

核燃料包壳锆合金表面涂层研究进展

柏广海¹, 陈志林¹, 张晏玮¹, 刘二伟¹, 薛佳祥²,
余伟炜¹, 王荣山¹, 李锐², 刘彤²

(1. 苏州热工研究院有限公司, 江苏 苏州 215004)

(2. 中广核研究院有限公司, 广东 深圳 518026)

摘要: 锆合金表面涂层是提高核燃料包壳事故容错能力的重要途径之一。本文综述了锆合金表面涂层的研究进展, 包括涂层种类、制备工艺、微观组织以及抗水蒸气氧化性能、耐腐蚀性能等, 介绍了锆合金表面涂层种类选择的依据, 探讨了涂层的制备工艺、微观组织与性能之间的关系, 分析了当前研究中存在的若干问题及未来涂层的发展方向, 为进一步促进核燃料包壳锆合金表面涂层的研究提供了有价值的参考。

关键词: 燃料包壳; 事故容错; 锆合金; 涂层; 水蒸气氧化

中图分类号: TG146.4+14

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2017)07-2035-06

锆合金具有优异的耐腐蚀性能、良好的抗辐照生长特性以及适中的力学性能等, 主要用于制备核反应堆燃料包壳管^[1]。在核反应堆失水事故工况下, 锆管温度急剧上升并与水蒸气发生剧烈反应, 在随后的淬火过程中锆管可能会发生破裂, 导致核泄漏^[2]。在 2011 年日本福岛核事故后, 进一步提高包壳的事故容错能力成为新的研究热点^[3]; 在锆合金包壳表面制备涂层成为最有可能提高包壳事故容错能力的途径之一^[4]。

锆合金表面涂层的研究可以分为 2 个阶段: 2011 年福岛核事故发生之前, 以提高锆合金抗微动磨损和耐腐蚀性能为目标, 开展 TiN^[5]、SiC^[6]、ZrO₂^[7-10] 涂层研究; 2011 年之后, 主要以提高锆合金事故容错能力为目标, 抗水蒸气氧化性能是其最重要的性能评价指标之一, 研究的涂层包括 MAX 相 (Ti₂AlC^[11,12]、Ti₃SiC₂^[13])、碳化物 (SiC^[6,14-16]、ZrC^[17])、氮化物 (TiN^[18,19])、金属涂层 (FeCrAl^[20]、Cr^[21-25]) 以及复合物涂层 (Cr-Zr/Cr/Cr-N^[26]) 等。研究显示^[5-25], 锆合金包壳管的性能如抗水蒸气氧化性能、耐腐蚀性能等不仅取决于涂层材料, 而且与制备工艺密切相关。涂层制备方法的选择与涂层种类密切相关, 已报道的锆合金表面涂层材料的制备方法主要有等离子化学气相沉积^[6]、冷喷涂^[11]、扩散浸渗^[13]、电弧离子镀^[22]、磁控溅射^[27]、射频溅射镀膜^[15]等。目前, 锆合金表面涂层材料的种类、制备方法、性能评价标准等均处于

探索阶段, 还需要开展大量的研究工作。

本文综述了核燃料包壳锆合金表面涂层的研究现状, 讨论了涂层种类、制备方法和组织、性能之间的关系。本文的研究可以为指导事故容错锆合金表面涂层的制备提供重要参考。

1 锆合金表面涂层材料的选择依据

锆合金表面涂层材料选择主要有 3 个原则: (1) 满足堆内运行工况, 具有常规工况下的耐腐蚀、抗吸氢和抗辐照性能, 中子吸收截面低, 传热效率高; (2) 事故容错性能优异, 具有良好的抗水蒸气氧化性能和抗热冲击性能; (3) 与锆合金兼容性好, 如膨胀系数匹配性, 涂层与锆合金制备工艺的兼容性等。由于涂层材料并不能全部满足上述原则, 通常是保证抗水蒸气氧化性能的前提下, 降低其它如中子吸收截面等方面的指标。

抗水蒸气氧化性能是事故容错涂层包壳最重要的性能指标之一^[4], 图 1 为不同涂层材料的抗水蒸气氧化性能^[3]。可以看出, MAX 相 (Ti₂AlC)、SiC、FeCrAl 等均具有良好的抗水蒸气氧化性能, 其性能约为 Zr-4 和 304SS 不锈钢的 100 倍 (K_p 值)。陶瓷涂层如 MAX 相^[11,12]、碳化物^[6, 14-16]等自身就具有优异的抗水蒸气氧化性能, 其制备工艺对包壳的性能至关重要; 金属涂层^[20-25]如 FeCrAl、310SS、Cr 的抗氧化性能的原因

收稿日期: 2016-07-01

基金项目: 苏州市 2016 产业技术创新专项 (SYG201634); 国家自然科学基金 (51271018, 51502322)

作者简介: 柏广海, 男, 1981 年生, 博士, 高级工程师, 苏州热工研究院有限公司, 江苏 苏州 215004, 电话: 0512-68602413, E-mail: baiguanghai@foxmail.com

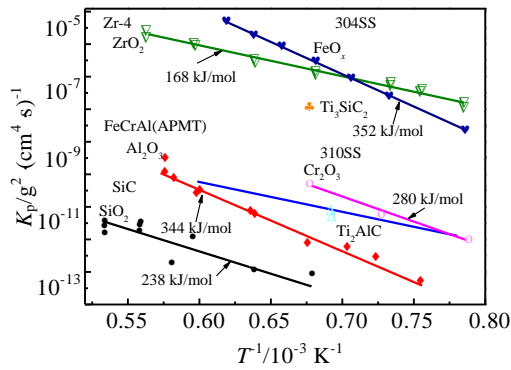


图 1 涂层材料的水蒸气氧化 Arrhenius 速率常数和氧化激活能

Fig.1 Arrhenius oxidation rate constants and activation energies of coating materials under steam environment^[3]

主要是氧化过程中形成了 Cr₂O₃、Al₂O₃ 保护膜，阻碍了氧化进行，其合金的化学成分是决定包壳性能的重要因素。因此，成分的优化是金属涂层研究的重点。在涂层制备过程中，为降低对锆合金基体材料的影响，尽量选择低温工艺，以保证在涂层失效的情况下锆合金基体在堆内工况下依然能保持良好的完整性。由于锆合金如 Zr-Nb 系合金的最终退火通常在 600 °C 以下^[28]，这就限制了很多涂层的制备方法。如何选择和控制涂

层制备工艺，在不影响锆合金基体材料性能的基础上制备出良好的涂层是研究工作的重点。

2 锆合金表面涂层的制备与性能

2.1 陶瓷涂层

锆合金陶瓷涂层主要主要包括 MAX 相^[11,13]、碳化物^[6,15]、氧化物^[8-10,29,30]、氮化物^[18,31]等，这些涂层材料具有优异的抗辐照、抗氧化、耐腐蚀和抗磨损等性能，是锆合金表面涂层研究的重点。锆合金表面涂层的制备方法及其性能见表 1。

MAX 相^[11,13]是一族三元层状陶瓷，具有金属材料优良的导电性和导热性，陶瓷材料高的弹性模量 and 高温强度，良好的抗辐照性能，以及出色的抗氧化性和抗腐蚀性能等。锆合金表面制备 MAX 相涂层的方法主要有冷喷涂^[11]、扩散浸渗^[13]等，磁控溅射也有可能应用于制备 MAX 涂层。

MAX 相涂层的抗氧化性能主要依靠连续致密的氧化膜 Al₂O₃ 或 Cr₂O₃，因此选择的 MAX 相中应含 Al 或 Cr 元素，如 Ti₂AlC、Ti₃AlC₂、Cr₂AlC 等。B. R. Maier 等^[11]采用冷喷涂技术在 Zr-4 合金表面制备了 Ti₂AlC 涂层（图 2），同时还存在其它少量的 Ti₃AlC₂、TiAl₂ 和 TiC 相；在 1005 °C 水蒸气环境下涂层表现出良好的抗氧化性能，同时具有较高的硬度。研究表

表 1 锆合金表面涂层种类、制备方法与性能

Table 1 Types, preparation methods and properties of the coatings on zirconium alloy

Coating/substrate	Preparation method	Microstructure (pre-testing)				Properties			Ref.
		Coating thickness/ μm	Diffusion depth/ μm	Porosity	STRP	CRP	Other		
Ti ₂ AlC/Zr-4	Cold spray deposition	~90	<4	<5%	Excellent	-	-	[11]	
SiC/Zr-4	PE-CVD	1	-	-	-	Excellent	-	[6]	
SiC/Zr-4	RF sputtering	2~12	-	-	Excellent	-	SiC peel-off.	[15]	
SiC/Zr-4	IBM	1	-	<5%	-	-	SiC cracked	[14]	
ZrO ₂ /Zr-2.5Nb	PEO	5~6	-	<5%	-	Good	-	[8]	
ZrO ₂ /Zr-2.5Nb	DC PEO	7~15	-	<1%	-	Good	-	[29]	
TiAlN/Zirlo	CA-PVD	~14	-	<1%	-	Good (3 d)	-	[18]	
TiAlN/Zr-4	Pulsed laser deposition	~2	1	<1%	-	Excellent (2 d)	-	[31]	
TiN/Zr-4	Pulsed laser deposition	~2	1	<1%	-	Excellent (2 d)	-	[31]	
Cr/Zr-4	Arc ion plating	10	-	<1%	Excellent	-	-	[22]	
Cr/Zr-4	3D laser	100	-	<1%	Excellent	-	-	[23]	
FeCrAl/Zr alloy	HIP	1	-	<1%	Excellent	-	-	[20]	
Fe-4Cr-34Al/	HIP	-	-	<1%	Excellent	-	-	[20]	
AlTiCr alloy	To be used in the future	-	-	-	Excellent	-	-	[35]	
Cr ₃ C ₂ -NiCr/Zr-2.5Nb	HVOF	200	<2.5	<5%	General	Bad (3 d)	-	[36]	
Cr-Zr/Cr/Cr-N/E110	Vacuum-arc evaporation	2	~1	<1%	Excellent	-	-	[26]	

Note:

PE-CVD: DC-pulsed plasma enhanced chemical vapor deposition
 RF: radio frequency
 IBM: ion beam mixing
 PEO: Plasma electrolytic oxidation
 HIP: hot isostatic pressing

STRP-Steam oxidation resistance properties
 CRP- Corrosion resistance properties
 WG-Weight gain
 d-day
 Properties: excellent, good, general, bad

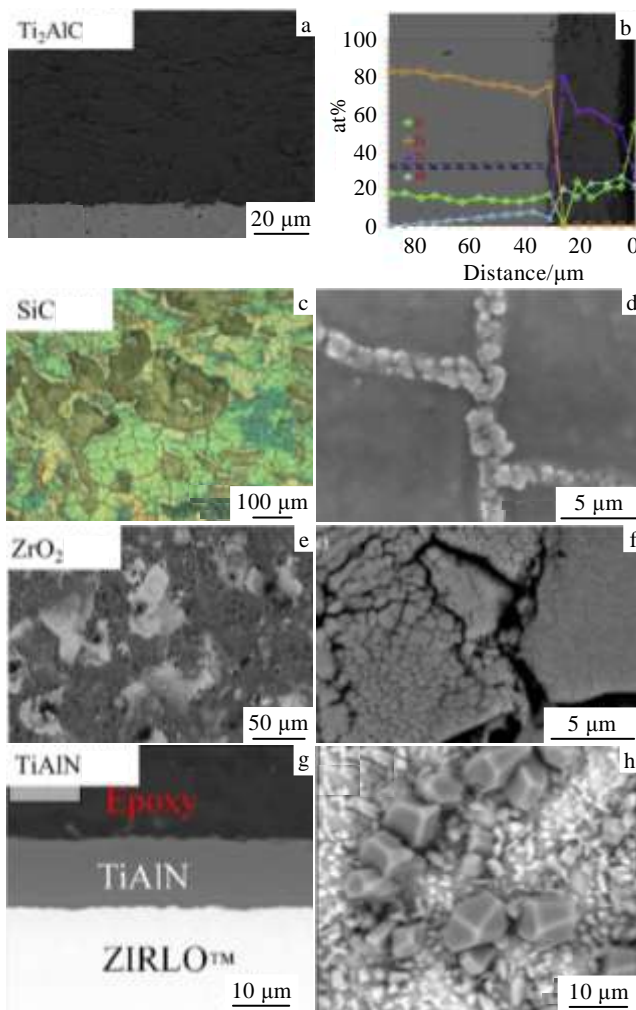


图 2 锆合金表面陶瓷涂层

Fig.2 Ceramic coating on the surface of zirconium alloy cladding^[10,11,14,18]: (a, b) MAX coating; (c, d) carbide coating; (e, f) oxide coating; (g, h) nitride coating

明^[13],在制备过程或者高温退火过程 MAX 相如 Ti_2AlC 中的 Al 与 Zr 会形成 Zr_2Al_3 、 Zr_3Al_2 、 Zr_5Al_4 、 Zr_2Al 和 Zr_3Al 等金属间化合物, C 与 Zr 会形成 ZrC ; Ti_3SiC_2 中 Si 容易与 Zr 形成 $(\text{Zr}, \text{Ti})\text{Si}$ 、 ZrSi_2 、 ZrSi 、 Zr_3Si_2 、 Zr_2Si 、 Zr_3Si 等化合物。MAX 相涂层与锆合金基体界面的稳定性及其对性能的影响应成为关注的重点。

碳化物如 SiC 、 ZrC 等具有优异的堆内和堆外综合性能, 2 种碳化物涂层均已成功应用在高温气冷反应堆中^[17], 表现出良好的辐照稳定性。研究显示^[3], SiC 几乎不发生氧化, 是有可能替代锆合金包壳的材料之一。锆合金表面碳化物涂层的制备方法主要有等离子化学气相沉积^[6]、射频溅射镀膜^[15]、离子束混合沉积^[14]等, 这几种工艺的制备温度均较低, 如射频溅射镀膜法涂层制备温度均不超过 $400\text{ }^\circ\text{C}$, 有利于保持锆合金基体组织的稳定性^[6]。

研究指出^[6, 15], SiC 涂层在低温腐蚀水环境下具有很好的保护作用, 会明显降低基体的吸氢量; 在高温水蒸气环境如 750 和 $1200\text{ }^\circ\text{C}$ 时涂层包壳的氧化增重是锆合金基体的 $1/5$, 表现出良好的抗氧化性能^[15]; 但有研究表明^[23], SiC 在 $360\text{ }^\circ\text{C}$ 高压水环境下会形成 $\text{Si}(\text{OH})_4$, 会降低对基体的保护作用。在水蒸气氧化和淬火过程中, SiC 涂层会出现开裂和剥落的现象(图 2), 这是由于 SiC 与锆合金 ($\beta\text{-Zr}$) 膨胀系数相差较大所导致的^[15]。为解决上述问题, J. W. Park 等^[14]提出对锆合金表面多次沉积, 以填补 SiC 涂层开裂所出现的空隙。在高温条件下, SiC 与锆合金相互扩散并发生反应, 反应产物主要有 Zr_3Si 、 $\text{Zr}_5\text{Si}_3\text{C}$ 、 Zr_2Si 、 ZrC 等^[15]。有关锆合金表面 ZrC 涂层的研究目前还未见文献报道。

锆合金的氧化产物为 ZrO_2 , 其中, 低温下稳定存在的 $m\text{-ZrO}_2$ 会降低腐蚀速率, 有研究采用等离子体电解氧化^[8-10,29,30]对锆合金进行预氧化(图 2), 以提高包壳的耐腐蚀、抗吸氢和磨损性能。由于相对致密的 $m\text{-ZrO}_2$ 在 $1050\text{ }^\circ\text{C}$ 以上会转变为疏松的 $t\text{-ZrO}_2$, 氧化膜会发生破裂, 将显著降低涂层对基体的保护作用^[32]。此外, 与 MAX 相、碳化物或金属涂层相比, 氧化物的传热效率低, 不利于热量从包壳内部向外部传递。因此, 氧化物如 ZrO_2 作为锆合金涂层使用存在一定的障碍; 可以考虑 Al_2O_3 、 Be_2O_3 等热传导系数较高的涂层材料。

氮化物如 TiN 、 TiAlN 、 ZrN 等具有较高的硬度、熔点和高的热导率, 优异的耐腐蚀性能, 锆合金表面氮化物涂层主要是用于降低堆内微动磨损对包壳管造成的损坏^[5,33]。锆合金表面氮化物涂层的制备方法主要有阴极电弧物理气相沉积^[18]、脉冲激光沉积^[31]、冷喷涂技术^[34]等。常规腐蚀 ($360\text{ }^\circ\text{C}$ 、 18.7 MPa) 和超临界水腐蚀试验 ($500\text{ }^\circ\text{C}$ 、 25 MPa) 结果表明^[18,31], TiN 和 TiAlN 涂层可以明显降低包壳的腐蚀速率。E. Alat 等^[18]研究了 TiAlN 涂覆的 Zirlo 合金包壳的腐蚀行为(图 2), 发现由于 Al 元素会扩散至表面并形成 Al_2O_3 保护膜, 会阻碍氧化的进行; 但在腐蚀过程中涂层表面会形成不致密的 $\text{AlO}(\text{OH})$, 即 $\text{Al}+2\text{H}_2\text{O}\rightarrow\text{AlO}(\text{OH})+3/2\text{H}_2$, 这种反应也可能在含 Al 元素的 MAX 相、 FeCrAl 等涂层与水反应中出现。同时由于扩散作用 TiAlN 涂层会出现 Al 贫化区域, 因此, TiAlN 涂层的耐腐蚀性能没有 TiN 涂层优异。关于氮化物涂层包壳的水蒸气氧化及淬火性能还未见文献报道。

陶瓷涂层材料由于其优异的性能成为锆合金表面涂层材料研究的热点, 但陶瓷涂层在制备工艺、性能评价、界面稳定性及其与高温水蒸气环境及水腐蚀

环境的反应机制等方面还存在许多问题没有解决，需要开展大量的研究工作。

2.2 金属涂层

锆合金表面金属涂层材料主要包括 FeCrAl 和 Cr 等，其抗氧化性能是依靠氧化产物如 Cr₂O₃ 或 Al₂O₃ 形成致密的保护膜，阻碍氧扩散至基体，从而降低包壳管的氧化速率^[22-24]。锆合金表面金属涂层的制备方法主要有电弧离子镀^[22]、激光镀膜^[23, 24]、磁控溅射^[27]等，其获得的涂层材料均表现出优异的性能。

J. H. Park 等^[22]采用电弧离子镀在锆合金表面制备了 Cr 涂层 (10 μm)，在 1200 °C 水蒸气环境下锆合金基体几乎不发生氧化 (图 3)，Cr 涂层起到很好的保护作用。在水蒸气环境下 Cr 涂层能够形成致密的 Cr₂O₃ 保护膜，Cr₂O₃ 与 Cr 结合紧密，能够有效地阻碍水蒸气与锆合金基体反应。Cr 涂层与锆合金会形成各种中间相，但不影响涂层与基体的结合状态；虽然 2 种材料的热膨胀系数不同，但在 LOCA 热冲击试验中并没有发现界面处存在裂纹。其它方法如三维激光镀膜^[23]、激光束扫描^[24]以及物理气相沉积^[25]等在锆管制备的 Cr 涂层均表现出优异的抗水蒸气氧化性能。

与金属 Cr 涂层类似，FeCrAl 涂层其抗水蒸气氧化性能主要依靠 Cr 元素，由于合金中加入了 Al 元素，其抗水蒸气氧化性能要优于 FeCr 涂层^[20]。FeCrAl-Zr 界面处会形成各种相，如 FeZr₂、ZrFe₂、Zr(Fe, Cr)₂ 等金属间化合物 (图 3)，其中，Zr(Fe,Cr)₂ 相的体积分

数最高，几乎会占据 FeCrAl-Zr 界面处，在试验过程中这种相并不会破坏界面。W. C. Zhong 等^[27]采用磁控溅射方法在 Zr-2 合金表面制备了高 Al 含量 (~34%，质量分数) 的 FeCrAl 涂层，发现随着 Al 含量的升高，涂层的抗水蒸气氧化性能也随之增强，形成的产物主要为 Fe₂AlO₄、FeAl₂O₄、Fe₃Al、FeAl 等相；涂层的耐腐蚀性能 (288 °C、9.5 MPa) 则比锆合金基体差，其原因主要是腐蚀产物 FeAl、Fe₂NiO₄ (Ni 来源于反应釜材料) 不具备保护锆合金基体的作用，腐蚀液中还可能存在其它腐蚀产物如 Fe(OH)₂、Fe(OH)₃、Al(OH)₃ 等。因此，FeCrAl 中 Al 元素含量应当适当降低，以使 Cr₂O₃ 成为主要氧化产物，提高涂层耐腐蚀性能^[35]。

此外，J. Y Park 等人^[35]研究了合金成分为 Al-25Ti-10Cr 和 Al-21Ti-23Cr 作为锆合金表面涂层材料使用的可能性。高温水蒸气氧化试验结果表明 (图 3)，与 Zr-4 合金相比，AlTiCr 合金涂层几乎不发生氧化，其主要原因是在氧化过程中金属表面会优先形成致密的 Al₂O₃ 保护膜；同时，氧化过程中抑制了 TiO₂、Cr₂O₃ 的形成。但该涂层材料还需要在水腐蚀环境下进行相关试验，以考察其在常规工况下的性能。

金属涂层材料在高温水蒸气和水腐蚀环境能够形成的致密氧化膜，能够有效地降低氧化速率并保护基体；同时，金属涂层与基体界面结合状态良好，将成为锆合金涂层材料研究的重点方向之一。

2.3 复合涂层及复合包壳

锆合金表面制备复合涂层主要是满足两方面的性能：一是提高基体材料的抗水蒸气氧化和耐腐蚀性能；二是提高微动磨损性能；另外，复合涂层还可以提高结合力。目前，已报道的涂层材料主要是 Cr₃C₂-NiCr^[36] 和 Cr-Zr/Cr/Cr-N^[26]等，涂层材料的抗氧化性能主要依靠 Cr₂O₃ 保护膜。D. L. Jin 等^[36]采用超音速火焰喷涂技术在 Zr-2.5Nb 管材表面制备了厚度为 200 μm 的 Cr₃C₂-NiCr 复合涂层 (图 4)，对降低高温水蒸气氧化增重有一定的效果；但由于氧化膜空洞和裂纹的存在，导致低温蒸气腐蚀 (400 °C、10.3 MPa) 增重变大，且氧化膜容易开裂。A. S. Kuprin 等人^[26]利用真空离子电弧度的方法在 E110 管材表面制备了 Cr-Zr/Cr/ Cr-N 多层涂层 (图 4)，涂层与锆合金基体结合紧密，明显提高了表面硬度和抗水蒸气氧化性能。复合涂层材料由于其优点成为锆合金表面涂层关注的新方向。

锆合金表面涂层及其制备工艺处于探索阶段，涂层制备过程中受到的影响因素较多，对涂层质量有明显的影响，特别是全尺寸锆管 (4 m) 的涂层制备工艺难度较大。为避免这一技术难题，有研究人员提出采

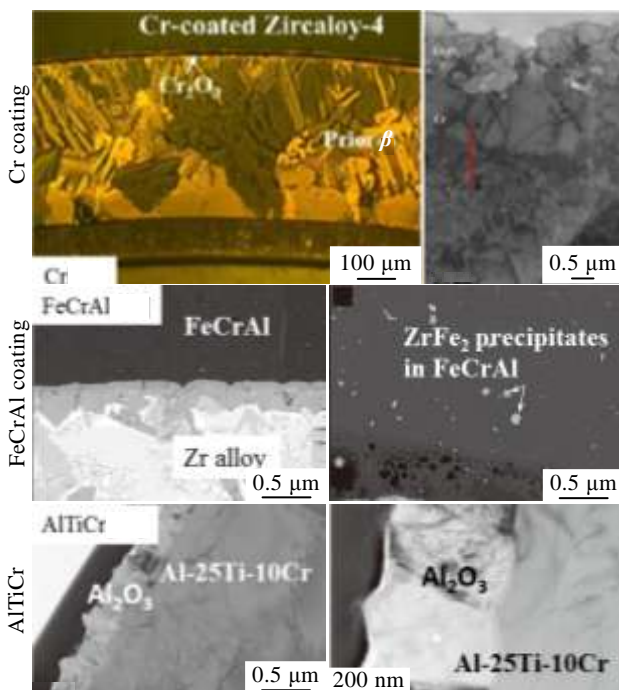


图 3 锆合金表面金属涂层

Fig.3 Metallic coating on zirconium alloy^[20,22,35]

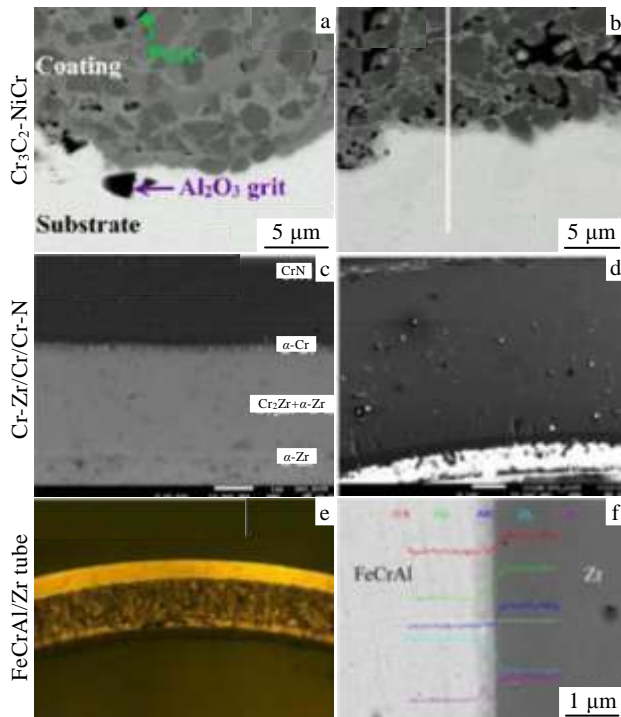


图 4 复合涂层及复合包壳

Fig.4 Composite coating^[26,37] and composite cladding^[38,39]:

(a, b) $\text{Cr}_3\text{C}_2\text{-NiCr}$; (c, d) Cr-Zr/Cr/Cr-N ; (e, f) FeCrAl/Zr tube

用 FeCrAl/Zr 复合包壳 (图 4), 即包壳外侧为 FeCrAl 合金, 内侧为锆合金。双层复合包壳的优点主要有 3 个方面: (1) 复合包壳具有优异的抗水蒸气氧化和耐腐蚀性能; (2) 使电子吸收性能变化不大; (3) 制备工艺比涂层工艺要稳定、简单, 可制备全尺寸包壳管。因此, FeCrAl/Zr 复合包壳是提高包壳管事故容错性能的重要途径之一。

3 结 语

目前, 核燃料包壳锆合金涂层材料及制备工艺已成为事故容错燃料包壳研究的重要方向, 已初步掌握了涂层材料如 MAX 相、碳化物、氧化物、氮化物、金属涂层及复合涂层在事故工况和常规工况下的性能; 对涂层材料的制备工艺与微观组织、性能之间的关系有了一定的了解, 并掌握了锆合金表面不同涂层及不同制备工艺的优缺点。但现阶段锆合金表面涂层的研究依然处于初始阶段, 涂层在各种工况下的行为及变化机制还缺乏深入了解, 还没有建立成熟的涂层材料-制备工艺-性能评价体系。后续研究工作应着重考察涂层与各种介质环境的反应机制、界面稳定性及制备工艺的优化方面。只有综合考虑各种因素, 才能

优选和制备出适用于锆合金的表面涂层, 满足核反应堆事故容错能力的要求。

参考文献 References

- [1] Bell B D C, Murphy S T, Burr P A *et al.* *Corrosion Science*[J], 2016, 105: 36
- [2] Zinkle S J, Terrani K A, Gehin J C *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2014, 448(1-3): 374
- [3] Pint B A, Terrani K A, Yamamoto Y *et al.* *Metallurgical and Materials Transactions E*[J], 2015, 2(3): 190
- [4] Cheng T, Keiser J R, Brady M P *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2012, 427(1-3): 396
- [5] Sung J H, Kim T H, Kim S S. *Wear*[J], 2001, 250(1-12): 658
- [6] Al-Olayan Y, Fuchs G E, Baney R *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2005, 346(2-3): 109
- [7] Sridharan K, Harrington S P, Johnson A K *et al.* *Materials & Design*[J], 2007, 28(4): 1177
- [8] Chen Y, Nie X, Northwood D O. *Surface and Coatings Technology*[J], 2010, 205(6): 1774
- [9] Xue W, Zhu Q, Jin Q *et al.* *Materials Chemistry and Physics* [J], 2010, 120(2-3): 656
- [10] Cheng Y, Matykina E, Skeldon P *et al.* *Electrochimica Acta* [J], 2011, 56(24): 8467
- [11] Maier B R, Garcia-Diaz B L, Hauch B *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 466: 712
- [12] Feng Z, Ke P, Wang A. *Journal of Materials Science & Technology*[J], 2015, 31(12): 1193
- [13] Tallman D J, Yang J, Pan L *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 460: 122
- [14] Park J W, Kim J U, Park J Y. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*[J], 2016, 377: 12
- [15] Usui T, Sawada A, Amaya M *et al.* *Journal of Nuclear Science and Technology*[J], 2015, 52(10): 1318
- [16] Chun J H, Lim S W, Chung B D *et al.* *Nuclear Engineering and Design*[J], 2015, 289: 287
- [17] Katoh Y, Vasudevamurthy G, Nozawa T *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 441(1-3): 718
- [18] Alat E, Motta A T, Comstock R J *et al.* *Surface and Coatings Technology*[J], 2015, 281: 133
- [19] Khatkhatay F, Jian J, Jiao L *et al.* *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2013, 580: 442
- [20] Terrani K A, Parish C M, Shin D *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 438(1-3): 64
- [21] Kam D H, Lee J H, Lee T *et al.* *Annals of Nuclear Energy*[J],

- 2015, 76: 335
- [22] Park J H, Kim H G, Park J Y *et al.* *Surface and Coatings Technology*[J], 2015, 280: 256
- [23] Kim H G, Kim I H, Jung Y I *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 465: 531
- [24] Kim H G, Kim I H, Jung Y I *et al.* *LWR Fuel Performance Meeting*[C]. Charlotte: Top Fuel, 2013
- [25] Idarraga-Trujillo I, Flem M L, Brachet J C *et al.* *LWR Fuel Performance Meeting*[C]. Charlotte: Top Fuel, 2013
- [26] Kuprin A S, Belous V A, Voyevodin V N *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 465: 400
- [27] Zhong W C, Mouche P A, Han X *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2016, 470: 327
- [28] Wang Rongshan(王荣山), Bai Guanghai(柏广海), Weng Likui(翁立奎) *et al.* *Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程) [J], 2014, 43(12): 3188
- [29] Wang L, Hu X, Nie X. *Surface and Coatings Technology*[J], 2013, 221: 150
- [30] Apelfeld A V, Borisov A M, Krit B L *et al.* *Surface and Coatings Technology*[J], 2015, 269: 279
- [31] Khatkhatay F, Jiao L, Jian J *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2014, 451(1-3): 346
- [32] Baek J H, Park K B, Jeong Y H. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2004, 335(3): 443
- [33] Kim I, Khatkhatay F, Jiao L *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2012, 429(1-3): 143
- [34] Liu Y, Bhamji I, Withers P J *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 466: 718
- [35] Park J Y, Kim I H, Jung Y I *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 437(1-3): 75
- [36] Jin D L, Yang F, Zou Z *et al.* *Surface and Coatings Technology* [J], 2016, 287: 55
- [37] Yamamoto Y, Pint B A, Terrani K A *et al.* *Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 467: 703
- [38] Park D J, Lim D W, Jung Y I *et al.* *Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting*[C]. Gyeongju: Korea Atomic Energy Research Institute, 2013
- [39] Park D J, Kim H G, Park J Y *et al.* *Fusion Engineering and Design*[J], 2016, 109: 561

Research Progress of Coating on Zirconium Alloy for Nuclear Fuel Cladding

Bai Guanghai¹, Chen Zhilin¹, Zhang Yanwei¹, Liu Erwei¹, Xue Jiexiang²,
Yu Weiwei¹, Wang Rongshan¹, Li Rui², Liu Tong²

(1. Suzhou Nuclear Power Research Institute, Suzhou 215004, China)

(2. China Nuclear Power Technology Research Institute, Shenzhen 518026, China)

Abstract: Coating on zirconium alloy is one of important ways to improve the properties of fuel cladding in nuclear power plant accidents. The research progress of the coating on the surface of zirconium alloy was summarized, including types, preparation process, microstructures, steam oxidation resistant properties and corrosion resistant properties. The selection basis of the coating, and the relationship between preparation process, microstructure and properties were discussed. Some problems in the present researches and development of the coating were analyzed. The results can provide valuable references for promoting development of the coating on nuclear fuel cladding.

Key words: fuel cladding; accident tolerant; zirconium alloy; coating; steam oxidation

Corresponding author: Bai Guanghai, Ph. D., Senior Engineer, Life Management Technology Center, Suzhou Nuclear Power Research Institute, Suzhou 215004, P. R. China, Tel: 0086-512-68602413, E-mail: baiguanghai@foxmail.com