、同步加速器技术和小角度中子散射(SANS)等。这些实验设备和技术的应用不但使得在微米和纳米尺度上研究材料的辐照导致的微观结构变化成为可能,同时也为理论计算模型和结果的验证提供了重要的支撑。

2) 材料辐照效应的模拟研究,主要关键词有"密度泛函理论(DFT)、分 **子动力学模拟、相场、析出行为、再结晶"。**分子动力学方法(MD)被大量应 用于研究材料的热力学和动力学性质,包括辐照诱导的缺陷产生和反应(湮灭、 吸收和发射)以及缺陷演化的物理机制等等,经典 MD 的模拟还可以与量子效应 进行耦合。后来,密度泛函理论(DFT)计算也逐渐被用于研究合金和核燃料中 辐照缺陷的热力学和动力学性质。此外,动力学蒙特卡洛方法(KMC),面向对 象动力学蒙特卡洛方法(OKMC), 团簇动力学和速率理论也被大量应用于研究 辐照环境下缺陷和缺陷团簇随时间的演化问题。研究表明,原子尺度的模拟可以 提供辐照引入缺陷和缺陷团簇的热力学和动力学性质,动力学蒙特卡洛方法和速 率理论可以预测缺陷闭簇的演化。但是,使用这些方法预测三维介观尺度的微观 结构演化以及由于结构变化所带来的热导率下降、硬化、钿脆转变温度升高等热 力学性质的变化却面临着巨大挑战。为了认识这些结构变化导致的材料性能下降, 模拟研究的一个总体思路应该是发展相关的模拟能力以预测辐照环境下材料微 观结构的演化,基于对微观结构的认识来建立微观结构和性能之间的联系,并研 究微观结构的变化导致的材料外场响应特性的改变。由于相场方法在预测多组分 多相体系三维微观结构演化方面具有独特的优势,从而在材料辐照相关的研究工 作中受到越来越多的重视。在过去的十多年间,相场方法被用于研究多种重要的 微观结构演化现象以及微观结构变化对材料性能的影响,例如,核燃料中气泡的 演化,空洞的形成和演化,空洞和气泡超晶格的形成,温度梯度下空洞的迁移, 间隙子环的生长,析出,晶粒生长和再结晶等等。在材料性能研究方面,包括辐 照导致的空洞和气泡肿胀,导热性能下降等等。尽管相场方法被应于研究多种材 料辐照相关的问题,但是当前大部分的相场模型却还仅能够描述材料中的一种或

少数几种微观结构,而且对于特殊的微观结构和演化过程,可供参考和验证的实验数据也非常有限,所获得的多是一些定性的研究结果。

6.3.2 专利技术主题分析

2011 年福岛核事故对世界核电行业造成了重大影响,反应堆的安全性再一次成为现代核电发展的第一要素,对此提出了事故容错燃料的概念,要求 ATF 与传统的二氧化铀(UO₂)燃料-锆合金包壳体系相比,能够大幅降低事故时堆内温度以及放射性物质的释放。各国专家提出了多种新型燃料设计方案,作为发展ATF 的备选。总体上都是以改善燃料芯块或包壳材料性能为出发点,以提高核燃料元件抵抗事故的能力为终级目标,设计具有强抗氧化性、良好导热性能和高辐照力学稳定性的新型燃料元件。图 19 展示了事故容错燃料主题词分布。

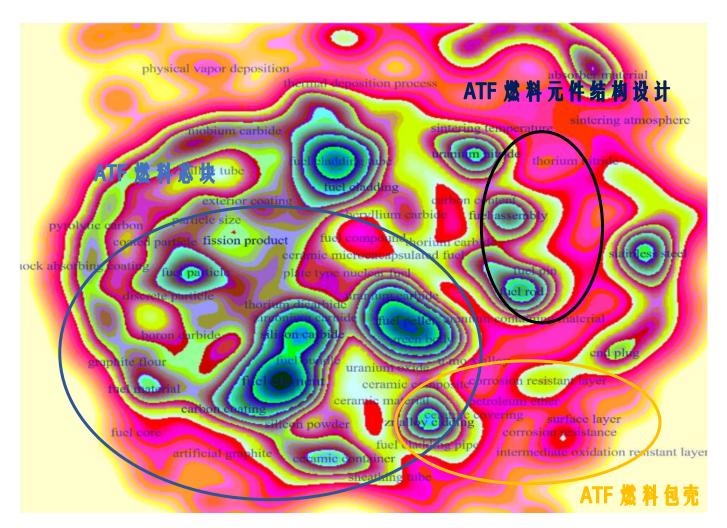


图 19 事故容错燃料主题词分布一专利

本报告从事故容错燃料芯块、包壳以及结构三个方面进行总结,如下:

(1) 对事故容错燃料芯块的研究

从图 19 可以看到,"热伸长、热裂化过程、热沉积过程、氮化铀、燃料芯块、热导率、碳化硅、铀钼合金、硅化铀颗粒、复合燃料、二氧化铀;燃料颗粒、包覆颗粒、包覆燃料颗粒、球形燃料颗粒、热解碳、燃料颗粒尺寸、二氧化铀、团聚颗粒、海绵碳、石墨基体;三结构-各向同性燃料颗粒、燃料颗粒、碳化硅、全陶瓷微型封装燃料;硅化铀颗粒、氮化铀"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向:对改进型二氧化铀基核燃料芯块的研究;对非二氧化铀燃料芯块事故容错燃料的研究(涂覆燃料颗粒、全陶瓷微型封装燃料芯块、高铀密度燃料)。

1) 对改进型二氧化铀基核燃料芯块的研究,涉及到的主题词有"热伸长、 热裂化过程、热沉积过程、氮化铀、燃料芯块、热导率、碳化硅、铀钼合金、硅 **化铀颗粒、复合燃料、二氧化铀"。**早在 20 世纪 60 年代,研究者们就尝试在 UO_2 燃料芯块中添加 MgO、 TiO_2 、 Nb_2O_5 、 Cr_2O_3 等金属氧化物,以期改善其抗 辐照性能; 当时的主要目标是为了增大 UO2 晶粒尺寸,增加裂变气体扩散到晶 界的距离从而降低其释放速率。后来研究进一步表明,通过在 UO2 燃料芯块中 添加某些物质可以改善热导率较低的缺点,同时消除辐照后燃料芯块中裂纹、降 低裂变气体释放和燃料储热,从而达到缓解失水事故后果的目的,且这些添加材 料要求同时具备高熔点和低中子吸收截面,以确保燃料芯块在高温下的完整性和 核燃料循环的经济性。早期研究包括添加碳化硅(SiC)、氧化铍(BeO)、金刚 石(Diamond)、钼(Mo)等高热导率材料。如专利 US20200111584A1 公开了 一种具有增强的抗氧化性的改进型核燃料及其制备方法。该燃料包括富含 U-235 的 U₃Si₂ 颗粒和少于 30% 重量的沿 U₃Si₂ 颗粒表面定位的 UO₂ 颗粒的复合物; 复 合材料可以压缩成颗粒形式。该方法包括在 U_3Si_2 颗粒表面上形成一层 UO_2 ,或 者将 U₃Si₂ 颗粒暴露在体积分数为 15%的氧气中, 在惰性气体中分散一段时间并 在足以形成 UO2 的温度下进行。专利 US9679666 公开了一种二氧化铀核燃料芯 块,其包括金属微电池隔板,其对裂变产物具有高保护能力并同时具有高导热性。

还公开了一种制备二氧化铀核燃料芯块的方法,包括提供二氧化铀粉末和含 Cr 化合物或含 Mo 化合物的添加剂粉末的混合物;压缩粉末混合物,形成生球团;然后在还原气体环境下烧结生球团,形成金属微细胞分区。专利 KR102136758B1 介绍了一种含硅化铀的二氧化铀核燃料的制造方法,包括将二氧化铀粉末和硅化铀粉末混合以生产混合粉末;压缩混合粉末以产生成型体;并通过烧结成型体来制备烧结体。专利 CN110867260A 公开了一种应用于超临界水冷堆的复合式燃料芯块,即沿径向包括实心内区燃料芯块和包围实心内区燃料芯块的连续环状外区燃料芯块,以外区燃料芯块为 UO2、内区燃料芯块为 BeO 形成 UO2/BeO 复合芯块;或者以外区燃料芯块为 UO2、内区燃料芯块为 ThO2 形成 UO2/ThO2 复合芯块。

2) 对非二氧化铀燃料芯块事故容错燃料的研究。①对涂覆燃料颗粒的研究, 涉及到的主题词有"燃料颗粒、包覆颗粒、包覆燃料颗粒、球形燃料颗粒、热解 碳、燃料颗粒尺寸、二氧化铀、团聚颗粒、海绵碳、石墨基体"。如专利 **WO2020150976A1** 介绍了一种包覆燃料颗粒,包括 $U_xSi_v(x=3, y=1-5)$ 核心以 及包覆在所述 UxSiv 核心外的多层保护壳,该包覆燃料颗粒较 UO2 具有高铀密度 及高热导率的特点,可使核芯材料的铀密度提高 17%以上,在不增加富集度的 情况下明显改善燃料的铀装量,核心与外层的保护壳化学相容性好,在高温下不 会因化学反应产生大量气体,可用于事故容错燃料、大型先进压水堆以及其他先 进核能系统的燃料系统。专利 CN110853769A 公开了一种颗粒燃料芯体、燃料棒 及金属冷却小型反应堆, 所述颗粒燃料芯体包括若干颗粒燃料, 若干颗粒燃料均 匀弥散到氧化铍基体中,形成高热导率的燃料芯体,所述颗粒燃料由燃料微球和 包覆层构成,所述包覆层包覆在燃料微球外侧,采用耐高温、高热导率的碳化硅 制成,在燃料芯体中的体积份额为 30%-60%; 所述燃料微球释放的裂变气体通 过包覆层、氧化铍基体进行包容。该发明显著增大了燃料芯体的热导率以及燃料 芯体与燃料棒外表面之间的导热系数,可以大幅降低燃料芯体温度,提高金属冷 却小型反应堆的设计性能及运行安全性。②对全陶瓷微型封装燃料芯块(FCM) 的研究,涉及到的主题词有"三结构-各向同性燃料颗粒、燃料颗粒、碳化硅、

全陶瓷微型封装燃料"。全陶瓷微封装燃料芯块是为轻水堆中使用的高燃耗 U 所 设计,是将二氧化铀燃料颗粒封装在碳化硅基体中,碳化硅基体稳定性高且兼具 很高的热导率,与冷却剂有好的兼容性。全陶瓷基体包覆的燃料释放出的裂变气 体和腐蚀性裂变产物很少,在发生事故时容错性高,安全有保证。如专利 US10109378 介绍了一种制造全陶瓷微胶囊化核燃料的方法。该专利公开了一种 新的生产路线和固定装置,其通过提供多个三结构-各向同性燃料颗粒产生与大 规模生产一致的相同或更优的 FCM 燃料;将多个三结构-各向同性燃料颗粒与陶 瓷粉末混合形成混合物:将混合物放入模具中:然后向模具施加电流,以便通过 直流烧结将混合物烧结成燃料元件。专利 CN108249927A 公开了一种 FCM 芯块 无压致密化烧结方法,包括助烧剂添加; FCM 芯块生坯成型; FCM 芯块无压烧 结。该发明与现有常规 FCM 烧结工艺相比,通过助烧剂的添加,实现了 FCM 芯 块的无压致密化烧结,进而大大降低了 FCM 芯块的制备难度以及生产成本。同 时,采用本发明方法能够大批量地进行 FCM 芯块的无压致密化烧结,且烧结完 的芯块内部的 TRISO 颗粒结构保持完整,均匀分布于 SiC 基体内。③对高铀密 度燃料的研究,涉及到的主题词有"硅化铀颗粒、氮化铀"。UN 和 U₃Si₂本身 属于高铀密度燃料,均具有高铀装量、高热导率等优点。其中 UN 的热导率还会 随着温度的升高而增加,具有高熔点(与 UO₂ 相当)、低热容等优势,已经在俄 罗斯 BR-10 钠冷堆和美国汉福德快通量试验堆(FFTF)中得到应用。此外,美 国还曾对 UN 燃料在太空核反应堆的应用方面进行了研究。U3Si2 燃料具有低热 中子吸收截面、高反应能力、无固相转变、高热传导性和强耐腐蚀性等优点,在 研究堆用弥散燃料中也得到了比较广泛的应用。基于上述特点,美国、俄罗斯等 正在研发高铀密度陶瓷燃料,包括 UN、U3Si2 及 UN/U3Si2 复合燃料等,其具备 高铀密度及高热导率的优点,有利于改善燃料芯块传热能力和提高铀装量,相对 标准 UO2 燃料体系, 能显著降低燃料芯块运行温度, 对事故下储能导出有一定 益处。如专利 US20050286676A1 提供一种核燃料, 其包含诸如氮化铀的 act 系 元素氮化物,适用轻水和重水或气冷核反应堆等。燃料含有氮,其同位素富集至 少约 50%15N,最优选高于 95%,燃料可以是颗粒、丸粒、环形或其它具有高表

面积与体积比的形式。**专利 CN110993134A** 公开了一种 U₃Si₂ 合金燃料的制备方法,即以铀氢化物和硅粉末为原料,采用反应烧结法直接制备 U₃Si₂ 合金燃料。

(2) 对事故容错燃料包壳的研究

事故容错燃料包壳时需要具有一定的抗氧化性能与机械强度,使得其能够抵御氢爆的影响以阻止放射性核素进入外界环境中;较小的包壳与水蒸气的相互作用性,这一点在压水堆中尤其重要;与燃料芯块具有较小的反应性,以保证包壳的完整性。从图 19 可以看到,"锆合金包壳、燃料包壳管、抗腐蚀性、强抗腐蚀性、金属涂层、陶瓷覆盖物、表面涂层;锆合金包壳、燃料包壳管、抗腐蚀性、强抗腐蚀性、陶瓷复合材料、陶瓷材料、不锈钢、奥氏不锈钢"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向:对维持包壳材料为锆合金,通过改变合金中微量元素的配比来提高合金的强度和抗氧化性能,或者在锆合金包壳管外侧进行涂层以提高包壳的抗氧化性能的研究;对其他事故容错燃料包壳材料的研究。

1) 对维持包壳材料为锆合金,通过改变合金中微量元素的配比来提高合金的强度和抗氧化性能,或者在锆合金包壳管外侧进行涂层以提高包壳的抗氧化性能的研究,涉及到的主题词有"锆合金包壳、燃料包壳管、抗腐蚀性、强抗腐蚀性、金属涂层、陶瓷覆盖物、表面涂层"。在2011年日本福岛核事故后,进一步提高包壳的事故容错能力成为新的研究热点,在锆合金包壳表面制备涂层成为最有可能提高包壳事故容错能力的途径之一。锆合金表面涂层的研究可以分为2个阶段:2011年福岛核事故发生之前,以提高锆合金抗微动磨损和耐腐蚀性能为目标,开展TiN、SiC、ZrO2涂层研究;2011年之后,主要以提高锆合金事故容错能力为目标,抗水蒸气氧化性能是其最重要的性能评价指标之一,研究的涂层包括MAX相(Ti2AlC、Ti3SiC2)、碳化物(SiC、ZrC)、氮化物(TiN)、金属涂层(FeCrAl、Cr)以及复合物涂层(Cr-Zr/Cr/Cr-N)等。研究显示,锆合金包壳管的性能如抗水蒸气氧化性能、耐腐蚀性能等不仅取决于涂层材料,而且与制备工艺密切相关。涂层制备方法的选择与涂层种类密切相关,已报道的锆合金表面涂层材料的制备方法主要有等离子化学气相沉积、冷喷涂、扩散浸渗、电弧

离子镀、磁控溅射、射频溅射镀膜等。如专利 US20190139654A1 介绍了一种用 于轻水和重水反应堆的事故容错燃料包壳。该燃料包壳包括具有铬或铬合金涂层 的锆合金包层和在锆合金包层和涂层之间的任选的钼、钽、钨和铌夹层。专利 US9202597 公开了一种用于核燃料包壳的锆合金及其制备方法。其中锆合金包含 0.2 至 0.5wt%的铌 (Nb); 0.2 至 0.6wt%的铁 (Fe); 0.3 至 0.5wt%的铬 (Cr); 0.1 至 0.15wt%的氧(O); 0.008 至 0.012wt%的硅(Si)和剩余量的锆(Zr)。 铌,铁和铬的总量为 1.1 至 1.2wt%。**专利 JP1992028868A** 介绍了一种改进型 Zr 合金, 通过离子注入将诸如 Cr 的元素注入到 Zr 合金的无氧化物层表面, 从而改 善其表面特性(如耐蚀性和耐磨性)。即从Cr、Fe、Sn、Ni、Ti、Hf、C和N中 选择元素,通过离子注入在无 Zr 合金(Zircaloy-2, Zircaloy-4等)或在上述表面 附近。此时,注入元素的量(浓度)通常为约 1013-1021 个离子/cm²,注入离子 的能量通常>约几千电子伏特,并且通过注入离子同时将加速能量调节到几十至 几百千电子伏特,形成了约 0.1μ 深度的浓缩层,其中注入元素的浓度最大。专 利 CN105887080A 公开一种事故容错核燃料包壳 TiCrNiAlSi/ZrC 涂层及制备方 法,利用激光微熔覆技术,在核燃料包壳锆合金管上制备一层 TiCrNiAlSi/ZrC涂 层,从而达到提高其抗氧化性能的目的。该涂层包括 11-16%Ti, 20-27%Cr, 5-8% Al, 3-6% Si, 1-3% Ni, 40-60% ZrC.

2)对其他事故容错燃料包壳材料的研究,涉及到的主题词有"锆合金包壳、燃料包壳管、抗腐蚀性、强抗腐蚀性、陶瓷复合材料、陶瓷材料、不锈钢、奥氏不锈钢"。锆合金具有优异的耐腐蚀性能、良好的抗辐照生长特性以及适中的力学性能等,主要用于制备核反应堆燃料包壳管。在核反应堆失水事故工况下,锆管温度急剧上升并与水蒸气发生剧烈反应,在随后的淬火过程中锆管可能会发生破裂,导致核泄漏。研发诸如碳化硅陶瓷及复合物、铁铬铝合金以及钼合金等事故容错燃料包壳材料。①SiC 陶瓷材料因其具有高温强度高、抗蠕变、耐磨、耐腐蚀、高热导、中子经济性好、与水不反应等优点,是 ATF 重点关注的包壳材料之一。如专利 US9031184 涉及一种全部或部分由复合材料制成的核燃料包壳,其中陶瓷基质含有碳化硅(SiC)纤维作为基质增强剂,并且在基质和纤维之间

提供相间层,该基质还包括碳化硅作为下列附加碳化物中的至少一种:碳化钛 (TiC),碳化锆(Zrc)和三元碳化钛(Ti₃SiC₂)。**②FeCrAl 合金**在高温蒸汽氧 化过程中表面会生成致密稳定的氧化物, 能够防止合金被进一步氧化, 因此具有 极强的抗氧化性,在正常运行工况下以及事故工况下具有优良的力学性能,从而 被列为事故容错包壳的候选材料。**如专利 KR101779128B1** 介绍了一种具有优异 的轻水反应堆事故阻力的双重结构的不锈钢燃料包壳管及其制造方法。专利 CN109652628A 介绍了一种核燃料包壳用 FeCrAl 合金及其制备和晶粒尺寸控制 方法属于核燃料包壳技术领域,具体涉及一种核燃料包壳用 FeCrAl 合金及其制 备和晶粒尺寸控制方法。该发明所述的用于核电反应堆燃料元件包壳的 FeCrAl 合金材料,由以下组分组成: Cr, Al, Fe, 杂质, 其中, Cr 合金元素的总重量百 分比含量为 11.00wt%-14.00wt%, Al 合金元素的总重量百分比含量为 5.50wt%-6.50wt%。**③MAX 相材料**以其具有与陶瓷类似的耐高温、抗氧化、耐腐 蚀、高熔点、高强度等优良性能,又具有与金属材料相似的高导电、高热导、易 加工、良好的塑性等优点,而且近期的研究表明 MAX 相还具备良好的耐辐照损 伤性能。所以近年来 MAX 相材料得到了核工业界的广泛重视。在第 4 代快堆、 超临界水堆、第5代聚变—裂变混合堆结构材料研发的大背景下, 许多研究机构 对 MAX 相材料的加工成型工艺、材料的堆外性能、耐辐照性能(以离子辐照方 式开展) 进行了初步研究, 取得了一些积极的成果。 如专利 CN104628395A 提供 了一种核燃料包壳元件的制备方法。该方法选用 MAX 相陶瓷材料、碳化硅、 MAX 相基复合陶瓷材料或者碳化硅基复合陶瓷材料,将该陶瓷材料制成浆料, 真空除泡后通过流延或者涂刮的方法在基带上制成厚度为 10um-10mm 的陶瓷膜, 然后绕制成包壳元件坯体,再经烘干、排胶、烧结,以及表面处理而制得核燃料 包壳元件。

(3) 对事故容错燃料组件结构设计的研究

从图 19 可以看到,"核燃料组件、核燃料元件、燃料棒、端塞、板式核燃料; 定位格架、燃料组件栅格、燃料棒束"等主题词成为该技术领域的研究热点方向之一。这些主题词主要反映以下热点和前沿技术方向:对不同形状核燃料组

件的研究;对核燃料组件骨架结构定位格架的研究。

- 1) 对不同形状核燃料组件的研究,涉及到的主题词有"核燃料组件、核燃 料元件、燃料棒、端塞、板式核燃料"。从冷却剂导出热量的要求上考虑,反应 堆燃料不宜做的太大,必须分成一定大小的单元以加大表面积。因此,燃料要做 成表面积对体积比大的形式。常见的燃料元件的形状有棒、板和球三种形式,对 于板还有曲板等的变种。这三种形式都是用燃料包壳把燃料芯体包住, 防止裂变 产物漏入冷却剂中。芯体的包覆方法有两种。一种是把芯体和包壳分别成型,然 后把芯体装入包壳中并密封起来;一种是把包壳包覆在芯体表面上。棒状和板状 属于前者,球状属于后者。**如专利 US20070036261A1** 介绍了一种具有规则排列 的 γ 相 U-Mo 或 U-Mo-X 合金粗颗粒的板式核燃料及其制造方法。即通过最小化 燃料和铝基质之间的相互作用层的面积来防止核燃料和铝基质之间的过度反应, 通过限制反应层的形成来最小化孔和膨胀,有利地改善操作极限功率,高温辐射 稳定性和性能。**专利 CN110415838A** 公开了一种用于增强安全性的棒状核燃料 元件,包括棒状的U₃Si₂基芯体,所述U₃Si₂基芯体内开设有中孔,所述U₃Si₂基 芯体外是锆基合金材质的包壳,所述包壳的两端均密封一个端塞,所述 U₃Si₂基 芯体与包壳之间是冶金结合层。该发明不仅降低燃料芯体的运行温度和堆芯储能, 同时减缓了棒状核燃料元件的 PCI 问题,从而提高了棒状核燃料元件的安全性。 专利 WO2018208432A1 介绍了一种具有离散可燃吸收销的环形核燃料芯块。环 形核燃料芯块与插入的离散中子吸收剂组合。芯块/吸收剂可以与现有或将来的 核燃料组件设计兼容。该概念涉及使用形成环形燃料芯块的核燃料(例如,二氧 化铀或硅化铀),所述环形核燃料芯块可以具有插入销中心的离散吸收剂材料。 优选地, 离散吸收剂是非寄生吸收剂。随后可以将所得的芯块/吸收剂堆叠到布 置在核燃料组件中的燃料棒中。环形芯块和吸收剂的尺寸以及吸收剂材料和密度 的选择可以使该概念适合各种核燃料应用。
- 2)对核燃料组件骨架结构定位格架的研究,涉及到的主题词有定位格架、燃料组件栅格、燃料棒束。一般来说定位格架由许多 Zr-4 合金的条带相互插配 经钎焊而组成的 17×17 栅格。如专利 US20180286524A1 介绍了一种专门设计用

于事故容忍燃料的间隔栅格。间隔栅格管状通常为方形设计,通过提供平滑的接触几何形状,允许在燃料组件制造过程中容易地插入 SiC 燃料棒;共面的垂直定向支撑件允许燃料棒在网格位置处比在现有燃料组件设计中使用的传统六点接触几何形状更自由地轴向旋转;由于 SiC 燃料棒比金属燃料棒具有更高的刚度,因此在由地震事件或地震事件引起的燃料棒偏转的情况下,由两个弹簧和四个凹坑组成的六点接触几何形状可能潜在地损坏燃料棒;燃料棒支撑单元在它们的拐角处连接,这些拐角在相邻的支撑单元之间共享。专利 US10128004 涉及核燃料组件格栅或格栅的一部分或一部分,例如格栅带和/或整体流混合器,其至少部分地由含有一种或多种通式 I: Mn+1AXn 其中,M 是过渡金属,A 是选自化学周期表中的 A 族元素的元素,X 是碳或氮,n 是 1-3 的整数。该发明还涉及通过使用烧结工艺烧结含有一种或多种粉末形式的三元化合物的组合物来制造核燃料组件栅格或栅格的一部分的方法,使得所得到的栅格或其一部分或一部分栅格包括多个烧结层。

6.4 ATF 发展趋势分析

福岛核事故后,美国提出了 ATF 燃料概念,欧洲国家、中国、日本、韩国等相关国家均展开研究。ATF 燃料的研发,是以反应堆正常和事故工况下燃料的行为和失效机理为根本出发点,以从根本上克服 UO₂-Zr 燃料的缺点为目标,同时不能削弱 UO₂-Zr 燃料的现有优势。由 6.1、6.2 和 6.3 可知世界范围内针对 ATF 燃料的材料开发与系统评价研究在短时间内得到了迅速发展,针对 ATF 包壳和芯块已形成多种候选技术方案。但由于目前的 ATF 芯块与包壳研究技术尚不成熟,因此各个国家纷纷制定了涵盖近期、中远期的发展与应用路线图,规定 ATF 未来研究仍集中于相应的可行性评估、材料工艺优化、性能验证及辐照等考验方面。

(1) 美国

美国对事故容错燃料的研究格外重视,其 2012 年的综合拨款法指定美国能源部核能分部需完成下列工作:优先发展轻水堆可用的先进核燃料和包壳,提高反应堆和乏燃料池事故情况下的安全性;重点关注难熔的、有事故容错能力的核

燃料的技术发展并优先资助,提高加强目前及下一代轻水堆的安全性;2020 年前,拟定事故容错燃料在反应堆中测试并应用的计划,并向委员会报告。

美国能源部为事故容错燃料的研发制定了可行性研究(2012-2015)、开发 与资格认证(2016—2021)和商用(2022)3个阶段。第一阶段的工作是试水, 包括建模、制造小比例设备原型、辐照测试、蒸汽反应测试、机械性能测试、熔 炉测试等。第二阶段主要是选择燃料棒材料,再对工业级规模的试验反应堆进行 瞬态辐射测试、铅组件测试等一系列复杂测试。第三阶段正规商用核电站的建设。 2012 年, 美国的 ATF 计划启动, 2017 年 AREVA (阿海珐)、GE (通用电气)、 W.E.C.组成的工业界团队对包括 SiC、FeCrAl、Cr 合金、Mo 合金在内的 ATF 包 壳材料,以及改进型 UO2 芯块、U3Si2 芯块等 ATF 芯块的研发已接近完成,并已 开始初步的验证试验工作,目前美国的先导燃料棒和先导组件的辐照试验预计会 于 2022 年相继开展。美国能源部针对现有的 ATF 发展方向做了一项评估,将其 根据时间划分为短期和中期可实现技术。短期可实现技术主要集中在改进现有的 "UO2 芯块-Zr 包壳"体系,而中期技术则突破了传统燃料体系,从燃料的基础 层面进行革新,但随着燃料性能的加强,所需开发周期及开发部署所冒风险也进 一步加大。中期技术则主要集中在"FCM燃料芯块、SiC 复合材料包壳或 Fe 合 金包壳"体系。FCM 燃料最初概念由 ORNL(橡树岭国家实验室)及 USNC(Ultra Safe Nuclear, 美国超安全核公司)联合提出,并主要由 ORNL 进行开发: 美国 对 SiC 材料研究开始较早,在福岛事故之前,ORNL 就已经开展相应研究,至今 已具备制作部分长度 SiC 复合材料包壳能力。

全球核燃料(GNF)和西屋公司正在与美国能源部(DOE)合作,以在 2025年之前将 ATF 概念商业化。2018年初,由通用电气、东芝、日立三方联合投资建立的全球核燃料(GNF)公司在南方核电公司哈奇核电站 1号机组装载了耐事故核燃料铅测试组件,现已完成为期 24个月的燃料循环。现在,技术人员将对铅测试棒的样本进行测试。此次测试包括两种组件: IronClad 和 ARMOR。IronClad组件包壳材料是铁-铬-铝材料,在一系列条件下具有抗氧化性和极好的材料性能。ARMOR组件是在标准锆燃料棒包壳上增加了涂层,更具抗氧化性。

西屋电气公司将事故容错燃料作为其引领核能技术创新的新高点。2017 年 4 月西屋电气公司在全球率先正式宣布推出 ATF 燃料的品牌 EnCoreTM, 采用 U₃Si₂/UN 芯体和 SiC 复合包壳。2017 年 6 月, 西屋宣布 EnCore 首批先导测试组 件于 2019 年初装入 Exelon 公司旗下位于伊利诺斯州的拜伦(Byron)核电厂。 EnCore 燃料第一阶段是采用硅化铀芯块,并在锆合金包壳材料表层镀铬、铬涂 层可减轻高温下对包壳的氧化和吸氢作用,从而提高包壳材料的耐受性。第二阶 段将使用硅化铀燃料芯块和碳化硅包壳材料,以更好的抵御事故高温。西屋公司 的项目工程师认为,碳化硅材料的加盟,有望把燃料棒的耐热能力提升到 1800 摄氏度。同样可以改进的还有高密度燃料芯块,比如铀硅化物和一氮化铀,这两 种新材料的导热率比目前所用的二氧化铀分别提升了 5 倍和 10 倍, 铀 235 的含 量则分别提升了 17%和 35%, 这就能在不降低发电功率的情况下, 减少燃料用 量和体积,燃料芯块在冷却系统失灵时也不容易聚集热量,安全性和经济性都得 到改善。按照计划,西屋碳化硅包壳的先导测试组件有望于 2022 年入堆考验, 2025 年前后实现批量换料。而当前,已有多家核电业表示愿意使用西屋的 EnCore 燃料。2018年5月,西班牙 ENSUA 公司和西屋电气公司签署了框架合作协议, 合作开发西屋 EnCore 耐事故燃料。2019年1月美国西屋电气公司宣布,已获得 美国能源部提供的 9360 万美元资金, 用于其事故容错燃料计划—EnCore 燃料的 研发。西屋公司用这笔资金与 General Atomics、美国国家实验室和大学开展合作, 力争于 2022 年将碳化硅包壳置于商业反应堆中进行辐照,同时该笔资金还将用 于首个装有 Encore 燃料先导测试棒的测试。

(2) 法国

法国也确定了其 ATF 燃料的技术路线,短期包括锆合金涂层和 UO $_2$ 芯块改进,长期包括光桥公司的金属燃料和 SiC $_f$ 复合包壳。

公开信息显示,阿海珐事故容错燃料阵营中主要包括 ATRIUMTM11 先进沸水堆燃料,以及 GAIA 和 HTPTM 压水堆燃料。据了解,作为阿海珐最先进的沸水堆燃料,ATRIUMTM11 通过提高铀的使用效率,满足高能量燃料循环的需求,提高成本收益和更高的运行灵活性,尤其适用于已实施功率提升和优化容量因子

运营策略的核电站。截至 2018 年 8 月,全球已有 5 座反应堆采用 ATRIUMTM11 燃料: GAIA 压水堆燃料设计中包括了能够提高燃料组件结构稳定性的 O12 锆合 金结构材料,使燃料具备更高的热性能和改良的机械性能,全球有两座反应堆采 用该燃料: HTPTM 燃料组件将推进核电站在 2030 年前向更长的燃料循环过渡, 全球约有 20000 套 HTPTM 燃料组件装入了 50 座反应堆, 近一半组件在美国。 阿海珐在 ATF 的研发方向主要放在了先进包壳上,主要按照研发周期分为短期 技术和中期技术。短期技术主要方向是 UO2 芯块添加 Cr2O3 以及 Cr 涂层的 Zr 合 金改进型包壳。阿海珐认为 Cr 涂层的 M5 合金包壳是目前最先进、工艺最成熟 的改进包壳,其最初由阿海珐、法国原子能委员会及法国电力集团联合开发,目 前该包壳在评估中已经展现出了多项优良特性,比如高可靠性、经济性及耐腐蚀 性,并且与 Zr 合金相容性较好,在试验中极少出现开裂和剥落,并能有效抗腐 蚀,是综合性能最优良,最有前景的涂层材料。阿海珐判断 ATF 长期技术的风 险较大并且存在技术挑战,故开发主要还是集中在短期技术上。在短期技术具有 可行性的前提下,阿海珐也在探索一些可能的,未来可能展现更加优良性能的中 期技术, 比如 SiC/SiC 复合包壳。目前涂层及 SiC 两种包壳材料均从 2016 年中 开始在瑞士 Gosgen 核电站进行辐照,这是首例 ATF 概念燃料入商业压水堆辐照 (IMAGO 堆)。

法国法马通也正在美国能源部资助下研发两种事故容错燃料技术:一种是铬涂层包壳,铬涂层能够提高包壳在高温下的抗氧化能力并减少氢气的产生;另一种是掺铬的氧化铀芯块,这种芯块对事故工况的承受能力更强,能够在失水事故中减少裂变气体的释放。26 根微型燃料棒已在先进试验堆的一个专用试验回路中接受测试。该回路可模拟商业轻水堆的冷却剂工况。先进研究堆能够使燃料样品加速老化,因此能在数月时间里复制燃料样品在经过多年中子损伤后的形态。

(3) 韩国

韩国在 ATF 研发上分为芯块和包壳两个发展方向。在芯块方面,将其独有的微晶胞 UO₂芯块作为短期技术;将高密度氮化物及硅化物燃料作为中期技术。包壳方面,韩国将开发重点放在了事故工况下减少产氢方面,同时希望包壳材料

在短中期可实现,故将表面改良 Zr 合金包作为短期技术而金属-陶瓷 SiC 复合材料包壳作为中期技术。

韩国在综合评估美国大致路线后认为:中期技术一旦研发成功并应用,可显著提高核电厂的安全性。但该方向涉及到了材料方面的基础性改革,研发周期和申请资格的周期均较长,需要大量的资金和时间投入。而目前的"UO₂ 芯块-Zr 包壳"燃料体系,有成熟的运行经验、辐照数据,因此,韩国的主要研发方向还是放在以"UO₂ 芯块-Zr 包壳"燃料体系为基础的改良上,以期以最小的时间金钱成本得到较好的燃料性能提升。目前主要研究方向是微晶胞 UO₂ 芯块以及表面改良 Zr 包壳。未来也将进行相应的辐照试验。

韩国原子能研究院通过电弧离子镀、等离子溅射和激光涂覆技术,制备出锆合金表面有 Si 涂层和 Cr 涂层的燃料包壳。韩国原子能研究院过实验分析得出,采用激光束扫描制备的 Si 和 Cr 膜均与锆合金紧密结合。通过腐蚀实验,Si 和 Cr 的腐蚀增重远小于锆合金,说明抗腐蚀能力均优于锆合金。其中 Si 氧化后形成的致密 SiO₂ 具有非常好的保护能力,抗氧化腐蚀能力很强。显微分析表明,氧化腐蚀试验后的 Si 和 Cr 涂层样品均没有裂纹等严重缺陷,涂层质量良好。

(4) 俄罗斯

2011年福岛核事故之后,俄罗斯燃料公司(TVEL)下属无机材料研究院便牵头负责事故容错燃料的研发工作,主要聚焦燃料包壳材料和芯块,包括锆合金包壳的铬涂层、42XHM 铬镍合金包壳、复合材料(碳化硅等)、铀钼燃料等。其中,锆合金铬涂层方案可阻断锆金属同一回路冷却剂的接触,进而减少严重事故情况下氢气的产生,该方案的实施也最为快捷;铬镍合金包壳方案可以完全替代锆合金,但需要解决中子捕获截面大和材料论证等问题,耗时较长;复合材料是未来趋势,但其脆性等问题是需要突破的难点。目前,俄罗斯已掌握锆合金包壳耐热涂层和非锆材料焊接工艺,并完成了第一批铀钼燃料芯块的生产。

2018年7月,TVEL决定开发用于轻水堆的耐事故燃料(ATF),研究内容包括新的燃料棒包层和新的燃料基体。研究内容的第一种解决方案是应用于燃料棒包层的耐高温铬涂层。这种涂层可以防止锆与主回路中的冷却剂接触,从而减

少在发生严重事故时可能产生的氢气量。第 2 个解决方案是使用 42HNM 合金。 该选项可将锆完全排除在堆芯之外。虽然 42HNM 合金中所包含同位素的热中子 俘获截面比锆大,但合金的机械性能意味着可以减小包层的厚度。第3个研究内 容是使用铀-钼二氧化铀燃料,从而改变燃料基体。这将增加燃料基体的密度, 从而增加燃料组件的铀容量。铀-钼燃料的导热性使其可以减少活性区中积聚的 热量,并可在违反操作条件的情况下减少能量的释放。2018年12月,俄罗斯生 产了2组耐事故核燃料试验组件,燃料分别采用传统的二氧化铀和铀钼芯块,燃 料包壳分别采用锆合金加铬涂层和 42XHM 铬镍合金。同月, 俄罗斯国立核研究 大学"莫斯科工程物理学院"(NRNU MEPhI)的科学家研制出 MIR 反应堆照 射装置所需的含铬保护涂层包壳后,解决了研发事故容错核燃料道路上燃料元件 (燃料棒)包壳表面涂层成分的选择问题。离子束处理燃料管的方法是用氩离子 抛光或蚀刻管子表面,以处理粗糙不平之处。然后,在不破坏安装室真空的情况 下,在管子表面以涂层形式(最厚 10 微米)逐层喷镀装在磁控管(在电极表面 产生特殊等离子体放电以便用等离子体离子喷射该电极的装置)上用作电极的合 金。2019年11月, TVEL 在位于季米特洛夫格勒的国家原子能反应堆研究所完 成了耐事故燃料第一阶段反应堆测试。该阶段测试始于 2019 年 1 月,两组实验 性事故容错燃料组件与俄制 VVER 燃料棒和西方国家制 PWR 燃料棒一同载入 MIR 研究堆中。每组事故容错燃料组件包含 24 个燃料元件,以及 4 种不同包壳 和燃料基体材料。燃料芯块由传统二氧化铀和铀-钼合金制成,并采用镀铬锆合 金和铬镍合金作为燃料棒包壳材料。2019年12月, TVEL 子公司已在新西伯利 亚化学浓缩厂制造出首批用于商用反应堆的耐事故核燃料组件。这批核燃料组件 含有实验性耐事故燃料棒,现已通过验收。在2020年第一季度,俄罗斯罗斯托 夫核电站的一个 VVER-1000 反应堆安装这批核燃料组件,包括 3 组 TVS-2M 型 耐事故核燃料组件,每个组件都包含12根耐事故核燃料棒,核燃料棒包壳材料 有两种不同的选择:一种是镀铬的锆合金,另一种是铬-镍合金,这些材料都使 包壳更耐热。

(5) 中国

在事故容错燃料领域,中国正紧跟国际步伐,出台了一系列相关政策。2016 年6月,国家发改委、国家能源局发布的《能源技术革命创新行动计划 2016-2030》 提出实现自主先进核燃料元件的示范应用,推进事故容错燃料元件、环形燃料元 件的辐照考验和商业运行, 具备国际领先核燃料研发设计能力。《能源技术革命 重点创新行动路线图》明确了 ATF 相关重点研发任务,提出到 2020 年在先进核 燃料元件方面,实现自主先进核燃料元件的应用;事故容错燃料元件、环形燃料 元件初步具备辐照考验条件; 研制 MOX 燃料示范快堆考验组件并完成辐照考验; 到 2030 年先进核燃料元件,具备国际领先核燃料研发设计能力,事故容错燃料 先导棒/先导组件实现商用堆辐照考验,初步实现环形元件在压水堆核电站商业 运行; MOX 组件批量化生产管理技术达到国际先进水平, 快堆金属元件具备规 模化应用条件。2016年6月,国家发改委、国家工信部、国家能源局联合印发 了关于《中国制造 2025 能源装备实施方案的通知》, 提出研发 CF/STEP 系列燃 料元件、模块化小堆燃料元件、高性能事故容错燃料元件、环形元件、超临界压 水堆燃料元件等新一代压水堆燃料元件,掌握快堆 MOX 燃料组件设计、制造技 术,开发高温气冷堆球形燃料元件、快堆金属燃料元件等第四代反应堆燃料元件, 突破锆合金材料,自主掌握燃料元件生产、检测、核燃料组件检测及修复设备等 设计制造技术。其中,对高性能事故容错燃料元件技术的研究,计划于 2020 年 完成元件研制,推进试验示范,2025年形成元件批量生产能力。2016年12月, 国家能源局印发的《能源技术创新"十三五"规划》再次明确,中国要研制 ATF 元件,研制性能优于 M5、ZIRLO 合金的新锆合金包壳材料。该规划要求,"十 三五"期间,ATF 应完成可行性验证及初步设计,适时启动材料堆外性能测试、 堆内辐照考验;同时在第一代ATF反馈基础上,积极优化革新型第二代ATF燃 料新材料选型论证及关键技术研究。

随着核电多路线、规模化发展,中国近年来进行了一系列事故容错燃料相关研发的实践。国内首条 AP1000 核电燃料元件生产线已于 2017 年 12 月 22 日圆满完成三门核电站首炉换料燃料组件生产,并已与国核宝钛签订了为海阳核电站后续换料采用国产 Zirlo 锆合金包壳等锆材的合同。这与从其他国家引进核燃料

技术不同,AP1000 核电燃料元件技术引进的同时,也引进锆合金的全套生产线。 这标志着中国已掌握法国、俄罗斯、加拿大与美国的核电燃料元件生产技术。

从 1991 年中国引进法国 AFA2G 核燃料元件制造技术开始,至 2007 年引进 俄罗斯 VVER 核燃料元件制造技术和美国西屋 AP1000 核燃料元件制造技术, 虽然中国核燃料元件制造技术已达到国际先进水平,但目前燃料元件的辐照和辐照后的检测领域仍然是明显短板。核燃料产业要实现"走出去",要搞好顶层设计。核燃料元件研发周期长,资金投入大,更应加强统筹。如辐照与辐照后的检测、耐事故燃料元件研发、材料基因组计划等领域,减少不必要的重复投入,以便加快推进速度,争取在国际上取得更多的话语。

在 ATF 燃料元件研究方面,中国广核集团有限公司(中广核)在国内率先 启动 ATF 研发工作。2013 年,中广核相继获得国家重大专项、中广核战略专项 以及深圳市科创课题等项目支持,并聘请国内外知名专家成立学术委员会,指导 ATF 研发工作。同时与国家电力投资集团、中国科学院、中国工程物理研究院、 清华大学、西安交通大学等各领域顶尖团队开展合作,形成了产、学、研、用一 体化研发联盟, 使中国 ATF 研发与世界核电强国并驾齐驱。此外, 中广核依托 深圳市 ATF 工程实验室,建成了国内首个 ATF 堆外试验综合平台及 4 个联合试 验室/研发中心。2015年,国家指定由中广核牵头国家科技重大专项课题——"事 故容错燃料关键技术研究",联合中国科学院、中国工程物理研究院、清华大学、 西安交通大学等科研院所和高校,组成 ATF 技术研发国家队与燃料产业联盟。 2017年,中广核顺利完成了ATF燃料概念设计,编制出具有自主知识产权的ATF 性能分析软件,研究了一系列针对典型 ATF 的评价准则,突破了先进包壳与芯 块材料的成分设计与制备工艺,并初步评价了事故工况下 ATF 的安全收益。中 广核此时正在全力研发 S2FTM(Super Safe Fuel) 系列超级安全燃料,按照规划, 中广核将对核燃料材料分步实施替代,采用新型包壳与新型芯块组合成 S2FTM 系列燃料组件。2019年1月,在中国工程物理研究院核物理与化学研究所与中 广核研究院有限公司的共同见证下,由中广核自主研发设计的 S2FPI-A 型事故 容错燃料小棒,顺利载入研究堆,正式开始辐照考验工作。此次燃料小棒入堆,

是国内首次实现 ATF 燃料堆内辐照,标志着中广核在 ATF 燃料型号研发工作中迈出了重要的一步,具有重大里程碑意义。通过研究堆辐照试验,研究人员将获得 ATF 燃料在堆内辐照的宝贵数据。试验也将为后期计算建模和先导棒入堆工作提供有力支撑,具有重要价值。

七、结论

本报告围绕核燃料领域颠覆性技术识别需求,以 SCIE 期刊论文和智慧芽平台专利数据为分析对象,以公司自主开发设计的 ITGInsight 软件和 Excel 为主要分析工具,围绕论文、专利进行了文献调研与多维度计量和挖掘分析,研究或分析内容主要包括: 1) 介绍核燃料的定义、类型、制备方法; 2) 基于文献、专利等公开信息来源,利用文献分析工具 ITGInsight 展示核燃料发展概况; 3) 利用趋势分析和高被引文献调研确定核燃料领域颠覆性技术; 4) 基于文献调研及计量分析方法研判颠覆性技术 ATF 的发展概况及研究热点,预测其发展趋势。通过上述分析,明确了事故容错燃料为未来潜在的颠覆性技术。主要结论如下:

从国家角度来看,在文献方面,曾经存在于欧洲中部的社会主义国家东德核燃料发文量排名第一,美国居于第二位。后来东德退居第二位,之后便再未出现,此时美国超越东德成为第一,并以绝对的技术优势维持至今。日本、法国和德国三个国家一直以来在核燃料领域都保持着重要地位,但近十年,日本、法国和德国有下降的趋势,日渐衰落。韩国发展一直比较稳定,中国相比韩国出现时间较晚,但成长速度较快。随着时间的增长,中国、韩国在国际舞台上中流砥柱地位也愈发凸显。在专利方面,美国在其专利以及知识产权保护制度相对完善成熟的环境下一直以超级核电强国的身份存在。德国、法国、瑞士等老牌的核电技术强国过去核燃料专利较多,但目前处于发展停滞之际。日本、韩国等国家迅速发展,瞄准新兴核电强国的位置。中国、俄罗斯等发展中大国也都积极增加核电,加快对核燃料的研究速度,核燃料专利数量虽较少但排名呈上升趋势。

从机构角度来看,**在文献方面**,日本机构是 20 世纪末核燃料的主力军,日立、日本原子能研究所(JAERI)接连占据核燃料发文量第一的位置。韩国原子能研究院和中科院等机构取代了日本机构成为如今核燃料领域的中流砥柱,并且中科院的科研实力很可能在未来相当长一段时间内处于 top1。美国机构,如橡树岭国家实验室、爱达荷州国家实验室,在核燃料领域扮演着重要角色。**在专利方面**,传统核电巨头的西屋公司、通用电气公司、阿海珐公司等强势布局,通用电

气/日立公司、株式会社东芝、韩国原子能公司等表现不俗,中国的核电技术公司 更是异军突起,在激烈争夺中近几年遥遥领先于其他核电技术公司。

从研究热点角度来看,在文献方面,科研人员对核燃料领域的研究主要分为 4个方面:核聚变研究;反应堆的安全性研究;事故容错燃料的研究以及相关技 术;核燃料后处理技术。在专利方面,全球核燃料专利技术主要研究热点大体围 绕以下5个方面进行:对不同类型核燃料的研究;对不同类型反应堆核燃料的研 究: 对核电站的工作设备和运行原理的研究: 核反应堆的组成结构与运行原理的 研究: 乏燃料的后处理。由前文颠覆性技术识别结果可知, 研究新的核燃料系统 或者提高现有核燃料的事故容错性能是核燃料领域的研究热点和发展趋势。2012 年,美国提出了事故容错燃料的概念之后,欧洲国家、中国、日本、韩国等相关 国家均开展研究。目前 ATF 芯块有若干技术路线,本报告识别出的 ATF 芯块材 料的研发方向包括: 1)新型 UO_2 燃料,即对 UO_2 燃料进行改进,使其符合 ATF 的特征: 2) 铀合金, 例如 U-Mo 合金、U-Zr 合金等: 3) 高密度陶瓷芯体, 包括 U₃Si₂、UN等; 4)全陶瓷微封装(FCM)芯体。另一方面,也需要从燃料包壳 的角度出发,使得包壳能够满足与芯块相匹配的一些要求。对 ATF 包壳材料的 研究主要集中在锆合金涂层和替代材料上,**本报告识别出的 ATF 包壳材料的研** 发方向包括: 1) 改进型锆合金,利用先进材料及工艺对锆合金包壳进行涂覆以 增强其性能,涂层包括 SiC、MAX 相及其他: 2) 陶瓷基复合材料,包括 SiC 复 合包壳、MAX 相材料等; 3) 金属包壳, FeCrAl 合金和 Mo 合金等难熔金属。

美国、法国、韩国、日本、俄罗斯等国家已将事故容错燃料列为政府新一代先进燃料研发计划。以美国为首,研究机构包括通用电气、西屋等多所公司、爱达荷等多个国家实验室、麻省理工等多所大学,涉及领域包括涂层、合金及 SiC 包壳材料;高密度燃料材料、FCM 燃料及 U-Mo 燃料;各种辐照及氧化试验等等。法国、韩国、日本和德国等国家也有一些相应研究,例如英国国家核能实验室的高密度燃料项目、瑞士保罗谢勒研究所的 SiC 包壳项目等等。中国各高校及研究院也针对 ATF 做了很多研究,并设立了 ATF 重大科研专项,涉及单位包括中核、中广核、清华大学、西安交大等,研究领域主要为一些主流 ATF 燃料及包

壳。ATF燃料目前还在研究探索阶段,材料性能探索及制造工艺上还存在一定困难,但其具有优越的安全性,前景光明,将会是未来燃料发展的重点之一,具有颠覆性潜力,改变已有规则。

当前国际事故容错燃料正处于概念选型阶段,美、法等核电强国虽尚未形成 大规模技术垄断,但已产生部分专利并开始在世界范围内进行知识产权布局。另 外,事故容错燃料的研发和应用,将从根本上提高核燃料和反应堆对严重事故的 抵抗能力,有效缓解严重事故后果,使目前的在役核电站不需进行重大的安全系 统改造便可实现堆芯系统安全性能的显著提升,并有可能形成新的核电安全标准。 以国际核能界的重视程度来看,在未来可能很快围绕事故容错燃料形成新的专利 和安全标准的垄断,这对我国自主核能发展造成不利影响。因此,我国开展该领 域研制工作十分重要和紧迫。

我国应尽早统一规划核燃料试验技术设施,以建立系统、完善的燃料试验体系(包括事故工况试验),打造出技术先进、设施齐全的世界一流核燃料研发体系,以满足核燃料发展所需的软硬件条件。积极部署 ATF 等先进燃料研发工作,积极开展高熵合金、材料基因工程、核燃料多尺度研究,大力提升我国革命性核燃料和材料技术创新及产业发展能力,早日实现我国自主品牌先进核燃料和材料的应用,引领国际先进核燃料和材料发展。