

**COMPUTER SIMULATION OF THERMAL FIELDS OF THE Cr-Mo-Zr SYSTEM
FOR COATING FORMATION USING A LOW-ENERGY
HIGH-CURRENT ELECTRON BEAM**

*Andrei Veniaminovich Solovyov^a, Evgeniy Alexandrovich Pesterev,
Evgeniy Vitalievich Yakovlev, Alexei Borisovich Markov, Vsevolod Ivanovich Petrov*

Tomsk Scientific Center, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, Akademicheskii pr. 10/4, 634055, Tomsk, Russia

^a a.solovyov@hq.tsc.ru

ABSTRACT

The paper presents the results of calculations of temperature fields in the system film(Cr)/film(Mo)/substrate(Zr) under pulsed electron-beam impact. The melt thicknesses of the system elements as a function of the NSEP energy density were calculated for Cr film thicknesses of 0.5, 1.0, 2.0 and 3.0 μm and Mo intermediate film thickness of 1.0 μm . In this work, the influence of the energy characteristics of electron beam impact on the thickness and melt lifetime is investigated. It is obtained that the melt lifetimes of Cr, Mo films and Zr substrate depend significantly on the LEHCEB energy density and chromium film thickness.

KEYWORDS

Modeling; low-energy high-current electron beam; surface alloy; chromium; molybdenum; zirconium.

**КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕПЛОВЫХ ПОЛЕЙ
В СИСТЕМЕ Cr-Mo-Zr С ПОМОЩЬЮ НИЗКОЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО
СИЛЬНОТОЧНОГО ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА**

*Андрей Вениаминович Соловьев^а, Евгений Александрович Пестерев,
Евгений Витальевич Яковлев, Алексей Борисович Марков, Всеволод Иванович Петров*

Томский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук, Россия, 634055, Томск, Академический проспект, 10/4

^a a.solovyov@hq.tsc.ru

АННОТАЦИЯ

В работе представлены результаты расчетов температурных полей в системе пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) при импульсном электронно-пучковом воздействии. Были рассчитаны толщины расплавов элементов системы в зависимости от плотности энергии НСЭП для толщин пленки Cr 0,5, 1,0, 2,0 и 3,0 мкм и толщины промежуточной пленки Mo 1,0 мкм. В работе исследуется влияние энергетических характеристик электронно-пучкового воздей-

ствия на толщину и время жизни расплава. Получено, что время жизни расплавов пленок Cr, Mo и подложки Zr в значительной степени зависят от плотности энергии НСЭП и толщины пленки хрома.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА

Моделирование; низкоэнергетический сильноточный электронный пучок; поверхностный сплав; хром; молибден; цирконий.

Введение

В настоящее время повышенный интерес представляют работы направленные на оптимизацию оболочек ТВЭЛ с целью повышения стойкости к окислению при высоких температурах (>1000 °С), которые могут возникнуть в сценариях аварий с потерей теплоносителя (ЛОСА) [1]. Один из методов защиты оболочек ТВЭЛ – это нанесение хромосодержащих покрытий [2, 3]. Диапазон рабочих температур циркониевых сплавов с хромовым покрытием в водяном паре ограничен величиной ~ 1200 – 1250 °С, поскольку при больших температурах коэффициенты диффузии Cr и Zr сильно растут. Взаимная диффузия приводит к образованию эвтектической фазы на границе раздела покрытие/сплав при температуре плавления ~ 1332 °С [4] с образованием окалины и разрушением защитного слоя. Использование молибдена рассматривается в качестве барьерного слоя между цирконием и хромосодержащими покрытиями [5]. Многочисленные исследования показали эффективность использования Mo в качестве барьерного слоя между Cr и Zr [6, 7]. Наиболее перспективным методом формирования высокоадгезионного покрытия является синтез поверхностного сплава с помощью предварительного напыления пленок магнетронным способом и их последующего перемешивания с подложкой в жидкой фазе низкоэнергетического сильноточного электронного пучка (НСЭП) микросекундной длительности [8]. Плотность энергии и толщина пленки магнетронного напыления в

конечном итоге определяют толщину расплава системы пленка-подложка, его время жизни и температуру. Оптимальные параметры плотности энергии НСЭП и толщины пленок Cr и Mo для синтеза Cr-Mo-Zr поверхностного сплава можно определить с помощью компьютерного моделирования температурных полей в системах пленка/подложка.

В настоящей работе исследуется влияние энергетических характеристик электронно-пучкового воздействия на толщину и время жизни расплава при облучении системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr).

1. Методика расчета

Для вычисления температурного поля в системе пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr), решалось одномерное уравнение теплопроводности с соответствующими граничным и начальным условиями. Процесс плавления моделировался методом эффективной теплоемкости, а процесс испарения учитывался с помощью модели теплового разрушения [9, 10]. Алгоритмы расчета реализованы в оригинальном программном обеспечении [11]. При моделировании импульсного пучка ускоренных электронов использовались реальные осциллограммы тока на коллекторе и ускоряющего напряжения НСЭП. Температурные поля вычислялись для разных плотностей энергии НСЭП, длительность импульса τ была равна 2,5 мкс. Расчеты проводились для одиночного импульса. В табл. 1 представлены теплофизические свойства подложки из циркония и

пленок из хрома и молибдена, используемые при вычислении температурных полей в изучаемых системах. Здесь ρ , c_p , λ , T_m и L_m – плотность, теплоемкость, теплопроводность, температура плавления и скрытая теплота плавления соответственно. Температурные зависимости теплофизических свойств материалов брались из справочника [12].

2. Результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены результаты расчетов толщины расплава элементов системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) в зависимости от плотности энергии НСЭП для толщин пленки Cr 0,5, 1,0, 2,0 и 3,0 мкм. Толщина пленки Mo для всех рассматриваемых систем была равна 1 мкм. На рис. 1 толщина расплава пленки хрома изображена линией 1, толщина расплава пленки молибдена – линией 2 и толщина расплава подложки циркония – линией 3. Пунктирными линиями изображены границы раздела элементов системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr). Расчеты показали, что для всех рассматриваемых систем первой, при определенных пороговых значениях плотности энергии НСЭП, начинает плавиться поверхностная

пленка Cr (линия 1 на рис. 1). При дальнейшем увеличении плотность энергии НСЭП достигает значений, при которых пленка Cr полностью расплавлена. Практически одновременно, с незначительной разницей 0,1÷0,2 Дж/см², начинает плавиться подложка Zr (линия 3 на рис. 1). Это связано с тем, что температуры плавления Cr и Mo имеют близкие значения (табл. 1). При этом промежуточный слой Mo, температура плавления которого выше остальных элементов системы, остается в твердом состоянии. Пленка Mo (линия 2 на рис. 1) начинает плавиться при значительно больших значениях плотности энергии НСЭП. Точками на линии 3 рис. 1 обозначены величины толщины расплава системы для таких значений плотности энергии НСЭП, при которых все элементы системы находятся в расплавленном состоянии, т.е. для порога плавления системы. При увеличении толщины поверхностной пленки хрома величина порога плавления системы увеличивается. Для толщин пленки Cr равных 0,5, 1,0, 2,0 и 3,0 мкм пороги плавления системы равны 4,9, 5,8, 7,7 и 9,5 Дж/см² соответственно.

Таблица 1. Тепловые свойства материалов

Table 1. Thermal properties of materials

	ρ , kg/m ³	c_p , J/(kg K) (at 300 K)	λ , W/(m K) (at 300 K)	T_m , K	L_m , kJ/kg
Zr	6450	279	23	2125	160,046
Mo	10220	250	138	2893	375,235
Cr	7200	444	94	2133	313,500

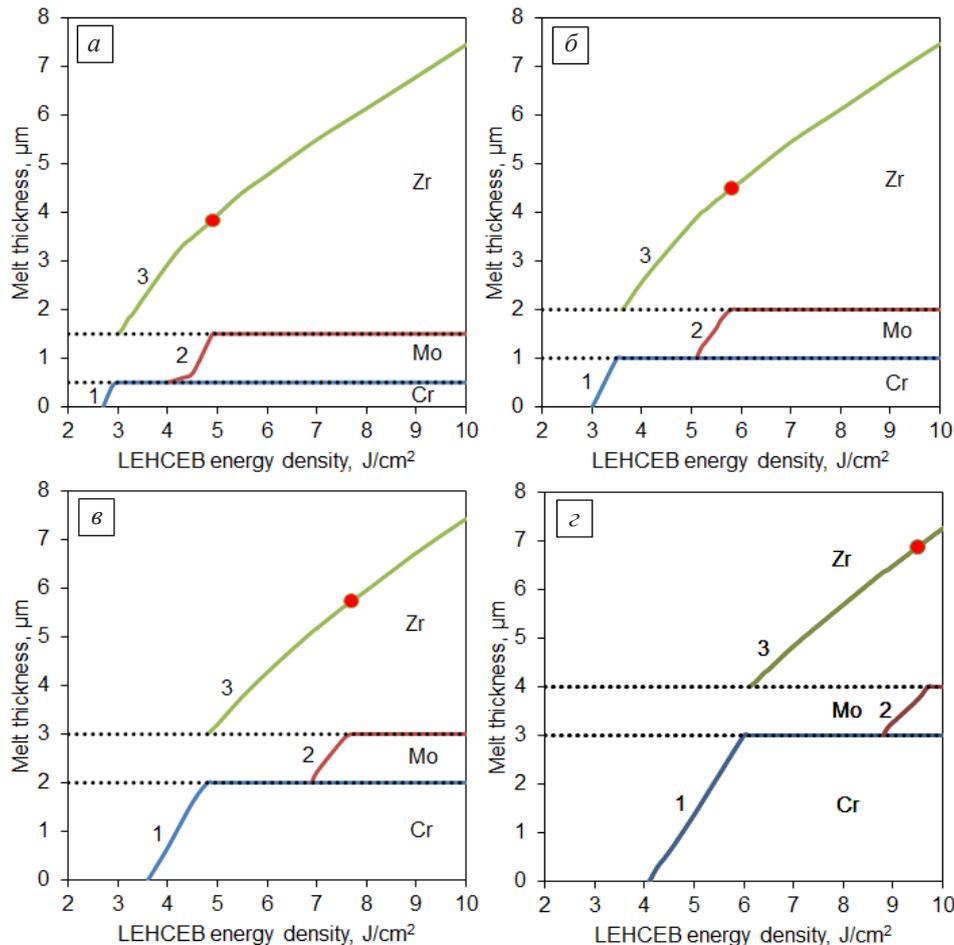


Рис. 1. Зависимости толщины расплава элементов системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) от плотности энергии НСЭП для толщин пленки Cr 0,5 (а), 1,0 (б), 2,0 (в) и 3,0 (г) мкм

Fig. 1. The dependences of thickness of the melt of the film(Cr)/film(Mo)/substrate(Zr) system elements on the LEHCEB energy density for thicknesses of the Cr film of 0.5 (a), 1.0 (б), 2.0 (в) and 3.0 (г) μm

На рис. 2 представлены временные зависимости толщины расплава системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) с толщиной пленки Cr 0,5, 1,0, 2,0 и 3,0 мкм при плотности энергии НСЭП, соответствующей порогу плавления системы. Временная шкала на рис. 2 приведена в масштабах длительности импульса электронного пучка τ . Расплавы системы обозначены темными областями. Следует отметить, что наблюдается общая динамика плавления исследуемой системы. Через некоторое время после начала действия импульса практически одновре-

менно начинают плавиться поверхностная пленка Cr и подложка Zr. Причем плавление начинается с границы раздела с промежуточной пленкой Mo. Это отчетливо видно на рис. 2, в и г. Данный факт можно объяснить большей величиной теплоемкости Mo по сравнению с Cr и Zr. Затем начинает плавиться промежуточный слой Mo. Остывание системы происходит в обратном порядке. Время жизни расплавов пленок и подложки в значительной степени зависит от плотности энергии НСЭП.

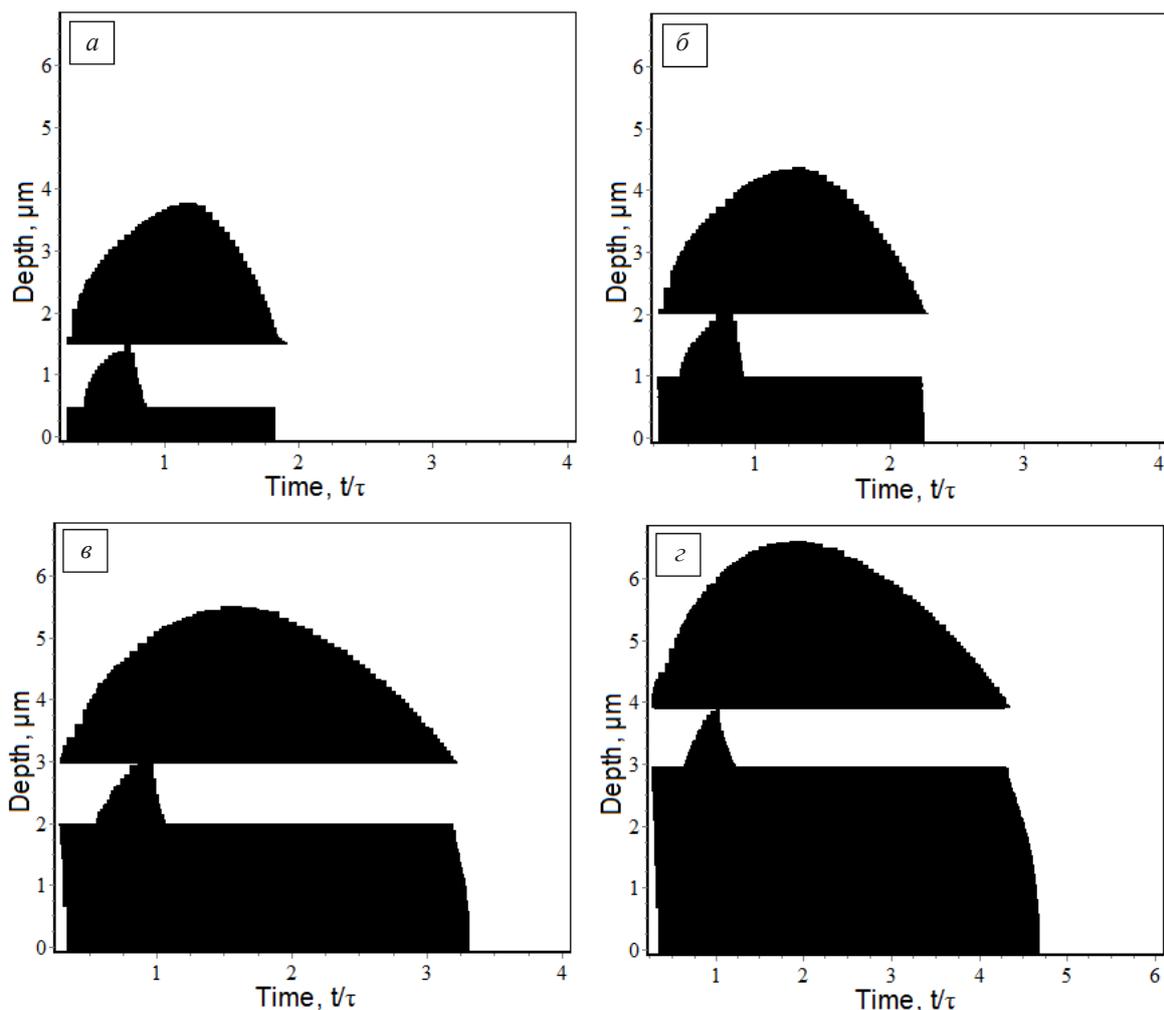


Рис. 2. Временные зависимости толщины расплава системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) с толщиной пленки Cr 0,5 (а), 1,0 (б), 2,0 (в) и 3,0 (г) мкм при плотности энергии НСЭП, соответствующей порогу плавления системы

Fig. 2. Time dependences of thickness of the melt of the film(Cr)/film(Mo)/substrate(Zr) system with thickness of the Cr film of 0.5 (a), 1.0 (б), 2.0 (в) and 3.0 (г) μm at the LENCEB energy density corresponding to the melting threshold of the system

На рис. 3 представлены зависимости времени жизни расплавов элементов системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) от плотности энергии НСЭП для толщин пленки Cr 0,5, 1,0, 2,0 и 3,0 мкм. Расчеты показали, что время жизни расплава промежуточного слоя Mo существенно меньше времени жизни как расплава пленки Cr, так и расплава подложки Zr для всех толщин пленки хрома. При толщине пленки хрома 0,5 и 1,0 мкм время жизни расплава пленки Cr больше времени жизни расплава подложки Zr до величины плотности энергии НСЭП, при которой начинает плавиться промежу-

точный слой Mo. При дальнейшем увеличении плотности энергии НСЭП время жизни расплава пленки Cr меньше времени жизни расплава подложки Zr. При толщинах пленки хрома 2,0 и 3,0 мкм время жизни расплава пленки Cr меньше времени жизни расплава подложки Zr во всем диапазоне расчетных значений плотностей энергии НСЭП. Обращает на себя внимание, что в интервале расчетных значений плотности энергии НСЭП при увеличении толщины пленки хрома градиент изменения времени жизни расплавов пленки хрома и подложки циркония увеличивается.

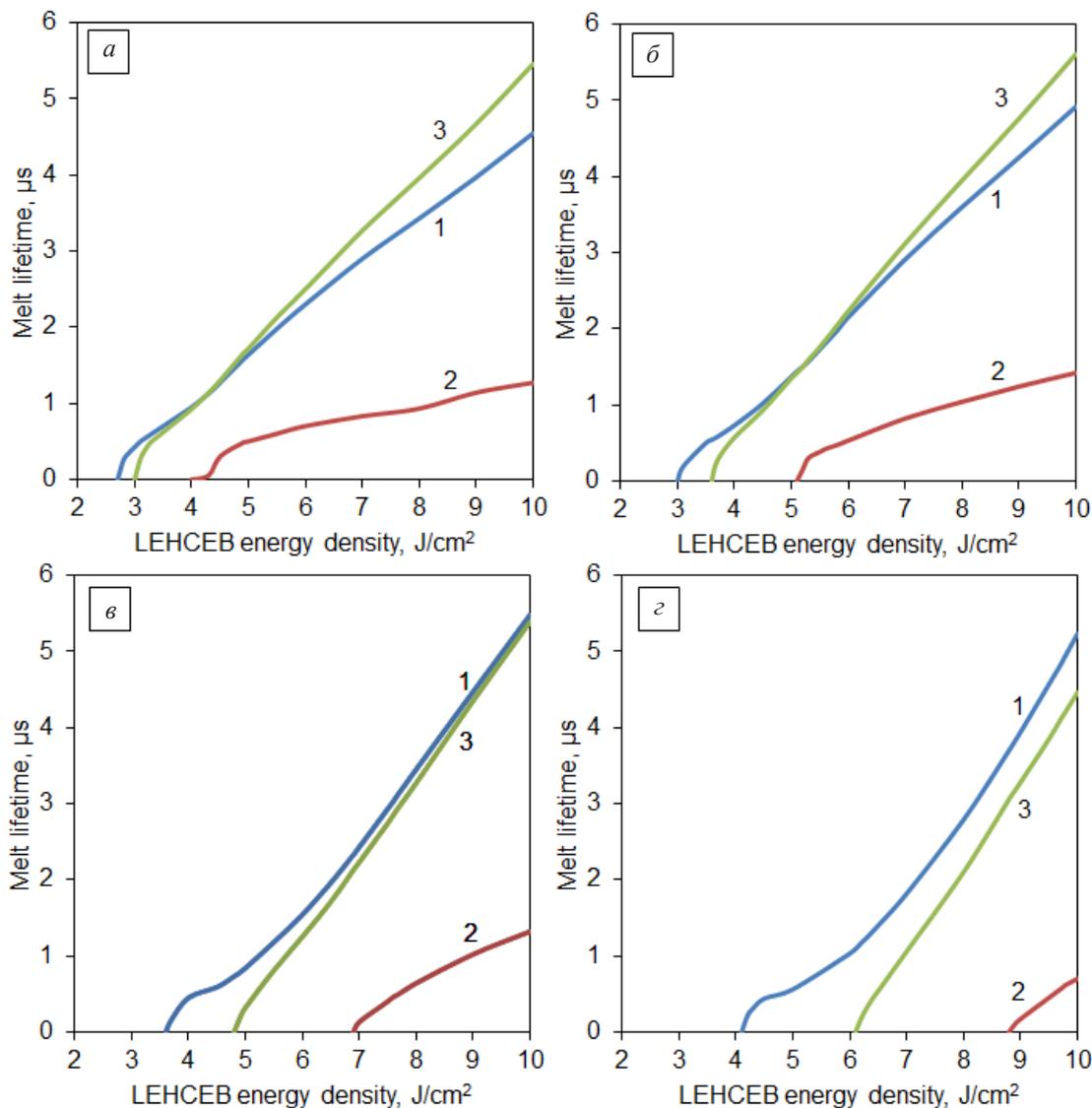


Рис. 3. Зависимости времени жизни расплавов элементов системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) от плотности энергии НСЭП для толщин пленки Cr 0,5 (а), 1,0 (б), 2,0 (в) и 3,0 (г) мкм

Fig. 3. Dependences of lifetime of the melts of the film(Cr)/film(Mo)/substrate(Zr) system elements on the LEHCEB energy density for thicknesses of Cr film of 0.5 (a), 1.0 (б), 2.0 (в), and 3.0 (г) μm

Заключение

Проведены расчеты температурных полей системы пленка(Cr)/пленка(Mo)/подложка(Zr) при импульсном электронно-пучковом воздействии. Представлены результаты расчетов толщины расплава элементов системы в зависимости от плотности энергии НСЭП для толщин пленки Cr 0,5, 1,0, 2,0 и 3,0 мкм и толщины промежуточной пленки молибдена 1,0 мкм. Получено, что для всех рассматриваемых систем при уве-

личении плотности энергии НСЭП первой начинает плавиться поверхностная пленка Cr, затем плавится подложка Zr. Промежуточный слой Mo плавится последним вследствие большей температуры плавления, чем у остальных материалов системы. При увеличении толщины поверхностной пленки хрома величина порога плавления системы, при котором все элементы находятся в расплавленном состоянии, увеличивается. Расчеты показали, что при пороговых значениях

плотности энергии НСЭП плавление пленки Cr и подложки Zr начинается от границы раздела с промежуточной пленкой Mo. Время жизни расплавов пленок Cr, Mo и подложки Zr в значительной степени зависит от плотности энергии НСЭП и толщины пленки хрома.

Благодарности / Acknowledgments

Работа выполнена в рамках государственного задания ТНЦ СО РАН, проект № FWRF-2021-0001.

The work was performed under the state assignment of the Tomsk Scientific Center of the Siberian branch RAS, project No. FWRF-2021-0001.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Pint B. A., Terrani K. A., Brady M. P., Cheng T., Keiser J. R. High temperature oxidation of fuel cladding candidate materials in steam–hydrogen environments // J. Nucl. Mater. 2013. V. 440, Iss. 1–3. P. 420–427. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2013.05.047.
2. Pint B. A., Terrani K. A., Yamamoto Y., Snead L. L. Metall. Mater. Trans. Material selection for accident tolerant fuel cladding // Metallurgical and Materials Transactions, E. 2015. V. 2. P. 190–196. DOI: 10.1007/s40553-015-0056-7.
3. Pint B. A., Terrani K. A., Rebak R. B. Steam Oxidation Behavior of FeCrAl Cladding // Proceedings of the 18th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, 2019. P. 1451–1460. DOI: 10.1007/978-3-030-04639-2_96.
4. Yang J., Steinbrück M., Tang Ch., Große M., Liu J., Zhang J., Yun D., Wang Sh. Review on chromium coated zirconium alloy accident tolerant fuel cladding // Journal of Alloys and Compounds. 2022. V. 852, Iss. 1. Article number 162450. DOI: 10.1016/j.jallcom.2021.162450.
5. Maier B., Yeom H., Johnson G., Dabney T., Walters J., Xu P., Romero J., Shah H., Sridharan K. Development of cold spray chromium coatings for improved accident tolerant zirconium-alloy cladding // J. Nucl. Mater. 2019. V. 519. P. 247–254. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.03.039.
6. Syrtanov M. S., Kashkarov E. B., Abdulmenova A. V., Sidelev D. V. High-temperature oxidation of Zr-1Nb zirconium alloy with protective Cr/Mo coating // Surface and Coatings Technology. 2022. V. 439. Article number 128459. DOI: 10.1016/j.surfcoat.2022.128459.
7. Jeong E., Jo Y., Shin Ch. H., Yang Y., Kim J., Lee D. Performance analysis of nuclear reactor core loaded with Accident-Tolerant Fuel: Mo/Cr metallic microcell UO₂ pellets and CrAl coating // Annals of Nuclear Energy. 2022. V. 175. Article number 109217. DOI: 10.1016/j.anucene.2022.109217.
8. Batrakov A. V., Markov A. B., Ozur G. E., Proskurovsky D. I., Rotshtein V. P. Surface alloying of metallic substrates with pre-deposited films through a pulsed electron-beam mixing // Eur. Phys. J. Appl. Phys. 2008. V. 43. P. 283–288. DOI: 10.1051/epjap:2008070.
9. Markov A. B., Mikov A. V., Ozur G. E., Padei A. G. A РИТМ-СП facility for the surface alloying // Instruments and Experimental Techniques. 2011. V. 54, Iss. 6. P. 862–866. DOI: 10.1134/S0020441211050149.
10. Rotshtein V., Ivanov Y., Markov A. Surface Treatment of Materials with Low-Energy, High-Current Electron Beams // Materials Surface Processing by Directed Energy Techniques. 2006. P. 205–240. DOI: 10.1016/B978-008044496-3/50007-1.
11. Марков А. Б., Соловьев А. В. Программа расчета температурных полей в многослойных системах: Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ. № 2023664195 от 03.07.2023.
12. Баби́чев А. П. Физические величины: Справочник. М: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.