

【校庆特稿】

脉冲电流作用下核反应堆压力容器修复延寿技术

张新房^{1,2,3}, 李弼谦¹, 周梦程^{2,3}, 张雅婷¹, 李 澍¹

(1. 北京科技大学 冶金与生态工程学院, 北京 100083;

2. 内蒙古科技大学 轻稀土资源绿色提取与高效利用教育部重点实验室, 内蒙古 包头 014010;

3. 内蒙古科技大学 稀土产业学院, 内蒙古 包头 014010)

摘 要:核反应堆压力容器钢的使用年限直接决定了核电站的服役寿命。压力容器钢在中子辐照环境下长期服役会逐渐产生大量位错环和纳米团簇缺陷, 导致材料脆化甚至失效, 严重威胁核反应堆的安全运行。传统退火处理可使材料性能部分恢复, 但需对压力容器进行整体拆卸, 导致反应堆长时间停堆, 造成巨大经济损失。作为一项绿色高效的技术, 脉冲电流“原位”修复处理为实现核反应堆压力容器服役延寿提供了新途径。简要综述了脉冲电流修复机理、服役寿命预测方程构建以及实用案例, 对未来核反应堆关键构件延寿技术的发展具有重大意义。

关键词:脉冲电流; 核反应堆压力容器; 辐照缺陷; 性能修复; 寿命预测

中图分类号: TM 623; TG 142 **文献标识码:** A DOI:10.13486/j.issn.2097-4973.2024.01.003

随着当今核能产业的发展, 我国不仅全力推进新型核电机组的建设工作, 对在役核电站的寿命管理也高度重视。通过有效的寿命管理, 在确保安全的前提下延长现役核电站的实际运行寿命, 一方面可以节约 80%~90% 的建设经济成本(约 200 亿元/机组), 另一方面还能显著减少二氧化碳的排放, 大大提高低碳电力的可用性和稳定性。至今, 国内外诸多核电站运行时间已超过设计寿命 60%, 均出现了迫切延寿的需求, 且随着服役时间的增加, 未来将会出现更多的核电机组面临老化延寿的问题。

作为核电站整个设计周期中唯一不可替代的关键构件, 核反应堆压力容器长期暴露于高温、高压和高能中子环境中, 在其使用期间会发生辐照脆化等性能恶化现象^[1-3], 严重时将导致部件失效风险及爆炸性事故, 直接威胁整个核电站的运行安全。目前, 具有良好强塑性、抗疲劳性和焊接性等优异性能的 SA508-3 钢被广泛应用于压力容器钢的制造, 但其在苛刻服役环境温度(300 °C)下, 杂质元素(Cu、Ni、Mn 等)的固溶度将远低于其在冶炼条件下所控制的含量, 从而析出导致材料发生硬脆化^[4-5]。在服役初期(前 20 年), 空位、间隙原子团簇聚集导致的位错环等点缺陷是压力容器辐照脆化损伤的重要原因之一^[6-8], 典型缺陷位错环主要包括空位型位错环和间隙型位错环, 矢量表现为 $1/2\langle 111 \rangle$ 和 $\langle 100 \rangle$ ^[6-7]; 服役中后期(后 20 年), 高数量密度的纳米团簇(富 Cu 相, $\text{Cu} > 0.072\%$; 富 Ni、Mn、Si 相, $\text{Cu} < 0.072\%$)^[9-12] 是辐照脆化的另外一个主要原因, 中子辐照引起的空位级联与杂质原子发生交互作用, 扩散增强机制导致极其细小的纳米团簇形核长大, 尺寸约为 2~3 nm, 呈圆盘状, 厚度为 1~2 原子层厚^[4,13]。由于辐照损伤随着服役时间的

收稿日期:2024-07-03

基金项目:国家自然科学基金项目(U21B2082); 国家重点研发计划项目(2023YFB3709903); 山东省重点研发计划项目(2023CXGC010406); 北京市自然科学基金资助项目(2222065); 中央高校基本科研业务费项目(FRF-TP-20-04B); 中央高校基本科研业务费专项资金(FRF-TP-22-02C2)

第一作者简介:张新房(1981—), 男, 山东滨州人, 教授, 博士, 博士生导师, 主要从事金属材料冶金过程的电磁精准控制基础研究。E-mail: xfzhang@ustb.edu.cn

增加而不断积累,压力容器将发生严重硬化、韧脆转变温度(DBTT)降低等性能恶化现象,最终导致其脆化断裂失效。

因此,当性能恶化限制了核反应堆压力容器安全运行时,就应考虑使用合理可靠的技术来恢复材料性能以延长压力容器的寿命。目前,工业上普遍采用退火处理来恢复材料性能,但由于处理温度高、周期长、经济代价大等局限性,并不能完全满足压力容器的多方面延寿需求。绿色、高效的核反应堆压力容器延寿新技术研究及开发工作正在不断的发展之中,大量的学者和工程技术人员进行了诸多尝试,在技术创新上也有了一定程度的突破,尤其是本课题组近几年提出的脉冲电流修复延寿技术引起了业界广泛的关注与追踪研究。本文将对核反应堆压力容器脉冲电流修复延寿技术的最新研究进展进行总结,简要综述脉冲电流调控辐照缺陷的机理、电磁场下服役寿命预测方程的构建并列举部分电磁修复的实例。

1 传统热退火修复技术现状

1.1 热退火技术对辐照缺陷的消除

核反应堆压力容器的辐照脆化是核反应堆长期运行(Long Term Operation, LTO)评估的关键要素之一,而导致脆化的根本原因是长期服役过程中材料内辐照缺陷(位错环、纳米团簇)的产生。目前,工业应用较为广泛的退火处理技术是利用高温消除微观辐照缺陷实现材料性能的恢复。在退火过程中,由于温度的升高,空位会加速扩散,进而增加与位错环碰撞湮灭的概率,达到消除位错环的效果;同时,高温条件下纳米团簇中大量的 Ni、Mn、Si 和 Cu 等原子会更快扩散至基体,促进纳米团簇的溶解。由热力学条件可知:当合金的成分处于过饱和状态时,纳米团簇析出化学自由能变化始终小于 0,其会通过原子上坡扩散生长。因此,如果要抑制纳米团簇的析出进程或消除纳米团簇必须引入额外的能量使其析出过程的自由能变化大于 0。

Kryukov 等^[14]对高 Cu 含量的 VVER-440 损伤压力容器钢在不同温度及保温时间下进行了一系列退火处理实验,最终根据性能恢复效果确定了退火处理最佳参数为 475 °C、100 h。同时,Steele 等^[15]对不同型号的 EP-19 压力容器钢在 371~454 °C、168 h 的退火处理条件下也进行了多组实验,其各项力学性能的恢复效果如表 1 所示。从表 1 可以发现,退火处理温度越高,性能修复率也越高。

表 1 核反应堆压力容器辐照-退火-再辐照过程中力学性能演变^[15]

退火温度/°C	辐照注量 /(10 ¹⁹ n · m ⁻²)	上平台能/J		韧脆转变温度/°C		屈服强度/MPa	
		辐照态	退火后	辐照态	退火后	辐照态	退火后
348	1.0	58	72	80	53	625	—
	1.5	56	48	110	80	660	—
371	1.0	58	74	80	63	625	—
	1.5	56	59	110	83	660	—
400	1.0	58	78	80	20	625	—
	1.5	56	62	110	62	660	—
427	1.0	58	86	80	3	625	530
	1.5	56	68	110	25	660	540
454	1.0	58	90	80	-8	625	500
	1.5	56	72	110	22	660	535

此外,其他研究结果表明^[16-20],在 475~500 °C 退火温度下,压力容器钢中的位错环可以基本消除,但纳米团簇只能部分溶解,且会出现粗化现象。

1.2 热退火修复技术的局限性

核反应堆压力容器的退火处理通常是在较高的温度(370~500 °C)和较长的保温时间(150 h)下的局部热处理^[21-23],且退火的性能恢复有效性随着温度的升高而增加^[24-25]。同时,退火热处理工艺的临界溶解温度区间要求十分严格:若修复温度低于溶解温度,辐照缺陷消除不彻底,依旧会影响材料性能;若修复温度高于服役温度将会直接导致停机处理,从而造成不可估量的经济损失。此外,退火热处理需要将压力容器保温至少 100 h,考虑压力容器升、降温过程中所消耗的时间^[26],整体退火工艺需要至少 300 h。同时,退火处理前后对反应堆进行必要改造也同样需要花费较长时间。因此,通过传统退火处理修复压力容器性能损伤实际施工需要花费至少数百小时,不具备在常规一个月检修窗口进行退火处理的可行性。同时,核反应堆压力容器具有不可拆卸性,如何采用热处理手段进行现场“原位”修复也是必须考虑的难题。

考虑到传统退火热处理的诸多局限性,越来越多的学者及工程技术人员开始重视压力容器延寿新技术的开发,试图找寻一种新的低温、高效“原位”修复技术。近年来,本课题组提出的脉冲电流修复延寿技术引起了业界广泛的关注,下文将对该项新技术的发展现状进行总结。

2 核反应堆压力容器脉冲电流修复技术

2.1 脉冲电流消除辐照缺陷机理

脉冲电流处理作为一种瞬时高密度的能量输入方法,在金属材料性能强化方面的研究已有几十年的历史^[27-29]。按照波形分类,常见的脉冲电流主要有矩形波、尖波和衰减波。它具有作用时间短、响应速度快、能量利用率高等优点,以相当低的能耗即可向材料提供较大的电流强度,进而快速调控材料的微结构特征^[28-29]。相关研究表明^[27],当脉冲电流通过材料时,其基体内部会产生电迁移、焦耳热效应等,使材料微结构发生改变。因此,压力容器内的辐照缺陷在脉冲电流的作用下也将发生相应改变:位错、位错环在电场的物理作用下会发生滑移、反应湮灭等行为,从而降低位错缺陷的密度;同时,纳米团簇与钢基体的电导率差异将导致体系的电流分布变化差异,进而诱发体系自由能变化,从而促进纳米团簇的溶解。综上,关于脉冲电流消除辐照缺陷机理的如下。

(1) 脉冲电场下位错组态的调控。众多研究表明^[27-31],脉冲电流对材料内位错缺陷起主要作用的电子风力可以辅助位错缺陷消除、位错组态调控。Conrad 等^[27]通过量化电子与位错的相互作用,得到电子风力 F_{ew} 量子力学表达式为^[29-33]

$$F_{ew} = \alpha \cdot b \cdot p_f \cdot n_e \cdot (v_e - v_d) \quad (1)$$

式中: α 为常数,取值一般为 0.25~1.0; b 为 Burgers 矢量; p_f 为费米动量; v_e 和 v_d 分别为漂移电子和位错的移动速度。由方程(1)可知,当 $v_e > v_d$ 时,漂移电子有驱动位错加速移动的趋势,因此同一个滑移面的正负位错在电子风力作用下会加速相遇并湮灭。根据 Sprecher 等^[32]的研究,位错移动的激活焓可由

$$\Delta G = \Delta H^* - T \cdot \Delta S^* \quad (2)$$

表示。式中, $\Delta H(\sigma^*) = \Delta H^* - v^* \sigma^*$, σ^* 是使位错移动的有效应力,由于脉冲电流提供的电子风力为 σ_{ew} ,该应力会由初始应力 σ_0^* 变为 σ_i^* :

$$\sigma_i^* = \sigma_0^* - E(\Delta \varepsilon_p + \alpha_L \Delta T + v_p \mu_m J^2 a^2 / 2E) + \mu_m J^2 a^2 / 4 + \sigma_{ew} \quad (3)$$

式中: E 为材料的杨氏模量, $\Delta \varepsilon_p$ 为材料的弹性形变, $\alpha_L \Delta T$ 为焦耳热引起的热膨胀导致的应变, $\mu_m J^2 a^2 / 4$ 为箍缩效应引起的弹性应变, $v_p \mu_m J^2 a^2 / 2E$ 是由箍缩效应产生的径向应力。由方程(3)可知,电子风力 σ_{ew} 通过增大位错移动的有效应力 σ_i^* 可以使得位错移动激活焓 $\Delta H(\sigma^*)$ 降低,将其代入方程(2)中,位错移动激活能 ΔG 相应降低,从而使位错更容易发生滑移。结合电子风力作用,将进一步促进正负位错的相互接近、湮灭,从而显著降低位错密度。此外,电子风力垂直于滑移面的分量也会促进位错向其他滑移面攀移,从而更容易克服障碍粒子(位错环、团簇等)的钉扎作用,缓解材料的硬脆化。

(2) 脉冲电场下位错环的湮灭。服役过程中随着辐照剂量的增加,材料内的点缺陷不断聚集后将演

变成稳定存在的位错环,导致性能恶化。研究表明^[6-8],消除位错环的关键在于位错环与空位之间的碰撞湮灭,在传统热场下,空位的扩散系数强烈依赖于激活能和温度,因此热空位的扩散速率有限,且扩散方向随机,这使得位错环的消除需要较高的温度和较长的时间来提供足够的能量。而在脉冲电场下,高速运动的载流子会对材料内点缺陷产生高频周期性冲击,促使原子和点缺陷处于相对较高的能态,从而降低点缺陷跨越相邻点位能量壁垒所需的最小能量,使得空位更容易形成和迁移^[34-35]。根据扩散定律和电迁移理论,空位缺陷在浓度梯度和脉冲电流作用下的总扩散通量 J_t 可以表示为^[36]

$$J_t = J_c + J_e = D_i \left(-\frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + C_i \frac{D_0}{kT} Z^* e \rho j \exp\left(-\frac{Q_i}{kT}\right) \quad (4)$$

式中: J_c 为浓度梯度导致的空位通量, J_e 为脉冲电流导致的空位通量, D_i 为扩散系数, C_i 为空位浓度, D_0 为指前扩散因子, k 为玻尔兹曼常数, Z^* 为有效电荷数, e 为电子电荷, ρ 为电阻率, j 为电流密度, Q_i 为激活能。由方程(4)可知,随着脉冲电流处理温度的升高,空位的扩散系数 D_i 会相应升高,同时由于 j 的存在,脉冲电流引起的额外原子扩散通量 J_e 会显著增加总扩散通量 J_t 。此外,Tu 等也证明了电场力(直接力和电子风力)可以提高空位的扩散系数^[37-39]。因此,在脉冲电流作用下,材料内的空位缺陷会在电子风力作用下形成定向的空位流,且扩散速度大大增加,空位与位错环间碰撞的概率也相应增加,促进了辐照位错环的快速湮灭。

(3) 脉冲电场下纳米团簇的溶解。Dolinsky 等^[40] 和 Qin 等^[41-42] 的研究表明,脉冲电流下体系自由能的降低是结构演变的驱动力,大量相关研究显示电流作用下金属材料的电阻率会降低,即缺陷密度会减少。理论上,通常采用 Maxwell 方程推导体系的自由能变化与电阻之间的关系,从而预测电流作用下异质颗粒的结构演变行为。经过一系列的推导,可以得出脉冲电流产生的额外自由能为^[40-44]

$$\Delta G_{de} = \frac{\mu(r')}{8\pi} \iint_{VV} \frac{\vec{j}_b(r) \cdot \vec{j}_b(r') - \vec{j}_a(r) \cdot \vec{j}_a(r')}{|r - r'|} dr dr' \quad (5)$$

式中: $j_b(r)$ 和 $j_a(r)$ 分别为微观组织变化前后材料内的电流密度分布, r 和 r' 分别为体系内不同的两个位置。在绝热条件下,电流分布须满足 $\text{rot} \frac{\vec{j}}{\sigma} = 0, \text{div} \vec{j} = 0, \sigma$ 是电导率。简化后可得出额外的电自由能^[43-44]

$$\Delta G_{de} = \frac{\sigma_{\text{particle}} - \sigma_{\text{matrix}}}{2\sigma_{\text{matrix}} + \sigma_{\text{particle}}} k \cdot V \cdot j^2 \quad (6)$$

式中: σ_{matrix} 为基体电导率, σ_{particle} 为第二相颗粒电导率, k 为几何因子, j 为电流密度, V 为第二相颗粒的体积。因此,由方程(6)可知,异质结构的纳米团簇在材料内析出会导致电自由能 ΔG_{de} 变化。由于压力容器钢基体中的纳米团簇尺寸小,仅为 2~3 nm,当载流子通过时,团簇中的溶质原子及其内部和周围的畸变区会对载流子产生强烈的散射,可认为团簇的电导率较基体略低($\sigma_{\text{particle}} < \sigma_{\text{matrix}}$),因此 $\Delta G_{de} < 0$ 。此外,溶解团簇需克服的热力学能垒为 $\Delta G_{kr} = \Delta H - T \cdot \Delta S, \Delta H$ 为相变引起的焓变, ΔS 为熵变, T 为团簇溶解温度。当施加脉冲电流时,体系自由能的变化 ΔG 可表示为^[36,45]

$$\Delta G = \Delta G_{kr} + \Delta G_{de} \quad (7)$$

由于团簇的溶解温度由 $\Delta G = 0$ 确定,脉冲电流作用下团簇的溶解温度 T^{EPT} 为

$$T^{\text{EPT}} = \frac{\Delta H + \Delta G_{de}}{\Delta S} \quad (8)$$

将 $\Delta G_{de} < 0$ 代入方程(8)中可知,团簇溶解温度会由于自由能 ΔG_{de} 的引入而降低。因此,脉冲电流的施加会辅助纳米团簇突破热力学壁垒,促使其在更低的温度下快速溶解。

综上所述,通过对脉冲电流消除辐照缺陷(位错、位错环、纳米团簇等)的机理分析,论证了脉冲电流技术实现核反应堆压力容器辐照损伤的快速修复在理论上是可行的,下文将列举部分脉冲电流修复压力容器的实例应用。

2.2 压力容器的脉冲电流修复应用基础研究

长期服役过程中产生的辐照缺陷是威胁核反应堆压力容器服役性能及安全运行的关键因素。能否高效消除辐照缺陷是验证脉冲电流修复延寿新技术可行性的重要指标。基于此,本文列举了部分脉冲电流修复压力容器辐照损伤性能的典型实例,并对该技术与传统退火技术进行了简要对比。

2.2.1 脉冲电流消除辐照缺陷

Ba 等^[46]选用国产核电压力容器用 SA508-3 钢作为研究对象,通过热老化(400 °C,1000 h)引入大量位错缺陷后,经过脉冲电流处理(500 Hz,20 μs,0.5 h),大量老化产生的位错缺陷被显著消除,如图 1 所示。相应地,老化压力容器钢的抗拉强度及韧脆转变性能等也有一定程度的提升。

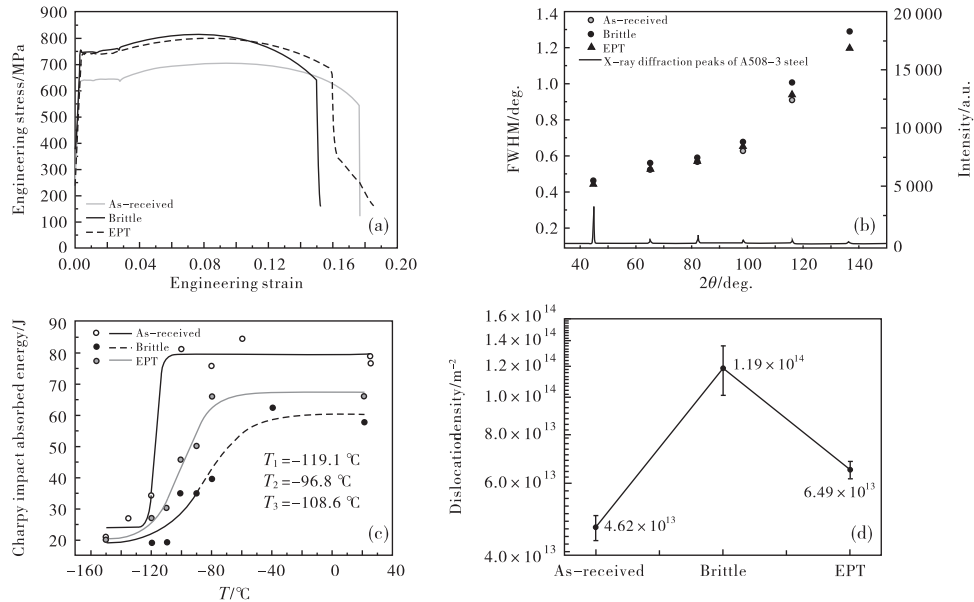


图 1 压力容器 SA508-3 模拟钢脉冲电流性能修复效果图^[46]

此外,Li 等^[47]对压力容器模拟钢进行了脉冲电流(400 Hz,150 °C)同步辅助慢应变拉伸实验,由于拉伸变形引起了大量位错堆积,被障碍粒子钉扎的位错大多纠缠在一起,在不同的特定带轴处呈现虚线状,如图 2 所示。

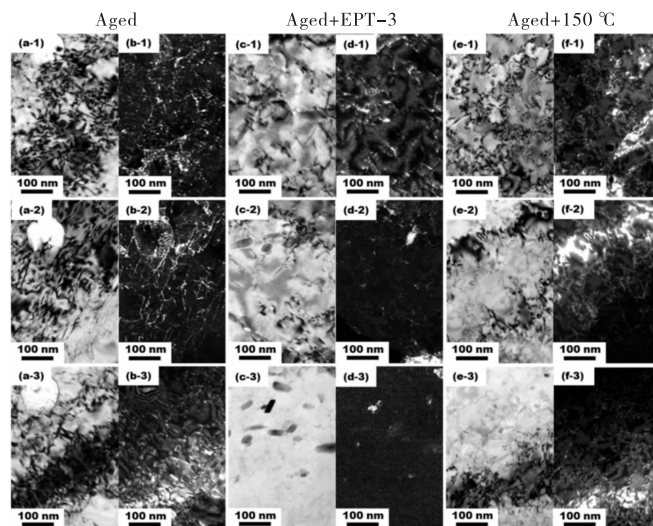


图 2 压力容器钢慢应变拉伸有无辅助脉冲电场位错组态对比图^[47]

在辅助脉冲电流拉伸后,材料中的位错缠结大多是离散的,且位错密度明显降低,然而相应的等效热

处理并没有显著降低位错缠结的效果。

相关研究表明^[14],辐照位错环缺陷比位错线缺陷更加稳定存在,位错环的消除难度更大。Shi 等^[48]在辐照-退火处理实验中,处理温度需要达到 500 °C,且保温长达 1 h,位错环才能全部湮灭。然而,Li 等^[49]在 450 °C 下进行脉冲电流处理后,仅需要 20 min 即可消除 SA508-3 钢中的辐照位错环缺陷,如图 3(a)(b)为辐照态,(c)(d)为脉冲处理态)所示。脉冲电流处理后,材料内辐照位错环的数量密度大量减少,损伤性能恢复率超过 95%。结合上述实验结果和章节 2.1 中的相关机理,证实了脉冲电流对核反应堆压力容器在服役前期产生的基体损伤(位错线、位错环)有很好的消除效果。相较于退火热处理,脉冲电流处理不仅可以有效降低位错、位错环缺陷数量密度,且处理温度更低、时间更短,损伤性能恢复率可达到 90%。

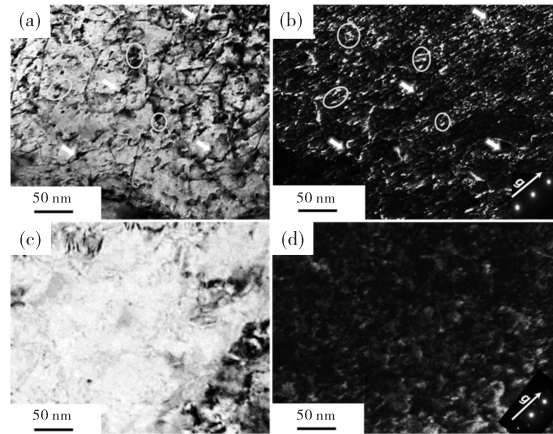


图 3 脉冲电流作用下位错及辐照位错环的消除^[49]

在服役后期,核反应堆压力容器内产生的纳米团簇通过阻碍位错滑移导致材料硬脆化,严重危害材料性能。Qin 等^[50]通过研究发现,脉冲电流修复技术(430 °C, 3 min)可以快速改善 SA508-3 钢中热老化富铜团簇所引发的力学性能恶化问题,如图 4 所示,图中(a)为样品尺寸,(b)为脉冲和退火过程的温度-时间路径,(c)为韧脆转变温度,(d)为拉伸试验结果。脉冲电流处理后,老化脆化样品内的富铜纳米团簇大量溶解,材料的抗拉强度可恢复至原始态的性能 719.3 MPa,断后延伸率升高至 18.5%,韧脆转变性能提升 76.2%。

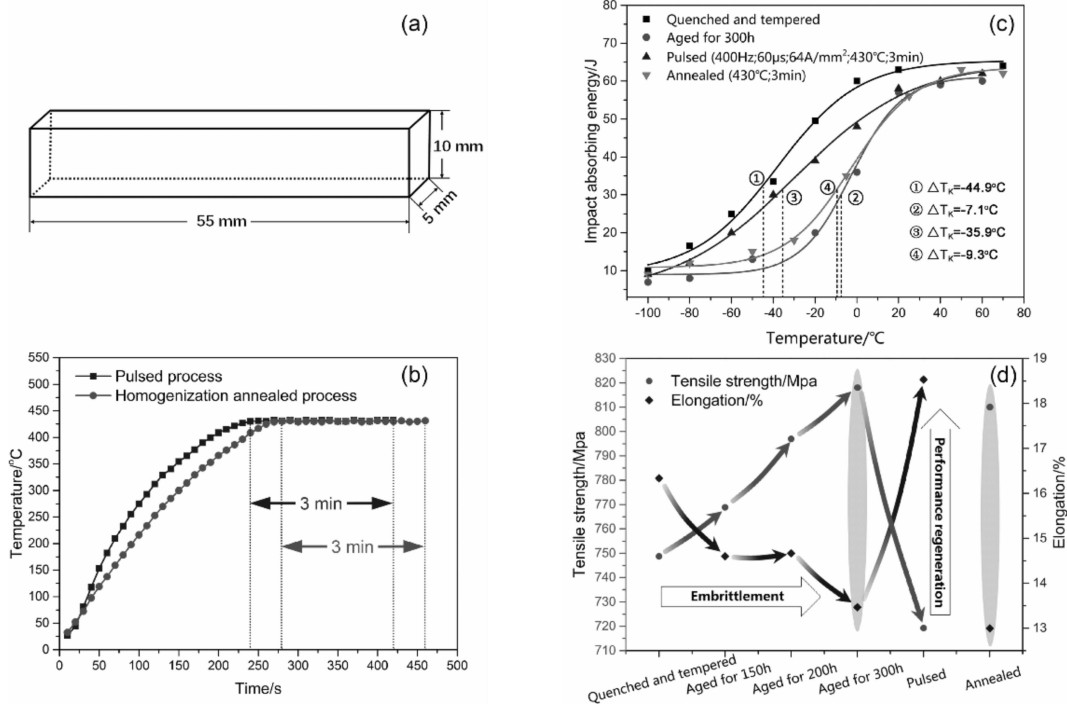


图 4 脉冲电流作用下老化富铜相溶解后的力学性能变化^[50]

同时,Li 等^[49]采用 3 MeV 铁离子辐照在压力容器模拟钢中引入了大量尺寸为 1~2 nm 的富铜纳米团簇,脉冲电流处理(450 °C, 20 min)后团簇数量减少了 65%,如图 5 所示。综上可知,脉冲电流处理可快

速有效溶解引起压力容器老化脆化的纳米团簇,从而使老化器件的损伤性能恢复再生 75% 以上。

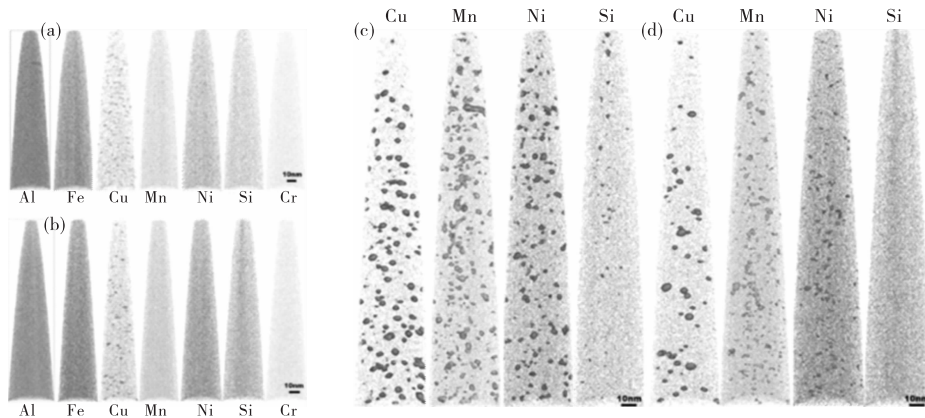


图 5 脉冲电流作用下辐照纳米团簇溶解的三维原子探针结果^[49]

2.2.2 脉冲电流调控复合缺陷

Qin 等^[50]通过预拉伸实验加速压力容器内位错线的增殖与滑移并促使其与纳米团簇相遇,作为纳米团簇优先形核位置的位错会不可避免地切割纳米团簇,如图 6 所示。同时,Li 等^[47]通过分子动力学模拟计算了电场作用下位错线切过团簇的应力应变曲线,并结合实验证明了脉冲电流可以助力位错线更快地接触并切过团簇,有效延缓材料硬化。此外,由于位错缺陷(位错线、位错环)可以作为富铜纳米团簇的形核质点^[49-50],利用脉冲电流干预提前消除位错缺陷后,理论上可以抑制服役后期富铜纳米团簇的形核、长大来延缓材料脆化。综上,脉冲电流不仅可以通过消除单一的辐照缺陷来恢复材料性能,还可以通过调控位错与团簇复合缺陷的交互作用来延缓材料的硬化脆化。

2.2.3 退火处理与脉冲电流处理技术对比

如图 7 所示^[51],通过对比分析脉冲电流修复技术和传统退火修复技术,可知脉冲电流技术参数较传统热处理在处理温度、时间及性能恢复方面都具有较大的优势:仅高于实际服役温度 50 °C,可原位 10 min 恢复脆化材料的性能。此外,“非原位”退火处理有调整和拆卸设备部件的要求,而脉冲电流处理技术仅需要通过电极将电源连接到压力容器上,即可“原位”修复压力容器的辐照损伤。

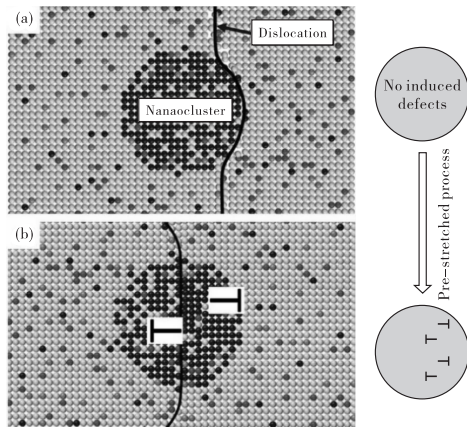


图 6 老化和预拉伸样品中的纳米团簇和位错线示意图^[50]

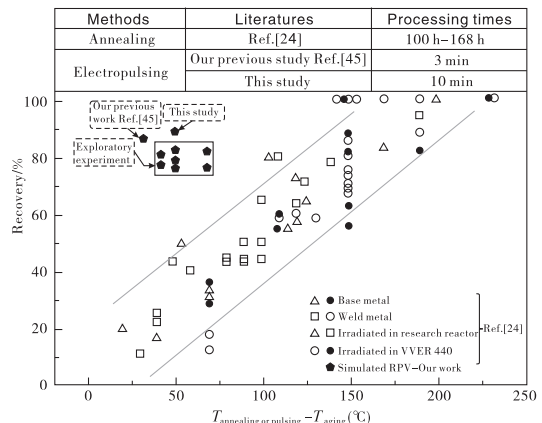


图 7 脉冲电流处理在工艺时间、温度以及寿命修复率的优势^[51]

2.2.4 脉冲电流修复后再服役寿命预测模型修订

核反应堆压力容器在延寿处理之后可否继续运行,需要对其提前实施严格的辐照监督计划及相应的寿命计算预测。可靠的修复寿命预测模型是保证现役核反应堆安全运行及延寿的关键,因此脉冲电流修复后压力容器寿命预测模型的修订工作对该技术的应用及发展具有重大意义。

现有的经验性数学模型大部分都基于早期的修复监督数据,已不能很好地适用于现役压力容器修复后的辐照监督实验,人工神经网络、机器学习等智能计算方法开始广泛运用于寿命预测模型的计算模拟中^[1,52]。Liu 等^[53]、Ferreño 等^[54]、Mathew 等^[55]和其他学者^[56-57]的研究表明,机器学习方法可用于预测压力容器钢的辐照硬化和韧脆转变温度变化(TTS)。Li 等^[58]通过机器学习方法确定了压力容器钢辐照脆化的控制因素,建立了适合预测室温无损检测的辐照预测模型。基于机器学习对中子辐照后铁素体/马氏体钢的屈服强度进行预测,经过训练的机器学习算法可以准确预测屈服强度随着辐照剂量和温度的变化^[59]。本课题组已采用机器学习算法来构建并修订脉冲电流作用下压力容器修复后再服役的寿命预测模型,并对相关建模流程进行了设计与探讨,如图 8 所示。

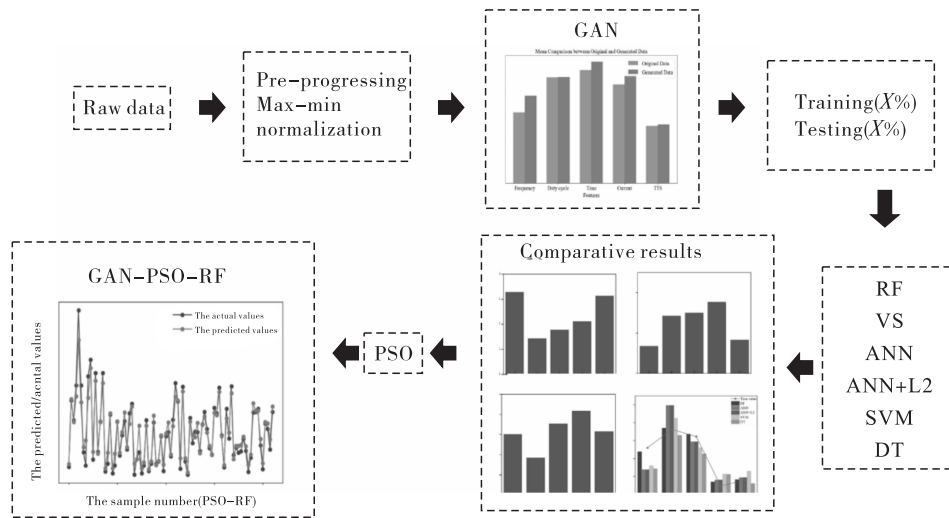


图 8 压力容器脉冲电流修复后再服役寿命预测模型修订的流程框架

首先,使用数据降维和数据增维的方法^[60-62]利用小样本构建高精度 ML(machine learning)模型后,通过 GAN(generative adversarial network)模型进行数据增强,解决样本数据不足以及模型训练效果不理想的问题,克服真实数据可用性低的局限性,扩展脉冲电流修复性能数据库,并创建一个大型的、具有代表性的数据集。然后,使用交叉验证法对建立的多种模型(random forests, RF; artificial neural networks, ANN; artificial neural networks+L₂ regularization, ANN+L₂ 等)进行比较,选择采用拟合效果最好的粒子群优化随机森林算法后,最终建立 GAN-PSO-RF 混合模型(particle swarm optimizer, PSO),对脉冲电流修复后再服役的寿命预测模型进行修订。目前,寿命预测方程修订工作还处于前期的经验数据模型构建中,未来还需关联脉冲电流消除压力容器辐照缺陷(位错环、纳米团簇)后的再服役响应机制,准确计算方程的拟合参数及修订因子,科学完善并修订脉冲电流修复后再服役的寿命预测模型。

3 总结与展望

近年来,经过相关科研学者及工程技术人员努力,脉冲电流作用下核反应堆压力容器修复延寿技术已经有了实质性的研究进展与突破。目前,脉冲电流可消除核反应堆压力容器的辐照缺陷,损伤性能恢复率可达到 90%,这将为未来核反应堆压力容器修复工程应用提供研究基础及技术支持。但是,该技术还存在一些需要克服的难题与不足:

(1) 脉冲电流作用下辐照缺陷的原位动态演化行为与响应机制还有待进一步澄清,辐照损伤修复的微观结构演化及宏观性能的物理模型还未确定。脉冲电流修复后的压力容器钢在再服役过程辐照损伤速率、程度及其主导损伤机制与外场修复参数之间的定量化关系还需进一步研究。

(2) 开发脉冲电流作用下在线修复与延寿技术,还必须考虑到由表及里对压力容器进行处理。未来

还需建立脉冲电流下材料辐照缺陷梯度分布的电流密度及温度场分布模型,非均匀电场和温度场下材料梯度损伤修复规律及参数时间特性还有待进一步澄清。

(3) 基于机器学习的脉冲电流修复数据库及经验预测模型,后续还需通过关联服役材料辐照前期与后期辐照损伤不同的发展速率、程度及其主导损伤机制,进一步完善修订脉冲电流修复后再服役寿命预测模型。

参考文献:

- [1] ODETTE G R, LUCAS G E. Recent progress in understanding reactor pressure vessel steel embrittlement[J]. Radiation effects and defects in solids, 1998, 144(1/2/3/4): 189-231. DOI: 10. 1080/10420159808229676.
- [2] ODETTE G R, YAMAMOTO T, KLINGENSMITH D, et al. The effect of flux and irradiation temperature on hardening in RPV steels[J]. Letter report UCSB-NRC-93/2, 2003.
- [3] FISHER S B, HARBOTTLE J E, ALDRIDGE N, et al. Radiation hardening in magnox pressure vessel steels[J]. Philosophical transactions of the Royal Society of London: series A, mathematical and physical sciences, 1985, 315: 301-332.
- [4] CHAOUADI R, GÉRARD R, STERGAR E, et al. Neutron irradiation hardening of chemically-tailored RPV steels with respect to Cu/P and Ni/Mn elements[J]. Journal of nuclear materials, 2019, 519: 188-204.
- [5] ODETTE G R, LUCAS G E. Embrittlement of nuclear reactor pressure vessels[J]. Journal of management, 2001, 53: 18-22.
- [6] FUJITA T, HIRABAYASHI J, KATAYAMA Y, et al. Contribution of dislocation loop to radiation-hardening of RPV steels studied by STEM/EDS with surveillance test pieces[J]. Journal of nuclear materials, 2022, 572: 154055.
- [7] TEREPTYEV D, HE X, BONNY G, et al. Hardening due to dislocation loop damage in RPV model alloys: role of Mn segregation[J]. Journal of nuclear materials, 2015, 457: 173-181. DOI: 10. 1016/j. jnucmat. 2014. 11. 023.
- [8] CHEN L, NISHIDA K, MURAKAMI K, et al. Effects of solute elements on microstructural evolution in Fe-based alloys during neutron irradiation following thermal ageing[J]. Journal of nuclear materials, 2018, 498: 259-268.
- [9] 徐刚, 蔡琳玲, 冯柳, 等. 富 Cu 团簇的析出对 RPV 模拟钢韧-脆转变温度的影响[J]. 金属学报, 2012, 48(6): 753-758.
- [10] WIRTH B D. On the character of nanoscale features in reactor pressure vessel steels under neutron irradiation[M]. Santa Barbara: University of California, 1998.
- [11] HEO Y, KIM Y, KIM J, et al. Phase transformation of Cu precipitates from bcc to fcc in Fe-3Si-2Cu alloy[J]. Acta materialia, 2013, 61(2): 519-528.
- [12] MONZEN R, JENKINS M L, SUTTON A P. The bcc-to-9R martensitic transformation of Cu precipitates and the relaxation process of elastic strains in an Fe-Cu alloy[J]. Philosophical magazine A, 2000, 80: 711-723.
- [13] CHAOUADI R, GERRARD R. Copper precipitate hardening of irradiated RPV materials and implications on the superposition law and reirradiation kinetics[J]. Journal of nuclear materials, 2005, 345: 65-74.

- [14] KRYUKOV A, DEBARBERIS L, BALLESTEROS A, et al. Integrated analysis of WWER-440 RPV weld re-embrittlement after annealing[J]. *Journal of nuclear materials*, 2012, 429: 190-200. DOI: 10. 1016/j. jnucmat. 2012. 06. 005.
- [15] STEELE L E. Radiation embrittlement of nuclear reactor pressure vessel steels[M]. Philadelphia: ASTM Special Technical Publication, 1989.
- [16] ODETTE G R. Radiation induced microstructural evolution in reactor pressure vessel steels[J]. In *material research society symposium proceedings*, 1994, 373: 137-148.
- [17] STYMAN P, HYDE J, PARFITT D, et al. Post-irradiation annealing of Ni-Mn-Si-enriched clusters in a neutron-irradiated RPV steel weld using atom probe tomography[J]. *Journal of nuclear materials*, 2015, 459: 127-134.
- [18] SERVER W, SOKOLOV M. Thermal annealing of PRV is a needed mitigation option[M]// *Degradation of Primary Componenets of Pressurized Water Cooled Nuclear Reactors: Current Issues and Future Challenges*. Vienna: IAEA, 2013.
- [19] ALMIRALL N, WELLS B P, KE H, et al. On the elevated temperature thermal stability of nanoscale Mn-Ni-Si precipitates formed at lower temperature in highly irradiated reactor pressure vessel steels[J]. *Scientific reports*, 2019, 9(1): 1-12.
- [20] LIU X Q, SUN M, HAO T, et al. Re-dissolution of precipitates in reactor pressure vessel steels evaluated by internal friction technique[J]. *Materials letters*, 2024, 359: 135916. DOI: 10. 1016/j. matlet. 2024. 135916.
- [21] AMAYEV A D, KRYUKOV A M, SOKOLOV M A. Recovery of the transition temperature of irradiated WWER-440 vessel metal by annealing[C]// STEELE L E. *Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: an International Review (Fourth Volume)*. Philadelphia: ASTM International, 1993.
- [22] MAGER T R. Thermal annealing of an embrittled reactor vessel; feasibility and methodology[J]. *Nuclear engineering and design*, 1990, 124(1/2): 43-51.
- [23] STEKOLNIKOV V V, ROGOV M F, DRAGUNOV Y G. Experience of recovering heat treatment heat treatment for safety improvements of power reactor pressure vessels[C]// *Scientific Session of IAEA General Conference on the Problems of NPS Safety Improvement and Life Extension*. Vienna: IAEA, 1990.
- [24] KRYUKOV A M, NIKOLAEV Y A. The properties of WWER-1000 type materials obtained on the basis of a surveillance program[J]. *Nuclear engineering and design*, 2000, 195: 143-148. DOI: 10. 1016/S0029-5493(99)00243-5.
- [25] BERGNER F, ULBRICHT A, LINDNER P, et al. Post-irradiation annealing behavior of neutron-irradiated FeCu, FeMnNi and FeMnNiCu model alloys investigated by means of small-angle neutron scattering[J]. *Journal of nuclear materials*, 2014, 454: 22-27.
- [26] SERVER W L. Review of in-service thermal annealing of nuclear reactor pressure vessels[C]// PERRIN G. *Effects of Radiation on Materials: 12th International Symposium Volume II*. Philadelphia: ASTM Special Technical Publication, 1985.
- [27] CONRAD H, SPRECHER A F, CAO W D. Electroplasticity-the effect of electricity on the mechanical properties of metals[J]. *Journal of operations management*, 1990, 42(9): 28-33.
- [28] CHEN Z, LI B, HUANG Q Y, et al. The effect of the electric pulse treatment on the microstruc-

- ture and mechanical performance of the Al-Zn alloy[J]. *Materials science and engineering A*, 2020,796:140016.
- [29] KRAVCHENKO V Y. Effect of directed electron beam on moving dislocations[J]. *Soviet journal of experimental and theoretical physics*,1967,24:1135-1142.
- [30] ZHAO S T,ZHANG R P,CHONG Y,et al. Defect reconfiguration in a Ti-Al alloy via electroplasticity[J]. *Nature materials*,2021,20:468-472.
- [31] LI X,ZHU Q,HONG Y R,et al. Revealing the pulse-induced electroplasticity by decoupling electron wind force[J]. *Nature communications*,2022,13:6503.
- [32] SPRECHER A F,MANNAN S L,CONRAD H. Overview no. 49: on the mechanisms for the electroplastic effect in metals[J]. *Acta metallurgica*,1986,34(7):1145-1162.
- [33] KLIMOV K M,SHNYREV G D,NOVIKOV I I. “Electroplasticity” of metals[J]. *Soviet physics doklady*,1975,19:787.
- [34] AN J L,WANG L,SONG X,et al. New approach for plastic deformation behavior of GH4169 superalloy with in-situ electric-pulse current at 800°C [J]. *Materials science and engineering: A*, 2017,707:356-361.
- [35] LIU W,LIANG K M,ZHENG Y K. Study of the diffusion of Al-Li alloys subjected to an electric field[J]. *Journal of materials science*,1998,33(4):1043-1047.
- [36] HUANG X S,ZHANG X F. Current-driving dissolution of nanoscale brittle precipitates produced by spinodal decomposition in FeCrAl alloys[J]. *Journal of alloys and compounds*,2019,805:26-32.
- [37] TU K N. Recent advances on electromigration in very-large-scale- integration of interconnects[J]. *Journal of applied physics*,2003,94(9):5451-5473.
- [38] TU K N,YEH C C,LIU C Y,et al. Effect of current crowding on vacancy diffusion and void formation in electromigration[J]. *Applied physics letters*,2000,76(8):988-990. DOI:10.1063/1.125915.
- [39] CONRAD H. Enhanced phenomena in metals with electric and magnetic fields:I electric fields[J]. *Materials transactions*,2005,46(6):1083-1087.
- [40] DOLINSKY Y,ELPERIN T. Thermodynamics of phase transitions in current-carrying conductors [J]. *Physical review B*,1993,47(22):14778-14785.
- [41] QIN R S,SAMUEL E I,BHOWMIK A. Electropulse-induced cementite nanoparticle formation in deformed pearlitic steels [J]. *Journal of materials science*,2011,46:2838-2842. DOI:10.1007/s10853-010-5155-3.
- [42] QIN R S,RAHNAMA A. Electropulsed steels[J]. *Materials science and technology*,2014,30(9):1040-1044.
- [43] ZHANG X F,QIN R S. Electric current-driven migration of electrically neutral particles in liquids [J]. *Applied physics letters*,2014,104(11):114106.
- [44] WANG X L,GUO J D,WANG Y M. Segregation of lead in Cu-Zn alloy under electric current pulses[J]. *Applied physics letters*,2006,89(6):061910.
- [45] HAO J Q,QIN S Y,YAN L G,et al. Breaking thermodynamic and kinetic barriers in superalloy homogenization process by electropulsing to improve mechanical properties[J]. *Journal of alloys and compounds*,2021,873:159854.

- [46] BA X,ZHOU M C,ZHANG X F, et al. Manipulating dislocations using electric field to repair embrittlement damage[J]. *ISIJ international*,2020,60:1803-1809.
- [47] LI B Q,MA R,ZHANG X F, et al. Regulating the dislocation-nanocluster interactions by electrical pulses to alleviate material hardening[J]. *Materials science and engineering:A*,2023,874(25):145064.
- [48] SHI J J,ZHAO W Z,WU Y C, et al. Evolution of microstructures and hardening property of initial irradiated, post-irradiation annealed and re-irradiated Chinese-type low-Cu reactor pressure vessel steel[J]. *Journal of nuclear materials*,2019,523:333-341.
- [49] LI B Q,MA R,ZHANG X F, et al. Ultrafast annihilation of irradiation-induced defects using pulsed electric current for damage performance regeneration[J]. *Journal of material science technology*,2024,194:247-262.
- [50] QIN S Y,BA X,ZHANG X F. Accelerated cluster dissolution using electropulsing for ultrafast performance regeneration[J]. *Scripta materialia*,2020,178:24-28.
- [51] QIN S Y,BA X,ZHANG X F, et al. Dispersed and agminated nanoclusters removal under pulsed electric current in the deteriorated reactor pressure vessel steel[J]. *Journal of nuclear materials*,2021,544:153103.
- [52] MOHAMMAD E,NOURHENE C,ADEL A, et al. Bi-discriminator GAN for tabular data synthesis[J]. *Pattern recognition letters*,2022,159:204-210.
- [53] LIU Y,WU H,MAYESHIBA T, et al. Machine learning predictions of irradiation embrittlement in reactor pressure vessel steels[J]. *NPJ computational materials*,2022,8(1):85. DOI:10.1038/s41524-022-00760-4.
- [54] FERREÑO D,SERRANO M,KIRK M, et al. Prediction of the transition-temperature shift using machine learning algorithms and the plotter database[J]. *Metals*,2022,12(2):186. DOI:10.3390/met12020186.
- [55] MATHEW J,PARFITT D,WILFORD K, et al. Reactor pressure vessel embrittlement: insights from neural network modelling [J]. *Journal of nuclear materials*,2018,502:311-322. DOI:10.1016/j.jnucmat.2018.02.027.
- [56] LEE G G,KIM M C,LEE B S. Machine learning modeling of irradiation embrittlement in low alloy steel of nuclear power plants[J]. *Nuclear engineering and technology*,2021,53(12):4022-4032.
- [57] BING B,HAN X,JIA L, et al. Influence analysis of alloy elements on irradiation embrittlement of RPV steel based on deep neural network[J]. *International journal of advanced nuclear reactor design and technology*,2023,5(1):44-51.
- [58] LI D,LIU Z,ARMAGHANI D J, et al. Novel ensemble tree solution for rockburst prediction using deep forest[J]. *Mathematics*,2022,10(5):787.
- [59] GOODFELLOW I,BENGIO Y,COURVILLE A, et al. *Deep learning*[M]. Cambridge:MIT press,2016.
- [60] MORGAN D,PILANIA G,COUET A, et al. Machine learning in nuclear materials research[J]. *Current opinion in solid state and materials science*,2022,26(2):100975.
- [61] DIMIDUK D M,HOLM E A,NIEZGODA S R. Perspectives on the impact of machine learning, deep learning, and artificial intelligence on materials, processes, and structures engineering[J]. *In-*

tegrating materials and manufacturing innovation,2018,7:157-172.

- [62] MOBARAK M H, MIMONA M A, ISLAM M A, et al. Scope of machine learning in materials research: a review[J]. Applied surface science advances, 2023, 18: 100523.

Performance Regeneration of Aged Nuclear Reactor Pressure Vessel under Pulsed Electric Current

ZHANG Xinfang^{1,2,3}, LI Biqian¹, ZHOU Mengcheng^{2,3}, ZHANG Yating¹, LI Shu¹

(1. School of Metallurgical and Ecological Engineering,

University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China;

2. Key Laboratory of Green Extraction & Efficient Utilization of

Light Rare-Earth Resources, Ministry of Education,

Inner Mongolia University of Science and Technology, Baotou 014010, China;

3. School of Rare Earth Industry,

Inner Mongolia University of Science and Technology, Baotou 014010, China)

Abstract: The service life of nuclear reactor pressure vessel steel directly determines the service life of nuclear power plant. The long-term service of pressure vessel steel under neutron irradiation will gradually produce many dislocation loops and nanoclusters, resulting in material embrittlement and threatening the safe operation of nuclear reactors. The traditional annealing treatment can partially restore the material properties, but the pressure vessel needs to be disassembled as a whole, resulting in a long shut-down of the reactor and huge economic losses. As a green and efficient technology, “in-situ” pulsed electric current processing provides a new pathway to prolong the service life of nuclear reactor pressure vessel. This study provides a brief overview of the repair mechanism of pulse current, the construction of service life prediction equation and practical cases, which is of great significance for the development of life extension technology for key components of nuclear reactors in the future.

Keywords: pulsed electric current; nuclear reactor pressure vessel; irradiation-induced defects; performance repair; life prediction

(责任编辑:王新亮)

引用格式 张新房,李弼谦,周梦程,等. 脉冲电流作用下核反应堆压力容器修复延寿技术[J]. 山东航空学院学报, 2024, 41(1): 15-27. ZHANG X F, LI B Q, ZHOU M C, et al. Performance regeneration of aged nuclear reactor pressure vessel under pulsed electric current[J]. Journal of Shandong University of Aeronautics, 2024, 41(1): 15-27.