

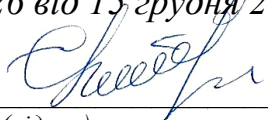
Міністерство освіти і науки України
Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна

Навчально-науковий інститут «Фізико-технічний факультет»

Кафедра матеріалів реакторобудування та фізичних технологій

До захисту допущено
кафедрою матеріалів реакторобудування та фізичних технологій,
протокол № 5 / 2025-2026 від 15 грудня 2025 р.

завідувач кафедри



(підпис)

Сергій ЛИТОВЧЕНКО

(ім'я, прізвище)

«15» грудня 2025 р.

Кваліфікаційна робота
здобувача другого (магістерського) рівня вищої освіти

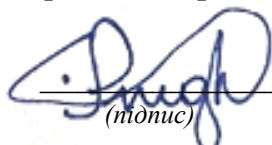
Комп'ютерне моделювання радіаційних пошкоджень конструкційних
матеріалів ядерного реактора

Computer modeling of radiation damage to nuclear reactor structural materials

Спеціальність 105 Прикладна фізика та наноматеріали

Освітня програма «Прикладна фізика»

Виконавець

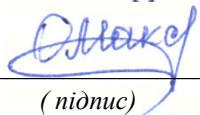


(підпис)

Дмитро СЕРАФИМОВИЧ

(ім'я, прізвище)

Науковий керівник



(підпис)

Ольга МАКСАКОВА

(ім'я, прізвище)

Харків – 2025

АНОТАЦІЯ

Метою роботи є проведення порівняльного комп'ютерного моделювання радіаційних пошкоджень конструкційних матеріалів оболонок твелів (сплавів Zircaloy-4, E110, E635) під дією нейтронного опромінення та уламків поділу.

За допомогою програмного забезпечення SRIM-2013Pro встановлено, що прямий деструктивний вплив продуктів поділу ^{139}Xe та ^{95}Sr на оболонку сплаву Zircaloy-4 обмежується приповерхневим шаром глибиною до 10 мкм. Моделювання пошкодження оболонок у коді FLUKA показало, що нейтронне пошкодження має об'ємний характер, і найбільша кількість пошкоджень спостерігається на внутрішній частині оболонки. Встановлено ідентичність профілів розподілу пошкоджень для сплавів Zircaloy-4, E110 та E635. Новизна роботи полягає у комплексному аналізі топології пошкодженого шару з урахуванням реальної геометрії бар'єру ZrO_2 .

Результати роботи рекомендується використовувати для удосконалення методик прогнозування ресурсу твелів, зокрема для оцінки внеску продуктів поділу у явища радіаційного росту, розпухання та крихкості.

Можливим напрямом продовження роботи є використання отриманих профілів для оцінки абсолютної накопиченої дози (зна/рік) у випадку середовища реального ядерного реактора ВВЕР, PWR.

Ключові слова: зміщення на атом, уламки поділу, оболонка палива, зв'язувальний шар ZrO_2 , легководні реактори, SRIM, FLUKA

ABSTRACT

The aim of the work is to perform comparative computer modeling of radiation damage in structural materials of fuel-rod claddings (Zircaloy-4, E110, E635 alloys) under neutron irradiation and fission fragments.

Using the SRIM-2013Pro software, it was established that the direct destructive effect of the fission products ^{139}Xe and ^{95}Sr on the Zircaloy-4 alloy cladding is limited to a near-surface layer with a depth of up to 10 μm . Modeling of cladding damage in the FLUKA code showed that neutron damage has a volumetric character, and the largest number of displacements is observed in the inner part of the cladding. The identity of the damage-distribution profiles for the Zircaloy-4, E110 and E635 alloys was established. The novelty of the work consists in a comprehensive analysis of the topology of the damaged layer taking into account the real geometry of the ZrO_2 barrier.

The results of the work are recommended for use in improving the methodologies for predicting the service life of fuel rods, in particular for assessing the contribution of fission products to the phenomena of radiation growth, swelling and embrittlement.

A possible direction for further work is the use of the obtained profiles to evaluate the absolute accumulated dose (dpa/year) in the environment of an actual VVER or PWR nuclear reactor.

Keywords: displacement per atom, fission fragments, fuel cladding, ZrO_2 bonding layer, light-water reactors, SRIM, FLUKA

ЗМІСТ

ВСТУП	5
РОЗДІЛ 1. ВІДОМОСТІ ПРО ПРОБЛЕМИ РАДІАЦІЙНИХ ПОШКОДЖЕНЬ	7
1.1. Фізика радіаційного пошкодження матеріалів	8
1.1.1 Порогова енергія зміщення E_d	10
1.1.2 Каскад зіткнень у твердому тілі	11
1.1.3 Концепція зміщень на атом	13
1.1.4 Фізичні моделі пошкодження	14
1.2 Мікроструктурні зміни цирконієвих сплавів, індуковані опроміненням	17
1.2.1 Кластери точкових дефектів. $\langle a \rangle$ - та $\langle c \rangle$ - дислокаційні петлі	16
1.2.2 Утворення порожнин	19
1.2.3 Еволюція вторинних фаз та перерозподіл легуючих елементів	19
1.3 Макроскопічна поведінка цирконієвих сплавів після опромінення	23
1.3.1 Радіаційний ріст	23
1.3.2 Радіаційна повзучість	24
1.3.3 Радіаційне зміцнення та окрихчення	26
1.4 Методи комп'ютерного моделювання в радіаційному матеріалознавстві	27
1.4.1 Методи молекулярної динаміки(МД)	27
1.4.2 Методи Монте-Карло(МК) для транспортних кодів	28
1.4.2.1 SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter)	28
1.4.2.2 FLUKA (FLUktuierende KAskade)	30
РОЗДІЛ 2. КОМП'ЮТЕРНЕ МОДЕЛЮВАННЯ РАДІАЦІЙНОГО ПОШКОДЖЕННЯ	34
2.1 Огляд сучасних методів і досліджень у моделюванні радіаційних пошкоджень конструкційних матеріалів ядерних реакторів	34
2.2 Модель радіаційного пошкодження уламками поділу оболонки палива ВВЕР/PWR	37
2.3 Моделювання радіаційного пошкодження уламками поділу для сплаву Zircaloy-4	40
2.4 Моделювання радіаційного пошкодження матеріалів оболонки нейтронним пучком	50
2.5 Обговорення результатів моделювання	55
ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ	60
ПЕРЕЛІК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ	62

ВСТУП

Атомна енергетика є фундаментом енергетичної безпеки України, забезпечуючи понад 50% генерації електроенергії. Надійність та безпека експлуатації ядерних реакторів типу ВВЕР залежать від працездатності конструкційних матеріалів активної зони, насамперед оболонок тепловиділяючих елементів (твелів).

В умовах постійного прагнення до підвищення ефективності паливних циклів, зокрема збільшення глибини вигорання палива, матеріали оболонок зазнають екстремального радіаційного навантаження. Радіаційне пошкодження, що виникає внаслідок взаємодії високоенергетичних частинок з кристалічною решіткою металу, є основним фактором деградації властивостей матеріалів, призводячи до радіаційного росту, повзучості, зміцнення та окрихчення. Сучасний стан досліджень у цій галузі характеризується переходом від суто емпіричних підходів, що вимагають дороговартісних та тривалих реакторних випробувань, до широкого застосування методів комп'ютерного моделювання. Використання кодів Монте-Карло, таких як FLUKA та SRIM, дозволяє прогнозувати накопичення радіаційних дефектів (зна) з гарною точністю, розділяючи внески різних типів випромінювання.

Робота актуальна для обґрунтування вибору та прогнозування поведінки цирконієвих сплавів різних систем легування (Zr-Nb, Zr-Sn, Zr-Sn-Nb-Fe) в умовах тривалих паливних кампаній. Особливої уваги потребує порівняльний аналіз сплавів Zircaloy-4, E110 та E635, оскільки саме вони найчастіше застосовуються як матеріали оболонок твелів і демонструють різні механізми радіаційно-індукованих змін. Попри значну кількість досліджень, недостатньо вивченим залишається аспект впливу уламків поділу на внутрішню поверхню оболонки твела. Хоча нейтронне пошкодження охоплює весь об'єм матеріалу,

уламки поділу, як буде показано далі, створюють підвищену локальну щільність дефектів у приповерхневому шарі товщиною до 10 мкм. Це створює додаткові умови для зміни мікроструктури та експлуатаційних властивостей оболонки, що й обумовлює необхідність детальнішого аналізу.

Дана магістерська робота базується на фундаментальних принципах радіаційного матеріалознавства та продовжує розвиток наукових підходів, сформульованих вченими S. Chen та D. Bernard. Зокрема, автори у своїх дослідженнях провели детальний аналіз внеску продуктів поділу у пошкодження сталевих оболонок швидких реакторів. У даній роботі цей підхід адаптовано та розширено для умов теплових реакторів (BBER/PWR) та цирконієвих сплавів, з урахуванням наявності захисного шару діоксиду цирконію на межі паливо-оболонка, що є суттєвим уточненням фізичної моделі.

Метою роботи є проведення порівняльного комп'ютерного моделювання радіаційних пошкоджень конструкційних матеріалів оболонок твелів (сплавів Zircaloy-4, E110 та E635) під дією нейтронного потоку та уламків поділу, а також оцінка екрануючої ролі оксидного шару.

Для досягнення мети поставлено такі задачі:

- 1) Проаналізувати особливості мікроструктури та механізмів деградації досліджуваних сплавів.
- 2) Змоделювати профілі розподілу радіаційних дефектів від уламків поділу та нейтронів.
- 3) Провести порівняльний аналіз пошкоджень.

Отримані результати можуть бути використані для удосконалення методик прогнозування ресурсу твелів ядерних реакторів, оптимізації вибору матеріалів для нових паливних збірок, а також у навчальному процесі при підготовці фахівців з фізики реакторів та радіаційного матеріалознавства.

РОЗДІЛ 1.

ВІДОМОСТІ ПРО ПРОБЛЕМИ РАДІАЦІЙНИХ ПОШКОДЖЕНЬ

Згідно з даними звіту Всесвітньої ядерної асоціації [1], атомні електростанції забезпечують близько 9% світової генерації електроенергії, відіграючи ключову роль у забезпеченні базового навантаження енергомереж та скороченні викидів вуглецю. Водночас для України цей показник є суттєво вищим: частка атомної генерації стабільно перевищує 50–55% [2]. Тому будь-яка незапланована зупинка енергоблоку через аварію, яка може виникнути у ядерній енергетичній установці, зокрема у самому ядерному реакторі, буде критичною для української енергосистеми.

Активна зона ядерного реактора є надзвичайно складним експлуатаційним середовищем для матеріалів, оскільки поєднує високу температуру, значні механічні навантаження, хімічно агресивний теплоносій та інтенсивні нейтронні потоки. Багато характеристик, які роблять реактори привабливими з фізичної точки зору, створюють екстремальне навантаження на конструкційні матеріали. З огляду на це, можна сказати, що радіаційно-індуковане пошкодження матеріалів реактора є ключовим обмежувальним фактором, що визначає ефективність та рівень безпеки експлуатації установки. Для отримання максимальної ефективності отримання енергії (наприклад, збільшенням вигорання палива), підтримки працездатності існуючих реакторів та створення нових, більш досконалих типів, потрібно добре розуміти процеси та механізми, що лежать в основі радіаційної деградації матеріалів та подальшої її еволюції з часом. У цьому контексті важливо послідовно розглянути основні механізми радіаційної деградації: від фізичних принципів утворення пошкоджень до мікроструктурних і макроскопічних змін конструкційних матеріалів та сучасні методи комп'ютерного моделювання, які дають змогу кількісно описувати та прогнозувати ці процеси.

1.1 Фізика радіаційного пошкодження матеріалів

Енергетичні частинки (>1 eV) різного походження можуть змінювати мікроскопічну та наноструктуру речовини [3;5]. Картина пошкодження різна для усіх матеріалів. Але, можна побачити загальні особливості, такі як: (i) термічний нагрів, (ii) утворення домішок, (iii) іонізація, (iv) утворення бульбашок, (v) **атомні зміщення**. Для повноти викладу стисло зупинимось на кожному з них.

- (i) *термічний нагрів* – утворення фотонів, фононів, електронів (вивільнення енергії), відбувається коли ПВА або первинній частинці не вистачає на те, щоб вибити атом матеріалу із положення рівноваги. Відповідно, це створює тільки його коливання, які можна розглядати як квазічастинки. Фотони можуть утворюватися у матеріалі при гальмуванні заряджених частинок (протонів, наприклад) на кінці свого шляху, так званий пік Брега.
- (ii) *утворення домішок* – ядерні реакції, коли атоми мішені перетворюються у інші атоми завдяки непружним взаємодіям з нейтронами. Наслідком цього є утворення домішкових атомів.
- (iii) *іонізація* – процеси іонізації відбуваються на початкових етапах зіткнення, коли частинка з великою енергією відриває електрони з зовнішніх оболонок атомів, утворюючи іони. Маємо різні хімічні реакції в іонізованій області.
- (iv) *утворення voidів/бульбашок* – іони захоплюють електрони у металі, стають нейтральними та рекомбінують з нейтральними аналогами. Накопичення цих нейтральних атомів створює окрихчення на межі зерен, і як наслідок бульбашки [4].
- (v) *атомні зміщення* – у твердих тілах пошкодження зумовлені утворенням дефектів кристалічної решітки. Точкові дефекти, виниклі внаслідок

вибивання атомів зі своїх рівноважних положень, можуть мігрувати в об'ємі кристалу та об'єднуватися, формуючи дислокаційні петлі, адатоми, порожнини та кратери.

Перелічені процеси [5] суттєво впливають на властивості матеріалу. Зокрема, змінюються його механічні характеристики (радіаційне зміцнення, окрихчення, пластичність, повзучість тощо), а також термічні (теплопровідність) та електричні властивості (електропровідність, питомий опір). Радіаційний вплив може зумовлювати як покращення окремих параметрів матеріалу, так і їх погіршення.

Взагалі кристалічна структура може мати багато різних дефектів, які зазвичай класифікують відповідно до їх розмірності у решітці. Виділяють чотири основні групи таких дефектів, графічне представлення яких наведено на рисунку 1.1.

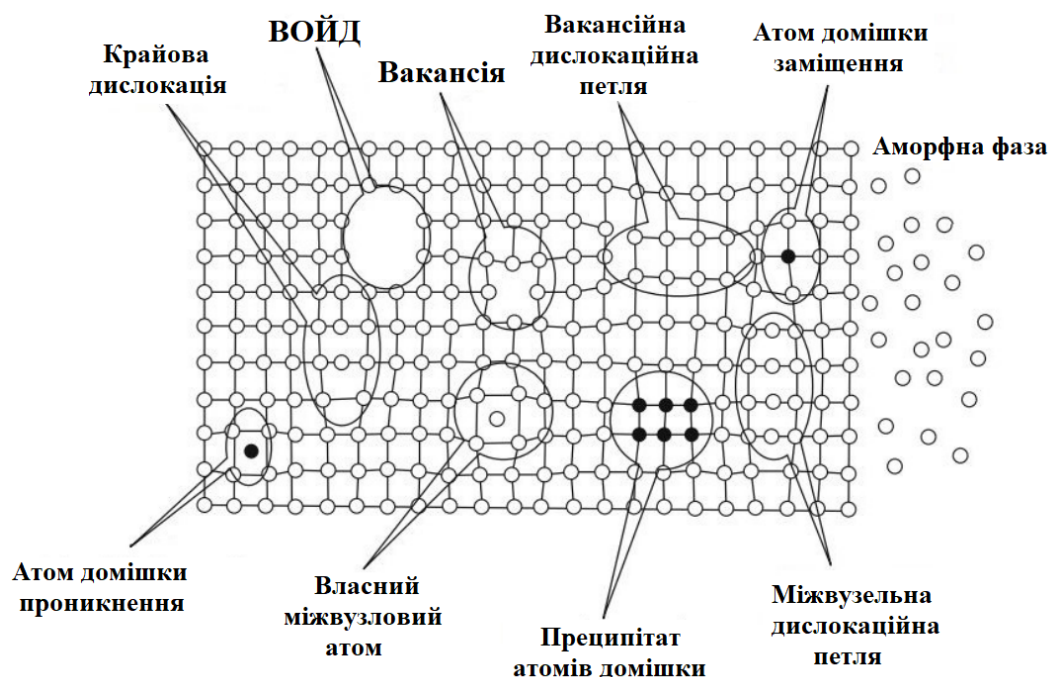


Рис.1.1. Основні групи дефектів у монокристалі. Адаптовано з [5]

0D-дефекти або точкові – це насамперед вакансії та міжвузлові атоми, які утворюють пари Френкеля, а також атоми проникнення/заміщення іншого

елемента. Саме точкові дефекти формуються на початкових стадіях радіаційного пошкодження та є базовими структурними порушеннями.

1D-дефекти або лінійні – це крайові та гвинтові дислокації, які характеризуються лінійною протяжністю в кристалі. Ці дефекти визначають значну частину механічних властивостей матеріалу та відіграють ключову роль у його пластичній деформації.

2D-дефекти або планарні – це вакансійні або міжвузлові петльові дислокації, а також межі зерен, що є поверхнями розділу між суміжними зернами з різною кристалографічною орієнтацією. Такі дефекти впливають на текстуру, механічну міцність і дифузійні процеси.

3D-дефекти або об'ємні – це войди, включення аморфних фаз та бульбашки. Подібні об'ємні порушення структури можуть суттєво змінювати властивості матеріалу, зокрема сприяти його окрихченню та зниженню теплопровідності.

1.1.1 Порогова енергія зміщення E_d

Порогова енергія зміщення (E_d) – це мінімальна енергія, яку має передати **налітаюча** частинка або **вибитий атом** іншому атому у кристалічній решітці, щоб останній змістився зі свого рівноважного положення та утворилась стабільна *пара Френкеля*. Для більшості *металів* характерні значення E_d лежать у діапазоні **10 – 100 eV [6]**, що відображає відносно високу енергію зв'язку атомів у металічних решітках. Оскільки реальний кристал не є ідеальним, то порогова енергія зміщення не є сталою величиною. Вона залежить від кристалографічного напрямку, вздовж якого відбувається відскок атома, оскільки атоми у решітці мають різну локальну координацію та енергетичні бар'єри залежно від орієнтації. Ця анізотропія була вперше виявлена за допомогою моделювання молекулярної динаміки у 1960 році [7]. Точне знання порогової

енергії зміщення є надзвичайно важливим для будь-якої моделі радіаційного пошкодження, оскільки саме E_d визначає кількість первинних точкових дефектів, що утворюються під дією опромінення. Приклад анізотропії порогової енергії зміщення залежно від кристалографічного напрямку представлений на рисунку 1.2.

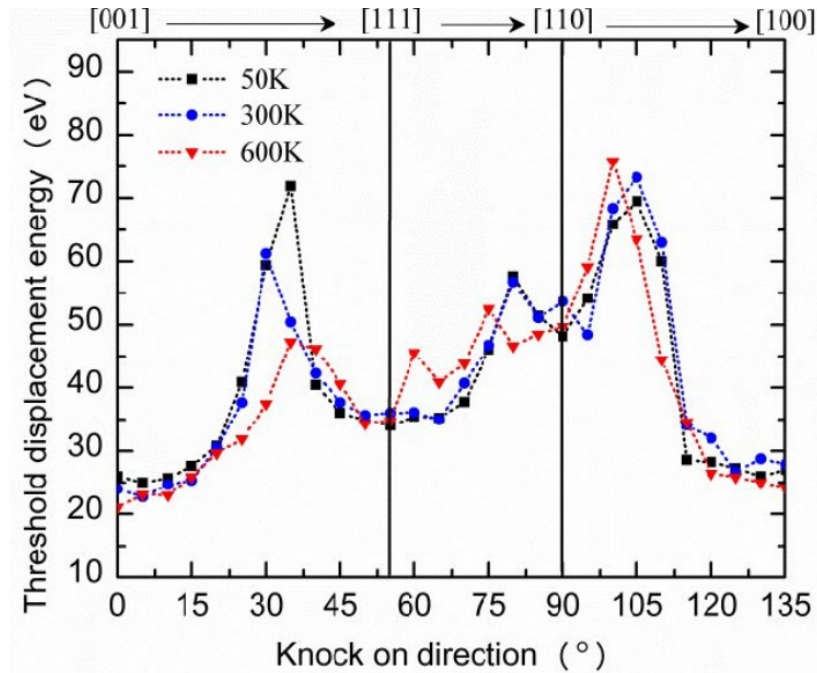


Рис.1.2. Зміна порогової енергії зміщення для ніобію за різних напрямів ПВА та абсолютних температур [8]

Оскільки порогова енергія зміщення визначається властивостями матеріалу, точних її значень не існує, бо вона проявляє надзвичайно нетривіальну поведінку, зумовлену температурними, кристалографічними та механічними ефектами [3;9].

1.1.2 Каскад зіткнень у твердому тілі

Головною умовою для того, щоб утворилась стабільна пара Френкеля, є отримання атомом матриці кінетичної енергії пружного зіткнення, що є більшою за порогову енергію зміщення. Атом, який був зміщений безпосередньо

налітаючою частинкою, називають *первинно вибитим* атомом (ПВА). Якщо ПВА передає іншому атому решітки енергію, що також перевищує порогову енергію зміщення, то утворюється вторинно вибитий атом. Аналогічний процес може повторюватися багаторазово, запускаючи послідовність зміщень атомів у кристалічній решітці. У результаті формується так званий *каскад зміщень* [5; 10]. Для прикладу на рисунку 1.3 представлено симуляцію молекулярної динаміки такого каскаду, де видно початкове його розширення та подальше повернення більшості атомів у рівноважні положення. Як правило, каскади утворюються при кінетичних енергіях налітаючих частинок більше $10 E_d$.

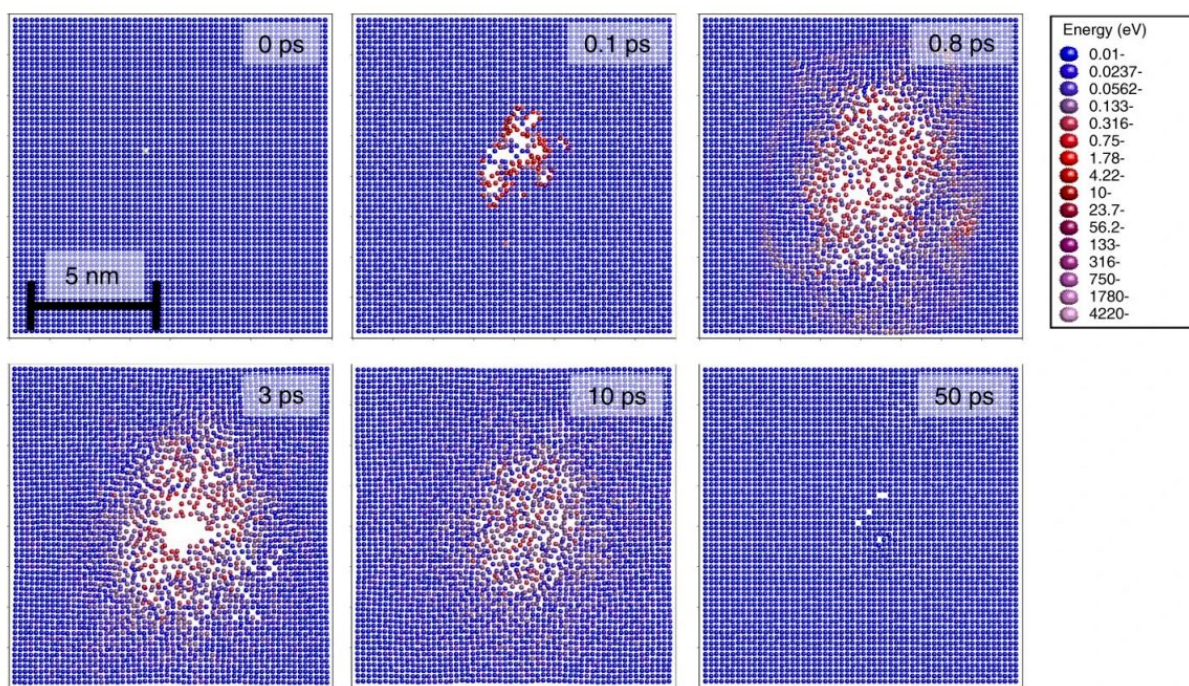


Рис. 1.3. Симуляція молекулярної динаміки каскаду зіткнень у матриці Au для ПВА з енергією 10 кеВ. Кола різного кольору відповідають атомам різної кінетичної енергії, значення якої наведено у таблиці праворуч [5,11]

Механізм пошкодження можна розділити на три основних стадії за типом процесів [12]: (I) динамічну, (II) дифузійну та (III) еволюцію стоків. На першій, динамічній стадії, утворюються первинно вибиті атоми, які створюють каскади атомних зміщень (процес триває до 1 піко-секунди). На другому етапі

відбувається термічний сплеск та кінетика дефектів, їх міграція та анігіляція. І на третьому етапі утворюється остаточна дефектна структура (приблизно після 10 піко-секунд). Після цього протягом років відбувається *відпал дефектів* [5]. Часовий масштаб та фізичні розміри пошкоджень у опроміненій структурі накладає обмеження на методи, якими можна провести моделювання еволюції каскадів та дефектів. Загалом усі методи можна представити на наступній схемі, що представлена на рисунку 1.4.

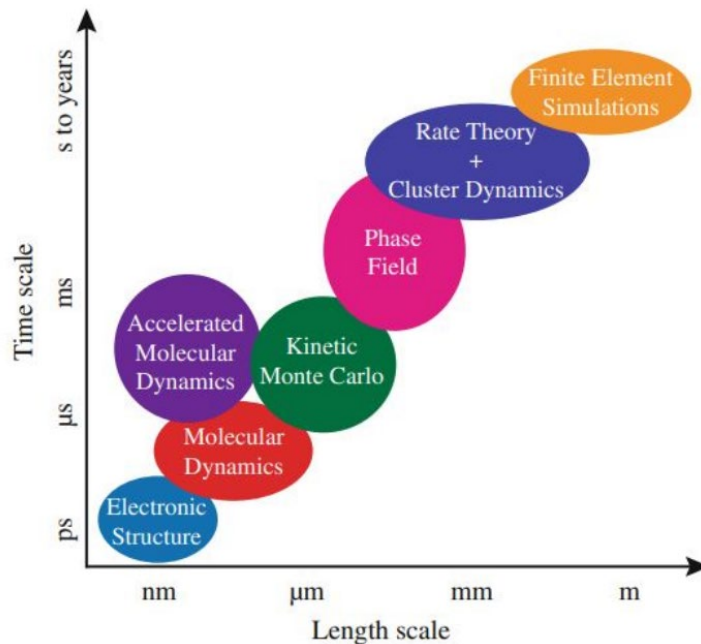


Рис. 1.4. Ієрархії дослідження в залежності від масштабів відстані-часу [6]

Видно, що зі зростанням масштабу довжини та часу застосовуються різні методи – від електронної структури та молекулярної динаміки до кінетики Монте-Карло, фазових полів, теорії швидкостей і скінченно-елементного моделювання.

1.1.3 Концепція зміщень на атом

Коли стаціонарний атом решітки отримує достатньо високу енергію, щоб подолати енергію зв'язку та покинути своє місце у решітці, його називають

ПВА (первинно вибитий атом). При цьому на його місці утворюється вакансія, а сам вибитий атом може зайняти міжвузлове положення у решітці. Дану пару, міжвузельний атом – вакансія, називають парою Френкеля. Вона стабільна, тобто не рекомбінує, якщо відстань між атомом та вакансією більша ніж *радіус спонтанної рекомбінації* r_s (>2 нм).

Ступінь атомних зміщень (зна) є безрозмірною мірою радіаційного впливу та може визначатися як на основі енергетичних співвідношень [3;5]:

$$\text{зна} = \frac{N \text{ зміщених атомів у об'ємі } V}{N \text{ атомів матеріалу у об'ємі } V} \quad (1.1)$$

так і через поперечний переріз зміщення [5;13;14]:

$$\text{зна} = \int_0^{t_i} dt \int_{E_d}^{E_{max}} \sigma_d(E) \phi(E, t) dE, \quad (1.2)$$

де $\phi(E, t)$ – залежний від енергії та часу флакс або потік частинок, $\sigma_d(E)$ – поперечний переріз зміщення, який залежить від енергії частинки, E_d та E_{max} – мінімальна(порогова енергія зміщення) та максимальна енергія налітаючої частинки, t_i – час опромінення.

Слід враховувати, що цей поперечний переріз залежить від формалізму моделювання зіткнень, зокрема NRT-моделі або К–Р підходу, які можуть давати різні результати. Крім того, зна відображає лише початкову кількість зміщень і не враховує їхню подальшу рекомбінацію та еволюцію, що істотно залежить від температури й мікроструктури матеріалу. Тому для коректного опису радіаційного пошкодження зна необхідно поєднувати з моделями еволюції дефектів, такими як теорія швидкостей або кластерна динаміка.

1.1.4 Фізичні моделі пошкодження

Історично оцінка радіаційних пошкоджень базувалася на моделі Кінчина-Піза (K–P, 1955), яка згодом була вдосконалена до моделі Норкетта – Робінсона – Торренса (NRT, 1975) [3], що стала міжнародним стандартом. Однак сучасні

дослідження методом молекулярної динаміки (MD), узагальнені в оглядовій роботі Nordlund та ін., показали, що модель NRT не враховує ефекти атермічної рекомбінації в щільних каскадах зміщень, що призводить до завищення кількості стабільних дефектів у 2–3 рази. У зв'язку з цим було запропоновано нову модель arc-dpa, яка вводить кореляційний коефіцієнт ефективності каскаду. Більш конкретніше про кожну із моделей далі.

Модель Кінчина – Піза історично була найпершою моделлю для прогнозування кількості дефектів атомних зміщень [5;15]. У ній розглядалась модель твердої сфери [16] з усіма базовими припущеннями для твердої сфери [15-17]. Враховуються лише зіткнення між атомами однакової маси, а каскад виникає внаслідок послідовних пружних бінарних зіткнень. Модель оперує трьома важливими параметрами, що залежать від ПВА, а саме: 1) кінетична енергія падаючої частинки E , 2) порогова енергія зміщення E_d , 3) деяка енергія відсічення E_c , при якій є переважаюче електронне гальмування. Загалом, ймовірність пошкодження є величиною дискретною, а кількість зміщень $N_{d,KP}$ можна визначити за наступною формулою:

$$N_{d,KP} = \begin{cases} 0 & \text{для } E < E_d \\ 1 & \text{для } E_d < E < 2E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{для } 2E_d < E < E_c \\ \frac{E_c}{2E_d} & \text{для } E > E_c \end{cases} \quad (1.3)$$

З формули 1.3 бачимо, що якщо частинка має енергію меншу за E_d , то зміщень не відбувається. При енергіях від $E_d < E < 2E_d$ кількість зміщень дорівнює 1, бо справедливе припущення твердої сфери. Для енергій між $2E_d$ та E_c отримується лінійна залежність. Для енергій вище E_c матимемо постійну величину зміщень.

Модель Норгетта – Робінсона – Торренса стала подальшим розвитком та уточненням підходу Кінчина-Піза. На сьогодні ця модель є загальноприйнятим

міжнародним стандартом (зокрема, вона лежить в основі рекомендацій ASTM [5;18]) для оцінки радіаційних пошкоджень у конструкційних матеріалах ядерних реакторів.

Приблизно через 20 років після появи моделі К–Р, автори провели детальне комп'ютерне моделювання каскадів у наближенні бінарних зіткнень (використовуючи код MARLOWE) з використанням реалістичних міжатомних потенціалів [5;19]. Дослідження показали, що значна частина вакансій та міжвузлових атомів рекомбінує одразу після утворення внаслідок нестабільності пар Френкеля. Цей факт було враховано шляхом введення коефіцієнта ефективності зміщення η , значення якого було встановлено на рівні 0.8. Крім того, спираючись на теорію гальмування Лінхарда (LSS) [20], у моделі NRT було уточнено розподіл енергії первинно вибитого атома. Згідно з цією теорією, для розрахунку кількості зміщень слід враховувати лише ту частину енергії ПВА, яка витрачається на пружні ядерні зіткнення, виключаючи втрати на іонізацію. Ця енергія отримала назву «доступна енергія пошкодження» T_d , та обчислюється в залежності від співвідношення E та E_d [5;20].

$$T_d = \begin{cases} 0 & \text{для } E < E_d \\ \frac{2E_d}{\eta} & \text{для } E_d \leq E \leq \frac{2E_d}{\eta} = 2.5E_d \\ \frac{E}{2E_d} & \text{для } 2E_d < E < E_c \\ \frac{E}{1+F_L g(\epsilon_L)} & \text{для } E > E_c \end{cases} \quad (1.4)$$

де $F_L g(\epsilon_L)$ – параметризація Робінсона для рівняння Лінхарда – Шарфа – Шіотта.

Відповідно до виразу 1.4, кількість зміщень у модулі NRT можна представити наступним виразом:

$$N_{d,NRT} = \begin{cases} 0 & \text{для } T_d < E_d \\ 1 & \text{для } E_d < T_d < \frac{2E_d}{\eta} \\ \frac{\eta T_d}{2E_d} & \text{для } \frac{2E_d}{\eta} < T_d < \infty \end{cases} \quad (1.5)$$

Основна проблема моделі К–Р у тому, що як можна побачити з формули (1.3), коли E атома менше E_c , то вся його кінетична енергія йде на пружні зіткнення та утворення ПВА. Відповідно, вона ігнорує втрати на іонізацію в цьому діапазоні. У свою чергу, це призводить до заміщення кількості дефектів. Модель NRT використовує поняття «доступної енергії пошкодження» T_d , енергії що залишається на пружні взаємодії ядер, та коефіцієнта ефективності зміщення η – поправки на те, що реальний потенціал взаємодії атомів не є подібним до того, що має тверда сфера. Але як і модель К–Р, так і NRT завищують кількість дефектів. Оскільки NRT дає більш точні результати у порівнянні з К–Р, для високих енергій ПВА, де маємо більш щільні енергетичні каскади і зіткнення багатьох тіл, не спостерігається лінійність між відкладеною енергією та кількістю дефектів. І реальне значення коефіцієнта ефективності, як показують досліді [5;21], становить 0.3 замість 0.8.

1.2 Мікроструктурні зміни цирконієвих сплавів, індуковані опроміненням

Сучасні ядерні реактори типу PWR (Реактор з водою під тиском) та ВВЕР (Водо-Водяний Енергетичний Реактор) використовують цирконієві сплави як основний конструкційний матеріал для оболонок тепловіділяючих елементів (твелів).

Зміни властивостей цирконієвих сплавів під дією опромінення не можуть обмежити термін роботи реактора, однак вони впливають на величину вигорання палива, зменшуючи її, і, як наслідок, ми отримуємо менше енергії за той самий час. До того ж, радіаційні ефекти також мають певний помітний вплив на механічні властивості конструкції, що може призводити до аварій.

Далі розглянемо найважливіші дефекти у цирконієвих сплавах, викликані впливом нейтронного опромінення.

1.2.1 Кластери точкових дефектів. $\langle a \rangle$ – та $\langle c \rangle$ – дислокаційні петлі

Встановлено [22-24], що у опромінених нейтронами комерційних сплавах цирконію при температурах від 250 до 400 °C і флюенсах нижче 5×10^{25} н/м², кластери точкових дефектів складаються в основному з ідеальних дислокаційних петель вакансійного або міжвузлового характеру з вектором Бюргерса $\langle a \rangle (\frac{1}{3} \langle 11\bar{2}0 \rangle)$, розташованим у призматичних площинах з типовим діаметром від 5 до 20 нм. Дослідження Cockeram та ін. [25] показало збільшення щільності $\langle a \rangle$ петель від 3×10^{21} м⁻³ до 12×10^{21} м⁻³ в α -відпаленому Zircaloy-4, при цьому середній діаметр петлі дорівнював від 5 до 12 нм. Дослідження [22] проведені в рекристалізованому сплаві Zr1%Nb (E110), опроміненому в експериментальному реакторі на швидких нейтронах при температурах від 330°C до 350°C, показують, що щільність $\langle a \rangle$ петель коливається від 3 до 5×10^{22} м⁻³ з діаметрами від 9 до 15 нм. У цирконієвих сплавах ефект флюєнсу також зберігається при постійній температурі; до того, як спостерігаються петлі дислокації компонента $\langle c \rangle$, щільність дислокації швидко зростає із збільшенням флюєнсу [26;27]. Holt та Gilbert [28] використали великі флюєнси (8.6×10^{25} н/м²), щоб продемонструвати виникнення $\langle c \rangle$ компоненти (вектор Бюргерса $(\frac{1}{6} \langle 20\bar{2}3 \rangle)$, дислокаційних петель у сплавах Zircaloy-2 та Zircaloy-4 при температурах від 553 до 584 К. Було встановлено, що при флюєнсі менше 3.0×10^{25} н/м² присутні тільки $\langle a \rangle$ петлі, а $\langle c \rangle$ почали з'являтися при флюєнсах більше за 3.0×10^{25} н/м. Holt, а також інші вчені вказують на зв'язок між високою щільністю $\langle c \rangle$ компонент у Zircaloy-2 та E635 та частинками вторинної фази, зокрема заліза [29;30]. Tournadre зі співавторами [31], Gharbi зі співавторами [32] виявили утворення невеликих (менше ніж 100 нм у діаметрі) $\langle c \rangle$ петель після опромінення важкими іонами Zr та Kr при температурі 573 К. Щільність їх виявилась меншою за $\langle a \rangle$ компонент.

1.2.2 Утворення порожнин

За наявних у [22;24;26] даних можна зробити висновок, що цирконій є надзвичайно стійким до утворення порожнин під час опромінення нейтронами. На це впливають два фактори. По-перше, низька схильність до дислокацій для міжвузлових атомів або ефект дуже малого утворення гелію в (n;а) реакціях під час опромінення [24]. У роботі [22] також припускають, що відносно низька енергія утворення вакансій і відносно високий атомний об'єм можуть пояснити стійкість цирконію до утворення порожнин у порівнянні зі сталями. Але, найімовірніше, причиною відсутності порожнин може бути той факт, що для цирконієвих сплавів петлі типу $\langle a \rangle$ у призматичних площинах є більш стабільними, ніж порожнини, що показано атомістичними розрахунками. У той час як петлі $\langle c \rangle$, які з'являються після високих доз, діють як поглиначі для вакансій, ще більше запобігаючи утворенню порожнин [22].

1.2.3 Еволюція вторинних фаз та перерозподіл легуючих елементів

Опромінення цирконієвих сплавів призводить не тільки до утворення кластерів точкових дефектів, про які вже згадувалося, а й до деякої нестабільності вторинних фаз та сегрегації легуючих елементів. І це має велике значення, оскільки, наприклад, осади вторинної фази відіграють важливу роль у корозійній стійкості цирконієвих сплавів, а перерозподіл легуючих елементів може впливати на еволюцію кластерів точкових дефектів, наприклад, ті ж $\langle c \rangle$ дислокаційні петлі, які є джерелом прискореного радіаційного росту.

У зв'язку з цим особливої уваги потребує поведінка преципітатів системи Zr-(Fe, Cr, Ni), характерних для сплавів Zircaloy-4. Спостереження за допомогою трансмісійної електронної мікроскопії показують, що для цирконієвих сплавів

Zircaloy-2 та Zircaloy-4, опромінених при температурах близько 330°C, типових для легководних реакторів температурах, осади фаз Лавеса Zr(Fe,Cr)_2 стають аморфними при флюєнсі близько $3 \times 10^{25} \text{ н/м}^2$.

Крім того, аморфізація пов'язана з розчиненням легуючих елементів з осадів у матриці [22]. Виникають нерівності у вигляді пилкоподібних зубців на периферії частинки, зигзагоподібний край осаду є паралельним до напрямків $\langle a \rangle$ та $\langle c \rangle$ матриці [33]. Температура також впливає на перетворення кристалічної структури в аморфну, є низка робіт наведена в статті [22], які показують, що при низьких температурах під нейтронним опроміненням Zr(Fe,Cr)_2 зазнає швидкого та рівномірного переходу в аморфний стан при пороговій дозі, без будь-яких змін хімічного складу [34]. Зі збільшенням температури опромінення для аморфізації потрібна вища доза, оскільки осади Zr(Fe,Cr)_2 зазнають лише часткового аморфного перетворення. Перетворення кристалічної структури в аморфну починається на периферії частинок, а потім аморфний обідок рухається всередину, поки весь осад не стане повністю аморфним.

Радіаційна поведінка фаз Лавеса Zr(Fe,Cr)_2 визначається конкуренцією між процесами балістичного розупорядкування та термічного відновлення структури. В умовах нейтронного опромінення виділяють три температурні режими [22]:

- *Низькотемпературний* ($T < 290^\circ\text{C}$): повна аморфізація преципітатів внаслідок накопичення дефектів;
- *Проміжний* ($290^\circ\text{C} < T < 370^\circ\text{C}$): поступова аморфізація, що починається з межі розділу фаз і супроводжується інтенсивним виходом заліза в матрицю (найбільш характерно для умов легководних реакторів);
- *Високотемпературний* ($T > 370^\circ\text{C}$) термічна рекристалізація запобігає аморфізації, проте відбувається розчинення частинок.

Отже, вихід легуючих елементів (зокрема заліза та хрому) у твердий розчин внаслідок розчинення преципітатів стимулює зародження та стабілізацію вакансійних петель (переважно $\langle c \rangle$ типу). У роботі [22] повідомляється, що найбільша концентрація цих петель спостерігається біля меж преципітатів.

У випадку опромінення важкими іонами [22;35-37], встановлено, що аморфізація осадів $Zr(Fe,Cr)_2$ в Zircaloy-4 була однорідною, а осаді поступово і рівномірно втрачали свою кристалічність без аморфного обідка як у випадку нейтронів. До того ж, не було зафіксовано «витоків» заліза у матрицю сплаву. Загалом, при опроміненні важкими іонами і високої швидкості пошкодження, радіаційна поведінка преципітатів була низькотемпературною.

Стабільність β –Nb преципітатів у E110 є важливим аспектом оцінки мікроструктурної еволюції ніобієвмісних цирконієвих сплавів. Це особливо помітно в цирконієвих сплавах із вмістом ніобію 1% і більше (зокрема у сплавах Zr-1%Nb типу E110 [22]), де основною зміцнюючою фазою є дисперсні виділення β –Nb з об'ємно-центрованою кубічною решіткою (ОЦК). Хімічний склад цих преципітатів характеризується високим вмістом Nb (~85 ат.%). Особливістю фази β –Nb є її радіаційна стійкість. На відміну від інтерметалідів у сплавах Zircaloy, у частинках β –Nb не спостерігається кристалографічних змін (аморфізації) ні при високих дозах опромінення [22;39], ні при низьких температурах [22]. Під впливом нейтронного потоку мікроструктура преципітатів зазнає лише незначних змін: спостерігається невелике зростання діаметра частинок при одночасному зменшенні їхньої густини при високих флюенсах [22;38-39]. Хоча фіксується незначне зниження вмісту Nb у самих частинках [22;38], це не призводить до масового розчинення ніобію в матрицю α –Zr [39]. Важливим аспектом стабільності сплавів типу E110 є те, що поблизу частинок β –Nb не виявлено утворення дислокаційних петель $\langle c \rangle$ – типу [22].

Експерименти з *in situ* опромінення іонами Kr^{2+} підтверджують стабільність фази β –Nb: навіть при високій швидкості набору дози (10^{-3} зна/с) та криогенній температурі (50 K) преципітати зберігали кристалічну структуру до дози 20 зна [40]. При робочих температурах (близько 623 K) механізм еволюції частинок подібний до нейтронного впливу [39], і відбувається незначне зниження концентрації Nb у преципітаті та збільшення його розміру без розчинення у матрицю. Цей ефект пояснюється формуванням «зони змішування» атомів Zr та Nb на периферії частинки внаслідок каскадних зіткнень. Проте кінетика цього процесу при іонному опроміненні є значно повільнішою, оскільки структурні зміни, характерні для дози 5 зна в реакторі PWR, не досягалися навіть при 40 зна іонного опромінення, що вказує на обмеженість імітаційних експериментів у відтворенні дифузійних процесів [22].

У багатокомпонентних цирконієвих сплавах (типу E635, Zirlo та M5) поряд з β –Nb формуються також інтерметалідні преципітати системи Zr-Fe-Nb, радіаційна поведінка яких суттєво відрізняється від класичних фаз Лавеса у Zircaloy-4.

У дослідженнях [22;41-42] показано, що виділення $Zr(Fe, Nb)_2$ (фаза Лавеса з ГЦУ решіткою) є характерними для четверних сплавів (Zr-Sn-Nb-Fe), таких як E635 та Zirlo. В умовах нейтронного опромінення при робочих температурах ($T > 300$ °C) ці частинки зазнають швидкої трансформації без аморфізації, коли відбувається інтенсивна втрата заліза, що призводить до дестабілізації ГЦУ решітки та структурного перетворення на мікрокристалічні частинки β –Nb (ОЦК решітка) [22]. Цей процес починається з периферії частинки і завершується при дозах близько 10 зна [22;43]. Втрата заліза є значною. Співвідношення Nb/Fe у частинці зростає з ~ 2 до ~ 10 [43]. Рідкісні випадки аморфізації $Zr(Fe, Nb)_2$ спостерігалися лише при низьких температурах опромінення (60 °C) [22], що дозволяє припустити існування температурних режимів, аналогічних до

$Zr(Fe,Cr)_2$, але критичні температури для цієї фази лежать у нижчому діапазоні [22]. Також ряд робіт [22;39] вказує, що при збільшенні вмісту заліза у сплаві (~2 мас.%) у сплавах типу E635 формується кубічна фаза $(Zr,Nb)_2Fe$. На відміну від гексагональної фази, кубічна демонструє вищу стабільність, коли при високих дозах вона зберігає кристалічне ядро незмінним, тоді як на периферії формується полікристалічна оболонка, збіднена на залізо [39].

Таким чином, можна стверджувати, що загальним наслідком опромінення ніобійвмісних інтерметалідів є значний вихід заліза (Fe) у матрицю α – Zr при відсутності помітного розчинення ніобію. Як і у випадку Zircaloy-4, поблизу частинок, що втратили залізо, спостерігається підвищена концентрація дислокаційних петель $\langle c \rangle$ -типу, що підтверджує кореляцію між перерозподілом заліза та зародженням петель [43]. Однак, незважаючи на швидший вихід заліза у четверних сплавах, лінійна густина $\langle c \rangle$ -петель у них залишається значно нижчою, ніж у Zircaloy-4, що свідчить про складний механізм стабілізації радіаційних дефектів у присутності ніобію [22;43].

1.3 Макроскопічна поведінка цирконієвих сплавів після опромінення

У цьому підрозділі розглядаються мікроструктурні зміни, що виникають у цирконієвих сплавах під дією опромінення, а також їхній вплив на експлуатаційні характеристики реакторних матеріалів. Розвиток цих змін на мікрорівні проявляється у макроскопічній поведінці матеріалу, визначаючи такі ключові явища, як радіаційний ріст, радіаційна повзучість та зміна механічних властивостей. У межах розділу буде послідовно розглянуто перелічені механізми.

1.3.1 Радіаційний ріст

Радіаційний ріст – це явище зміни форми матеріалу під опроміненням за відсутності зовнішніх напружень, при якому об'єм залишається сталим. Воно притаманне матеріалам з анізотропною кристалічною структурою, таким як α - Zr.

Як зазначили Adamson та ін. у своєму огляді [44], основним рушійним механізмом є анізотропія дифузії точкових дефектів та їх сепарація на різних стоках. Міжвузлові атоми переважно утворюють дислокаційні петлі типу $\langle a \rangle$ з вектором Бюргерса ($\frac{1}{3}\langle 11\bar{2}0 \rangle$), на призматичних площинах, викликаючи розширення вздовж осей $\langle a \rangle$. Вакансії ж мають тенденцію до утворення петель типу $\langle c \rangle$ вектор Бюргерса ($\frac{1}{6}\langle 20\bar{2}3 \rangle$) на базальних площинах, що призводить до стиснення вздовж осі $\langle c \rangle$. Спостерігається, що подовження вздовж базової площини (вздовж осей $\langle a \rangle$) є швидким на початку опромінення і сповільнюється до досягнення низької стаціонарної швидкості росту [22]. Текстуровані продукти RXA Zircaloy-4 або Zircaloy-2 у вигляді тонких трубок або тонких листів спочатку демонструють швидке подовження вздовж напрямку прокатки, а потім зниження швидкості росту, досягаючи низької стаціонарної швидкості [45]. При цьому ця стаціонарна швидкість росту полікристалів виявляється більшою, ніж у монокристалів цирконію, що вказує на суттєвий вплив меж зерен на механізми росту [46]. Важливим явищем, що обмежує ресурс роботи оболонки, є ефект «проривного росту» [22;47]. При досягненні порогового флюєнсу (5×10^{25} н/м²) відбувається різке зростання швидкості деформації, яка стає порівнянною зі швидкістю росту сплавів у нагартваному стані (SRA). Як повідомляють Kobulyansky та ін. [46;48] – це явище також спостерігається для рекристалізованих сплавів Zr1%Nb і Zr-Nb-(Sn)-Fe таких як E110 та E635.

1.3.2 Радіаційна повзучість

Радіаційна повзучість – це повільна пластична деформація під дією напружень, яка значно прискорюється в полі нейтронного випромінювання. У екстремальному середовищі активної зони ядерного реактора метали піддаються одночасному постійному навантаженню, нижчому за межу плинності, та опроміненню. Залежно від прикладеного напруження та температури, швидкість повзучості в реакторі може бути вищою, ніж швидкість «теплової» повзучості поза реактором для неопроміненого матеріалу, причому швидкість повзучості збільшується із зростанням нейтронного потоку [22;44]. За даними роботи [49], прогнозування деформації паливної збірки в реакторі з водою під тиском (PWR) дає корисні результати при урахуванні цього ефекту. З практичних міркувань, припускають, що сумарна деформація повзучості у реакторі складається з окремих внесків механічного росту, класичної термічно-активованої повзучості (або теплової повзучості) і радіаційної повзучості [50]. У загальному випадку повзучість під опроміненням завжди є комбінацією теплової повзучості та повзучості під опроміненням.

Домінуючим механізмом вважається індуковане напруженням переважне поглинання дефектів [51]. Зовнішнє напруження змінює енергію взаємодії між точковими дефектами та дислокаціями різної орієнтації, змушуючи дислокації, орієнтовані перпендикулярно до напруження розтягу, поглинати більше міжвузельних атомів і, відповідно, "переповзати", забезпечуючи деформацію. Іншим механізмом є ковзання, полегшене переповзанням, де опромінення допомагає дислокаціям долати перешкоди.

Згідно з дослідженнями Soniak та ін. [52], для сплавів у рекристалізованому стані (RXA) не виявлено суттєвої різниці у швидкості радіаційної повзучості між Zircaloy-4 та Zr-1%Nb (типу M5). Для сплавів системи Zr-Nb-(Sn)-Fe та рекристалізованого Zr-1%Nb [53;54] встановлено лінійну залежність між деформацією повзучості та прикладеним напруженням. Також показано, що

наявність водню (гідридів) не має суттєвого впливу на радіаційну повзучість цих сплавів [54]. У низці робіт [55;56] також вказують на неочевидну поведінку радіаційної повзучості у нагартованих та рекристалізованих сплавів. Холодна деформація, яка зазвичай покращувала опір термічній повзучості, навпаки, підвищувала швидкість радіаційної компоненти. У той час як рекристалізовані сплави (RXA) мали меншу швидкість повзучості в реакторі [56]. Швидкість повзучості у Zirlo описується степеневим законом. Від потоку нейтронів показник степені близький до 1 (0.6-1.0) і залежність майже лінійна [22;50;57]. При зростанні напруження (200-400 МПа) показник зростає до 2-3 [55].

1.3.3 Радіаційне зміцнення та окрихчення

Під впливом нейтронного опромінення механічна поведінка цирконієвих сплавів зазнає суттєвих змін, що відомі як ефекти радіаційного зміцнення та окрихчення. Радіаційне зміцнення проявляється у значному підвищенні межі плинності $\sigma_{0.2}$ та межі міцності σ_B матеріалу внаслідок накопичення радіаційних дефектів. Це спостерігається багатьма авторами [22;58-60] для рекристалізованих (RXA) та відпалених (SRA) цирконієвих сплавів. Зміцнення, індуковане нейтронним опроміненням, тобто, $\sigma_{0.2}$ та σ_B швидко збільшується при флюенсах нижче 1×10^{24} н/м² ($E > 1$ MeV) при температурах опромінення між 320 та 360 °C, але насичується при флюєнсі вище 1×10^{24} н/м², і майже не змінюється до 1.5×10^{24} н/м². Деякі автори [61] вказують на те, що для температур нижче 100 °C і до температур від 320 до 360 °C у сплавах Zircaloy-2 та Zircaloy-4 зміцнення зменшується. Вони пояснюють це тим, що накопичення пошкоджень зменшується із підвищенням температури опромінення, ймовірно, через процеси термічної рекомбінації.

У роботі [62] проведено опромінення важкими іонами сплаву $Zr - 2.5Nb$ для вимірювання радіаційного зміцнення і спостерігали стрімке збільшення твердості в приповерхневому тонкому шарі.

Загальновизнано [22;63-64], що зміцнення цирконієвих сплавів під впливом опромінення зумовлено утворенням високої щільності кластерів точкових дефектів, таких як $\langle a \rangle$ та $\langle c \rangle$ петлі на базальних та призматичних площинах ГЦУ решітки цирконію, що перешкоджають ковзанню дислокацій. Деякі автори припускають [22;65], що дислокації взаємодіють з індукованими опроміненням петлями через довгодіюче поле напруги і через контактні взаємодії, що призводить до сильних перешкод у русі дислокацій. Ефект зміцнення внаслідок фіксації дислокації високою щільністю малих петель часто пояснюється за допомогою так званої моделі дисперсного бар'єрного зміцнення, чисельно дослідженої у роботі [66].

1.4 Методи комп'ютерного моделювання в радіаційному матеріалознавстві

Оскільки в даній роботі проводилось моделювання радіаційних пошкоджень, далі буде розглянуто методи моделювання (див. рисунок 1.4), які використовувались, і результати яких використовуються для опису радіаційних процесів в цій роботі.

1.4.1 Методи молекулярної динаміки

Молекулярна динаміка (МД) є фундаментальним інструментом для вивчення первинної стадії радіаційного пошкодження. Цей метод дозволяє симулювати рух кожного окремого атома в кристалічній решітці на основі розв'язання рівнянь руху Ньютона з використанням міжатомних потенціалів взаємодії [67-68].

Достовірність результатів МД критично залежить від якості потенціалу. Для цирконію широко використовуються потенціали методу зануреного атома (англ. EAM — Embedded Atom Method), розроблені Менделєвим та Оклєндою [69]. Сучасні версії цих потенціалів (наприклад, EAM #2 або EAM #3) точно відтворюють властивості точкових дефектів, енергії дефектів пакування та фазові перетворення в ГЦУ-цирконії, що є необхідним для коректного моделювання каскадів. До того ж, як говорилося раніше МД є потужним інструментом для розрахунку *порогової енергії зміщення* E_d та її анізотропії в кристалі [70], а також впливу температури на них. До речі, це моделювання виявило, що власні міжвузельні атоми в цирконії мають високу рухливість і дифундують анізотропно – переважно вздовж базальних площин (або призматичних, залежно від температури), що було ключовим для пояснення механізмів радіаційного росту [71].

1.4.2 Метод Монте-Карло (МК) для транспортних кодів

Для розрахунку проходження частинок крізь речовину та визначення спектрів ПВА використовуються методи Монте-Карло. У даній роботі використовувалися як SRIM (іони), так і FLUKA (нейтрони).

1.4.2.1 SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter)

Для моделювання процесів взаємодії налітаючих продуктів поділу з речовиною, розрахунку розподілу вакансій у паливній оболонці і оцінки гальмівних здатностей UO_2 та ZrO_2 використовувався програмний пакет SRIM - 2013Pro [72]. Перша версія SRIM була написана Джеймсом Зіглером для дослідження міграції іонів у твердих тілах. Тоді вона називалась TRIM та моделювала проходження одного іона через мішень і використовувала модель

зупинки іонів через ядерні та електронні взаємодії [73]. З 1980 року програма стає комплексною бібліотекою даних та кодів, що дозволяють отримати дані про статистику пучка, пошкодження решітки, розпилення та імплантацію. Ключовим фізичним допущенням, що використовується в коді, є наближення парних зіткнень (англ. Binary Collision Approximation — BCA) [5;74]. Згідно з цим наближенням, рух іона в твердому тілі розглядається як послідовність незалежних пружних зіткнень з атомами мішені, між якими іон рухається по прямій лінії, втрачаючи енергію на непружну взаємодію з електронними оболонками (електронне гальмування).

Параметри мішені (периферії твелу), тобто, товщина шарів, густина, хімічний склад, порогова енергія та стехіометрія елементів у шарі для кожного моделювання задавались у частині TARGET DATA (див. рисунок 1.5)

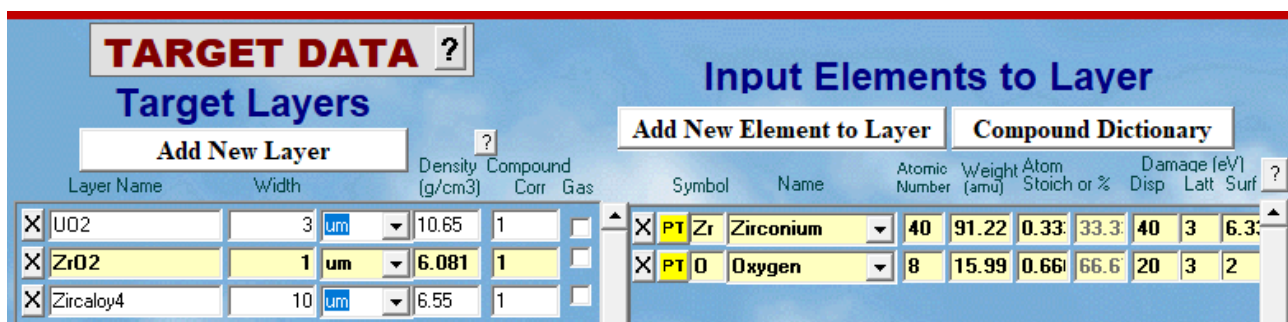


Рис. 1.5. Вибір параметрів мішені для SRIM симуляції.

Про конкретний вибір параметрів мішені для кожного моделювання детально написано у розділі 2. Пучок налітаючих іонів задавався у частині IONDATA (рисунок 1.6). Там було обрано частинку (Sr чи Xe), її енергію та кут падіння.

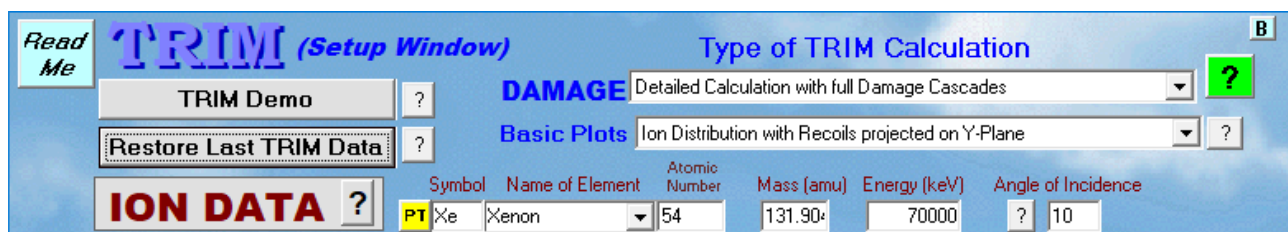


Рис. 1.6. Налаштування пучка іонів в SRIM

SRIM має два основних режими моделювання для розрахунку пошкоджень [3;5;74] - *Ion Distribution and Quick Calculation of Damage* та *Detailed Calculation with Full Damage Cascades*. Перший режим відстежує лише траєкторію первинного іона та рахує лише кількість первинно вибитих атомів, у той час як другий повністю відстежує кінетику кожного атома віддачі від моменту його утворення до моменту, коли його кінетична енергія падає нижче порогової енергії зміщення E_d . Це дозволяє оцінити реальний внесок вторинних та третинних зіткнень у загальну картину радіаційного пошкодження.

У рамках даної роботи моделювання перевагу було надано режиму *Detailed Calculation with Full Damage Cascades*. Основним результатом розрахунків є просторові профілі розподілу радіаційних дефектів (вакансій) по глибині матеріалу оболонки. Отримані дані були представлені у нормованому вигляді – як кількість вакансій, що утворюються при проходженні одного налітаючого іона (вакансії/іон/мкм). Це дозволило визначити глибину проникнення продуктів поділу, порівняти характер пошкодження від різних продуктів поділу, оцінити відносний внесок ядерних та електронних втрат у деградацію мікроструктури поверхневого шару.

1.4.2.2 FLUKA (FLUktuierende KAskade) (з нім. ФЛУктууючий KАскад)

Для моделювання транспорту нейтронів та розрахунку накопичення пошкоджуючої дози в об'ємі конструкційних матеріалів використовувався багатоцільовий код FLUKA [75-76]. Цей інструмент, розроблений у CERN у 1960 р. для моделювання каскадів високоенергетичних протонів, є універсальним програмним середовищем для моделювання взаємодії частинок з речовиною. У 1970-1980-ті роки програма поступово розвивалася у модульний код для симуляції ядерних реакцій середніх і високих енергій, вторинних частинок та електромагнітних взаємодій.

Сучасна версія коду дозволяє з високою точністю моделювати транспорт понад 60 типів елементарних частинок у складних геометріях. Хоча, початково FLUKA створювалася для задач фізики високих енергій (зокрема, для розрахунку біологічного захисту прискорювачів типу LHC) [5], сьогодні спектр її застосування охоплює дозиметрію, розрахунок наведеної активності, проектування мішеней та радіаційне матеріалознавство [76]. Дуже добре, що FLUKA можна використовувати як референтний інструмент для розрахунку полів випромінювання та радіаційних пошкоджень у конструкційних елементах ядерних реакторів.

Формування розрахункової моделі у середовищі FLUKA здійснюється за допомогою стандартизованих командних рядків, що мають назву «картки» (CARDS). Кожна картка містить ключове слово (KEYWORD), набір числових параметрів (WHAT), що визначають фізичні величини або налаштування, та символічний ідентифікатор (SDUM). Побудова тривимірної моделі у коді FLUKA (див. рисунок 1.7) базується на принципах *комбінаторної геометрії*.

```

TITLE
* Set the defaults for precision simulations
DEFAULTS                                PRECISIO
* Define the beam characteristics
BEAM -0.002                             NEUTRON
* Define the beam position
BEAMPOS 0.0 0.0 -1.0
GEOBEGIN                                COMBNAME
0 0
* Black body
SPH blkbody 0.0 0.0 0.0 100000.0
* Void sphere
SPH void 0.0 0.0 0.0 10000.0
* Cylindrical target
RCC target 0.0 0.0 0.0 0.0 10.0 5.0
* Cylindrical target
RCC target1 0.0 0.0 0.0 0.0 10.0 6.0
END
* Black hole
BLKBODY 5 +blkbody -void
* Void around
VOID 5 +void-target1
* Target
CLADDING 5 +target1-target
* Target
PELLET 5 +target
END
GEOEND

```

Рис. 1.7. Фрагмент input-коду для визначення геометрії та пучка у FLUKA

Цей процес є двоступеневим і включає визначення базових геометричних тіл (Bodies) та формування фізичних зон (Regions) за допомогою булевих операцій.

Спочатку задаються геометричні примітиви, такі як SPH(сфери) та RCC(внутрішній та зовнішній циліндри). Потім задаються *регіони* – фізичні зони для транспорту частинок. Регіон VOID – це вакуум, область за межами експерименту, а BLKBODY спеціальна поверхня, при перетині якої трекінг частинок припиняється для економії обчислювальних ресурсів(вона має бути набагато більшою за розміри області симуляції).

Параметри пучка частинок задаються картками BEAM та BEAMPOS (див. рисунок 1.7), якщо користувач хоче використовувати своє власне джерело, то він має використовувати картку SOURCE і спеціально написаний код source.f для джерела. Цей код має надавати дані FLUKA, наприклад, про енергію частинки, її координату та імпульс/енергію [76]. У картці BEAM задавалась середня енергія спектру ділення U-235 як 0.002 ГеВ(2 МеВ, у FLUKA енергія стандартно задається в ГеВ) і тип частинки NEUTRON(нейтрони). У BEAMPOS координати початку пучка (X-Y-Z) задавались як (0,0,-1)(перед мішенню).

У FLUKA задання матеріалів реалізовано через набір карток MATERIAL, COMPOUND та ASSIGNMAT, що представлені на рисунку рис.1.8.

MATERIAL	40.		6.506			ZIRCONIU
MATERIAL	24.		7.18			CHROMIUM
MAT-PROP	40.0			CHROMIUM		DPA-ENER
MAT-PROP	40.0			ZIRCONIU		DPA-ENER
MATERIAL			6.55			ZIRCALOY
COMPOUND	-0.9823	ZIRCONIU	-0.0145	TIN	-0.0021	IRONZIRCALOY
COMPOUND	-0.0011	CHROMIUM				ZIRCALOY
MATERIAL	92.		18.95			URANIUM
* Uranium oxide U_O2						
* ..+....1....+....2....+....3....+....4....+....5....+....6....+....7..						
MATERIAL			10.65			U_O2
COMPOUND	-0.118502	OXYGEN	-0.881498	URANIUM		U_O2
ASSIGNMA	BLKHOLE	BLKBODY				
ASSIGNMA	VACUUM	VOID				
ASSIGNMA	ZIRCALOY	CLADDING				
ASSIGNMA	URANIUM	PELLET				
LOW-MAT	URANIUM	92.	238.	296.		238-U

Рис.1.8. Визначення матеріалів для твелу у FLUKA

Картка MATERIAL Визначає базові елементи або ізотопи, задаючи їх атомний номер Z, атомну масу A та густину ρ . Також в цій картці можна обрати більш складну речовину, яка складається з декількох елементів, наприклад,

діоксид урану UO_2 , але тоді FLUKA автоматично створить для неї картку COMPOUND. Сама картка COMPOUND використовується для створення складних хімічних сполук або сплавів. Склад задається через вагові частки (якщо число вводиться зі знаком мінус) або атомні частки (якщо число додатне). Зазвичай порогові енергії зміщення E_d у FLUKA для елементів беруться із її бази, але для умов даного моделювання потрібно було визначити власні користувацькі значення, прийняті в літературі. Тому для цього було використано картку MAT-PROP з SDUM: DPA – ENER. Кожному регіону геометрії потрібно назначити відповідний матеріал. Для цього використовувалась картка ASSIGNMA, у WHAT(1) якої обирався сам матеріал чи компаунд (URANIUM, ZIRCALOY, VACUUM і т.д.), а у WHAT(2) регіон (CLADDING, PELLET і т.д.). Фінальну геометрію можна переглянути у Flair – спеціалізованому графічному інтерфейсі (GUI) для FLUKA, як це показано на рисунку 1.9.

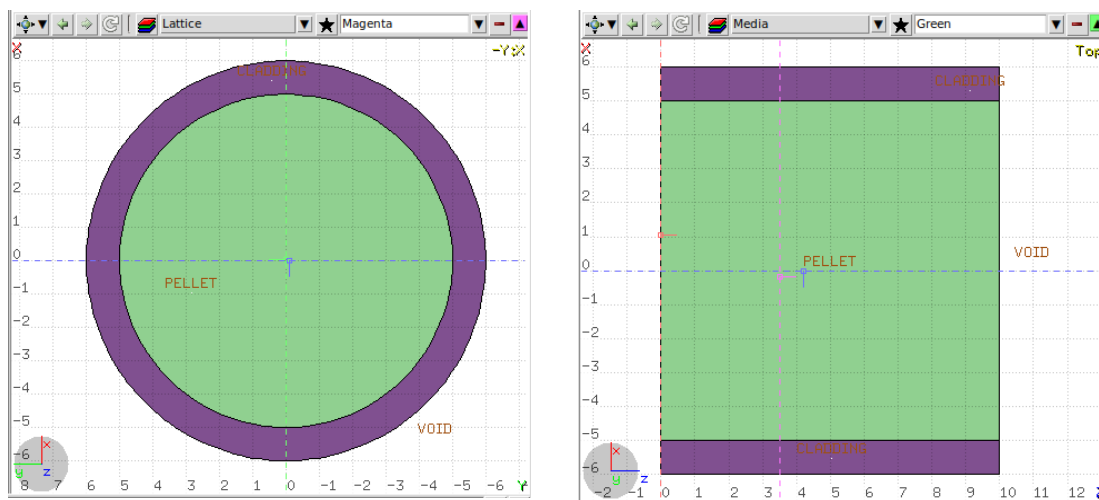


Рис.1.9. Схематичне зображення геометрії паливного елемента у Flair.

Світло-зеленим зображена паливна таблетка UO_2 , фіолетовим – оболонка.

Flair забезпечує повний цикл проведення розрахунків: від візуального конструювання геометрії до запуску моделювання та обробки результатів. Окрім того, він дає змогу оперативно перевіряти коректність побудованої моделі та виявляти можливі помилки у визначенні областей і матеріалів.

РОЗДІЛ 2.

КОМП'ЮТЕРНЕ МОДЕЛЮВАННЯ РАДІАЦІЙНОГО ПОШКОДЖЕННЯ

2.1 Огляд сучасних методів і досліджень у моделюванні радіаційних пошкоджень конструкційних матеріалів ядерних реакторів

Очевидно, що найбільш важливою областю ядерного реактора є його активна зона. У ній відбувається виділення теплової енергії внаслідок ділення ядерного палива, її зняття теплоносієм. Конструкційні матеріали використовуються для виготовлення таких важливих компонентів активної зони, як оболонки твела, чохла ТВЗ, оболонки поглиначів, дистанціюючих решіток, тощо. Під час роботи реактора ці елементи перебувають у надзвичайно важких умовах інтенсивного нейтронного опромінення та високої температури.

Але найбільше навантаження отримують безпосередньо *оболонки палива*. Вони, окрім своєї основної функції з передачі тепла від палива до теплоносія, утримують більшу частину радіоактивних продуктів розпаду всередині свого об'єму. При цьому матеріал, з якого вони виготовлені (а для реакторів ВВЕР і PWR це переважно цирконієві сплави), має витримувати термічні цикли, знакозмінні механічні навантаження і бути корозійностійким, оскільки оболонка твела взаємодіє з теплоносієм – водою у ВВЕР/PWR. Випромінювання в активній зоні істотно впливає на фізичні та механічні властивості матеріалу оболонки.

Більша частина енергії, що визволяється під час поділу, припадає на кінетичну енергію осколків поділу (приблизно 85%), тоді як решта енергії розподіляється між швидкими нейтронами й γ -квантами. Уламки, що народжуються всередині паливних таблеток, зазвичай зупиняються на відстані порядку 10^{-3} см від місця поділу, що призводить до локального нагрівання. Проте ті фрагменти і швидкі нейтрони, які виникають у безпосередній

близькості до межі «паливо—оболонка» (fuel-cladding interface, FCI), становлять особливий інтерес з погляду радіаційного пошкодження матеріалів оболонок [77].

Внесок уламками поділу ^{95}Sr та ^{139}Xe у радіаційне пошкодження на межі FCI паливних збірок натрієвого швидкого реактора проводили Shengli та Bernard [78]. Вони оцінювали зміщення атомів у Fe-14Cr і їх просторовий розподіл за допомогою програмного забезпечення SRIM-2013. При цьому вони прийняли деякі припущення та наближення (i)-(vi) для зменшення часу розрахунків. Результати показали, що максимальне проникнення 100 MeV ^{95}Sr та 70 MeV ^{139}Xe через Fe-14Cr склали 7.9 мкм та 6.3 мкм, відповідно. На відповідних глибинах проникнення швидкість пошкодження продуктами поділу була приблизно у 5 разів більша, ніж індукована нейтронами.

Дослідження Shengli та Bernard цікаве з точки зору методології експерименту, але в ньому автори припустили, що між паливом і оболонкою є пустий простір. Щодо легководних реакторів, де використовують переважно цирконієві сплави, це припущення є недоречним. Як показали Ciszak, Desgranges, Garcia та ін. [79] у PWR для паливних елементів з ступенем вигорання 35.3 ГВт·д/кг U та 64.5 ГВт·д/кг U, а також раніше Nogita та Une для BWR[80] з ступенями 42 ГВт·д/кг U і 49 ГВт·д/кг U, утворюється зв'язувальний шар ZrO_2 через наявність «вільного» кисню, що вивільняється в паливі в результаті розпаду. Повна еволюція зв'язувального шару не є очевидною. Ciszak та ін. пов'язують її з феноменом адгезії, що має дві компоненти. Першу, хімічної природи, обумовлену іонно-ковалентними зв'язками між t- ZrO_2 і UO_2 . І другу, механічної природи, представлену прогресивним розвитком міжфазних зв'язків, що поступово посилюються і зміцнюються хімічними зв'язками з вигоранням [81]. У свою чергу Lach та Edwards використали SRIM-симуляцію для визначення профілю пошкодження тетрагональної фази ZrO_2 під опроміненням

90 MeV Mo та Xe іонами [82], максимальна глибина пошкодження для утворених на самій межі палива продуктів поділу склала 7.5 та 8 мкм, відповідно. Таким чином, при моделюванні потрібно враховувати ZrO_2 шар, який утворюється при роботі реактора і вигорянні палива при дослідженні пошкодження самої оболонки.

Можна зробити висновок, що продукти поділу наносять значне приповерхнєве до 10 мкм радіаційне пошкодження [78;82-83], на відстанях більших за цю межу основним джерелом пошкодження є миттєві нейтрони та γ -промені [82].

Перетин пружного розсіювання нейтронів для ядер Zr схожий з перетином інших елементів у періодичній таблиці [84], тому тривале опромінення нейтронами призводить до накопичення значної кількості мікроскопічних дефектів радіації, що утворюються внаслідок вибивання атомів. Це призводить до погіршення фізичних та механічних властивостей матеріалу та ініціює зміни лінійних розмірів [85;22]. Високоенергетичні нейтрони (більше 0.1 MeV), що утворились в результаті розпаду уранового оксидного палива [86] зіштовхуються з ядрами цирконію, ініціюючи каскади зіткнень, які вибивають атоми з їхніх рівноважних положень у решітці. Дефекти накопичуються з підвищенням рівня опромінення у вигляді пар міжвузловий атом – вакансія (пари Френкеля), які з часом зливаються у більш великомасштабні дефекти, такі як дислокаційні петлі та порожнини [87]. Noori-kalkhoran та Gei оцінювали пошкодження, спричинені нейтронним випромінюванням, на основі розрахунків первинно вибитого атома (ПВА) та зміщення на атом (зна) у паливній оболонці в гарячій паливній збірці (ГПЗ) в активній зоні ВВЕР-1000 [88]. Вони моделювали повну активну зону реактора за допомогою коду MCNPX (v2.7.) для визначення відповідного спектру енергії нейтронів. Потім використовували SPECTER, SPECTRA-РКА та PTRAC картки MCNPX для того, щоб визначити спектр ПВА під бомбардуванням нейтронами. І за допомогою методу бінарного

зіткнення у SRIM-2013 отримували зна. Значення зна отримані за допомогою MCNPX+arc-dpa були ближчими до експериментальних значень, оскільки враховувався ефект термічної рекомбінації [88].

2.2 Модель радіаційного пошкодження уламками поділу оболонки палива ВВЕР/PWR

Дослідимо поширення продуктів поділу у оболонці палива реактора на теплових нейтронах. Зосередимось головним чином на просторовому діапазоні міграції іонів. Схематично область симуляції показана на рисунку 2.1.

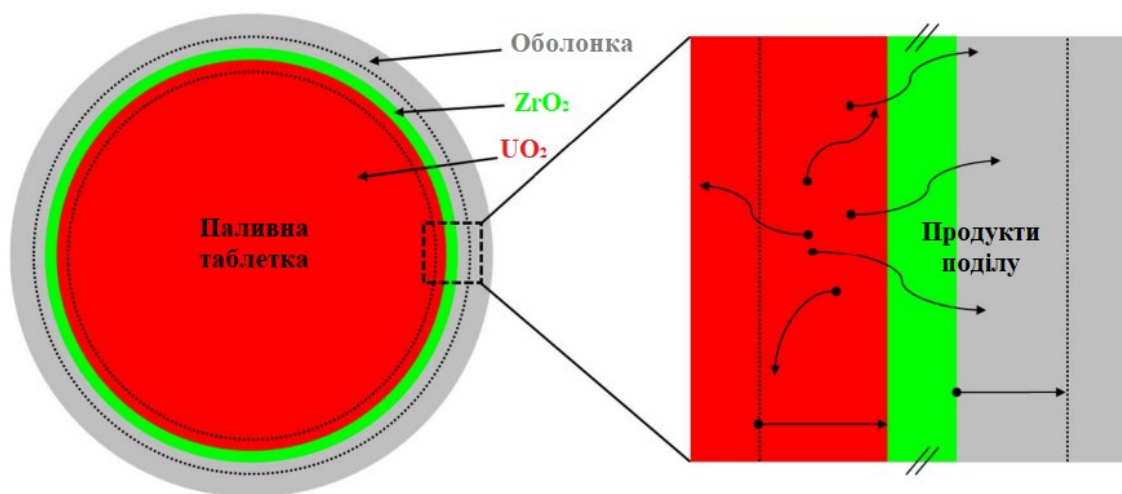


Рис.2.1.Схема переміщення продуктів поділу поблизу периферії паливної таблетки (адаптовано з [78])

Як можна побачити з рисунка, пунктирна крива в паливній таблетці ілюструє найвіддаленіше положення, з якого іони можуть досягти внутрішньої поверхні оболонки, тоді як крива в паливній оболонці вказує на найглибше положення, якого продукти можуть досягти. Оскільки відносні виходи розпаду(за атомною масою, зарядом та енергією) ^{235}U та ^{239}Pu (а це основні розщеплювані ядра у теплових реакторах) не надто відрізняються [78], то

вважатимемо, що всі реакції поділу є суто діленнями ядер ^{235}U . Під час моделювання пошкоджень вважатимемо, що паливо UO_2 є чистим і однорідним. Для порівняння з результатами Chen та Bernard візьмемо уламки поділу як в їхній роботі [78], оскільки вони є найбільш ймовірними та репрезентативними. Отже, нехай ми маємо легкий та важкий іони ^{95}Sr та ^{139}Xe , які складають 100% усіх уламків поділу, і мають енергії 100 MeV та 70 MeV, відповідно. Середні кінетичні енергії для цих іонів були обчислені Litaize за допомогою моделювання у FIFRELIN [89]. Варто зазначити, що ^{95}Sr та ^{139}Xe є нестабільними ядрами, і період їх напіврозпаду становить 23.9 с та 39.7 с, відповідно. Але ці часові інтервали є дуже великими у порівнянні з тривалістю атомних каскадів (декілька десятків пікосекунд) [88]. До того ж, на відміну від дослідження [78], де простір між паливом та оболонкою вважали пустим (він був заповнений газом) і моделювали потрапляння продуктів поділу безпосередньо у сталеву оболонку, ми маємо врахувати утворення невеликого ZrO_2 шару, бо як вказав Nogita та Une для BWR [80], він ледве помітний навіть при низькому вигорянні палива (менше 3.4 мкм). Також для простоти розрахунків вважатимемо оксидну плівку з кубічною структурою, це потрібно для коректного задання густини. Як показав Chang та ін. [90], розрахована густина для ZrO_2 шару складає 6081 кг/м^3 , оскільки вона знаходиться між двома граничними значеннями теоретичної густини моноклінного та тетрагонального діоксиду цирконію [91-92]. Для UO_2 густина при 1200°C обчислюється за формулою [93]:

$$\rho(T) = \rho(273) * \left(\frac{L_{273}}{L_T} \right)^3, \quad (2.1)$$

де L_{273}, L_T – лінійні розміри при температурі 273 К та T , $\rho(273)$ – густина твердого урану при 273 К, відповідно. Обчислення дає результат для $\rho_{\text{UO}_2} = 10.65 \text{ г/см}^3$, що приблизно на 1% відрізняється з результатами [94].

Тепер слід визначити густини та хімічний склад досліджуваних конструкційних матеріалів, тобто, сплавів, з яких виготовлені оболонки. Густини

братимемо за кімнатної температури подібно до роботи [78]. Хімічний вміст взято з роботи [22]. Загальна інформація про стехіометрію цирконієвих сплавів дана у Таблиці 2.1.

Таблиця 2.1. Хімічний склад легуючих домішок (у % мас.) та густина

Сплав	Sn	Nb	Fe	Cr	O	Густина, г/см ³
Zircaloy-4	1.2	–	0.24	0.13	0.16	6.55
E110	–	1.0	–	–	0.06	6.51
E635	1.5	1.0	0.5	–	<0.01	6.55

Порогові енергії зміщення(Displacement energy E_d). Найбільш важливим параметром для моделювання пошкоджень є порогова енергія зміщення E_d . Вона необхідна для точної оцінки радіаційної пошкоджуваності, особливо в концепції зна.

У роботах [95-97] виміряні експериментально середні значення порогової енергії зміщення для Zr становлять 21 - 27.5 еВ. До того ж вона залежить від кристалографічного напрямку, в якому прямує налітаюча частинка. Тому використовуватимемо значення 40 еВ, яке вказано в нормативному еталонному тесті (стандарт E521–89, Щорічник стандартів ASTM, ASTM, Філадельфія, Пенсільванія, США) [98]. До того ж, це значення близьке до просторових середніх значень, отриманих за допомогою моделей MD [97]. Для Nb візьмемо енергію 35 еВ, яка узгоджується з результатами МД [6] і експериментами [99-100]. Не було знайдено надійних джерел щодо порогової енергії олова (Sn), оскільки відомо, що воно має складну кристалічну структуру. Тому використовуватимемо значення 25 еВ – стандартне число, яке пропонують більшість програм іонного транспорту, зокрема SRIM. Для U, Fe, Cr енергію для моделювання зазвичай обирають 40 еВ [101-102;3], для O – 20 еВ [101].

Вхідні параметри моделювання та припущення. Отже, підсумовуючи все вищесказане, узагальнимо вхідні дані нашого моделювання та припущення, які потрібні для скорочення часу розрахунків.

Припущення були узяті з раніше згаданої роботи Chen та Bernard [78]:

- 1) Усі легкі та важкі продукти поділу були ^{95}Sr та ^{139}Xe , відповідно (бо вони є найбільш імовірними для $A=95$ та $A=139$).
- 2) Кінетичні енергії продуктів поділу 100 MeV та 70 MeV для ^{95}Sr та ^{139}Xe
- 3) Паливо UO_2 однорідне та чисте, а продукти випромінюються ізотропно.
- 4) Оскільки складно і дуже довго обраховувати пошкодження для усіх кутів падіння уламків $\theta \in [\theta_1, \theta_2]$, то поділимо цей інтервал на $[\theta_n, \theta_{n-1}]$, у якому при θ_n максимальне пошкодження, при θ_{n-1} – мінімальне. Реальне пошкодження буде середнім значенням у цьому інтервалі. θ_2 – це максимальний кут, при якому буде пошкодження в оболонці при даній відстані у паливі.
- 5) Припущення, щодо відстаней $d \in [d_1, d_2]$, аналогічне 4.
- 6) **На відміну від роботи** Chen та Bernard [79], де простір між паливом та оболонкою був порожнечою, тут **врахуємо** наявність шару ZrO_2 , який утворюється з вигорянням палива.

2.3 Моделювання радіаційного пошкодження уламками поділу для сплаву Zircaloy-4

Визначимо максимальну глибину проникнення уламків поділу у в області (UO_2 | ZrO_2 | Zircaloy-4). Моделювання проводитимемо у програмі SRIM-2013 в режимі Quick Calculation of Damage, модель К-Р. Відповідний кут $\theta = 0^\circ$. Кількість іонів 3000. Для 70 MeV ^{139}Xe максимальна глибина імплантації склала

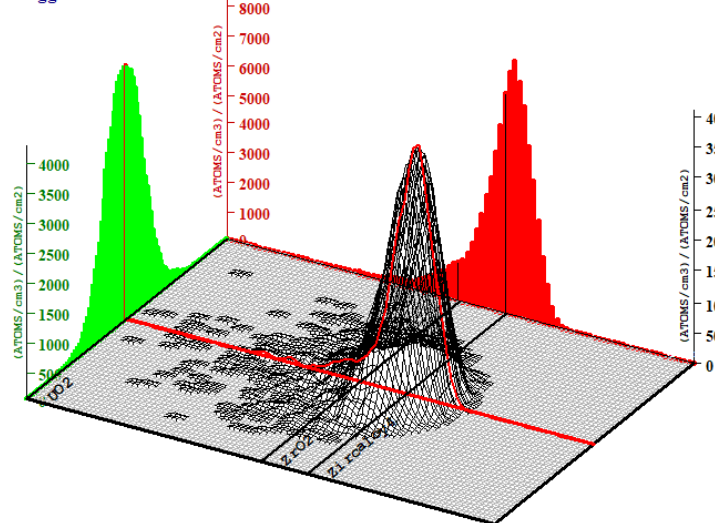
5.86 мкм, для 100 MeV ^{95}Sr 8.10 мкм. Відповідні діапазони можна побачити на рисунку 2.2.

a)

Ion Distribution

Ion Range = 5.86 um Skewness = -2.029

Straggle = 7006 A Kurtosis = 10.462



Plot Window goes from 0 A to 10 um; cell width = 1000 A.
Press PAUSE TRIM to speed plots. Rotate plot with Mouse.

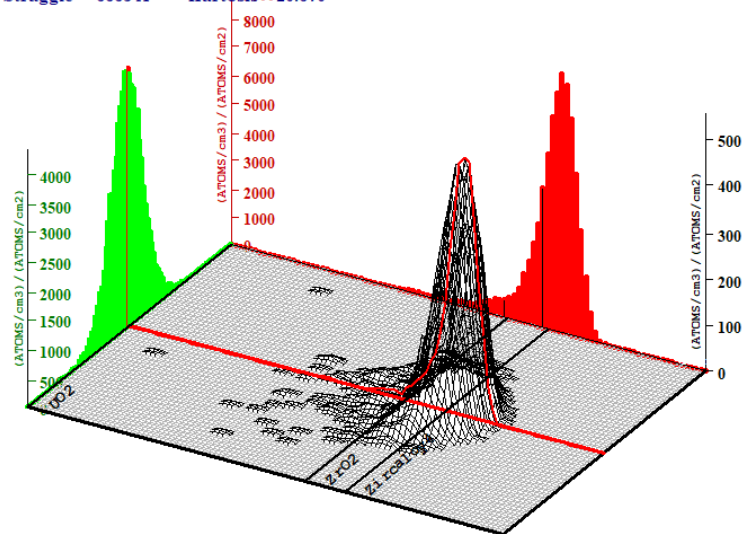
Ion = Xe (70. MeV)

б)

Ion Distribution

Ion Range = 8.10 um Skewness = -2.875

Straggle = 6663 A Kurtosis = 20.670



Plot Window goes from 0 A to 12 um; cell width = 1200 A.
Press PAUSE TRIM to speed plots. Rotate plot with Mouse.

Ion = Sr (100. MeV)

Рис.2.2. 3D розподіл іонів для Zircaloy-4: 70 MeV Xe (а) та 100MeV Sr (б).

Моделювання SRIM-2013Pro (3000 іонів QC).

Максимальна глибина імплантації: А) 5.86 мкм Б) 8.10 мкм

Відповідні продуктам поділу повні каскади для 300 іонів, зображені на рисунку 2.3. Максимальні глибини народження $R_{\max}$ у паливі взяті меншими за імплантаційні (5 мкм і 7 мкм).

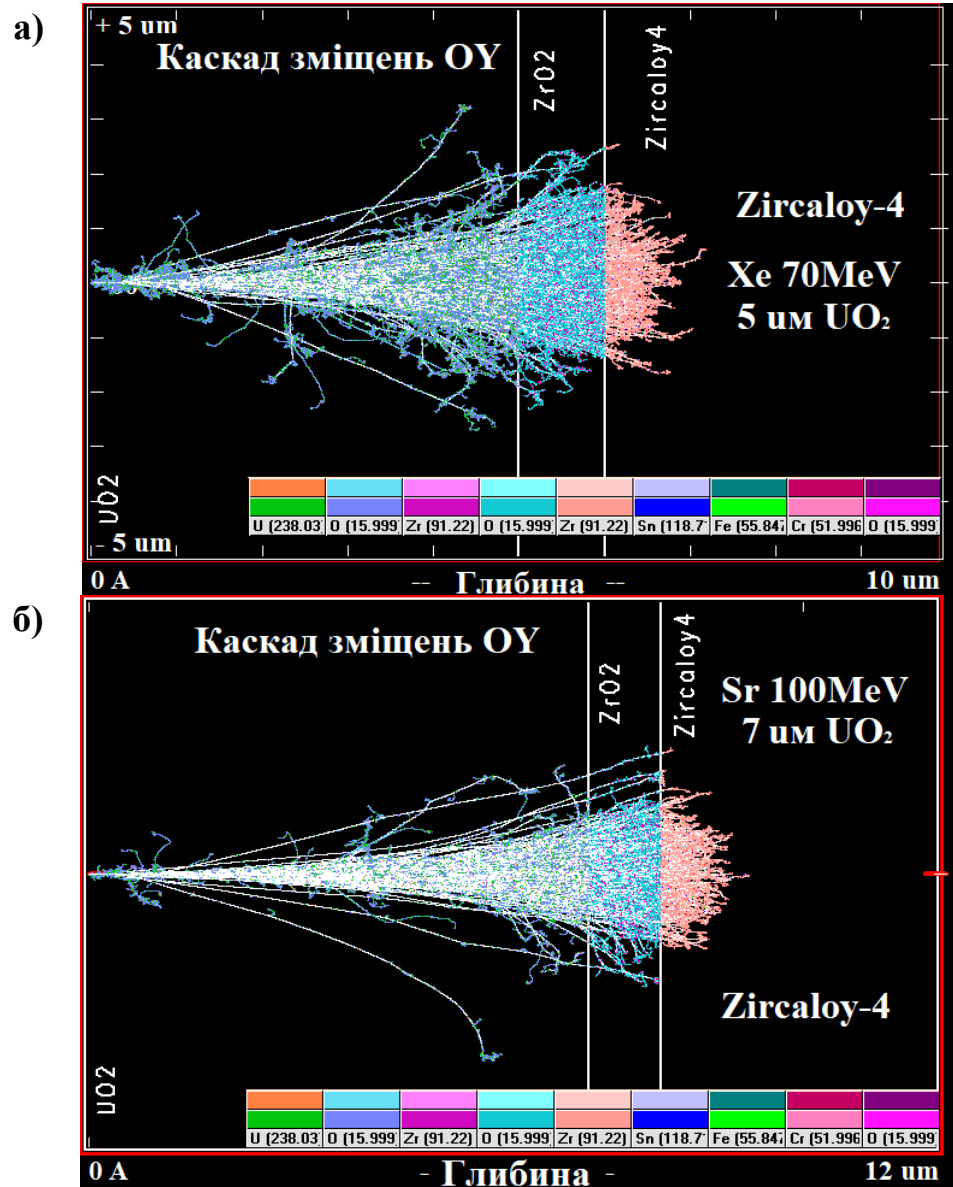


Рис.2.3. Каскади зміщень отримані в SRIM-2013Pro F-C моделюванням для максимальних $R_{\max}$ 5 мкм Xe 70 MeB (а) і 7 мкм Sr 100 MeB (б) у Zircaloy-4.

Нижня палітра показує зупинені атоми. Кут падіння 0°

Повні каскади для мінімальних глибин народження $R_{\min}$ продуктів поділу, зображені на рисунку 2.4 Умови моделювання були аналогічними.

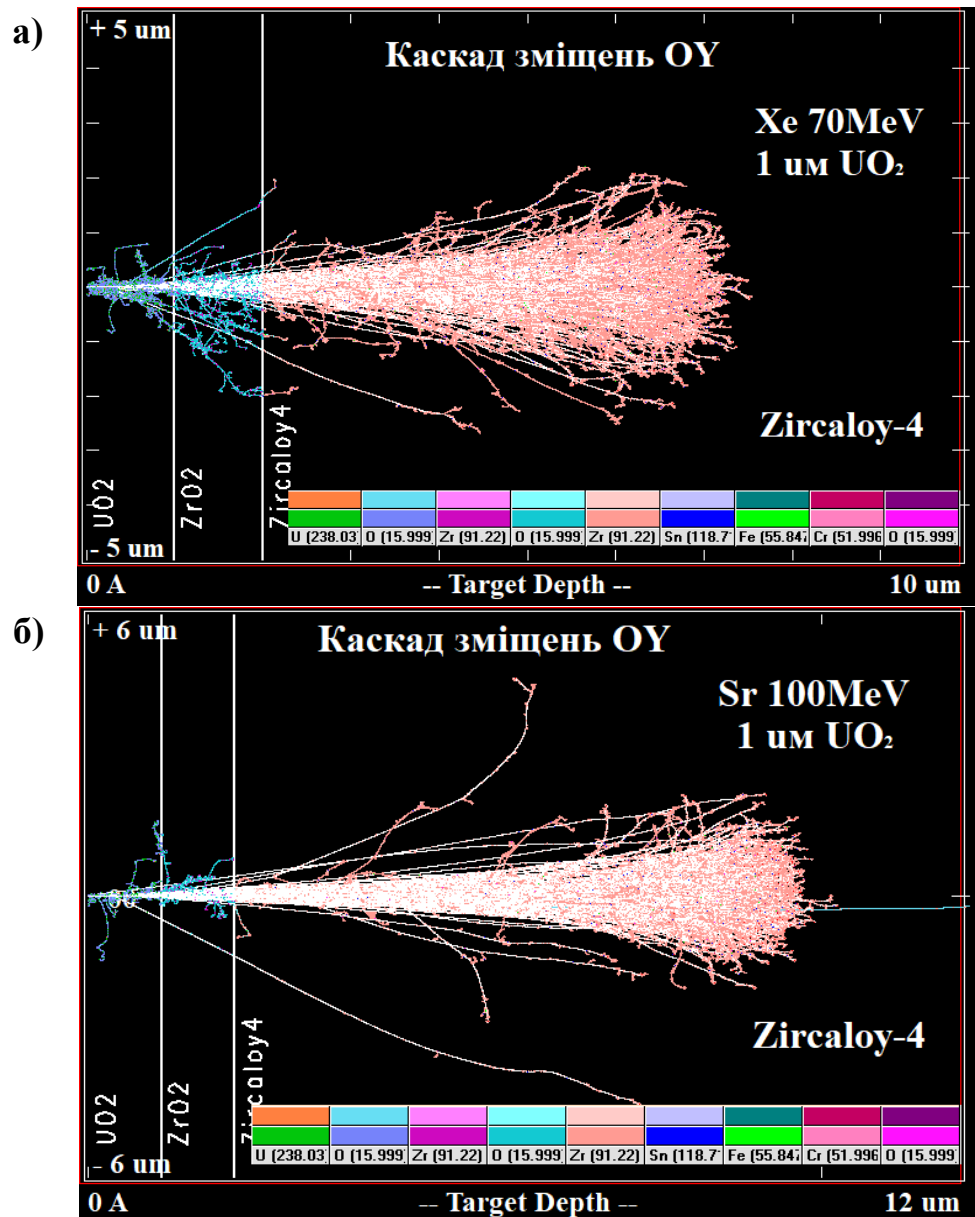


Рис.2.4. Каскади зміщень отримані в SRIM-2013Pro F-C моделюванням для мінімальних глибин народження 1мкм Xe 70 MeB (а) і Sr 100 MeB (б) у Zircaloy-4. Нижня палітра показує зупинені атоми. Кут падіння 0°

Як можна побачити з рисунків 2.3 та 2.4, різні початкові положення іонів призводять до різних діапазонів пошкодження та кутового розподілу. Для мінімальної відстані народження продуктів маємо більш вузький каскад(кутовий розподіл), а для максимальної відстані – широкий кутовий розподіл.

На даному етапі можна стверджувати, що продукти поділу мають обмежений діапазон народження у паливі і їх пошкодження залежать від їх початкового положення в UO_2 та кутового розподілу каскаду.

Моделювання розподілу утворених вакансій від початкового положення продуктів поділу у паливі проводилось у SRIM-2013 спочатку для 10000 іонів Xe 70 MeV у режимі Quick Calculation of Damage, формалізму Кінчина-Піза, та 3000 іонів Sr 100 MeV за допомогою моделі Full Cascade, яка враховувала вакансії, створені вторинними атомами віддачі (див. рисунок 2.5).

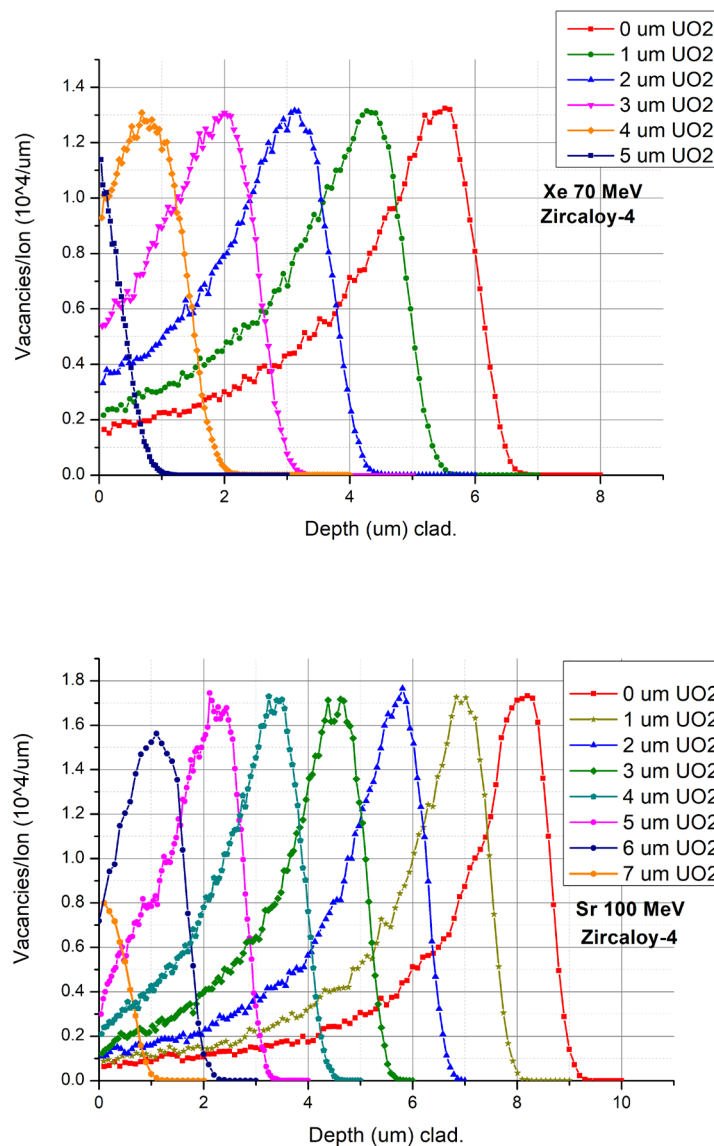


Рис. 2.5. Розподіл вакансій для різних глибин народження продуктів поділу

З рисунку 2.5 очевидно, що пікові значення атомних зміщень не настільки чутливі до початкового положення продуктів поділу, якщо відстань народження d у паливі менше за максимальну $R_{\max}$. У випадку, коли відстань d наближається до $R_{\max}$ пікове значення швидко зменшується із збільшенням глибини в паливі через зменшення загальної кількості іонів, які можуть досягти оболонки. Отже, врахування d меншого за $R_{\max}$ дає непогане наближення.

Було досліджено залежність пошкоджень у оболонці в залежності від відстані у паливі. Але вищезгадане моделювання не враховувало кутовий розподіл(іони падали перпендикулярно до мішені). Тут треба обговорити одне важливе припущення. Оскільки в роботі [78] між паливною таблеткою та оболонкою був пустий простір, то автори розглядали процеси транспорту безпосередньо між UO_2 та $Fe-14Cr$. У цій роботі, як було зазначено у припущеннях, є шар діоксиду цирконію, що утворюється в паливному елементі по мірі вигорання палива. Це, у свою чергу, впливає на максимальну дальність проникнення уламків поділу в оболонку(як було показано раніше для глибин народження). Але, якщо в роботі Bernard та Chen був чистий UO_2 , який мав свою певну гальмівну здатність, яка єдиним чином визначала результат пошкодження у оболонці(енергію іонів, коли вони досягали її) і максимальну глибину, яку автори використовували для визначення максимальних кутів пошкодження, то в нашому випадку ми маємо два шари з гальмівними здатностями $\frac{dE}{dx_{UO_2}}$ і $\frac{dE}{dx_{ZrO_2}}$, які б мали суттєвий вплив на максимальну відстань $R_{\max}$. Далі потрібно проаналізувати графіки гальмівних здатностей для палива та проміжного шару (ці залежності є сумами ядерних та іонізаційних втрат), які були отримані у SRIM-2013 Pro за допомогою підпрограми Stopping/Range Tables для іонів Xe та Sr енергіями від 10 keV до 100 MeV (див. рисунок 2.6).

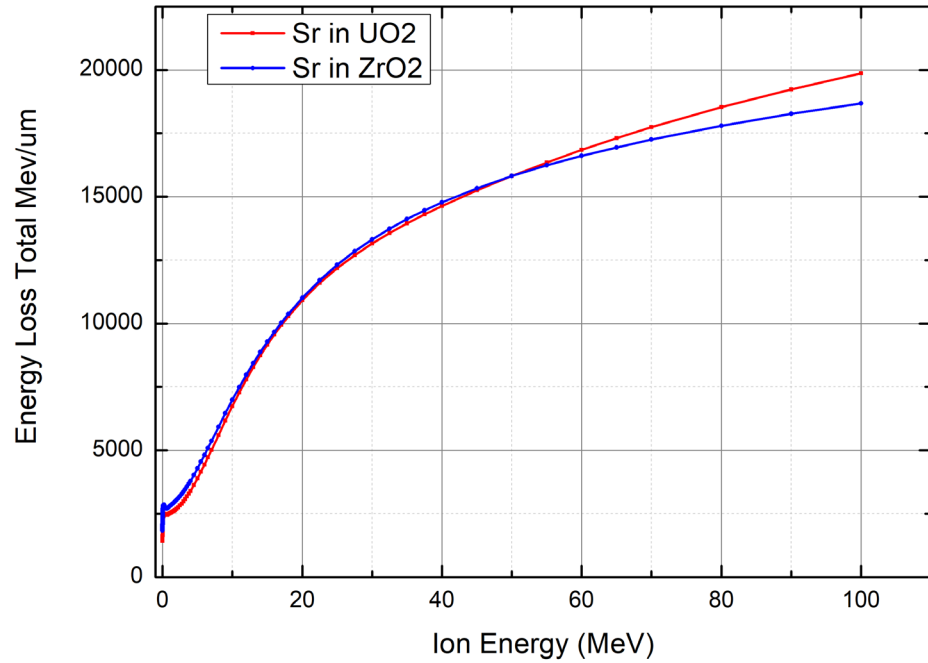
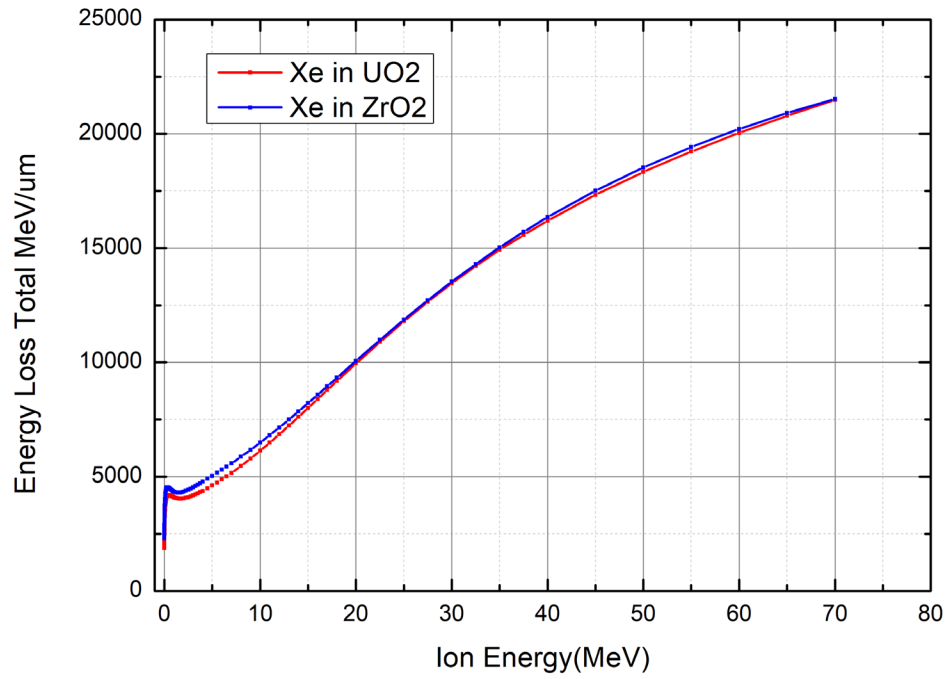


Рис. 2.6. Залежності загальних гальмівних втрат для Xe вгорі та Sr внизу в діоксидах урану та діоксидах цирконію.

Для обох іонів криві гальмівних здатностей або втрат енергії є надзвичайно близькими, окрім діапазону енергій більше 60 MeV для Sr та 80 MeV для Хе. Тобто, іони втрачатимуть однакову кількість енергії на одиницю довжини. Це свідчить про те, що шар ZrO_2 можна розглядати як шар чистого UO_2 в певних енергетичних межах. Розбіжності виникають тому, що матеріали мішені мають різну електронну густину і ефективний заряд іона залежить від швидкості. Для Sr (легший: $A \approx 95$, $Z=38$) при даних енергіях швидкість іона вища ніж у Хе ($A \approx 139$, $Z=54$) при тій же енергії. Вища швидкість вказує на те, що іон має інший ефективний заряд і потрапляє в іншу швидкісну область, де електронний вклад більш чутливий до різниці в електронній структурі UO_2 і ZrO_2 . У підсумку, на високих енергіях (приблизно там, де електронне гальмування повністю домінує) криві для Sr розходяться, тоді як для Хе, через нижчу швидкість при тій самій енергії, ця чутливість проявляється в іншому діапазоні. Це припущення дає нам можливість провести моделювання для максимальних кутів відхилення.

Розглянемо наступну схему для моделювання кутового розподілу, що представлена на рисунку 2.7.

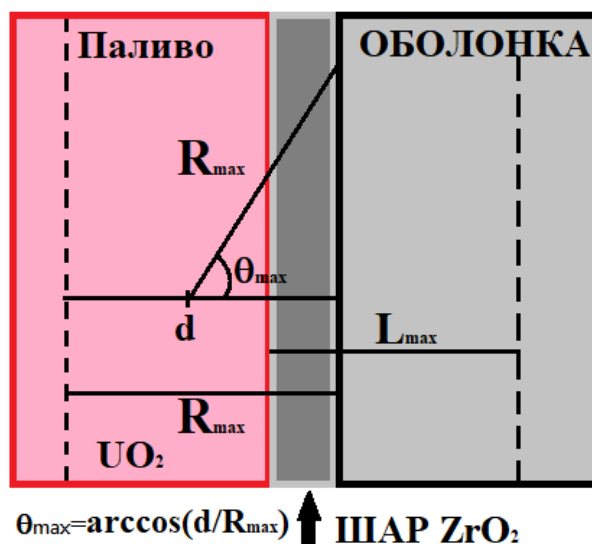


Рис.2.7. Геометрична побудова для моделювання кутового розподілу продуктів поділу у області паливо-оболонка

Ця проста геометрична побудова працює завдяки тому, що тут розглядається максимальна відстань народження $R_{\max}$ як максимальна відстань, яку долають іони в речовині палива та проміжного шару, у якості останньої в чистому паливі (припущення щодо того, що гальмівні здатності UO_2 та ZrO_2 однакові). Це накладає деяке обмеження на кут вильоту продуктів (рисунк 2.8).

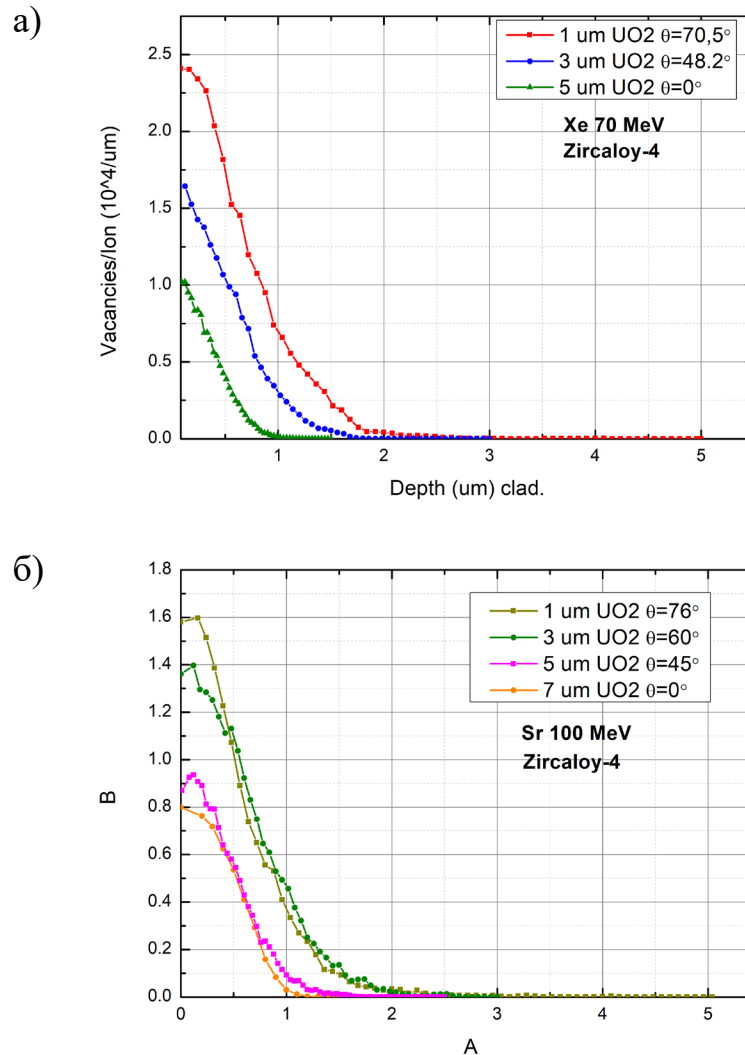


Рис.2.8. Вакансії для максимальних кутів пошкодження для заданих відстаней народження в UO_2 для: Xe 70 MeV (a) та Sr 100 MeV (б)

Можна побачити, що зі збільшенням товщини шару палива, зменшується максимальний кут, при якому налітаючі продукти матимуть достатньо енергії для створення вакансій. Також зменшується висота та ширина вакансійного піку.

Більш детально кутовий розподіл було змодельовано для 0 мкм та 3 мкм відстанях у паливі (див. рисунок 2.9).

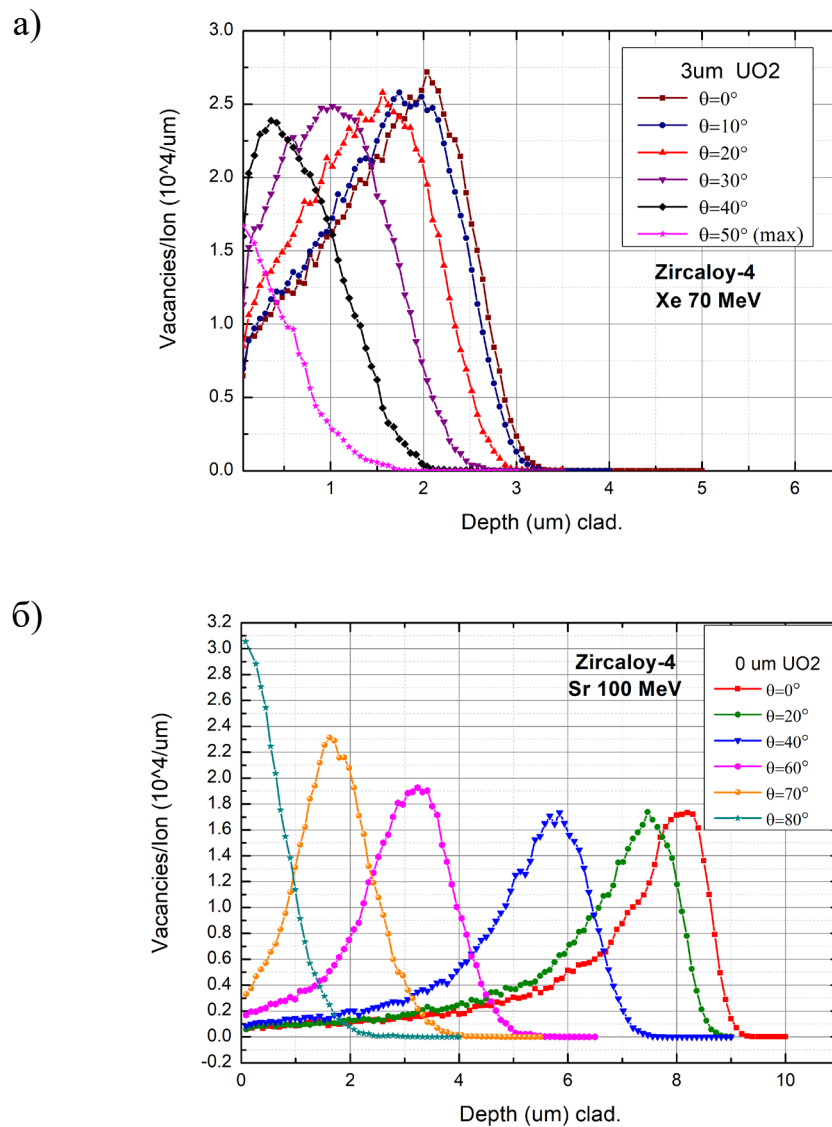


Рис. 2.9. Кутові розподіли вакансій для 3 мкм (а) та 0 мкм (б) UO_2 для Xe та Sr

З рисунка видно, що у випадку а) спостерігається очікуване зниження піків як і у випадку для перпендикулярного падіння, що пояснюється впливом шару палива на втрати енергії налітаючими продуктами. У той же час для випадку б) з наближенням до початку оболонки висота піків збільшується, а їх ширина стає меншою.

2.4 Моделювання радіаційного пошкодження матеріалів оболонки нейтронним пучком

Незважаючи на те, що продукти поділу завдають значного радіаційного пошкодження конструкційному матеріалу оболонки, цей вплив обмежується приповерхневим шаром глибиною до 10 мкм. Але на відстанях, що перевищують цю межу, домінуючим джерелом радіаційної деградації стають миттєві нейтрони та γ – кванти, які проникають у весь об'єм матеріалу. Взаємодія нейтронів з кристалічною решіткою цирконієвих сплавів має свої особливості. Перетин пружного розсіювання нейтронів на ядрах цирконію Zr є порівнянним з аналогічними показниками для інших елементів, що призводить до накопичення значної кількості мікроскопічних дефектів під час тривалої експлуатації реактора. Високоенергетичні нейтрони з енергією понад 0.1 MeV, що утворюються внаслідок розпаду оксидного палива, ініціюють каскади атомних зіткнень, вибиваючи атоми з рівноважних положень (див. підрозділ 2.1).

Для визначення розподілу зна у оболонках твелів, виготовлених з цирконієвих сплавів Zircaloy-4, E110 та E635, використовувалось програмне забезпечення FLUKA-2025.1.2. Досліджувався радіально-азимутальний розподіл середньої величини зміщень на атом за допомогою картки USRBIN з параметром WHAT(1): DPA-SCO. З огляду на аксіальну симетрію, координатна система була обрана циліндричною R- Φ -Z. Відповідна їй сітка бінів 500x500x1 накладалась на геометричні розміри оболонки твелу з внутрішнім радіусом 0.3865 см і зовнішнім – 0.4550 см. Отримані профілі нормалізованих значень зна(кількість зміщень на 1 налітаючий нейтрон з середньою енергією 2 MeV) подані на рисунку 2.10.

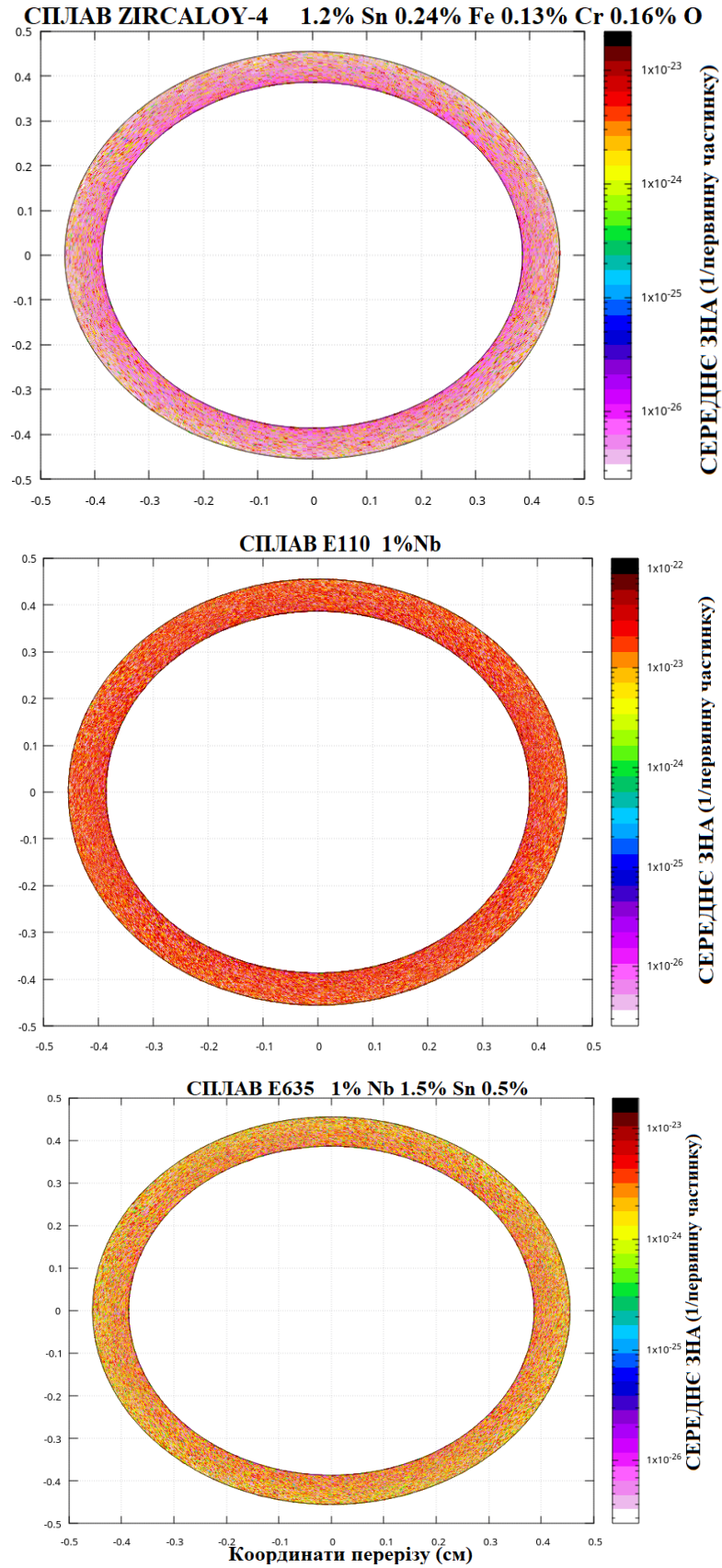


Рис. 2.10. Нормовані розподіли ЗНА у Zircaloy4, E110, E635 (зверху донизу)

Для визначення пошкодження нейтронами конструкційних матеріалів розглядались циліндричні зразки діаметром 6 см та висотою 10 см. Моделювання поздовжнього розподілу обґрунтовано тим, що в зразках накопичується достатня статистика для 200 млн. нейтронів, на відміну від тонкої циліндричної оболонки твелу, яку частинки проходять ментально. Хоча, більш правильно було б моделювання циліндричного джерела нейтронів, що розповсюджуються однорідно та ізотропно в певному спектрі енергій ділення U-235. Але спрощення, прийняте при цьому моделюванні також показує ізотропний розподіл зна, в матеріалі оболонці, що каже про ізотропний характер випромінювання нейтронів.

Отже, результати розподілу зна вздовж поздовжньої осі циліндричного зразка з Zircaloy-4 представлені на рисунку 2.11.

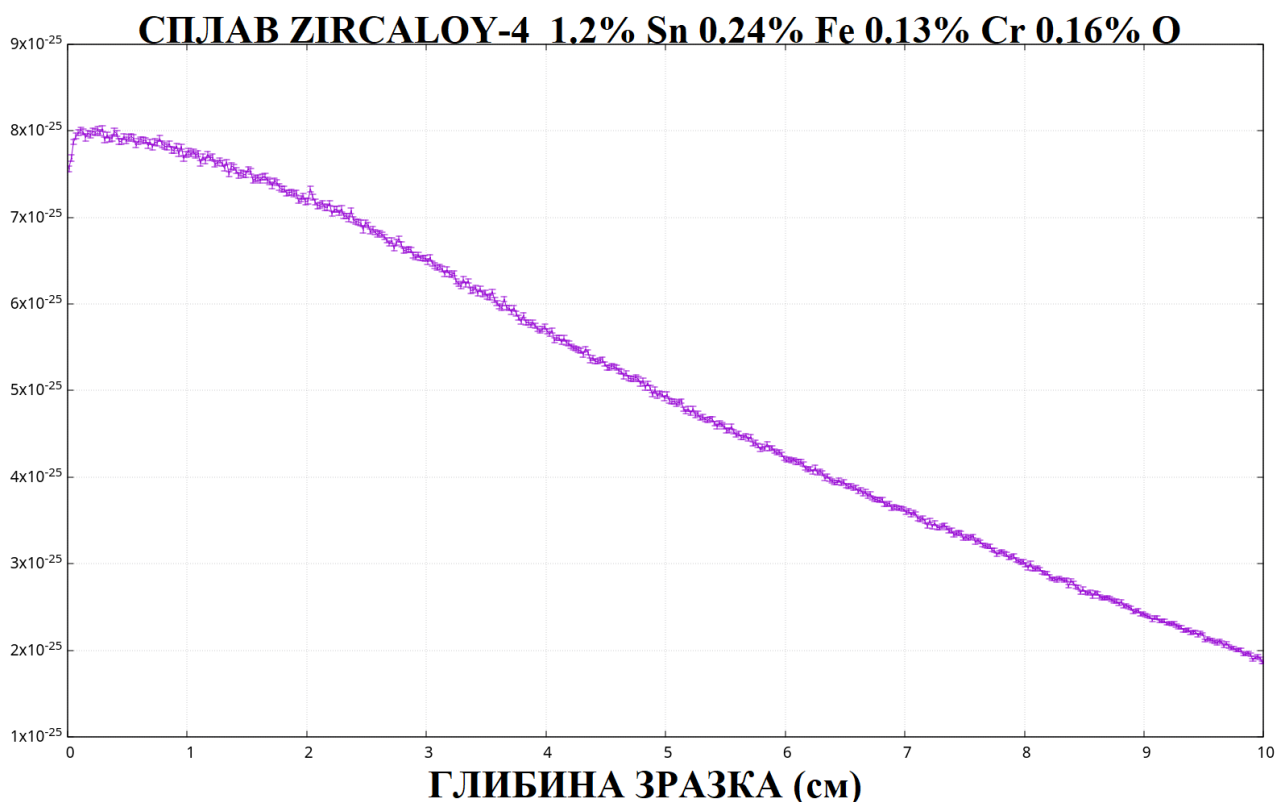
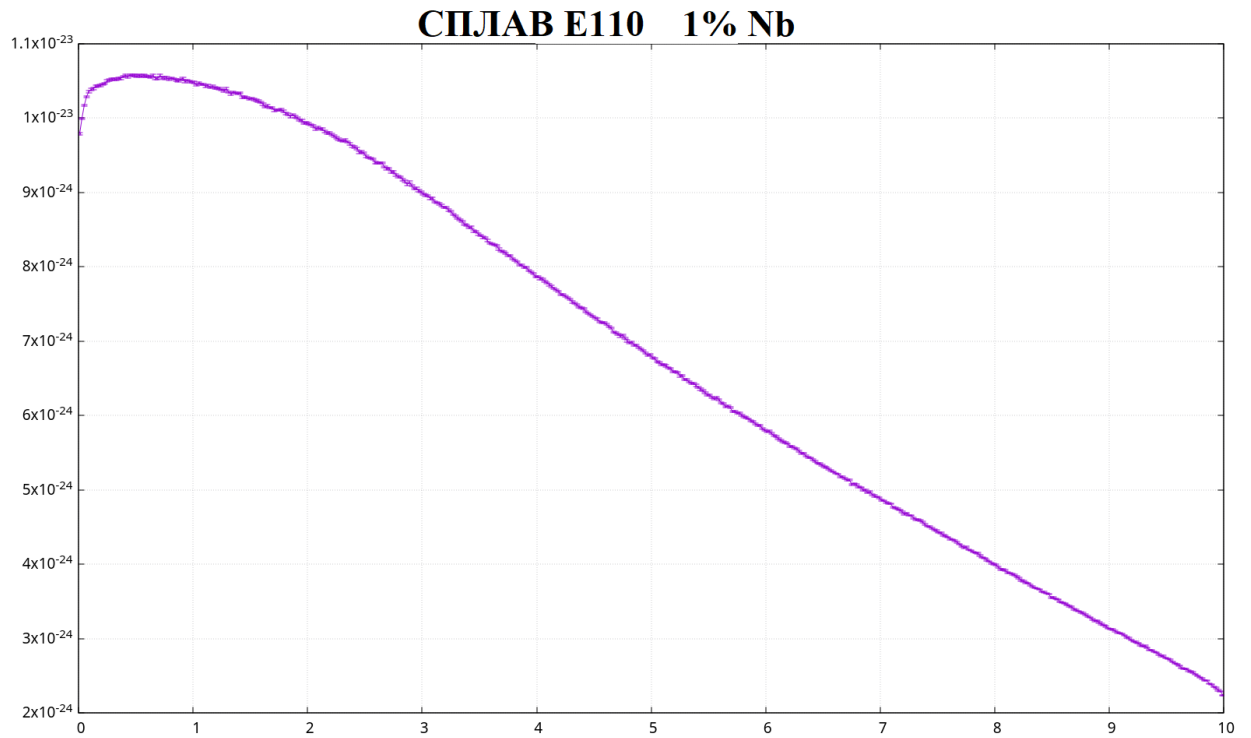


Рис. 2.11. Розподіл зна у цирконієвому сплаві Zircaloy-4.

Результати отримані в FLUKA-2025.1.2 для 200 млн. нейтронів

Для сплаву E110 та E635 графіки зна представлені на рисунку 2.12.

а)



б)

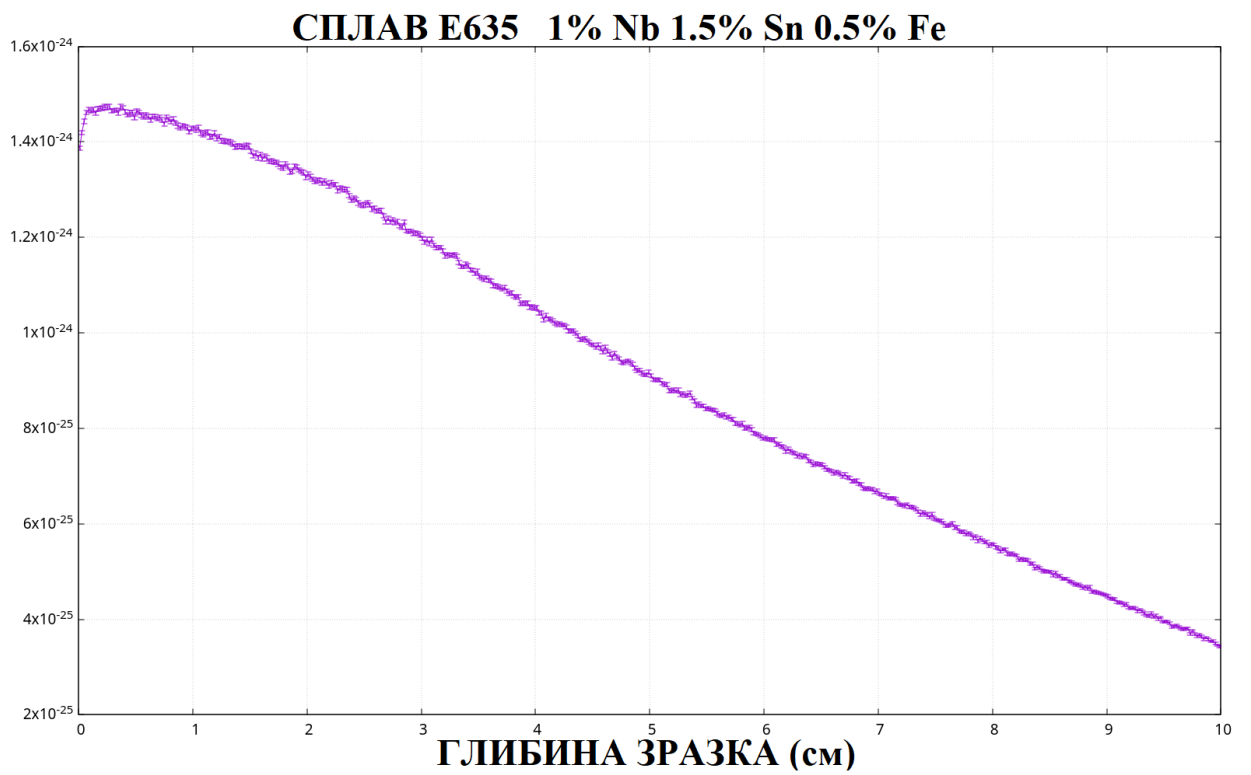


Рис. 2.12. Розподіл зна у сплавах E110 (а) та E635 (б)

Також було отримано розподіл пошкоджень у поздовжніх перерізах зразків. Результати представлені на рисунках 2.13 та 2.14 є 2D доповненням графіків вище.

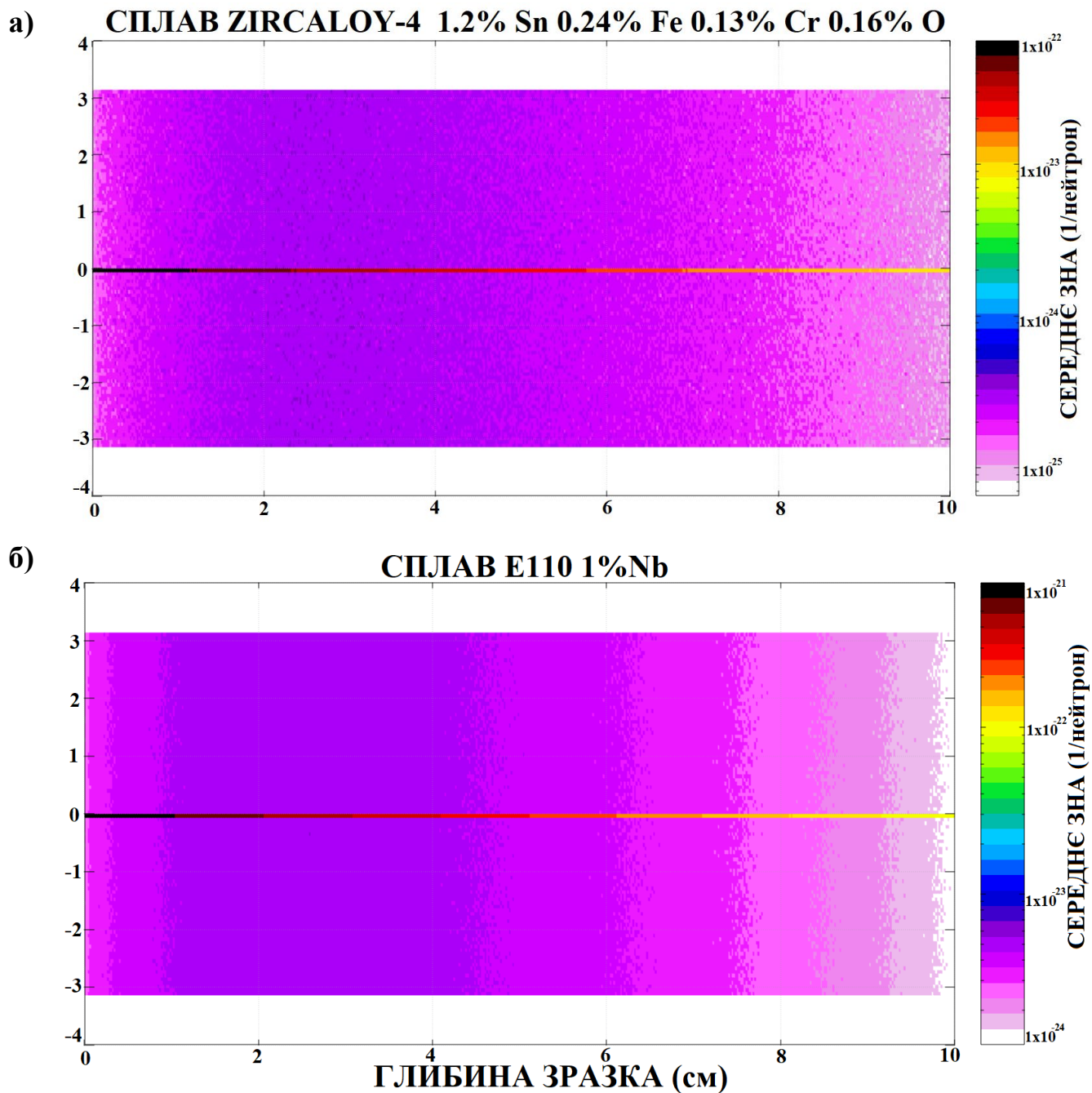


Рис. 2.13. Візуалізація 2D розподілу зна у осьовому перерізі циліндричних зразкі з Zircaloy-4 (а) та E110. Отримано в GNUPlot (б)

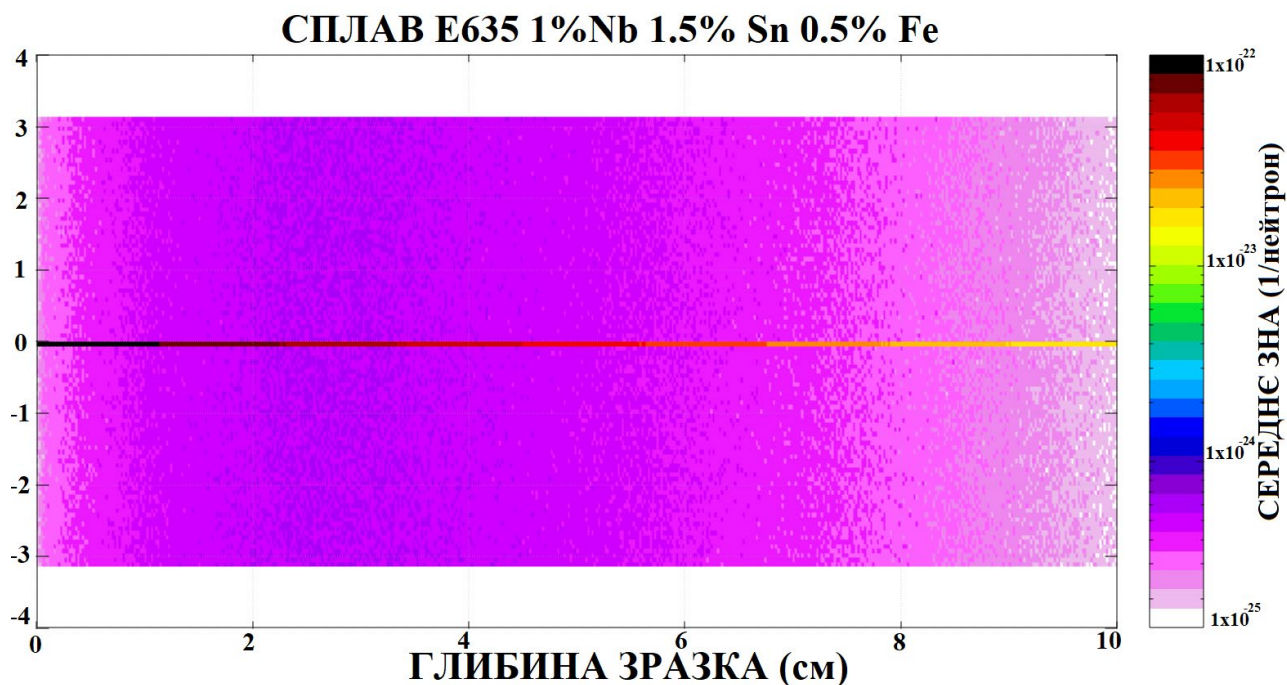


Рис. 2.14. Візуалізація 2D розподілу зна у осьовому перерізі циліндричного зразка з сплаву E635

Отримані залежності та 2D-карти показують, що максимальна нормована на одну первинну частинку, кількість зна припадає на глибину близько 0 - 1 см. Щодо поперечного розподілу зна у твелі, можемо побачити що кількість зна найбільша біля внутрішньої межі оболонки і є меншою біля краю.

2.5 Обговорення результатів моделювання

Було проведено моделювання радіаційного пошкодження конструкційних матеріалів ядерного реактора уламками поділу та нейтронами.

Імплантаційні глибини, отримані з моделювання радіаційного пошкодження за допомогою програми SRIM-2013Pro для уламків поділу ^{139}Xe та ^{95}Sr з відповідними енергіями 70 MeV та 100 MeV у режимі Full Cascade SRIM, надані в таблиці 2.2. Ці результати демонструють, що пробіги важкого та легкого іонів в сплавах (фактично в цирконієвій матриці та оксидному шарі) не більше 10 мкм навіть за умови перпендикулярного падіння.

Таблиця 2.2. Імплантаційні глибини для уламків поділу ^{139}Xe та ^{95}Sr з відповідними енергіями 70 MeV та 100 MeV

Максимальна глибина проникнення ПП Zircaloy-4	^{139}Xe 70 MeV	^{95}Sr 100 MeV
	5.86 мкм	8.10 мкм
Fe-14Cr [78]	5.3 мкм	7.17 мкм

Це є дуже близьким до результатів, отриманих Chen та Bernard [78] для Fe-14Cr сталі. Крім того, очевидно, що ZrO_2 виконує екрануючу функцію гальмування уламків поділу. Як можна побачити з зображень каскадів зміщень (рисунки 2.3 та 2.4) різне початкове положення продуктів поділу створює різний кутовий розподіл. Спостережуване розширення області пошкодження (віялоподібний розподіл) зі збільшенням глибини проникнення пояснюється ефектом латерального стреглінгу (англ. lateral straggling). Згідно з теорією взаємодії іонів з твердим тілом [74], при проходженні крізь шар палива UO_2 іони зазнають численних актів пружного розсіяння на ядрах атомів його решітки. Хоча кожне окреме розсіяння може бути малим, їх кумулятивний ефект призводить до статистичного відхилення траєкторії іона від первинної осі пучка. І оскільки переріз ядерної взаємодії зростає зі зменшенням енергії іона, цей ефект стає найбільш вираженим у кінці пробігу частинки, коли вона потрапляє в оболонку вже маючи значний розкид за кутом падіння та поперечною координатою.

Але, проведене моделювання залежності вакансійних профілів продуктів поділу від товщини палива (рисунок 2.5), показує що ні відстань у паливі, ні латеральний стреглінг не впливає на пошкодження. Аналогічне явище спостерігалось і в роботі [78]. Вакансійний пік починає швидко спадати тільки при перевищенні максимальної глибини імплантації для даного типу продукту поділу. Сталість вакансійних піків можна пояснити характером гальмування важких іонів. Іони, маючи велику початкову енергію (MeV), втрачають свою

кінетичну енергію переважно на іонізацію атомів. І після такого електронного гальмування, коли вони сповільнюються, їх переріз ядерної взаємодії зростає і вони створюють найбільшу кількість атомних зміщень. Товщина ж шару палива суттєво впливає на положення піку в глибині оболонки, оскільки іони мають меншу енергію на початку оболонки.

Щодо кутового розподілу результат виявився більш неоднозначним. Моделювання типу максимальний кут – максимальна відстань (рисунк 2.8) показує доволі цікаві результати. Видно, що з ростом відстані у паливі, зменшується і максимальний кут. Це пояснюється тим, що для визначення максимального кута використовувалась імплантаційна глибина R_{max} . Граничний кут визначався за формулою:

$$\theta_{max} = \arccos\left(\frac{d_i}{R_{max}}\right) \quad (2.2)$$

Отже, зменшення вакансійних піків пов'язано з двома факторами. По-перше, зі збільшенням шляху, пройденого в паливі, залишкова кінетична енергія іона на вході в оболонку наближається до нуля, що різко знижує кількість генерованих дефектів. По-друге, впливає геометричний фактор проекції пробігу: при великих кутах падіння (характерних для малих глибин народження) пошкодження, що утворюються вздовж траєкторії іона, "проектуються" на вузький приповерхневий шар оболонки, штучно збільшуючи локальну концентрацію вакансій (висоту піку). При перпендикулярному падінні (для великих глибин) цей ефект геометричної компресії зникає. Більш наочно цей ефект демонструється на рисунку 2.9 для товщин 0 та 3 мкм. Аналогічну поведінку отримали автори [78]. Підсумовуючи, можна сказати що на відстані в оболонці до 10 мкм продукти поділу мають домінуючий характер.

Моделювання пошкодження нейтронами оболонок цирконієвих твелів (рисунк 2.10) показало, що чітко простежується радіальна неоднорідність величини зміщень на атом. Максимальні значення (відображені темно-

червоним/чорним кольором) зосереджені на внутрішній поверхні оболонки (з боку палива), тоді як у напрямку до зовнішньої поверхні (до теплоносія) інтенсивність пошкоджень спадає (перехід до жовтого/зеленого спектра). Це явище пояснюється ефектом самоекранування та ослаблення нейтронного потоку. Оскільки джерело нейтронів (паливна таблетка) знаходиться всередині, внутрішні шари оболонки першими сприймають удар швидких нейтронів. Проходячи крізь товщу цирконію (~ 0.7 мм), частина нейтронів розсіюється або поглинається, втрачаючи енергію. Тому зовнішні шари отримують вже дещо ослаблений потік. Отже, можна зробити висновок, що внутрішня частина оболонки зазнає більш жорсткого радіаційного впливу, а значить внутрішній шар швидше втрачатиме свої фізичні та механічні властивості. До того ж, розподіл пошкоджень є симетричним відносно центральної осі паливного елемента, що каже про те, що джерело нейтронів випромінює їх ізотропно. Варто зазначити, що в реальних умовах роботи легководного реактора має спостерігатися незначна азимутальна асиметрія через вплив сусідніх твелів тіньовий ефект або нерівномірне вигорання палива, проте в межах даної задачі (оцінка пошкодження матеріалу) наближення циліндричної симетрії є виправданим.

Порівняння поздовжніх розподілів зна для усіх трьох цирконієвих сплавів без урахування паливної таблетки показує суттєву відмінність у характері накопичення дефектів. Оскільки обрані сплави фактично є чистим цирконієм, для Zircaloy-4, E635 та E110 спостерігається відмінність профілю в значеннях величини зна на один-два порядки. (див. рисунки 2.11 та 2.12). На початковій глибині, від 0 до приблизно 0.5 см, спостерігається зростання інтенсивності пошкоджень. Він зумовлений тим, що в початковій ділянці матеріалу домінує пружне розсіювання швидких нейтронів при низькій ефективності поглинання, а фокусований напрямок пучка все ще зберігається. Після сповільнення нейтронів макроскопічний переріз збільшується й щільність пошкоджень зменшується, відповідно, ми маємо експоненційне зменшення кількості зна. Цей ефект має назву *ефект накопичення* (англ.

buildup effect) [104]. Пік між 0 та 1 см зумовлений внеском пошкоджень від налітаючих та відбитих нейтронів(до межі вільного пробігу).

Аналіз 2D-карти розподілу пошкоджень показує, що зона максимальної інтенсивності генерації дефектів (за межами осьового каналу пучка) локалізована в області глибин до 4 см. Це значення добре корелює з розрахунковою довжиною вільного пробігу нейтронів з енергією 2 МеВ у цирконії. Дійсно, якщо узяти відому формулу для оцінки довжини вільного пробігу нейтронів у речовині [103-104;77]

$$\lambda = \frac{1}{\Sigma_{tot}} = \frac{1}{N \cdot \sigma_{tot}}, \quad (2.3)$$

де N – концентрація атомів речовини, σ_{tot} – повний мікроскопічний переріз, який залежить від енергії. Для енергії 2 МеВ значення повного перерізу для Zr коливається в межах 5–7 барн. Якщо брати значення у 6 барн ($6 \times 10^{-24} \text{ см}^2$) з бібліотеки оцінених ядерних даних ENDF/B-VIII.0 Evaluated Nuclear Data Library [106], отримаємо значення для вільного пробігу $\lambda \approx 3.87 \text{ см}$. І оскільки пошкодження викликаються зіткненнями, а закон ослаблення пучка експоненціальний:

$$I(x) = I_0 * e^{-\frac{x}{\lambda}}, \quad (2.4)$$

то ми маємо найбільшу кількість зіткнень наших первинних нейтронів (приблизно 63%), після 4 см маємо менше нейтронів, тому і пошкоджень менше.

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ

Було проведено моделювання радіаційного пошкодження конструкційних матеріалів ядерного реактора. У фокусі дослідження перебувала найважливіша його частина – активна зона, оскільки саме її матеріали зазнають найбільш екстремальних експлуатаційних впливів, зокрема інтенсивного опромінення. З огляду на це основну увагу було приділено аналізу процесів радіаційного пошкодження в паливних елементах.

У межах роботи було виконано два основні етапи моделювання: моделювання впливу продуктів поділу з використанням програмного пакета SRIM-2013Pro та моделювання нейтронно-індукованих пошкоджень за допомогою коду FLUKA-2025.1.2.

За допомогою SRIM-2013Pro для сплаву Zircaloy-4 було проведено моделювання радіаційного пошкодження продуктами поділу 70 MeV ^{139}Xe та 100 MeV ^{95}Sr . Встановлено, що максимальні глибини імплантації (тобто, такі на яких іони повністю зупинились), для цих продуктів поділу становлять 5.85 мкм та 8.10 мкм. Це підтверджує, що прямий вплив уламків поділу обмежується вузьким приповерхневим шаром оболонки до 10 мкм. Виявлено екрануючу функцію шару ZrO_2 між паливом та оболонкою для уламків поділу, яка створює тим більші перешкоди, чим товщою вона є. Аналіз просторового розподілу вакансій продемонстрував ефект розширення області каскаду (латеральний стреглінг). Виявилось, що пошкодження дуже слабо залежить від товщини палива, через яку продукти поділу прямують до оболонки. Вакансійні піки почали зменшуватись лише після перевищення продуктами поділу значень імплантаційних глибин. Що пояснювалось фізикою пошкодження: іони створювали зміщення лише в кінці свого шляху, коли домінувало ядерне гальмування. Для похилого падіння іонів виявлено складну залежність пошкоджень, зумовлену конкуренцією між геометричним фактором (проекція пробігу) та енергетичним виснаженням пучка.

Результати розрахунків для сплавів Zircaloy-4, E110 та E635 за допомогою FLUKA-2025.1.2 показали об'ємний характер накопичення радіаційних дефектів. Виявлено радіальну неоднорідність розподілу величини ЗНА з максимумом на внутрішній поверхні оболонки, що зумовлено ефектом самоекранування. При порівняльному аналізі результатів для сплавів E110 та Zircaloy-4/E635 була зафіксована систематична розбіжність в абсолютних значеннях розрахункової величини зна (приблизно 1-2 порядки). Оскільки ядерно-фізичні властивості основної матриці (Zr) та густини досліджуваних сплавів є ідентичними (відмінність <1%), дана розбіжність не повинна мати під собою фізичного підґрунтя і інтерпретується як особливість алгоритму нормалізації даних у програмному середовищі Flair при обробці масивів USRBIN для різних конфігурацій матеріалів. З огляду на це, при аналізі радіаційної стійкості ключовим критерієм було обрано не абсолютне значення (яке залежить від нормувального множника), а просторовий профіль розподілу пошкоджень та відносне розташування максимумів. Як показано на графіках, форма кривих є ідентичною для всіх сплавів, що підтверджує коректність фізичного моделювання процесів взаємодії.

Перспективою подальших досліджень є проведення зв'язаного нейтронно-фізичного розрахунку для оцінки абсолютної накопиченої дози (зна/рік) з урахуванням реального спектра вигорання палива, що дозволить кількісно прогнозувати ресурсні характеристики твелів.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. World Nuclear Performance Report 2023 / World Nuclear Association. London: World Nuclear Association, 2023. 68 с. URL: <https://www.world-nuclear.org/getmedia/9afca428-a774-4df5-922c-85a63a92cb0f/performance-report-2023-final.pdf> (дата звернення: 04.11.2025).
2. Ukraine: Country Statistics / IAEA Power Reactor Information System (PRIS). URL: <https://pris.iaea.org/PRIS/CountryStatistics/CountryDetails.aspx?current=UA> (дата звернення: 09.11.2025).
3. Primary radiation damage: a review of current understanding and models / K. Nordlund et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2018. Vol. 512. P. 450–479. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.10.027>.
4. Mokhov N. V., Cerutti F. Beam-Material Interaction. *arXiv*. 2016. 28 p. DOI: <https://doi.org/10.48550/arXiv.1608.02476>.
5. Monte Carlo simulation of proton- and neutron-induced radiation damage in a tantalum target irradiated by 70 MeV protons / N. Ophoven et al. *Applied Physics A*. 2021. Vol. 127, no. 8. Art. 576. DOI: <https://doi.org/10.1007/s00339-021-04713-4>.
6. Was G. S. Fundamentals of radiation materials science: metals and alloys. Springer New York, 2018.
7. Dynamics of radiation damage / J. B. Gibson et al. *Physical review*. 1960. Vol. 120, no. 4. P. 1229–1253. DOI: <https://doi.org/10.1103/physrev.120.1229>.
8. Lin D.-Y., Song H., Hui X. D. Molecular dynamics simulation of threshold displacement energy and primary damage state in niobium. *arXiv*. 2017. DOI: <https://doi.org/10.48550/arXiv.1702.03598>.
9. Effect of strain and temperature on the threshold displacement energy in body-centered cubic iron / B. Beeler et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2016. Vol. 474. P. 113–119. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.03.017>.

10. Воєводін В. М. Конструкційні матеріали ядерної енергетики – виклик 21 століття. *Питання атомної науки і техніки*. 2007. № 2. С. 10–22.
11. Improving atomic displacement and replacement calculations with physically realistic damage models / K. Nordlund et al. *Nature Communications*. 2018. Vol. 9, no. 1. DOI: <https://doi.org/10.1038/s41467-018-03415-5>.
12. Неклюдов І. М., Воєводін В. М. Еволюція структурно-фазового стану та радіаційна стійкість конструкційних матеріалів : монографія. Київ : Наукова думка, 2006. 378 с.
13. Mascitti J. A., Madariaga M. Method for the calculation of DPA in the reactor pressure vessel of Atucha II. *Science and Technology of Nuclear Installations*. 2011. Vol. 2011. P. 1–6. DOI: <https://doi.org/10.1155/2011/534689>.
14. Santa S. A., Suwoto. Neutron radiation damage estimation in the core structure base metal of RSG GAS. *Journal of Physics: Conference Series*. 2018. Vol. 962. P. 012050. DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/962/1/012050>.
15. Kinchin G. H., Pease R. S. The displacement of atoms in solids by radiation. *Reports on Progress in Physics*. 1955. Vol. 18, no. 1. P. 1–51. DOI: <https://doi.org/10.1088/0034-4885/18/1/301>.
16. Nastasi M., Mayer J. W. Ion implantation and synthesis of materials. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2006. DOI: <https://doi.org/10.1007/978-3-540-45298-0>.
17. Olander D. R. Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements. Oak Ridge : Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 1976. 624 p. DOI: <https://doi.org/10.2172/7343826>.
18. ASTM E693-94. Standard practice for characterizing neutron exposures in iron and low alloy steels in terms of displacements per atom (DPA). West Conshohocken : ASTM International, 1994. DOI: <https://doi.org/10.1520/E0693-94>.

19. Robinson M., Torrens I. Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in the binary-collision approximation. *Physical Review B*. 1974. Vol. 9, no. 12. P. 5008–5024. DOI: <https://doi.org/10.1103/physrevb.9.5008>.
20. Lindhard J., Scharff M., Schiøt H. E. Range concepts and heavy ion ranges (notes on atomic collisions, II). *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.* 1963. Vol. 33, no. 14. P. 1–42.
21. Malerba L. Molecular dynamics simulation of displacement cascades in α -Fe: a critical review. *Journal of Nuclear Materials*. 2006. Vol. 351, no. 1-3. P. 28–38. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2006.02.023>.
22. Onimus F., Doriot S., Béchade J. L. Radiation effects in zirconium alloys. *Comprehensive Nuclear Materials*. 2020. P. 1–56. DOI: <https://doi.org/10.1016/b978-0-12-803581-8.11759-x>.
23. Characterization of neutron irradiation damage in zirconium alloys—an international “round-robin” experiment / D. O. Northwood et al. *Proceedings, Annual Meeting, Electron Microscopy Society of America*. 1978. Vol. 36, no. 1. P. 366–367. DOI: <https://doi.org/10.1017/s0424820100108970>.
24. Griffiths M. A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation. *Journal of Nuclear Materials*. 1988. Vol. 159. P. 190–218. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90093-1](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90093-1).
25. Development of microstructure and irradiation hardening of Zircaloy during low dose neutron irradiation at nominally 358°C / B. V. Cockeram et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2011. Vol. 418, no. 1-3. P. 46–61. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.07.006>.
26. Gilbert R. W., Farrell K. Damage structure in zirconium alloys neutron irradiated at 573 to 923 K. *Proceedings, Annual Meeting, Electron Microscopy Society of America*. 1978. Vol. 36, no. 1. P. 394–395. DOI: <https://doi.org/10.1017/s0424820100109112>.

27. Choi S. I., Kim J. H. Radiation-induced dislocation and growth behavior of zirconium and zirconium alloys – a review. *Nuclear Engineering and Technology*. 2013. Vol. 45, no. 3. P. 385–392. DOI: <https://doi.org/10.5516/net.07.2013.035>.
28. Holt R. A., Gilbert R. W. $\langle c \rangle$ Component dislocations in annealed Zircaloy irradiated at about 570 K. *Journal of Nuclear Materials*. 1986. Vol. 137, no. 3. P. 185–189. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(86\)90218-7](https://doi.org/10.1016/0022-3115(86)90218-7).
29. Influence of iron in the nucleation of $\langle c \rangle$ component dislocation loops in irradiated Zircaloy-4 / Y. de Carlan et al. *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959. P. 638–638–16. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp16194s>.
30. Irradiation-Induced growth and microstructure of recrystallized, cold worked and quenched zircaloy-2, NSF, and E635 alloys / G. P. Koblyansky et al. *Journal of ASTM International*. 2008. Vol. 5, no. 4. P. 101115. DOI: <https://doi.org/10.1520/jail101115>.
31. Impact of hydrogen pick-up and applied stress on c-component loops: toward a better understanding of the radiation induced growth of recrystallized zirconium alloys / L. Tournadre et al. *Zirconium in the Nuclear Industry: 17th Volume*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, 2014. P. 853–894. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp154320120200>.
32. Impact of an applied stress on c-component loops under Zr ion irradiation in recrystallized Zircaloy-4 and M5® / N. Gharbi et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2015. Vol. 467. P. 785–801. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2015.10.009>.
33. Yang W. J. S. Precipitate stability in neutron-irradiated Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*. 1988. Vol. 158. P. 71–80. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90156-0](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90156-0).

34. Gilbert R. W., Griffiths M., Carpenter G. J. C. Amorphous intermetallics in neutron irradiated zircalloys after high fluences. *Journal of Nuclear Materials*. 1985. Vol. 135, no. 2-3. P. 265–268. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(85\)90086-8](https://doi.org/10.1016/0022-3115(85)90086-8).
35. Motta A., Lefebvre F., Lemaignan C. Amorphization of precipitates in Zircaloy under neutron and charged-particle irradiation. *Zirconium in the Nuclear Industry: Ninth International Symposium*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959. P. 718–718–22. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp25536s>.
36. Lefebvre F., Lemaignan C. Heavy ion-induced amorphisation of Zr(Fe, Cr)₂ precipitates in Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*. 1989. Vol. 165, no. 2. P. 122–127. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(89\)90240-7](https://doi.org/10.1016/0022-3115(89)90240-7).
37. Effect of proton and Ne irradiation on the microstructure of Zircaloy 4 / X. T. Zu * et al. *Philosophical Magazine*. 2005. Vol. 85, no. 4-7. P. 649–659. DOI: <https://doi.org/10.1080/14786430412331320017>.
38. Microstructural evolution of M5TM7 alloy irradiated in PWRs up to high fluences—comparison with other Zr-based alloys / S. Doriot et al. *Zirconium in the Nuclear Industry: 17th Volume*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, 2014. P. 759–799. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp154320120179>.
39. Microstructural stability of M5TM alloy irradiated up to high neutron fluences / S. Doriot et al. *Journal of ASTM International*. 2005. Vol. 2, no. 7. P. 12332. DOI: <https://doi.org/10.1520/jai12332>.
40. Investigating the stability of second phase particles in Zr-Nb alloys under irradiation / G. He et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2019. Vol. 526. P. 151738. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.151738>.
41. Sabol G. P. et al. In-reactor corrosion and hydriding of ZIRLOTM. *Zirconium in the Nuclear Industry: Tenth International Symposium*. West Conshohocken :

- ASTM International, 1994. P. 724–744. DOI: <https://doi.org/10.1520/STP12469S>.
42. Iron redistribution in a zirconium alloy after neutron and proton irradiation studied by energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDX) using an aberration-corrected (scanning) transmission electron microscope / E. M. Francis et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2014. Vol. 454, no. 1-3. P. 387–397. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.08.034>.
 43. Microstructural evolution of Q12TM alloy irradiated in PWRs and comparison with other Zr base alloys / S. Doriot et al. *Zirconium in the Nuclear Industry: 18th International Symposium*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, 2018. P. 823–856. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp159720160061>.
 44. Adamson R. B., Coleman C. E., Griffiths M. Irradiation creep and growth of zirconium alloys: a critical review. *Journal of Nuclear Materials*. 2019. Vol. 521. P. 167–244. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.04.021>.
 45. Fidleris V., Tucker R., Adamson R. An overview of microstructural and experimental factors that affect the irradiation growth behavior of zirconium alloys. *Zirconium in the Nuclear Industry*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959. P. 49–49–37. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp28108s>.
 46. Carpenter G. J. C., Zee R. H., Rogerson A. Irradiation growth of zirconium single crystals: a review. *Journal of Nuclear Materials*. 1988. Vol. 159. P. 86–100. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90087-6](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90087-6).
 47. Rogerson A. Irradiation growth in zirconium and its alloys. *Journal of Nuclear Materials*. 1988. Vol. 159. P. 43–61. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90084-0](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90084-0).
 48. Sabol G. P. et al. Development of a zirconium alloy for PWR fuel cladding. *Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium*. West

Conshohocken : ASTM International, 1989. P. 227–244. DOI:

<https://doi.org/10.1520/STP10271S>.

49. Franklin D. G., Adamson R. B. Implications of Zircaloy creep and growth to light water reactor performance. *Journal of Nuclear Materials*. 1988. Vol. 159. P. 12–21. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90082-7](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90082-7).
50. Holt R. A. In-reactor deformation of cold-worked Zr–2.5Nb pressure tubes. *Journal of Nuclear Materials*. 2008. Vol. 372, no. 2-3. P. 182–214. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2007.02.017>.
51. Woo C. H. Irradiation creep and growth under cascade damage conditions. *Philosophical Magazine A*. 1994. Vol. 70, no. 4. P. 713–724. DOI: <https://doi.org/10.1080/01418619408242257>.
52. Irradiation creep behavior of Zr-base alloys / A. Soniak et al. *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium*. West Conshohocken : ASTM International, 2002. P. 837–862. DOI: <https://doi.org/10.1520/STP11419S>.
53. ZIRLO® irradiation creep stress dependence in compression and tension / J. P. Foster et al. *Journal of ASTM International*. 2011. Vol. 8, no. 3. P. 103297. DOI: <https://doi.org/10.1520/jai103297>.
54. Effect of hydrogen on irradiation creep and growth for ZIRLO alloy and Zr–1.0Nb / J. P. Foster et al. *Zirconium in the Nuclear Industry: 18th International Symposium*. West Conshohocken, PA 19428-2959, 2018. P. 725–747. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp159720160058>.
55. Fidleris V. The irradiation creep and growth phenomena. *Journal of Nuclear Materials*. 1988. Vol. 159. P. 22–42. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90083-9](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90083-9).
56. Mayuzumi M., Murai K., Onchi T. Post-irradiation creep and rupture of irradiated PWR fuel cladding. *Proceedings of the 1993 International Conference on Nuclear*

- Waste Management and Environmental Remediation* (Prague, September 5–11, 1993). New York : ASME, 1993. Vol. 1. P. 343–350.
57. Tinti F. Uniaxial in-reactor creep of Zircaloy-2: stress, flux, and temperature dependence. *Nuclear Technology*. 1983. Vol. 60, no. 1. P. 104–113. DOI: <https://doi.org/10.13182/nt83-a33106>.
 58. Howe L. M., Thomas W. R. The effect of neutron irradiation on the tensile properties of Zircaloy-2. *Journal of Nuclear Materials*. 1960. Vol. 2, no. 3. P. 248–260. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(60\)90059-3](https://doi.org/10.1016/0022-3115(60)90059-3).
 59. Byun T. S., Farrell K. Irradiation hardening behavior of polycrystalline metals after low temperature irradiation. *Journal of Nuclear Materials*. 2004. Vol. 326, no. 2-3. P. 86–96. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2003.12.012>.
 60. Impact of irradiation damage recovery during transportation on the subsequent room temperature tensile behavior of irradiated zirconium alloys / B. Bourdilliau et al. *Zirconium in the Nuclear Industry: 16th International Symposium*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, 2010. P. 929–953. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp49289t>.
 61. Higgy H. R., Hammad F. H. Effect of neutron irradiation on the tensile properties of Zircaloy-2 and Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*. 1972. Vol. 44, no. 2. P. 215–227. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(72\)90099-2](https://doi.org/10.1016/0022-3115(72)90099-2).
 62. Micropillar compression study on heavy ion irradiated Zr-2.5Nb pressure tube alloy / Q. Wang et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2018. Vol. 511. P. 487–495. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.09.021>.
 63. Lemaignan C., Motta A. T. Zirconium alloys in nuclear applications. *Materials Science and Technology*. Weinheim : Wiley-VCH, 2006. Vol. 10B. P. 1–51.
 64. Adamson R. Effects of neutron irradiation on microstructure and properties of Zircaloy. *Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium*. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959. P. 15–15–17. DOI: <https://doi.org/10.1520/stp14292s>.

65. Kroupa F., Hirsch P. B. Elastic interaction between prismatic dislocation loops and straight dislocations. *Discussions of the Faraday Society*. 1964. Vol. 38. P. 49. DOI: <https://doi.org/10.1039/df9643800049>.
66. Foreman A. J. E., Makin M. J. Dislocation movement through random arrays of obstacles. *Philosophical Magazine*. 1966. Vol. 14, no. 131. P. 911–924. DOI: <https://doi.org/10.1080/14786436608244762>.
67. Molecular dynamics simulations of the primary irradiation damage in Zirconium / X. Yang et al. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2018. Vol. 436. P. 92–98. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2018.09.014>.
68. Wu W., Fahy S. Molecular-dynamics study of single-atom radiation damage in diamond. *Physical Review B*. 1994. Vol. 49, no. 5. P. 3030–3035. DOI: <https://doi.org/10.1103/physrevb.49.3030>.
69. Mendelev M. I., Ackland G. J. Development of an interatomic potential for the simulation of phase transformations in zirconium. *Philosophical Magazine Letters*. 2007. Vol. 87, no. 5. P. 349–359. DOI: <https://doi.org/10.1080/09500830701191393>.
70. Ab Initio molecular dynamics study of threshold displacement energy in Zirconium Nitride / M. M. Rahman et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2021. Vol. 554. P. 153076. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2021.153076>.
71. Anisotropic diffusion of radiation-induced self-interstitial clusters in HCP zirconium: a molecular dynamics and rate-theory assessment / A. Ghorbani et al. *Scripta Materialia*. 2024. Vol. 238. P. 115755. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2023.115755>.
72. Ziegler J. F., Ziegler M. D., Biersack J. P. SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2010. Vol. 268, no. 11-12. P. 1818–1823. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091>.

73. Biersack J. P., Haggmark L. G. A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets. *Nuclear Instruments and Methods*. 1980. Vol. 174, no. 1-2. P. 257–269. DOI: [https://doi.org/10.1016/0029-554x\(80\)90440-1](https://doi.org/10.1016/0029-554x(80)90440-1).
74. Ziegler J. F., Biersack J. P., Ziegler M. D. SRIM: The stopping and range of ions in matter. Chester : SRIM Company, 2008. 683 p.
75. The FLUKA code: developments and challenges for high energy and medical applications / T. T. Böhlen et al. *Nuclear Data Sheets*. 2014. Vol. 120. P. 211–214. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.07.049>.
76. FLUKA: a multi-particle transport code / A. Ferrari et al. Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 2005. DOI: <https://doi.org/10.2172/877507>.
77. Lamarsh J. R., Baratta A. J. Introduction to nuclear engineering: international edition. Pearson Education, Limited, 2011. 783 p.
78. Chen S., Bernard D. Contribution of fission products to displacement damage in fast reactor fuel cladding. *Annals of Nuclear Energy*. 2020. Vol. 145. P. 107603. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2020.107603>.
79. On the origins and the evolution of the fuel-cladding bonding phenomenon in PWR fuel rods / C. Cizak et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2019. Vol. 520. P. 110–120. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.04.015>.
80. Nogita K., Une K. Formation of pellet-cladding bonding layer in high burnup BWR fuels. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 1997. Vol. 34, no. 7. P. 679–686. DOI: <https://doi.org/10.1080/18811248.1997.9733726>.
81. Micro-Raman analysis of the fuel-cladding interface in a high burnup PWR fuel rod / C. Cizak et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2017. Vol. 495. P. 392–404. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.08.038>.
82. Fission recoil-induced microstructural evolution of the fuel-cladding interface [FCI] in high burnup BWR fuel / T. G. Lach et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2019. Vol. 521. P. 120–125. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.04.044>.

83. Experimental characterization and modelling of the fission products implantation at the fuel-cladding interface of high burnup PWR fuel rods / C. Schneider et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2025. P. 156042. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2025.156042>.
84. Sears V. F. Neutron scattering lengths and cross sections. *Neutron News*. 1992. Vol. 3, no. 3. P. 26–37. DOI: <https://doi.org/10.1080/10448639208218770>.
85. Holt R. A. Mechanisms of irradiation growth of alpha-zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*. 1988. Vol. 159. P. 310–338. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(88\)90099-2](https://doi.org/10.1016/0022-3115(88)90099-2).
86. Nicodemus D. B., Staub H. H. Fission neutron spectrum of U235. *Physical Review*. 1953. Vol. 89, no. 6. P. 1288–1290. DOI: <https://doi.org/10.1103/physrev.89.1288>.
87. Warwick A. R., Boleininger M., Dudarev S. L. Microstructural complexity and dimensional changes in heavily irradiated zirconium. *Physical Review Materials*. 2021. Vol. 5, no. 11. DOI: <https://doi.org/10.1103/physrevmaterials.5.113604>.
88. Noori-kalkhoran O., Gei M. Evaluation of neutron radiation damage in zircaloy fuel clad of nuclear power plants: a study based on PKA and dpa calculations. *Progress in Nuclear Energy*. 2020. Vol. 118. P. 103079. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2019.103079>.
89. Litaize O., Serot O., Berge L. Fission modelling with FIFRELIN. *The European Physical Journal A*. 2015. Vol. 51, no. 12. DOI: <https://doi.org/10.1140/epja/i2015-15177-9>.
90. Theoretical calculation and analysis of ZrO₂ spherical nanometer powders / Y. Chang et al. *Journal of Advanced Ceramics*. 2013. Vol. 2, no. 1. P. 21–25. DOI: <https://doi.org/10.1007/s40145-013-0036-2>.
91. Elastic properties of severely degraded fuels / M. Marchetti et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2020. Vol. 529. P. 151918. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.151918>.

92. Thermal expansion of corium prepared from UO₂ and Zircaloy-2 / S. Hirooka et al. *MRS Proceedings*. 2012. Vol. 1444.
DOI: <https://doi.org/10.1557/opl.2012.1004>.
93. Fink J. K. Thermophysical properties of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*. 2000. Vol. 279, no. 1. P. 1–18. DOI: [https://doi.org/10.1016/s0022-3115\(99\)00273-1](https://doi.org/10.1016/s0022-3115(99)00273-1).
94. Potter P. E., Harding J. H., Martin D. G. Thermophysical and thermochemical properties of fast reactor materials. European Communities / Union (EUROPEAN COMMISSION), 1989. 102 p.
95. Neely H. H. Damage rate and recovery measurements on zirconium after electron irradiation at low temperatures. *Radiation Effects*. 1970. Vol. 3, no. 2. P. 189–201.
DOI: <https://doi.org/10.1080/00337577008236274>.
96. Production and mutual annihilation of frenkel pairs in low temperature irradiated zirconium / M. Biget et al. *Radiation Effects*. 1971. Vol. 7, no. 3-4. P. 223–229.
DOI: <https://doi.org/10.1080/00337577108230992>.
97. Griffiths M. Displacement energies for Zr measured in a HVEM. *Journal of Nuclear Materials*. 1989. Vol. 165, no. 3. P. 315–317.
DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(89\)90210-9](https://doi.org/10.1016/0022-3115(89)90210-9).
98. Temperature-dependence of defect creation and clustering by displacement cascades in α -zirconium / F. Gao et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2001. Vol. 294, no. 3. P. 288–298. DOI: [https://doi.org/10.1016/s0022-3115\(01\)00483-4](https://doi.org/10.1016/s0022-3115(01)00483-4).
99. Youngblood G., Myhra S., DeFord J. W. Measurements of the threshold displacement energy in ta and nb. *Physical Review*. 1969. Vol. 188, no. 3. P. 1101–1107. DOI: <https://doi.org/10.1103/physrev.188.1101>.
100. Li J.-T., Beyerlein I. J., Han W.-Z. Helium irradiation-induced ultrahigh hardening in niobium. *Acta Materialia*. 2022. Vol. 226. P. 117656.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2022.117656>.

- 101.** Molecular dynamics simulations of high energy cascade in ordered alloys: defect production and subcascade division / J.-P. Crocombette et al. *Journal of Nuclear Materials*. 2016. Vol. 474. P. 134–142.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.03.020>.
- 102.** Nordlund K., Wallenius J., Malerba L. Molecular dynamics simulations of threshold displacement energies in Fe. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2006. Vol. 246, no. 2. P. 322–332. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2006.01.003>.
- 103.** Shultis J. K., Faw R. E. Radiation shielding. *Encyclopedia of Sustainability Science and Technology*. New York, NY, 2012. P. 8536–8559.
DOI: https://doi.org/10.1007/978-1-4419-0851-3_25.
- 104.** Krane K. S. Introductory nuclear physics sol T/A. John Wiley & Sons Inc, 1992. 152 p.
- 105.** ENDF/B-VIII.0: the 8th major release of the nuclear reaction data library with CIELO-project cross sections, new standards and thermal scattering data / D. A. Brown et al. *Nuclear Data Sheets*. 2018. Vol. 148. P. 1–142.
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.02.001>.