

ТВЕРДОФАЗНАЯ ТЕХНОЛОГИЯ РЕГУЛИРОВАНИЯ КИСЛОРОДА В ТЯЖЕЛЫХ ЖИДКОМЕТАЛЛИЧЕСКИХ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯХ

**П.Н. Мартынов, Р.Ш. Асхадуллин, А.А. Симаков, В.С. Ланских,
А.Ю. Чабань, Е.А. Мачула**

ГНЦ РФ-Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск



Настоящая работа отражает результаты исследований по обоснованию метода и средств для обеспечения коррозионной стойкости сталей в тяжелых жидкометаллических свинецсодержащих теплоносителях применительно к условиям эксплуатации перспективных ЯЭУ (БРЕСТ-ОД-300, СВБР 75/100 и др.), различных циркуляционных стендов, мишенных ускорительно-управляемых и технологических статических установок.

Для отвода тепла от активной зоны в ядерных энергетических установках (ЯЭУ) используются различные теплоносители (вода, газы, жидкие металлы). Все они имеют свои плюсы и минусы. Так называемые тяжелые жидкометаллические теплоносители (ТЖМТ), а это, в первую очередь, свинец и эвтектический сплав свинец-висмут (44,5%Pb–55,5%Bi), в настоящее время активно исследуются за рубежом для использования в ядерной энергетике и ускорительно-управляемых системах. В России изучение данных теплоносителей началось в 60-х годах XX века и закончилось созданием 12 атомных реакторов (суммарная наработка ~ 80 реакторо-лет) [1]. В настоящее время принято решение о создании атомной энергетики нового поколения с заложенными принципами естественной безопасности. В связи с этим, основные преимущества тяжелых жидкометаллических теплоносителей (такие как негорючесть, отсутствие больших давлений в I контуре, хорошие теплофизические свойства) позволяют конструкторам рассматривать их в перспективных проектах (СВБР, БРЕСТ и т.д.).

Однако основной негативной особенностью теплоносителей Pb и Pb–Bi является их достаточно высокая коррозионная активность по отношению к конструкционным материалам. В связи с этим главными задачами технологии тяжелых жидкометаллических теплоносителей, возникающими при их использовании, являются обеспечение коррозионной стойкости контактирующих с ними материалов и обеспечение чистоты самого теплоносителя.

В настоящее время основным методом для защиты конструкционных материалов (сталей) от коррозии в среде свинецсодержащих расплавов является кислотная пассивация, заключающаяся в формировании и поддержании на поверх-

ностях сталей тонких, хорошо сцепленных с основой, плотных оксидных пленок, препятствующих развитию коррозионных процессов. При наличии таких пленок коррозионная стойкость конструкционных материалов многократно возрастает.

Специалистами ГНЦ РФ-ФЗИ разработаны метод и средства решения данной проблемы сначала для эвтектического сплава свинец–висмут (44,5%Pb–55,5%Bi), а в последние годы и для расплава свинца (совместно с НИКИЭТ). Метод обеспечивает регулирование окислительного потенциала ТЖМТ и основан на использовании процесса растворения твердофазных оксидов свинца, помещаемых в поток теплоносителя (твердофазный метод). При этом применяемые в качестве средства окисления сформированные специальным образом сфероиды PbO размещаются и удерживаются в ограниченном по объему участке циркуляционного контура, сообщаемом по расплаву с основным контуром. Твердофазное средство окисления, контактируя с циркулирующим тяжелым теплоносителем, растворяется с выделением кислорода, который далее транспортируется по всему контуру с потоком теплоносителя. Указанный метод реализуется с помощью специальных устройств – массообменных аппаратов (МА), обеспечивающих коррозионную стойкость конструкционных материалов в расплавах свинца и свинец-висмута во всем рабочем диапазоне температур (до 923 К) [2, 3].

Конструктивно массообменный аппарат представляет собой реакционную емкость, заполненную твердофазным окислителем (сфероиды PbO) (рис. 1). Расход через него осуществляется либо с помощью персонального насоса, либо при помощи встроенных нагревателей, создающих не только конвективный расход через реакционную емкость, но и повышающих температуру в ней.

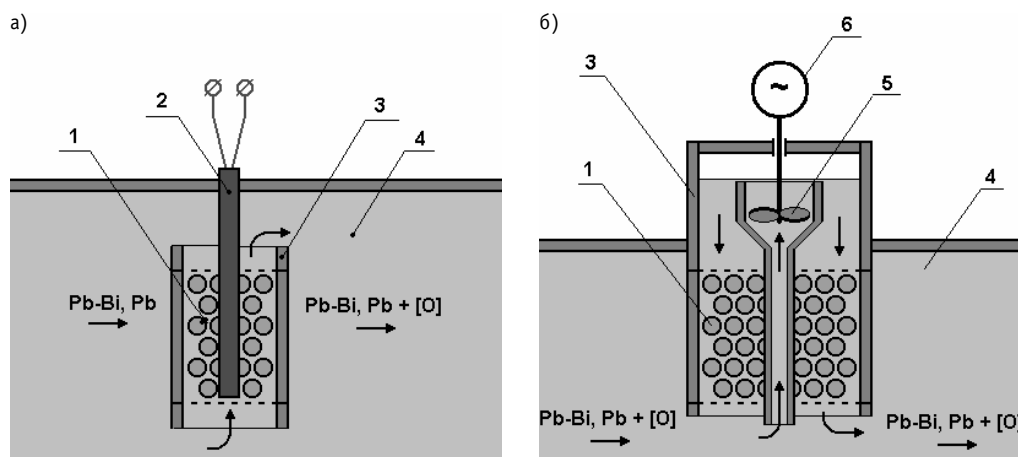


Рис. 1. Принципиальная схема массообменного аппарата: а – с внутренним нагревателем, б – со встроенным насосом; 1 – реакционная емкость с твердофазным окислителем (сфероиды PbO); 2 – внутренний нагреватель; 3 – корпус МА; 4 – основной контур; 5 – встроенный насос; 6 – двигатель насоса с частотным регулятором

К настоящему времени завершено экспериментально-расчетное исследование кинетики растворения зернистого слоя сфероидов PbO (материала засыпки МА) в свинцовом теплоносителе [4]. Эксперименты вначале проводились в квазистатических условиях (перемешивание теплоносителя только за счет конвекции со скоростью не более 0,01 м/с). Исследования проводились методом водородного восстановления предварительно окисленного расплава свинца.

Обработка экспериментальных данных, полученных в статических условиях по определению значений скорости растворения твердофазного PbO в свинце (отдельные сфероиды) при температуре $673 \div 873$ К, представлена в табл. 1.

Таблица 1

Значения удельной скорости растворения твердофазного PbO в свинце

Температура, К	673	723	773	823	873
Скорость растворения, $\Gamma_{[O]} / (\text{см}^2_{\text{PbO}} \cdot \text{ч})$	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$3,1 \cdot 10^{-4}$	$4,9 \cdot 10^{-4}$	$7,9 \cdot 10^{-4}$	$10,6 \cdot 10^{-4}$

На основании этих данных получена следующая зависимость логарифма скорости растворения оксида свинца в свинце от температуры с погрешностью менее 5,5%:

$$\lg K_p = -0,096 - 2489/T \cdot \Gamma_{[O]} / (\text{см}^2_{\text{PbO}} \cdot \text{ч}). \quad (1)$$

Затем были проведены эксперименты в условиях, имитирующих омывание засыпки PbO в МА набегающим потоком теплоносителя. В рабочий участок вводились картриджи, содержащие 4 и 8 слоев сфероидной засыпки PbO. При этом в ходе испытаний температура свинцового теплоносителя находилась в диапазоне 673 ÷ 823 К, а скорости жидкого Pb – в пределах 0,07 ÷ 0,25 м/с. Указанные параметры проведения экспериментов моделировали потенциальные режимы работы массообменных аппаратов в перспективных ЯЭУ и исследовательских стендах ГНЦ РФ-ФЭИ, ЦНИИ – КМ «Прометей» и др. Результаты обработки полученных экспериментальных данных представлены в табл. 2.

Таблица 2

Удельная скорость растворения сфероидов оксида свинца PbO $\lg K_p (\Gamma_{[O]}$ или $\Gamma_{\text{PbO}}) / (\text{см}^2_{\text{PbO}} \cdot \text{ч})$ в зависимости от температуры, количества слоев насыпного материала и истинной скорости обтекания сфероидов

Скорость, м/с	Число слоев	Температура, К							
		673		723		773		823	
		[O]	PbO	[O]	PbO	[O]	PbO	[O]	PbO
0,07	4	-3,40	-2,26	-2,50	-1,36	-1,78	-0,64		
	8	-3,18	-2,04	-2,56	-1,42	-1,93	-0,79	-1,49	-0,35
0,13	4	-2,88	-1,74	-2,20	-1,06	-1,31	-0,17		
	8			-2,23	-1,09	-1,45	-0,31	-1,19	-0,05
0,18	4	-2,56	-1,42	-1,93	-0,79	-1,20	-0,06		
	8	-2,50	-1,36	-1,89	-0,75	-1,27	-0,13	-0,92	0,22
0,25	4	-2,44	-1,30	-1,79	-0,65	-1,11	0,03		
	8			-1,83	-0,69	-1,19	-0,05	-0,81	0,33

Обобщение экспериментальных данных по кинетике растворения стационарной засыпки сферических элементов из оксида свинца привело к соотношению

$$\text{Sh} = 8,7 \cdot 10^{-4} \cdot \text{Re}^{1,42} \cdot \text{Sc}^{0,83}, \quad (2)$$

где $\text{Sh} = \frac{\beta \cdot l}{D}$ – число Шервуда (иногда это число называют диффузионным числом

Нуссельта); $\text{Re} = \frac{w \cdot l}{\nu}$ – число Рейнольдса; $\text{Sc} = \frac{\nu}{D}$ – число Шмидта или диффузи-

онный Прандтль; β – коэффициент массоотдачи, м/с, $\{\beta = q/[B \cdot (C_s - C) \cdot S_p], \beta = K_p(1 - a_{[O]})/[\rho(C_s - C)]/360, q$ – поток кислорода, кг/с, термодинамическая активность кислорода в свинце $a_{[O]} \ll 1$, ρ – плотность свинца, кг/м³, C и C_s – текущая концентрация и концентрация насыщения кислорода в свинце, в массовых долях от 1; S_p – поверхность растворения, м²; ν – кинематическая вязкость, м²/с; D – коэффициент молекулярной диффузии кислорода в свинце, м²/с; l – характерный размер, м, $l = \frac{2}{3} \cdot \frac{\varepsilon \cdot d_{сф}}{1 - \varepsilon}$, ε – пористость слоя сфероидов PbO (для слоя сферических частиц принимается равной 0,4), $d_{сф}$ – диаметр сфероида, м; w – скорость м/с).

Данное соотношение имеет относительную погрешность вычисления $\delta = 25\%$ при следующих параметрах свинца: $Re = 1000 \div 5000$, $Sc = 30 \div 200$, температура – до 823 К, скорость до – 1 м/с и активность кислорода на входе в МА, соответствующая диапазону $a_{[O]} = n(10^{-5} - 10^{-2})$.

Ранее подобные эксперименты были проведены авторами на эвтектическом сплаве свинца-висмута. В результате проведенных исследований была получена следующая критериальная зависимость:

$$Sh = 3,8 \cdot 10^{-2} \cdot Re^{0,70} \cdot Sc^{0,67}. \quad (3)$$

Соотношения (2) и (3) рекомендуются для предварительного расчета массообменных аппаратов регулирования концентрации кислорода в свинце и свинце-висмуте соответственно.

В 2000 г. была впервые экспериментально показана возможность использования твердофазного метода регулирования концентрации кислорода в свинцовом теплоносителе с целью поддержания ее заданного уровня. С помощью массообменного аппарата с твердофазным оксидным источником растворенного кислорода было обеспечено поддержание заданной концентрации кислорода в диапазоне $C_{[O]} = 1 \cdot 10^{-7} \div 5 \cdot 10^{-6} \%_{\text{мас.}}$ в циркуляционном контуре (теплоноситель Pb, $T_{\text{max}} = 923$ К, $T_{\text{min}} = 673$ К, $M_{\text{Pb}} \sim 800$ кг) в течение 1016 ч. Это было осуществлено как за счет регулирования расхода свинца (при помощи вентиля) через массообменный аппарат, так и путем создания конвекционного расхода при повышении температуры в реакционной емкости МА с помощью электрических нагревателей [5]. В ходе данной кампании преимущественно использовался режим регулирования за счет применения обогрева реакционной емкости массообменного аппарата с помощью электрических нагревателей. Указанный режим характеризовался высокими плавностью и тонкостью регулирования, отсутствием дискретности и возможностью поддержания заданного узкого ($2 \div 5\%$) диапазона на очень малых концентрациях кислорода в течение длительного времени.

За последние годы был разработан целый спектр массообменных аппаратов различных типов (рис. 2) для обеспечения заданного кислородного режима при проведении коррозионных испытаний в циркуляционных стендах и статических установках (ГНЦ РФ-ФЭИ, ЦНИИ КМ «Прометей», ФГУП НИКИЭТ), а также для испытаний разных конструкций МА (ГНЦ РФ-ФЭИ). Всего было создано 26 массообменных аппаратов 7 типов с суммарной наработкой $\sim 50\,000$ ч.

В период 2000–2005 гг. были выполнены работы по обеспечению заданных кислородных режимов при проведении коррозионных испытаний на циркуляционных стендах в ГНЦ РФ-ФЭИ (стенд «СМ-2») и ЦНИИ КМ «Прометей» (стенд «Х-5Л»). Время успешного регулирования заданного уровня концентрации кислорода в тяжелом теплоносителе при использовании твердофазного метода составило более 18 000 ч на стенде «СМ-2» (рис. 3), более 15 000 ч на стенде «Х-5Л» [5, 8, 9].

Твердофазный метод отличался высокими характеристиками тонкости регулирования, отсутствием дискретности и возможностью в ручном режиме поддержа-



Рис. 2. Конструкции массообменных аппаратов для статических установок и стендов с теплоносителями Pb и Pb-Bi

ния заданного узкого диапазона даже при очень малых концентрациях кислорода ($1 \cdot 10^{-7} \div 5 \cdot 10^{-6} \%_{\text{мас.}}$) в течение длительного времени.

Прямой ревизией реакционных емкостей массообменных аппаратов (после проведения всех кампаний) было установлено, что применение массообменного аппарата не приводило к выносу твердой оксидной фазы за пределы МА и образованию шлаков в контуре [6].

Отрабатываемое регулирование концентрации кислорода в тяжелом жидкометаллическом теплоносителе с помощью массообменных аппаратов осуществлялось в ручном режиме и требовало постоянного внимания оперативного персонала, что не исключало возможности принятия неправильных решений при управлении МА. Указанные решения могли привести как к нарушению заданного кислородного режима контура, так и к выходу из строя самого МА. В связи с этим являлось логичным исключение «человеческого» фактора из режима управления массообменным аппаратом и переход к системе автоматического регулирования концентрации кислорода.

В 2002–2003 гг. впервые были проведены стендовые испытания прототипа системы автоматического регулирования (САР) концентрации кислорода в тяже-

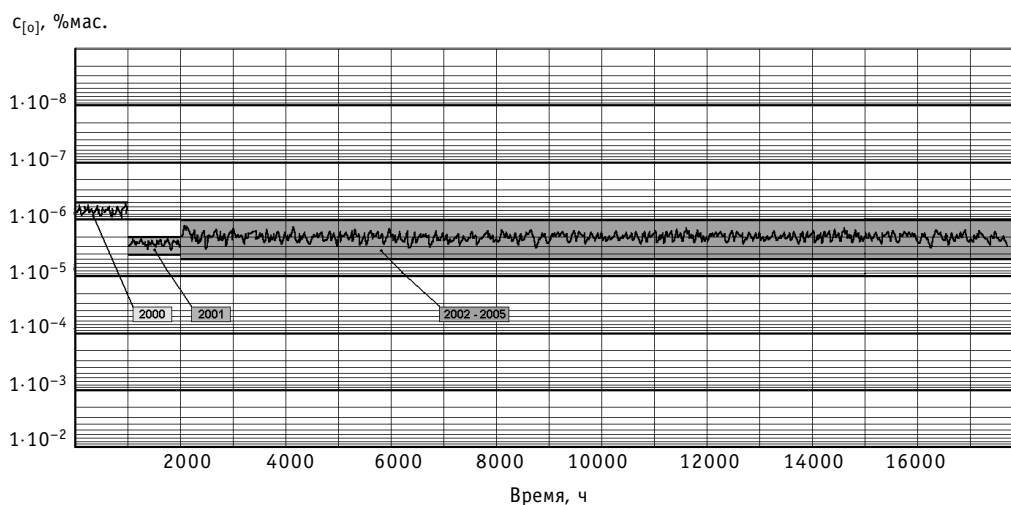


Рис. 3. Регулирование заданных уровней концентрации кислорода в тяжелом теплоносителе (Pb) на стенде «СМ-2» при использовании твердофазного метода

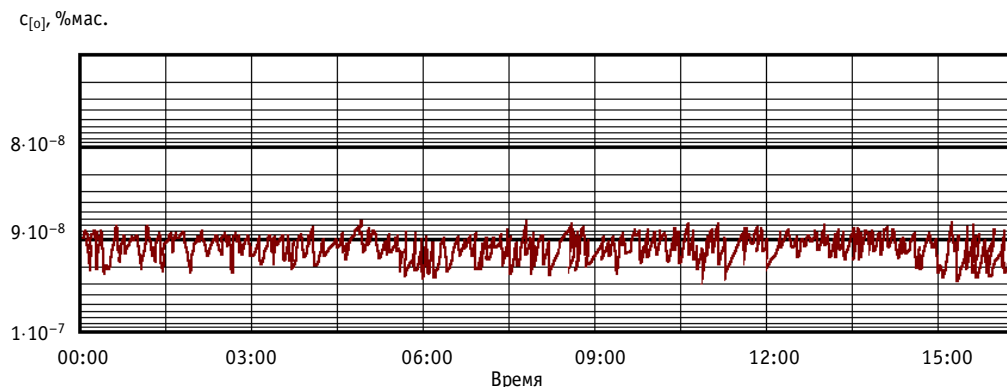


Рис. 4. Автоматическое поддержание заданной концентрации кислорода ($C_{[O]} = 9 \cdot 10^{-8} \%_{\text{масс.}}$) на стенде «ТТ-2М» (Pb–Bi) 15.10.2004 г

лом жидкометаллическом теплоносителе (Pb–Bi). Экспериментально подтверждены основные положения, заложенные в концепцию системы на этапе ее разработки и создания. Проведены успешные испытания прототипа системы САР в режимах, моделирующих различного рода провокации, влияющие на состояние окислительного потенциала теплоносителя в неизотермическом контуре циркуляции (переход с одной уставки на другую; работа в условиях Fe-провокаций; температурные провокации в контуре циркуляции). Разработанная система позволяет в стационарных условиях обеспечивать поддержание заданного уровня концентрации кислорода в тяжелом жидкометаллическом теплоносителе с точностью $\sim 1\%$ (рис. 4) [7].

Таким образом, можно констатировать, что в настоящее время в ГНЦ РФ-ФЭИ разработан способ поддержания коррозионной стойкости стального циркуляционного контура (или стационарных установок) с тяжелыми жидкометаллическими теплоносителями. Созданы (или могут быть спроектированы) массообменные аппараты, основанные на твердофазном методе для их применения на различных установках, от миниатюрных (1 ч 5 л теплоносителя) до крупногабаритных, реакторных [8, 9].

В дальнейшем одной из приоритетных задач видится создание мощной с элементами искусственного интеллекта системы автоматического регулирования кислородного потенциала тяжелого теплоносителя, полностью исключающей потребность вмешательства оперативного персонала при любых, даже нештатных режимах работы установок.

Литература

1. Тошинский Г.И., А.И. Лейпунский и ядерные энергетические установки с жидкометаллическим теплоносителем свинец-висмут для атомных подводных лодок // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2003. – № 4. – С. 13-18.
2. Мартынов П.Н., Орлов Ю.М., Русанов А.Е. и др. Твердофазный метод регулирования заданной термодинамической активности кислорода в свинцовом теплоносителе / Теплофизические свойства веществ: Труды международного семинара. – Нальчик: КБГУ, 2001. – С. 120-124.
3. Сысоев Ю.М., Мартынов П.Н., Асхадуллин Р.Ш., Симаков А.А. Патент РФ №2246561 от 20.02.2005 г. на изобретение «Способ поддержания коррозионной стойкости стального циркуляционного контура со свинецсодержащим теплоносителем и массообменное устройство для его реализации (варианты)».
4. Мартынов П.Н., Асхадуллин Р.Ш., Симаков А.А. и др. Регулирование термодинамической активности кислорода в свинцовом и свинцово-висмутовом теплоносителях методом растворения оксидов / Ядерные реакторы на быстрых нейтронах. Российский научно-технический форум. Материалы конференции «Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях». – Обнинск, 2003. – С. 77-78.

5. Мартынов П.Н., Симаков А.А., Асхадуллин Р.Ш. и др. Разработка и экспериментальная эксплуатация массообменных аппаратов для обеспечения заданного кислородного режима в теплоносителях на основе свинца/Ядерные реакторы на быстрых нейтронах. Российский научно-технический форум. Материалы конференции «Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях». – Обнинск, 2003. – С.89-90.
6. Martynov P.N., Orlov Yu.I., Askhadullin R.Sh. etc. Validation of lead coolant technology for BREST reactors/"ICONE-11". – Japan, 2003.
7. Мартынов П.Н., Симаков А.А., Асхадуллин Р.Ш. и др. Твердофазная технология регулирования кислорода в тяжелых жидкометаллических теплоносителях//Новые промышленные технологии. ЦНИЛЮТ. – 2004. – № 3. – С. 30-34.
8. Мартынов П.Н., Симаков А.А., Асхадуллин Р.Ш. и др. Создание кибернетической системы контроля, прогнозирования и управления состоянием свинцово-висмутового (свинцового) теплоносителя и поверхностей контура ЯЭУ: Материалы межотраслевой тематической конф. «Теплофизика – 2005». – Обнинск, 2005. – С. 18-20.
9. Martynov P.N., Askhadullin R.Sh., Simakov A.A., Kumaev V.Ya. № 208. Controlled oxide dissolution processes in pb-bi and pb coolants and mass exchange apparatus for monitoring the oxygen regime/The 11th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics (NURETH-11) Avignon, France, 2-6, 2005.

Поступила в редакцию 1.09.2006

УДК: 621.039.534.6

Solid Phase Technology of Oxygen Regulation in Heavy Liquid Metal Coolants \P.N. Martynov, R.Sh. Askhadullin, A.A. Simakov, V.S. Lanskih, A.Yu. Chaban, E.A. Machula; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk 2007. – 7 pages, 2 tables, 4 illustrations, – References, 9 titles.

The present work reflects results of investigations on substantiation of a method and means for maintenance of corrosion stability of steels in heavy lead-containing liquid metal coolants with reference to operation conditions of perspective nuclear power plants (BREST-OD-300, SVBR 75/100 etc.), various circulating stands, target accelerator-driven and technological static facilities.

УДК 621.039.534.6

Studies of Formation Processes and Performances of Lead and Lead-Bismuth Coolants Aerosols \P.N. Martynov, A.M. Posazhennikov, I.V. Yagodkin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk 2007. – 7 pages, 2 tables, 4 illustrations, – References, 2 titles.

The report presents the results of investigations of aerosol formation processes and the main characteristics of lead coolant aerosols in the enclosed gas space above its surface at different states of the interface liquid metal/gas and at jet issue of lead into atmosphere.

The study the morphology of generated lead aerosols special attention has been paid.

УДК 621.039.534.6

On Condition of Impurity in Liquid metals \V.A. Morozov, A.V. Morozov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering). – Obninsk 2007. – 8 pages, 1 table, 3 illustrations, – References, 17 titles.

A condition of and lead is analyzed by a method of compensation effect. It is shown, that the compensation law allows to estimate the form of existence of the dissolved substances in alloys and entropy distinction of solvents. Compensation dependence is the consequence of linear data processing of experiment for any linearly represented characteristics.