

УДК 538.9

РАСЧЕТ ТОЛЩИНЫ ВНУТРЕННИХ ПОКРЫТИЙ ОБОЛОЧЕК ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ДЛЯ АВАРИЙНО-УСТОЙЧИВЫХ ТВЭЛОВ

Рофида Хамад Халифад¹,
rofida@tpu.ru

Никитенков Николай Николаевич¹,
nikitenkov@tpu.ru

Кудияров Виктор Николаевич¹,
kudiyarov@tpu.ru

¹ Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

Актуальность исследования заключается в необходимости создания аварийно-устойчивого топлива ядерных реакторов исходя из изучения причин и последствий аварий в Чернобыле и Фукусиме. Конкретная проблема, которой посвящена работа, – создание хромовых покрытий на внутренней стороне трубок тепловыделяющих элементов, что является одним из трендов в направлении создания аварийно-устойчивой активной зоны ядерного реактора.

Основная цель исследования: определить минимальную толщину хромового покрытия, необходимую для надежной защиты внутренней стороны оболочек (трубок) тепловыделяющих элементов от осколков деления ядерного топлива.

Методы: хорошо развитый (более 60-ти лет совершенствования), широко известный и признанный пакет компьютерных программ для моделирования физических процессов переноса излучений и ускоренных частиц в твердых телах с использованием статистики Монте-Карло. Определение минимальной толщины хромового покрытия для обеспечения защиты внутренней стороны оболочки тепловыделяющих элементов от основной группы высокоэнергичных осколков деления ядерного топлива проводилось на основе расчетов по программе TRIM (из пакета SRIM). В качестве бомбардирующих покрытие осколков деления из их широкого спектра выбраны ⁹⁷Tc, ⁹⁸Mo, ¹⁰²Ru, ¹⁰³Rh, ¹⁰⁶Pd, ¹²⁷I, ¹³³Cs как наиболее высокоэнергичные и в то же время обладающие разными химическими свойствами. Производились расчеты распределений глубин проникновения указанных осколков деления и повреждений (вакансий) в материале оболочки и в хромовых покрытиях.

Результаты. Было обнаружено, что минимальная толщина хрома, требующаяся для обеспечения адекватной защиты внутренней поверхности трубки тепловыделяющих элементов от основных осколков деления топлива ²³⁵UO₂ составляет 9 мкм. Приведены экспериментальные данные, подтверждающие этот результат.

Ключевые слова:

аварийно-устойчивое топливо, хромовое покрытие, оболочки ТВЭЛ, поток нейтронов, реактивность, топливный цикл.

Введение

Авария на АЭС Фукусима в 2011 г. высветила некоторые конструктивные недостатки традиционной ядерной топливной системы. Вследствие этого произошел глобальный сдвиг в исследованиях безопасности ядерного топлива в сторону создания аварийно-устойчивых тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ). Концепция аварийно-устойчивого топлива (АУТ) подразумевает оптимизацию конструкции ТВЭЛ, которая, как ожидается, повысит безопасность ядерных реакторов. Фундаментальный принцип, лежащий в основе этой концепции, заключается в том, что активная зона реактора остается неповрежденной в течение более длительного времени без необходимости экстренного вмешательства оператора в аварийных случаях, например, при прекращении внешнего охлаждения. Одной из основных задач АУТ является разработка покрытий с выдающимися характеристиками, наносимых на конструкции из сплавов на основе циркония (Zr), из которых, в частности, изготавливаются трубки ТВЭЛ для загрузки таблеток диоксида урана (UO₂) [1]. Концепции полной замены сплавов на основе циркония имеют большую неопределенность в плане изменения конструкции тепловыделяющих сборок и представляют собой относительно долго-

срочные и дорогостоящие решения. Использование защитных поверхностных покрытий на существующих сплавах на основе циркония позволит улучшить характеристики без существенных изменений существующей конструкции топливной системы «диоксид урана – цирконий» (UO₂-Zr). Это более консервативный краткосрочный технический путь с благоприятными перспективами применения [1]. Металлический хром (Cr) рассматривается как основной материал для создания таких покрытий из-за его высокой температуры плавления, пластичности и коэффициентов термического расширения, близких к цирконию [1, 2]. К настоящему времени в ряде стран уже проведены исследования хромовых покрытий с применением различных методов осаждения, таких как: физическое осаждение из газовой фазы (Франция) [3, 4], вакуумно-дуговое плазменное осаждение (Россия) [5]; трехмерная лазерная технология [6], холодное и электродуговое ионное осаждение (Корея) [2, 7]. Эти исследования показали, что нанесение тонкой пленки металлического хрома значительно повышает коррозионную стойкость (основной параметр) сплавов на основе Zr. Образцы с покрытием продемонстрировали значительное улучшение в плане остаточной прочности и пластичности, а также уменьшение по-

глошения водорода по сравнению с оболочками из цирколия без покрытия в условиях легководяных реакторов (ЛВР). Исследования были сосредоточены в основном на нанесении хромовых покрытий на наружные поверхности оболочек труб и их работе в неаварийной ситуации. Однако существует реалистичный сценарий, когда пар из внешней среды попадает в трубку ТВЭЛ, например, в условиях аварии с потерей теплоносителя. Поступление пара на незащищенную внутреннюю поверхность оболочки может вызвать быстрое окисление и вторичное гидрирование, что в конечном итоге существенно усложняет сценарий аварии [1]. Поступление пара возможно через трещины после раздувания в аварийных условиях, возникающие в результате явления коррозионного растрескивания под напряжением (рис. 1). Последнее может быть связано с деформацией таблеток ядерного топлива в процессе их выгорания и наличием накопленных осколков деления (ОД) на границе раз-

дела таблетка–оболочка. При аварии с ограничением теплоносителя, даже при проектной аварии с потерей теплоносителя, вздутие и разрыв происходят уже при температурах до 700 °С [2]. Проблема деградации внутренней стороны ТВЭЛ была выделена как источник беспокойства при использовании защитных покрытий [8, 9]. Для обеспечения защиты и ограничения повреждений на внутренней стороне оболочки ТВЭЛ было предложено наносить внутреннее тонкопленочное покрытие (ВТПП) [10–13]. Предварительные исследования поведения подложек из цирколия-4 с ВТПП в двух различных условиях окисления показали многообещающие результаты с признаками значительного дополнительного времени восстановления перед разрушением при закалке. Возникновение катастрофического окисления при 1200 °С было отсрочено, а увеличение массы образцов с двусторонним покрытием уменьшилось в 20 раз по сравнению с эталонными образцами без покрытия [10].

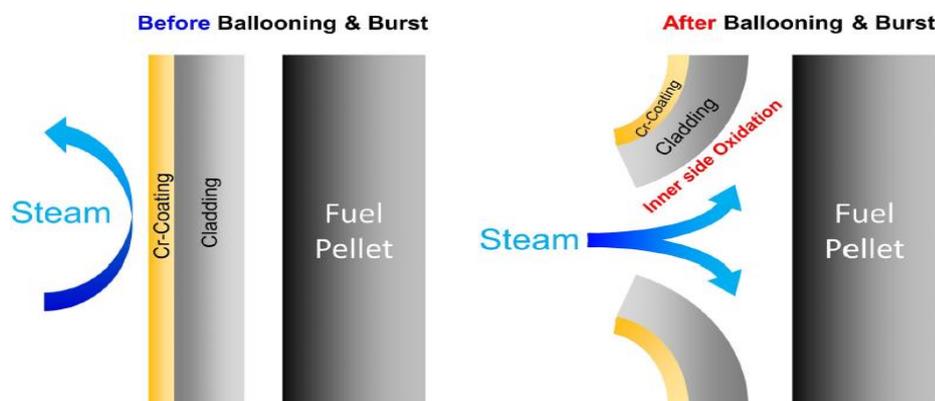


Рис. 1. Схема окисления внутренней поверхности после формирования воздушного облака и разрыва [8] (Steam – пар, ballooning – вздутие, burst – разрыв, cladding – оболочка, fuel pellet – таблетка топлива)

Fig. 1. Schematic of inner-side oxidation following ballooning and burst [8]

Кроме того, более толстые ВТПП вызывают значительное повышение температуры разрыва, что указывает на то, что такие покрытия могут оказывать упрочняющее действие при высоких температурах [13].

Впервые концепция ВТПП была предложена ещё в 1970-х гг. как решение проблемы коррозионного растрескивания (КР) в канадских тяжеловодных энергетических реакторах (ТВЭР) путем нанесения графитовой плёнки. Это возможно для оболочек таких реакторов благодаря относительно небольшой длине труб (около 0,5 м), что значительно упрощает нанесение покрытий на внутреннюю поверхность труб по сравнению с реакторами на легкой воде [14]. Поэтому это решение не привело к его широкому внедрению. Однако недавние достижения в разработке технологий тонких пленок вынесли эту тему на поверхность в качестве дополнительного решения в рамках разработки АУТ [10–13]. Помимо приведенных выше частично изученных характеристик хромовых покрытий, необходимо исследовать (с целью оптимизации) ряд других параметров, например, структуру, роль дефектов, оптимальную толщину покрытия и чувствительность работы реактора к введению таких покрытий.

Ожидается, что материалы покрытий, предлагаемые для АУТ, будут влиять на работу реактора из-за их возможного воздействия на баланс нейтронов в системе, изменений в энергетических спектрах нейтронов и соответствующего воздействия на безопасность реакторов. Материалы покрытий могут снижать реактивность системы и влиять на расход топлива, что ведет к нежелательным экономическим последствиям. Кроме того, могут быть затронуты параметры безопасности реактора.

Одной из основных задач, которые нужно решить для внедрения ВТПП в качестве защитного покрытия, является выбор материала и необходимой толщины покрытия для осуществления адекватной защиты оболочки ядерного топлива (как правило, это трубки из сплава Э110) от ОД. Одним из наиболее перспективных материалов на сегодняшний день является хром. Поэтому в данном исследовании мы рассчитываем необходимую толщину хромового ВТПП. Для этого сначала определяется минимальная толщина пленки Cr, которая может обеспечить достаточную защиту внутренней поверхности оболочек от воздействия ОД при нормальной (безаварийной) работе реактора.

Подход, используемый для определения минимальной толщины, основан на расчетах распределений максимальной глубины имплантации и повреждений в покрытии. На основании этих расчетов определяется минимальная толщина ВТПП.

Методология расчетов и входные параметры

Прежде чем кратко описать методологию и процедуру расчетов, приведем экспериментальные факты, которые имелись в виду при её разработке.

В отличие от внешней поверхности оболочек (трубок) ТВЭЛ, окисление и деградация облученной внутренней поверхности широко не изучались, хотя вклад ОД в их повреждение известен давно. При работе реактора мощность дозы ОД примерно в 12,5 раз превышает мощность нейтронного и гамма-излучения [15]. Такие явления, как снижение пластичности, охрупчивание и в конечном счете растрескивание материала трубок ТВЭЛ тесно связаны с внедрением ОД во внутреннюю поверхность трубок [16, 17].

Согласно экспериментальным измерениям, ОД имеют широкий диапазон энергий и различные величины сечений выхода [18]. Чем больше энергия частицы, тем длиннее её пробег внутри материала. Мы использовали максимальные энергии, которые обычно соответствуют минимальной величине выхода изотопа, выбранного ОД, что способствует более точному выбору минимальной толщины покрытия. То есть, чтобы определить минимальную толщину покрытия для защиты внутренней поверхности, были смоделированы величины пробегов ионов и 3D-распределения повреждений (смещенных атомов и вакансий) для группы ОД в составе следующих атомов. Металлы технеций (Tc), рутений (Ru), молибден (Mo), родий (Rh) и палладий (Pd), а также атомы летучих продуктов: йод (I) и цезий (Cs). В качестве подложки покрытия использовался сплав Э110 (Zr – 99 %, V – 1 %). На основе рассчитанных величин пробегов ОД и распределений повреждения в подложке (Э110) и покрытии (Cr) определена минимальная толщина покрытия из хрома.

Выбранные ОД характеризуются относительно высоким выходом в процессе деления ядерного топлива. Следы этих продуктов были экспериментально обнаружены внутри оболочки отработавших ТВЭЛ многими исследователями, и была установлена тесная связь между их присутствием и многими явлениями деградации внутренней поверхности оболочки (внутренняя коррозия, охрупчивание, снижение пластичности, коррозионное растрескивание). Эксперименты показали, что частицы фазы благородных металлов из числа выбранных нами ОД существуют в виде поликристаллических металлических агломератов [19] в приповерхностной области внутренней стороны оболочки ТВЭЛ. Это указывает на то, что эти продукты играют ключевую роль в иницировании трещин [20]. После появления трещин коррозионно-летучие вещества (такие как йод и цезий) проникают через трещины и вызывают дальнейшую коррозию ТВЭЛ.

Расчеты проведены с использованием хорошо зарекомендовавшего себя программного пакета SRIM

(Stopping and Range of Ions in Matter). Начало разработки датируется 70-ми гг. прошлого века. SRIM моделирует процессы (computer simulation), изученные экспериментально и теоретически. То есть в основе SRIM лежат теории переноса частиц и излучений в веществе (теории атомных столкновений в твердом теле, прохождения частиц через вещество, ионного рассеяния и распыления и др.).

Для настоящих расчетов использовалась программа TRIM (Transport of Ions in Matter), являющаяся одним из модулей пакета SRIM. Работа программы основана на методе аппроксимации бинарных столкновений (АБС) в твердом теле. АБС, в свою очередь, представляет собой одну из реализаций метода Монте-Карло, адаптированного для задач, связанных с развитием каскадов атомных столкновений в твердом теле под воздействием пучков высокоэнергетических ионов. SRIM широко используется при исследованиях радиационных нарушений в материалах разного состава ускоренными ионами с разными массами и энергиями (например, [21]).

Программа TRIM способна работать с материалами сложного состава и предлагает различные варианты оценки их повреждений. В режиме «быстрого расчета повреждений», используемом в этом исследовании, рассчитанные повреждения являются результатом их быстрой статистической оценки, основанной на критериях Кинчина–Пиза (К-П) [22]. Используемые при этом входные параметры даны в табл. 1.

Таблица 1. Входные параметры для расчетов в TRIM

Table 1. Input parameters for calculations in TRIM

Элемент Element	Атомный номер Atomic number	Вес, аеи Weight (amu)	Доля в образце, % Fraction, %	Энергия смещения, Е, эВ Displacement energy, E, eV	Энергия связи в решетке, эВ Lattice binding energy, eV	Энергия связи с поверхностью, эВ Surface binding energy, eV
Nb	41	92,90	1	60	3	7,59
Cr	24	51,99	100	40	3	4,12
Zr	40	91,22	99	40	3	6,33

Примечание/Note: Смысл параметров, используемых TRIM, не всегда соответствует академическому. В данном случае: энергия смещения – энергия, необходимая атому отдачи для преодоления связи с решеткой и перемещения более чем на один атомный интервал от исходного положения (Displacement energy is the energy required for a recoil atom to overcome lattice forces and move more than one atomic interval from its original position); энергия связи в решетке – энергия, которую теряет атом отдачи, когда он покидает свое место в решетке (Lattice binding energy is the energy that each target atom loses when it leaves its lattice site and bounces into the targets); энергия связи с поверхностью – это энергия, которую должны преодолеть атомы мишени, чтобы покинуть поверхность мишени (surface binding energy is the energy that the target atoms must overcome to leave the target surface).

TRIM при этом «следует» только вдоль траектории первичного (внедряемого) атома (иона) в твердом теле, смещающего атомы материала. Этот подход ис-

пользуют, когда требуется мало внимания к деталям повреждения мишени или распылению поверхности. Понятно, что на максимальную глубину проникают именно первичные (налетающие) ионы, а не выбитые ими атомы мишени.

В методе К-П атом, выбитый со своего места в твердом теле, получает энергию E_v , связанную с энергией отдачи T с учетом электронных потерь [22]:

$$E_v = \frac{T}{1 + K_d g(\varepsilon_d)}, \quad (1)$$

где электронные потери K_d вычисляются как:

$$K_d = -0,1334 M_2^{-1/2} Z_2^3,$$

где Z_2 и M_2 – атомные номер и масса атомов мишени, и:

$$g(E_d) = E_d + 0,40244 \varepsilon_d^{3/4} + 3,4008 \varepsilon_d^{1/6},$$

где ε_d – приведенная энергия, определяемая как

$$\varepsilon_d = 0,01014 Z_2^{7/3} T.$$

Таким образом, если E_v в (1) известна, то число смещений ν , в соответствии с моделью Кинчина–Пиза, рассчитывается как

$$\nu = 1, \text{ if } E_d < E_v < 2,5 E_d,$$

$$\nu = \frac{0,8 E_v}{2,5 E_d}, \text{ if } E_v > 2,5 E_d.$$

Для настройки программы вначале были выбраны различные начальные количества падающих ионов: 1000, 4000, 10000, 20000, 30000. Моделирование показало, что диапазон пробегов этих ионов и повреждения материалов не изменяются после числа ионов равного 4000 (т. е. рассчитанные величины пробегов и глубин повреждений одинаковы для числа падающих ионов 4000 и более). Таким образом, в приведенных расчетах количество падающих ионов для моделируемой группы ПР выбрано равным 4000 (то есть относительная погрешность расчетов равна 0,02).

Результаты и обсуждение

Графические картины результатов, которые выдает программа, очень похожи для всех ОД. Несущественные, в нашем случае, различия наблюдаются в 2D и 3D изображениях пространственных распределений пробегов и повреждений. Поэтому ниже в качестве примера графических данных они приведены только для одного элемента – Тс с энергией 120 МэВ (рис. 2–5). На этих рисунках показаны результаты расчетов распределений пробегов Тс в сплаве Э110

(рис. 2), а также картины повреждений в сплаве Э110 (рис. 3) и в покрытии хрома на сплаве Э110 (рис. 4, 5). В табл. 2, 3 приведены результаты всех расчетов для всех выбранных ОД.

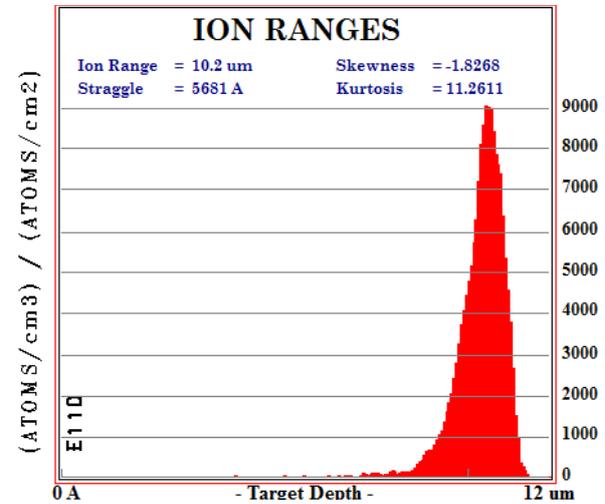


Рис. 2. Распределение пробегов Тс с энергией 120 МэВ в сплаве Э110

Fig. 2. Ion ranges for Tc ions with 120 MeV energy in E110 alloy

Таблица 2. Пробег и ионов в сплаве Э110

Table 2. Ion ranges in E110 alloy

Ионы/Ions	⁹⁹ Tc	⁹⁸ Ru	¹⁰² Mo	¹⁰³ Rh	¹⁰⁷ Pd	¹²⁷ I	¹³³ Cs
Энергия, МэВ Energy, MeV	120					90	95
Глубина проникновения, мкм Ion range, μm	10,2	10,3	10,4	10,2	10,2	8,7	9,2
Разброс Straggle, μm	0,6	0,6	0,6	0,6	0,6	0,7	0,7

Из рис. 2 и табл. 2 видно, что в случае технеция, повреждения в сплаве Э110 (оболочка ТВЭЛ) распространяются на глубину более 10 мкм, при этом образуется 27162 вакансии на 1 ион технеция. Из табл. 2 видно также, что для всех исследованных ОД глубины, на которые они могут проникать внутрь оболочек ТВЭЛ (сплав Э110), находятся в диапазоне ~8–10 мкм.

Этот результат хорошо согласуется с выводами Higabayashi и др. [23] при экспериментальном исследовании распределения ОД в оболочке из циркалоя-4 отработавшего топлива методом ступенчатого травления. Согласно этим результатам, более 98 % ОД были обнаружены на глубине ~10 мкм от внутренней поверхности оболочек ТВЭЛ.

Таблица 3. Повреждения сплава Э110 и хромового покрытия на сплаве Э110

Table 3. Damage caused in E110 alloy and Cr coated E110

Ионы/Ions	⁹⁹ Tc	⁹⁸ Ru	¹⁰² Mo	¹⁰³ Rh	¹⁰⁷ Pd	¹²⁷ I	¹³³ Cs
Энергия, МэВ/Energy, MeV	120					90	
Повреждения Э110 вакансий/ион Damage (E110), vacancies/ion	27160	29060	26830	29890	31340	40410	43740
Повреждения (Cr на Э110), вакансий/ион Damage (Cr coated E110), vacancies/ion	22720	24300	22510	24970	26060	33600	36330
Толщина Cr, мкм/Cr thickness, μm	9	9	9	9	9	8	8

Кроме того, было показано, что содержание продуктов деления в оболочках имеет градиентное распределение по глубине. Это может быть напрямую связано с градиентом выхода и энергией отдачи ОД при делении ядер [18].

Сводка результатов расчетов распределения повреждений, вызванных основной группой ОД и выбранной толщиной хрома, приведена в табл. 3. Видно, что повреждения, вызванные в покрытиях хрома, меньше, чем вызванные теми же ионами в сплаве Э110, что указывает на большую способность хромовых покрытий выдерживать облучение ОД и обеспечивать защиту внутренней поверхности ТВЭЛ.

Представленные в табл. 3 результаты коррелируют также с наблюдениями Ciszak и др. [23], полученные при исследовании методом Рамановской спек-

троскопии внутреннего приповерхностного слоя ТВЭЛ из циркалоя-4 после его использования в качестве оболочки топлива глубокого выгорания. Наблюдалось градиентное распределение имплантированных ОД до глубины от 8 до 10 мкм.

Было также смоделировано максимальное повреждение в сплаве Э110, соответствующее максимальной ожидаемой энергии отдачи для ОД. Исходя из диапазонов имплантации и повреждения выбирается минимальная толщина тонкой пленки Cr, которая могла бы обеспечить достаточную защиту внутренней поверхности оболочки ТВЭЛ. На рис. 3 показаны распределения повреждений, вызванных Тс 120 МэВ в сплаве E110, а на рис. 4 – распределения повреждений в пленке циркония, «нанесенной» на этот сплав.

Total Displacements = 27162 / Ion
 Total Vacancies = 27162 / Ion
 Replacement Collisions = 0 / Ion

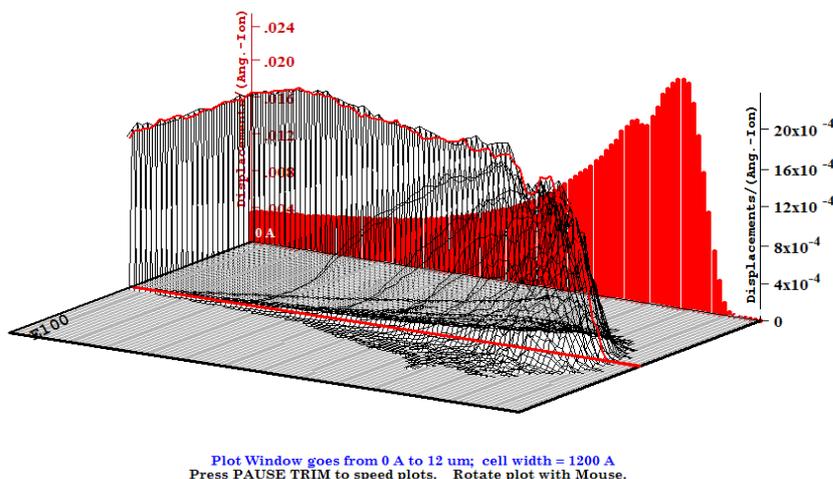


Рис. 3. Распределения повреждений, вызванных 120 МэВ Тс в сплаве Э110
 Fig. 3. Damage caused by 120 MeV Tc in E110 alloy

Total Displacements = 22725 / Ion
 Total Vacancies = 22725 / Ion
 Replacement Collisions = 0 / Ion

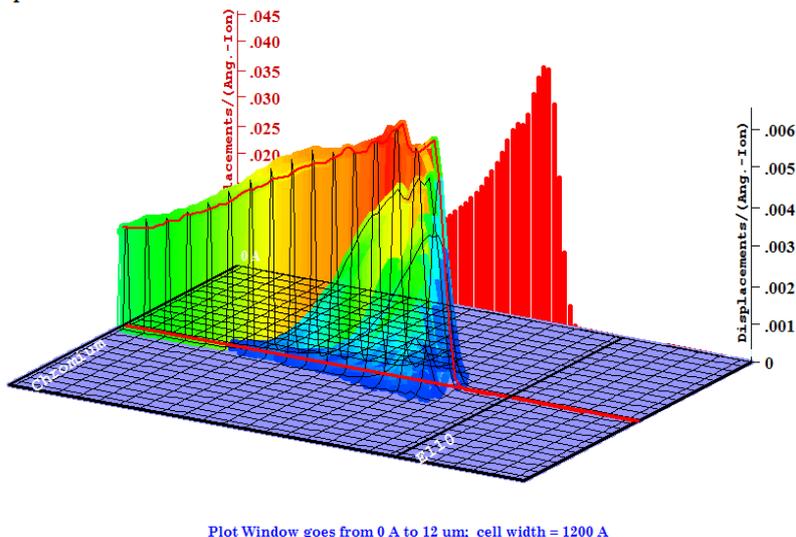
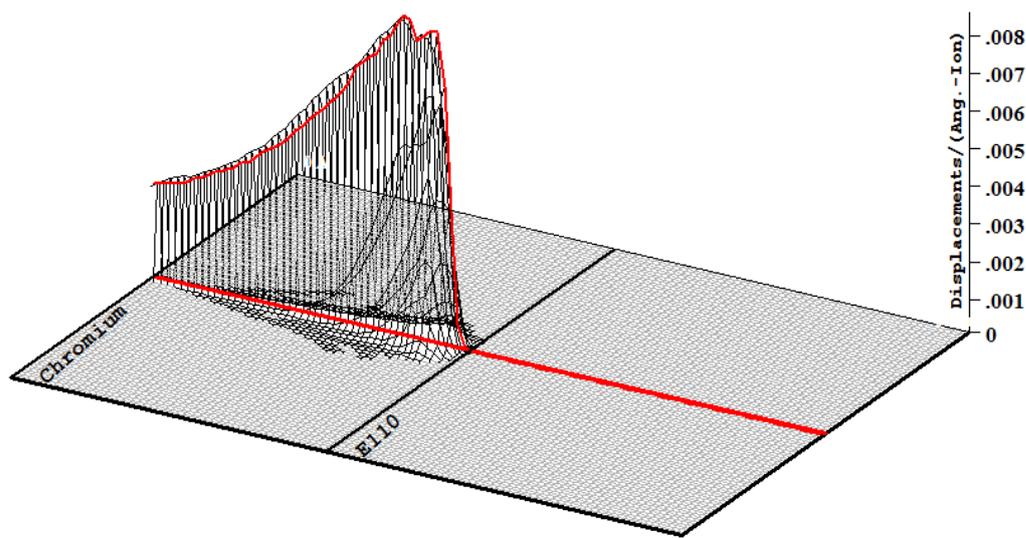


Рис. 4. Распределения повреждений, вызванных атомами Тс 120 МэВ, в покрытии хрома толщиной 9 мкм на сплаве Э110
 Fig. 4. Damage caused by 120 MeV Tc in the Cr-coated with 9 μm on E110 alloy

На рис. 5 показаны результаты «использования» Cr-покрытия толщиной 8 мкм (для сравнения расположения максимальной глубины повреждения относительно границы «пленка/подложка» при использовании толщины 9 мкм, показанной на рис. 4). Видно, что в этом случае повреждения, с максимумом распределения при

7,3 мкм, распространяется на область границы раздела «покрытие (Cr)/материал трубки (Э110)», что, в свою очередь, может повлиять на адгезию покрытия, поскольку вблизи областей раздела будут существовать дефекты и вакансии. Это может привести к быстрому отшелушиванию покрытия при эксплуатации.

Total Displacements = 22725 / Ion
Total Vacancies = 22725 / Ion
Replacement Collisions = 0 / Ion



Plot Window goes from 0 A to 17 um; cell width = 1700 A

Рис. 5. Распределение повреждений в системе «покрытие Cr толщиной 8 мкм на сплаве Э110» ионами Tc с энергией 120 МэВ

Fig. 5. Distribution of damage in the system «Cr coating 8 μm thick on E110 alloy» by Tc ions with 120 MeV energy

Таким образом, основываясь на выходных данных моделирования, можно сделать вывод, что для обеспечения адекватной защиты внутренней поверхности оболочек ТВЭЛ на основе циркония потребуются хромовое покрытие толщиной ~9 мкм, принимая во внимание основные факторы, способствующие деградации на внутренней стороне оболочки ядерного топлива.

Заключение

В этом исследовании изучены некоторые аспекты разработки тонкопленочных покрытий на внутреннюю поверхность трубок ТВЭЛ ядерных реакторов с целью защиты от осколков деления ядерного топлива. Основным используемым в исследовании метод –

компьютерное моделирование физических процессов с использованием признанного мировым научным сообществом пакета компьютерных программ.

Минимальная толщина покрытия Cr для защиты внутренней поверхности трубок ТВЭЛ определена, как равная 9 мкм. Данная толщина хромовой пленки обеспечит достаточную защиту внутренней поверхности ТВЭЛ от проникновения высокоэнергетических осколков деления ядерного топлива. Результаты расчетов подтверждены опубликованными экспериментальными данными.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 19-79-10116)

REFERENCES/СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Chen H., Wang X., Zhang R. Application and development progress of Cr-based surface coatings in nuclear fuel element: I. Selection, preparation, and characteristics of coating materials. *Coatings*, 2020, vol. 10, no. 808. DOI: 10.3390/coatings10090808.
2. Tang C., Stueber M., Seifert H., Steinbrueck M. Protective coatings on zirconium-based alloys as accident-tolerant fuel (ATF) claddings. *Corrosion Reviews*, 2017, vol. 35, pp. 141–165. DOI: 10.1515/corrrev-2017-0010.
3. Idarraga-Trujillo I., Flem M. L., Brachet J., Saux M.L., Hamon D., Muller S., Vandenberghe V., Tupin M., Papin E., Monsifrot E., Billard A., Schuste F. Assessment at CEA of coated nuclear fuel cladding for LWRs with increased margins in LOCA and beyond LOCA conditions. *Proceeding of LWR Fuel Performance Meeting/Top Fuel*. Charlotte, USA, September 15–19, 2013. pp. 860–867.
4. Brachet J.C., Le Saux M., Le Flem M., Urvoy S., Rouesne E., Guilbert T., Cobac C., Lahogue F., Rousselot J., Tupin M., Billaud P., Hossepied C., Schuster F., Lomello F., Billard A., Velisa G., Monsifrot E., Bischoff J., Ambard A. On-going studies at CEA on

- chromium coated zirconium based nuclear fuel claddings for enhanced accident tolerant LWRs fuel. *Proceedings of 2015 LWR Fuel Performance/Top Fuel*. Zurich, Switzerland, September 13–19, 2015. pp. 31–38.
- Ivanova S.V., Glagovsky E.M., Nikonorov K.Y., Belugin I.I., Khazov I.A. Methods to increase corrosion stability and wear resistance. *Proceeding of LWR Fuel Performance Meeting/Top Fuel*. Charlotte, USA, September 15–19, 2013. pp. 334–350.
 - Kim H.G., Kim I., Jung Y., Park D., Park J., Koo Y. Adhesion property and high-temperature oxidation behavior of Cr-coated Zircaloy-4 cladding tube prepared by 3D laser coating. *Journal of Nuclear Materials*, 2016, vol. 465, pp. 531–539.
 - Park J.H., Kim H., Park J., Jung Y., Park D., Koo Y. High temperature steam-oxidation behavior of arc ion plated Cr coatings for accident tolerant fuel claddings. *Surface and Coatings Technology*, 2015, vol. 280, pp. 256–259.
 - NEA. *State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels*, 2018, NEA-7317. Paris, OECD Publishing. 2018. 372 p. Available at: https://www.oecd-neo.org/jcms/pl_15020/state-of-the-art-report-on-light-water-reactor-accident-tolerant-fuels?details=true (accessed 15 March 2023).
 - Michau A., Maury F., Schuster F., Lomello F., Boichot R., Pons M., Brachet J., Monsifrot E. Inner-side coatings for advanced fuel claddings processed by DLI-MOCVD. *Proceedings of the Water Reactor Fuel Performance Meeting*. Jeju Island, Korea, 2017. pp. 1–7.
 - Michau A., Maskrot H., Gazal Y., Maury F., Boichot R., Pons M., Brachet J., Monsifrot E., Schuster F. Inner surface protection of nuclear fuel cladding, towards a full-length treatment by DLI-MOCVD, an optimized coating process. *Proceedings of the Top Fuel*. Prague, Czech Republic, 2018. pp. 1–11.
 - Michau A., Gazal Y., Addou F., Maury F., Duguet T., Boichot R., Pons M., Monsifrot E., Maskrot H., Schuster F. Scale up of a DLI-MOCVD process for the internal treatment of a batch of 16 nuclear fuel cladding segments with a CrxCy protective coating. *Surface and Coatings Technology*, 2019, vol. 375, pp. 894–902. DOI: 10.1016/j.surfcoat.2019.06.101.
 - Brachet J.C., Urvoy S., Rouesne E., Nony G., Dumervil M., Saux M.L., Ott F., Michau A., Schuster F., Maury F. DLI-MOCVD CrxCy coating to prevent Zr-based cladding from inner oxidation and secondary hydriding upon LOCA conditions. *Journal of Nuclear Materials*, 2021, vol. 550, pp. 152953. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2021.152953.
 - Edsinger K., Murty K.L. LWR pellet-cladding interactions: materials solutions to SCC. *Journal of Nuclear Materials*, 2001, vol. 53, pp. 9–13. DOI: 10.1007/s11837-001-0079-7.
 - Lach T.G., Edwards D.J., Buck E.C., McNamara B.K., Schwantes J.M., Clark R.A. Fission recoil-induced microstructural evolution of the fuel-cladding interface [FCI] in high burnup BWR fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 2019, vol. 521, pp. 120–125. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.04.044.
 - Schuster I., Lemaignan C. Embrittlement, induced by fission recoils, of the inner surface of PWR fuel cladding – a simulation using heavy ions. *Journal of Nuclear Materials*, 1988, vol. 151, pp. 108–111. DOI: 10.1016/0022-3115(88)90062-1.
 - Nakatsuka M., Nomata T., Umehara H. Development of the ultra-micro-hardness technique for post irradiation examination of fuel cladding tubes. *Journal of Nuclear Science Technology*, 1998, vol. 35, pp. 344–352. DOI: 10.1080/18811248.1998.9733870.
 - Rymzhanov R.A., Saifulin M.M., Akilbekov A. Numerical estimation of fission fragments flux on surface of fuel cladding. *Proceedings of the 12th International Conference Interaction of Radiation with Solids*. Minsk, Belarus, 2017. pp. 108–110.
 - Clark R.A., Conroy M.A., Lach T.G., Buck E.C., Pellegrini K.L., McNamara B.K., Schwantes J.M. Distribution of metallic fission product particles in the cladding liner of spent nuclear fuel. *NPJ Material Degradation*, 2020, vol. 4, pp. 1–9.
 - Sidky P. Iodine stress corrosion cracking of Zircaloy reactor cladding: iodine chemistry (a review). *Journal of Nuclear Materials*, 1998, vol. 256, pp. 1–17. DOI: 10.1016/s0022-3115(98)00444-0.
 - Andrianova N.N., Borisov A.M., Mashkova E.S., Ovchinnikov M.A., Timofeyev M.A., Vysotina E.A. Surface patterns formation by high fluence ions irradiation of PAN based carbon fibers. *Vacuum*, 2021, V.188, Art. 110177. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2021.110177> (accessed 15 March 2023).
 - Ziegler J.F., Biersack J.P., Ziegler M.D. SRIM – the Stopping and Range of Ions in Matter. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2010, vol. 268, Iss. 11–12, pp. 1818–1823. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091> (accessed 15 March 2023).
 - Hirabayashi T., Sato T., Sagawa C., Masaki N., Saeki M., Adachi T. Distributions of radionuclides on and in spent nuclear fuel claddings of pressurized water reactors. *Journal of Nuclear Materials*, 1990, vol. 174, pp. 45–52. DOI: 10.1016/0022-3115(90)90419-n.
 - Ciszak C., Mermoux M., Miro S., Gutierrez G., Leprêtre F., Popa I., Hanifi K., Zacharie-Aubrun I., Fayette L., Chevalier S. Micro-Raman analysis of the fuel-cladding interface in a high burnup PWR fuel rod. *Journal of Nuclear Materials*, 2017, vol. 495, pp. 392–404. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2017.08.038.

Поступила: 27.03.2023 г.

Прошла рецензирование: 11.04.2023 г.

Информация об авторах

Хамад Халифад Р., аспирант отделения экспериментальной физики Инженерной школы ядерных технологий Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Никитенков Н.Н., доктор физико-математических наук, профессор отделения экспериментальной физики Инженерной школы ядерных технологий Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Кудияров В.Н., кандидат технических наук, доцент отделения экспериментальной физики Инженерной школы ядерных технологий Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 538.9

CALCULATION OF NUCLEAR FUEL CLADDING INTERNAL COATING THICKNESS FOR EMERGENCY RESISTANT NUCLEAR FUEL ELEMENT

Rofida Hamad Khalifa Hamad¹,
rofida@tpu.ru

Nikolai N. Nikitenkov¹,
nikitenkov@tpu.ru

Viktor N. Kudiyarov¹,
kudiyarov@tpu.ru

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

The relevance of the study lies in the need to create an emergency resistant fuel for nuclear reactors, based on the study of the consequences of accidents in Chernobyl and Fukushima. The specific problem to which the work is devoted is the creation of thin-film chromium coatings on the inside of nuclear fuel element tubes, which is one of the directions for creating an emergency resistant core of a nuclear reactor.

The main aim of the research is to determine the minimum thickness of the chromium coating necessary for adequate protection of the inner side of the fuel rod cladding from nuclear fuel fission fragments.

Methods: a well-developed (more than 60 years of improvement) and widely known and recognized software package to simulate the physical processes of radiation and accelerated particle transport in solids using Monte Carlo statistics. The determination of the minimum thickness of the chromium coating to ensure protection of the inner side of the fuel element cladding from the main group of high-energy fission fragments of nuclear fuel was carried out on the basis of calculations using the TRIM program (from the SRIM package). ⁹⁷Tc, ⁹⁸Mo, ¹⁰²Ru, ¹⁰³Rh, ¹⁰⁶Pd, ¹²⁷I, ¹³³Cs were selected as bombarding the coating from their wide range of nuclear fuel fission fragments, as the most high-energy and at the same time, having different chemical properties.

Results. It was found that the minimum thickness of chromium required to provide adequate protection of the inner surface of the fuel tube from the main fission fragments of the U₂₃₅O₂ fuel is 9 μm. Experimental data confirming this result are presented.

Key words:

emergency resistant fuel, chrome coating, internal coating, nuclear fuel, neutron flux, reactivity, fuel cycle.

The research was supported by the Russian Science Foundation (project no. 19-79-10116).

Information about the authors

Rofida Hamad Khalifa Hamad, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.

Nikolai N. Nikitenkov, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Viktor N. Kudiyarov, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Received: 27 March 2023.

Reviewed: 11 April 2023.