

## ФОРМИРОВАНИЕ ФУНКЦИОНАЛЬНОГО СЛОЯ НА ПОВЕРХНОСТИ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВНОГО ЭЛЕМЕНТА ПОД ДЕЙСТВИЕМ ИМПУЛЬСНОГО ПУЧКА ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

**В.И. Бойко, Б.Е. Кадлубович, И.В. Ломов, В.Н. Нестеров,  
И.В. Шаманин**

*Томский политехнический университет, г. Томск*



Рассмотрена возможность использования мощных импульсных пучков заряженных частиц для создания технологии нанесения функциональных покрытий и формирования функционального (защитного) слоя на поверхности ядерного топливного элемента. Технология рассматривается как альтернатива технологии формирования покрытий методом «псевдооживленного слоя». Приведены результаты экспериментов, показывающие работоспособность предлагаемой идеи.

### СОСТОЯНИЕ ПРОБЛЕМЫ

Энергетический комплекс России в настоящее время находится в состоянии стагнации. В ближайшие двадцать лет уровень необходимого энергообеспечения может быть обеспечен на базе имеющихся энерготехнологий, включая ядерные, при условии ежегодного ввода в строй ядерного энергоблока установленной электрической мощностью 1000–1500 МВт. Через 10–15 лет уже будет ощущаться серьезный дефицит в качественно новых энергоисточниках. Объективно можно ожидать прорыва новых технологий в наиболее наукоемких сферах человеческой деятельности, в число которых входит ядерная энергетика [1].

В ближайшей перспективе предусматривается введение в строй высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов, тепловыделяющие элементы которых представляют собой графитовые конструкции, диспергированные ядерными топливными микроэлементами – «coated particles» [2]. Микросфера диаметром до 800 мкм представляет собой сферический ядерный керн (керамическое соединение делящегося материала) диаметром 350–400 мкм, покрытый последовательными слоями пиролитического углерода и карбида кремния. Толщина каждого слоя составляет около 70 мкм.

Также рассматривается возможность использования технологии «coated particles» для формирования функциональных покрытий на ядерных топливных элементах стандартной конфигурации – цилиндрических таблетках диаметром 8–12 мм и высотой до 15 мм [3]. Они предназначены для легководных реакторов

LWR (ВВЭР) и в этом случае требуется только один функциональный слой из карбида кремния, т.к. необходимости в совмещении ядерного топлива с графитовой матрицей нет.

Таким образом, одной из технологий, которые, возможно, обеспечат прорыв в ядерной энергетике, является технология «coated particles». Она повышает степень экологической приемлемости и, следовательно, конкурентоспособность ядерной энергетике на рынке энергетических технологий. Это достигается в первую очередь тем, что формирование функциональных слоев (покрытий) на поверхности ядерных топливных микроэлементов и элементов стандартной конфигурации создает дополнительный барьер безопасности.

Первый барьер безопасности – это сам топливный материал, который, по возможности, максимально должен удерживать в своем объеме продукты деления. Второй барьер безопасности – это оболочка тепловыделяющего элемента, выполненная из цирконий-ниобиевого или цирконий-оловянного (циркалоя) сплава в случае стержневых тепловыделяющих элементов водоохлаждаемых реакторов, либо последовательность слоев пиролитического углерода и карбида кремния в случае высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов.

В керамическом ядерном топливе под действием облучения происходит накопление газообразных продуктов деления (ГПД), которые при высоких температурах диффундируют, но остаются в пределах оболочки либо функционального многослойного покрытия (второго барьера безопасности). Основными эффектами, вызванными облучением в мощном потоке нейтронов, являются радиационный рост и распухание [4]. Топливо растрескивается и может фрагментироваться. Второй барьер безопасности способствует также сохранению целостности.

Формирование функционального слоя на поверхности топливной таблетки стержневого тепловыделяющего элемента водоохлаждаемого реактора создает дополнительный барьер безопасности между ядерным топливом и оболочкой из циркониевого сплава. Таким образом, технология «coated particles», разработанная для формирования покрытий на поверхности сферических микроэлементов, может быть использована в случае топливных таблеток стандартной конфигурации [3].

Технология «coated particles» реализована, как для сферических микроэлементов, так и для цилиндрических таблеток. Технология формирования функционального покрытия (последовательных покрытий) методом «псевдооживленного слоя» [5] разрабатывалась в течение 20 лет в Германии. Затраты на разработку составили несколько миллиардов DM. Основным недостатком технологии является ограниченный набор материалов (углерод, карбид кремния) и очень жесткие требования к постоянству термодинамических параметров среды, образованной осаждаемым на ядерный топливный элемент веществом. К нему добавилась сложность, вызванная нарушением сплошности слоя на кольцевой границе между боковой и торцевой поверхностями цилиндрической таблетки. Кроме того, нанесение металлических слоев методом «псевдооживленного слоя» на сегодняшний день не представляется возможным.

В этой связи была поставлена задача – рассмотреть возможность использования пучковых технологий для формирования функционального слоя на поверхности ядерно-топливного элемента (микроэлемента). Многолетние экспериментальные и расчетные исследования [6] показывают, что указанная задача может быть решена двумя путями.

## ОСАЖДЕНИЕ МАТЕРИАЛА МИШЕНИ, ОБЛУЧАЕМОЙ ИМПУЛЬСНЫМ ПУЧКОМ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ, НА ЯДЕРНЫЙ ТОПЛИВНЫЙ ЭЛЕМЕНТ

Данная идея поддержана Институтом исследований безопасности и реакторных технологий (ISR-2) Исследовательского центра (Forschungszentrum) г. Юлих (Jülich) и Высшей технической школой (RWTH) г. Аахен (Aachen), Германия.

При воздействии «под углом» на мишень мощного импульсного пучка заряженных частиц с ее поверхности «нормально» расширяется газоплазменный факел (см. рис.1). В случае мощного импульсного протонно-углеродного пучка, генерируемого в диоде с магнитной изоляцией [7] и радиус которого составляет около 2 см, на поверхности металлической мишени образуется газоплазменный факел. Его структура, зафиксированная стандартной электронно-оптической камерой АГАТ-СФ, приведена на рис. 2. Характерное время протекания гидрогазодинамических явлений (расширение и отрыв факела от поверхности мишени) составляет величину порядка микросекунд. При скорости расширения  $\sim 10^6$  см/с и временном интервале между началом формирования и моментом отрыва факела от поверхности мишени  $5\div 9$  мкс его пространственная протяженность составляет  $5\div 9$  см.

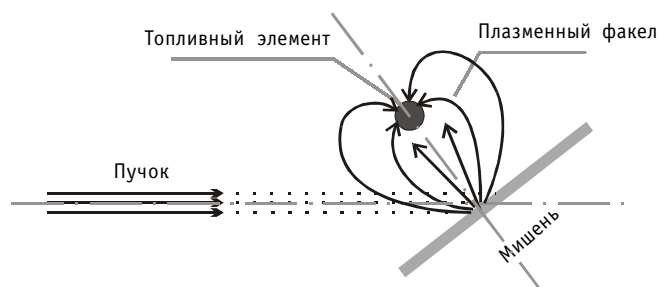


Рис.1. Геометрия системы: пучок – мишень – ядерный топливный элемент

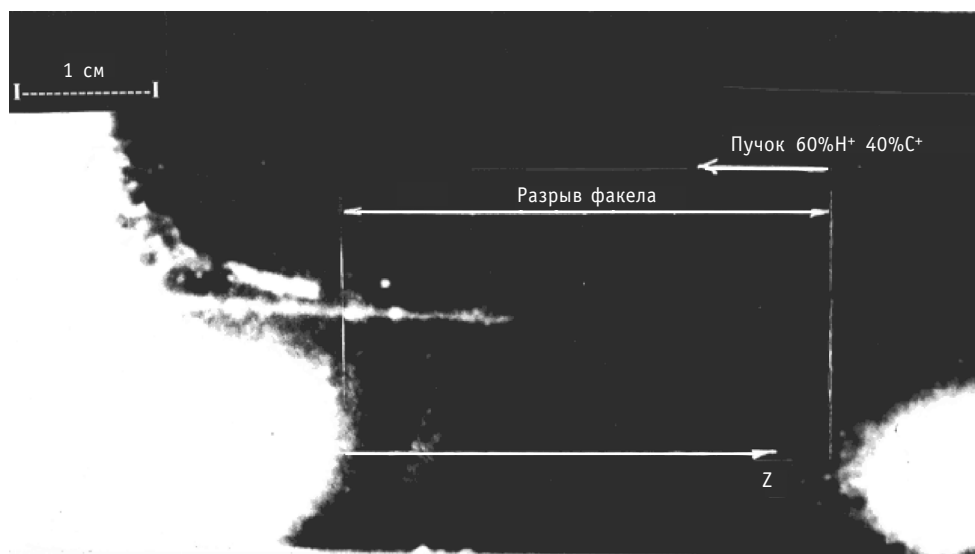


Рис. 2. Фотография свечения разлетающегося с поверхности алюминиевой мишени газоплазменного факела после окончания импульса тока протонно-углеродного пучка ( $t \gg 1$  мкс)

За один импульс ионного тока с облучаемой поверхности в газоплазменном факеле уносится: 2,06; 2,68; 3,99; 2,98 и 27,22 мг/см<sup>2</sup> для алюминиевой, железной, медной, вольфрамовой и свинцовой мишени соответственно. Вещество газоплазменного факела изотропно и равномерно [6] оседает на поверхность элемента любой конфигурации, помещенного в область расширения факела. Главное условие для этого – малые характерные размеры элемента по сравнению с размерами факела (~ 1 см). Для сферического ядерного топливного элемента диаметром 800 мкм это условие хорошо выполняется. Таким образом, за один импульс на поверхности элемента образуется слой металла толщиной 10÷40 мкм. Металл может быть любым. Перечень материалов, слои которых могут быть осаждены на поверхность керамического керна, очень широк (в том числе, графит и карбид кремния). Основное требование к ним – они должны находиться в твердом состоянии и быть предварительно освобождены от сорбированных примесей. Экспериментально установленные значения ряда параметров, приведенные выше, имеют место для конкретных условий генерации пучка [7]. Сочетание амплитудно-временных параметров импульсов ускоряющего напряжения и ионного тока, параметров мишени (плотность, заряд ядер атомов материала) определяет массу вещества, унесенного с поверхности мишени, геометрические размеры факела и, следовательно, толщину функционального слоя на поверхности ядерного топливного элемента. Все это относится и к случаю использования высокопоточного импульсного электронного пучка для формирования газоплазменного факела.

Особенностью материала, образующего функциональное покрытие в данном случае, является его структура – она аморфная. В ней отсутствует «дальний порядок», который формируется в процессе нормальной кристаллизации из жидкого состояния и в технологии формирования функционального покрытия из «псевдоожуженного слоя». Неоспоримым преимуществом неупорядоченной аморфной структуры является чрезвычайная низкая проницаемость для ГПД. Коэффициенты диффузии газов в металле [8] уменьшаются более чем на порядок в случае, если они находятся в аморфном состоянии.

Таким образом, как показали эксперименты, идея формирования функционального покрытия на ядерном топливном элементе путем осаждения необходимого материала мишени (в том числе металла или сплава), облучаемой мощным импульсным пучком заряженных частиц, является работоспособной и обеспечивает серьезные преимущества возможной технологии.

### **ОБРАЗОВАНИЕ АМОРФНОГО, СТЕКЛОВИДНОГО ЗАЩИТНОГО СЛОЯ НА ПОВЕРХНОСТИ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВНОГО ЭЛЕМЕНТА ПРИ НЕПОСРЕДСТВЕННОМ ВОЗДЕЙСТВИИ ИМПУЛЬСНОГО ПУЧКА ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ**

При воздействии импульсного пучка заряженных частиц на поверхности металла или сплава образуется приповерхностный аморфный слой [6,9], характеризующийся повышенной твердостью, прочностью, коррозионной стойкостью, и, как отмечено выше, низкой проницаемостью для газов. Параметры пучка должны быть такими, чтобы на облучаемой поверхности в течение импульса тока пучка происходило плавление, а толщина расплавленного слоя была очень малой (~10 мкм) для его высокоскоростного охлаждения ( $10^6$ – $10^7$  К/с) за счет теплопереноса в объем облучаемой мишени. При этом затвердевание расплавленного приповерхностного слоя происходит не по классической схеме с образованием зародышей (кристаллизация), а образуется аморфная структура (аморфные металлические стекла). В случае керамических материалов, полученных методом прессования с

последующим спеканием (компактная двуокись урана, плутония или тория в стандартной топливной таблетке), процесс остекловывания поверхности происходит по той же схеме: образуется сплошной, прочный слой стеклообразной металло-керамики.

Таким образом, можно создать дополнительный барьер безопасности из материала топливного элемента за счет значительного снижения диффузии ГПД и за счет создания прочной «скорлупы», поддерживающей целостность ядерного топливного элемента.

В экспериментах использовался мощный импульсный электронный пучок микросекундной длительности, генерируемый установкой ОМЕГА-350 [10]. Ускорительный комплекс позволяет генерировать электронные пучки длительностью от 0,5 до 2,5 мкс при плотности тока до 50 кА/см<sup>2</sup> и энергией электронов до 350 кэВ, обеспечивая энергозапас пучка более 1 кДж при КПД генерации около 65%.

Фотографии торцевой поверхности цилиндрической керамической таблетки, выполненной из ядерной функциональной керамики, приведены на рис. 3. Фотографии получены на металлографическом микроскопе ЕС МЕТАМ РВ-22. Фотография скола цилиндрической таблетки приведена на рис. 4.

Сравнение необлученного (рис. 3, а) и облученного (рис. 3, б) элементов указывает на изменение структуры после облучения и образование сплошного аморфного стекловидного слоя. Толщина аморфизированного слоя (рис. 4) составляет 10 ÷ 50 мкм на облученной поверхности.

Образование аморфизированного слоя может быть вызвано двумя причинами.

Первая – инициация каскадов смещений в кристаллической мишени при бомбардировке пучком тяжелых заряженных частиц (ионов) [11]. Каскады смещений существуют  $10^{-12} \div 10^{-10}$  с, после чего релаксируют. При высокой плотности имплантированных ионов (более  $10^{16}$  см<sup>-2</sup>) отдельные каскады накладываются друг на друга. Их релаксация подобна охлаждению со скоростями  $10^{13} \div 10^{15}$  К/с, вызывающему аморфизацию поверхностного слоя. В случае мишени из ядерного топливного мате-

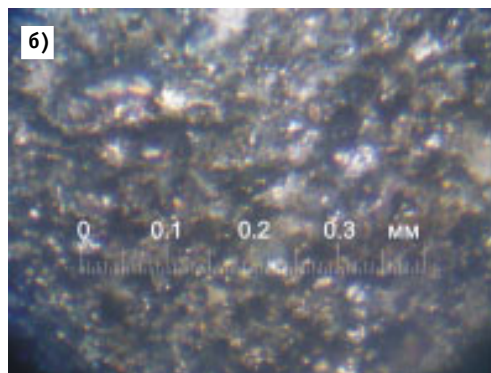
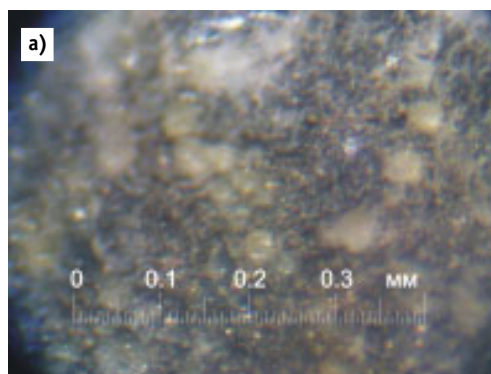


Рис. 3. Необлученный (а) и облученный (б) керамический материал (торец таблетки)

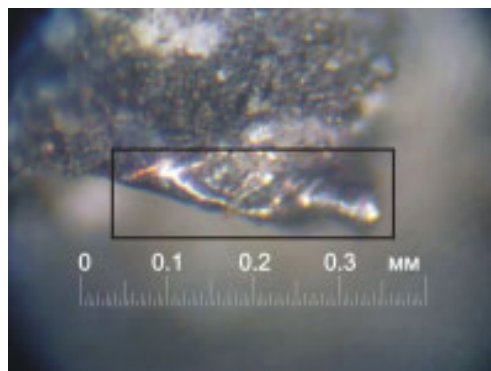


Рис. 4. Облученный керамический материал (скол таблетки)

риала, полученного методами порошковой металлургии, такой способ образования аморфной структуры не пригоден.

Вторая – сверхвысокоскоростное охлаждение и затвердевание из расплавленного (жидкого) состояния, вызванного воздействием мощного импульсного пучка заряженных частиц. Этот способ реализован в вышеописанных экспериментах.

При сверхвысоких скоростях охлаждения из жидкого состояния диффузионные процессы настолько замедляются, что подавляется образование зародышей и рост кристаллов. В этом случае при затвердевании образуется аморфная структура. В ней отсутствует дальний порядок и характерные особенности структуры поликристаллических сплавов: границы зерен, дислокации и другие дефекты [12]. Прямое доказательство факта образования аморфного слоя может быть получено в дифракционных исследованиях. Косвенно о данном факте могут свидетельствовать, например, изменения зеренной структуры и твердости.

Если макроструктуру поверхности рассматривать как фрактальную систему, то уменьшение размеров зерен должно соответствовать увеличению фрактальной размерности. Одной из основных характеристик фрактальной системы является фрактальная размерность  $N \approx R^D$ , где  $N$  – число структурных элементов, содержащихся в зародыше новой фазы;  $R$  – размер области, в которой определяется число структурных элементов;  $D$  – фрактальная размерность (характеристика того, как кластер заполняет занимаемое им пространство). Обработка фотографий позволила определить, что для необлученной поверхности  $D = 1,29$ , а для облученной (оплавленной) –  $D = 1,65$ . Средняя фрактальная размерность новой структуры выше, что свидетельствует об уменьшении размеров элемента ее периодичности (исчезновении дальнего порядка) и возможной аморфизации слоя.

Твердость по Виккерсу «классических» керамических материалов, полученных при спекании прессованных порошков, составляет величину около 600 HV10 [13]. Измерения, выполненные до облучения, показали значение 640÷660 HV10. После облучения твердость составила около 980 HV10, т.е. она возросла почти в 1,5 раза. Увеличение микротвердости поверхности сталей, облученных импульсным электронным пучком, в работе [11] связывают с фактом образования аморфной структуры за счет охлаждения расплавленного поверхностного слоя со скоростью  $6 \cdot 10^6$  К/с. Таким образом, имеется еще одно косвенное свидетельство о возможном образовании аморфной структуры в случае ядерной функциональной керамики.

Кроме отмеченных ранее преимуществ, при аморфизации повышается стойкость к усталостному разрушению, поскольку на облученной поверхности «залеживаются» микротрещины, а также уменьшается размер зерен от десятков микрон до долей микрона.

Таким образом, существует еще одна возможность создания функционального (защитного) слоя на поверхности ядерного топливного элемента стандартной конфигурации – непосредственное воздействие импульсного пучка заряженных частиц.

## **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

Проведенные эксперименты доказывают возможность использования пучковых технологий для решения одной из насущных проблем ядерной энергетики – повышения безопасности за счет увеличения количества ее барьеров. Технология формирования функциональных слоев (покрытий) на поверхности ядерных топливных элементов может базироваться на двух процессах: осаждении материала газоплазменного факела, расширяющегося с поверхности облучаемой мишени, и высокоскоростном охлаждении (замораживании) расплавленного под действием импульсного пучка заряженных частиц приповерхностного слоя.

### Литература

1. Вторая Международная конференция ENERGY STRAT'2004. Планирование развития энергетики: методология, программное обеспечение, приложения: Тезисы докладов. – М.: ФГУП ЦНИИА-ТОМИНФОРМ, 2004. – 64 с.
2. Brown P.E., Fawcloth R.L. Metal fission product behavior in high temperature reactors  $UO_2$  coated particle fuel//J. Nuclear Materials. – 1976. – V. 59. – Issue 1. – P. 29-41.
3. Alkan Z., Kugeler K., Kaulbarsch R., Manter C. Silicon carbide encapsulated fuel pellets for light water reactors // Progress in Nuclear Energy. – 2001. – V. 38. – № 3-4. – P. 411-414.
4. Белянин Л.А., Лебедев В.И., Гарусов Ю.В., Еперин А.П., Шмаков Л.В., Карраск М.П., Курносов В.А., Иванов В.А. Барьеры безопасности на АЭС с канальными реакторами. – М.: Энергоатомиздат, 1997. – 192 с.
5. Hase T., Suzuki H., Iseki T. Formation process of I-SiC during reaction-centering//J. Nuclear Materials. – 1976. – V. 59. – Issue 1. – P. 42-48.
6. Бойко В.И., Скворцов В.А., Фортков В.А., Шаманин И.В. Взаимодействие импульсных пучков заряженных частиц с веществом. – М.: Физматлит, 2003. – 288 с.
7. Алтухов Д.Е., Бойко В.И., Шаманин И.В. Динамика формирования, параметры и структура газо-плазменного факела, образующегося при воздействии на металл мощного импульсного ионного пучка//Теплофизика высоких температур. – 1996. – Т. 34. – № 3. – С. 341-348.
8. Коган Я.Д., Колачев Б.А., Левинский Ю.В. и др. Константы взаимодействия металлов с газами: Справочник. – М.: Металлургия, 1987. – 368 с.
9. Белый А.В., Кукаренко В.А., Лободаева О.В., Таран И.И., Ших С.К. Ионно-лучевая обработка металлов, сплавов и керамических материалов. – Минск: Изд-во Физико-технического института НАН Беларуси, 1998. – 220 с.
10. Шаманин И.В., Кадлубович Б.Е., Колбаенков А.А. Сильноточный микросекундный ускоритель электронов ОМЕГА-350//Известия ТПУ: Проблемы и перспективы технологий атомной промышленности. – 2002. – Т. 305. – № 3. – С. 305-309.
11. Диденко А.Н., Лигачев А.Е., Куракин И.Б. Воздействие пучков заряженных частиц на поверхность металлов и сплавов. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 184 с.
12. Арзамасов Б.Н., Макарова В.И., Мухин Г.Г. и др. Материаловедение: Учебник для вузов/Под общ. ред. Б.Н. Арзамасова, Г.Г. Мухина. – М.: Изд-во МГТУ им. Н.Э.Баумана, 2002. – 648 с.
13. Ма Б.М. Материалы ядерных энергетических установок. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 408 с.

Поступила в редакцию 1.04.2005

journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 5 pages, 2 illustrations. – References, 4 titles.

Experimental research of hydraulic parameters of the container reactor model on facility MR is presented. Hydraulic model of a two-loop container-type reactor is described. Experimental data are given in a wide range of facility parameters including loss-of flow accidents when one of circulation pumps stops completely.

#### **УДК 621.039.54**

*The Forming of the Functional Layer on the Nuclear Fuel Element Surface by the Pulsed Charged Particles Beam Action* \V.I. Boiko, B.E. Kadlubovich, I.V. Lomov, V.N. Nesterov, I.V. Shamanin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 7 pages, 4 illustrations. – References, 13 titles.

The possibility of use of the pulsed charged particles beam for development of technology of functional layers sputtering and functional (protectional) layer forming on the nuclear fuel element surface is examined. This technology is considered as alternative for the technology of the layers forming by means of «pseudo-liquefied layer» method. The results of experiments that show the capacity for work of the proposed idea are presented.

#### **УДК 621.039.532.21**

*Evaluation of the Reactor's Graphite Resource of Cells of the Operation and Protection System with the Degradation of the Thermo-physical Properties Taking into account* \V.I. Boiko, V.V. Shidlovskiy, P.M. Gavrilov, V.N. Nesterov, I.V. Shamanin, A.V. Ratman; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 10 pages, 10 illustrations, 1 table. – References, 9 titles.

The evaluation of the realistic distributions of the graphite resource of the tube water-cooling reactors with the graphite moderator is carried out. The changes of the heat-exchange and heat-transfer conditions that are caused by thermo-physical properties degradation and by the form changes of the construction's elements are taken into account. Peculiarities that are stipulated by the spectrum of the neutrons flows differences and by the differences of parameters of the gamma-ray in the fuel channels and in the operation and protection system channels are taken in account.

#### **УДК 621.039.534**

*Method and Device for Indication of the State of Passivation Films on the Surface of Structural Materials in Heathy Liquid Metal Coolants* \P.N. Martynov, M.E. Chernov, V.A. Gulevskiy, U.A. Teplykov, A.A. Provorov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of High Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2005. – 8 pages, 5 illustrations. – References, 7 titles.

Protection of the structural materials of NPP primary circuits against the corrosive attack of lead or lead-bismuth coolants is implemented by building up on their surfaces of an oxide bed based on steel components, primarily iron and chromium. The oxide bed hinders the interpenetration of steel components and coolant and thereby essentially reduces the rate of their interaction. At present various methods of building up protective coatings on structural steels are used: first, steel passivation in oxygen-bearing gas atmosphere (steam-hydrogen mixture, air, carbonyl and carbon dioxide mixture and others); second, ex-vessel passivation in lead or lead-bismuth where the oxygen content is at the level of saturation; and, finally, circuit passivation being implemented in the initial stage of NPP operation by injection into coolant of dissolved oxygen. In the course of NPP operation, the quality of the protective films is maintained by adjusting the concentration of oxygen dissolved in coolant within the specified limits.