

ОЦЕНКА ИНТЕНСИВНОСТИ ПРОЦЕССОВ ОКИСЛЕНИЯ КОНСТРУКЦИОННЫХ СТАЛЕЙ ПЕРВОГО КОНТУРА ЯЭУ С ТЯЖЕЛЫМИ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯМИ

Р.Ш. Асхадуллин, К.Д. Иванов, В.М. Шелеметьев, Р.П. Садовничий
ГНЦ РФ-Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск



На основании выполненных экспериментальных исследований по влиянию температуры и кислородного режима тяжелых жидкометаллических теплоносителей на интенсивность протекания окислительных процессов их взаимодействия с различными конструкционными сталями разработана методика численных оценок локальных и интегральных потоков кислорода, расходуемого на окисление внутренних поверхностей первого контура реакторных установок.

Использование данной методики позволяет выполнять предварительные оценки результатов длительной эксплуатации конструкционных сталей, обосновывать использование оптимальных с точки зрения массопереноса кислородных режимов теплоносителя, формировать требования к системам технологии теплоносителя.

Ключевые слова: тяжелый жидкометаллический теплоноситель, конструкционные стали, первый контур, ЯЭУ, окисление.

Key words: heavy liquid-metal heat-carrier, constructional steels, primary coolant circuit power, reactor facility, oxidation.

ВВЕДЕНИЕ

Для решения задач технологии теплоносителя, которые сводятся к обеспечению чистоты первого контура и условий коррозионной стойкости используемых конструкционных сталей, применительно к РУ с жидкометаллическим (Pb, Pb-Bi) теплоносителем требуется разработка соответствующих систем технологии.

Среди них с учетом существенного увеличения продолжительности эксплуатации данной установки [1] по сравнению с ее прототипами, а также повышения температурного уровня особое место отводится тем устройствам, функционирование которых обеспечивает долговременное взаимодействие конструкционных сталей с теплоносителем. По существу, это две проблемы: материаловедческая, связанная с сохранностью эксплуатационных свойств сталей, и технологическая, связанная с обеспечением требуемого качества теплоносителя и с очисткой контура от избыточных продуктов взаимодействия теплоносителя со сталями.

Решение совместной задачи поддержания коррозионной стойкости сталей и минимизации массопереноса в первом контуре, по современным представлени-

ям [2], достигается комплексом мер. При этом основными являются мероприятия по созданию на поверхности сталей защитных оксидных покрытий, а также условий, которые обеспечивали бы сохранность этого диффузионного барьера, но не позволяли бы развиваться окислительному процессу до масштабов кислородной коррозии.

В практическом плане речь идет о выборе и поддержании оптимального кислородного режима теплоносителя. В настоящее время он еще окончательно не определен. В то же время имеются экспериментальные результаты по коррозионной стойкости сталей [3, 4] как в свинце-висмуте, так и в свинце на временной базе от ~ 30 до ~ 50 тыс. часов при кислородном режиме, который характеризуется уровнем концентрации кислорода $C_0 \sim (1-2) \cdot 10^{-6}$ % мас. Этот режим при проведении ресурсных испытаний сталей получил название «базового» кислородного режима.

Независимо от конкретных параметров оптимального режима для организации в целом окислительных условий для сталей в герметичном контуре (без натечек кислорода) требуется действие источника кислорода, который должен по интенсивности соответствовать скорости окисления сталей.

Целью данной работы является создание расчетной методики, позволяющей уже на стадии проектирования реакторной установки оценить величины локальных и интегральных потоков кислорода, расходуемого на окисление конструкционных сталей в первом контуре.

ВЫВОД ОСНОВНОЙ РАСЧЕТНОЙ ЗАВИСИМОСТИ СКОРОСТИ ОКИСЛЕНИЯ СТАЛИ

В общем случае интенсивность окислительного взаимодействия сталей с растворенным в теплоносителе кислородом зависит от многих факторов. Среди них можно выделить внешние условия, задаваемые температурным уровнем и локальными условиями доставки кислорода к поверхности стали (концентрационный напор в виде парциального давления кислорода, гидродинамические условия обтекания поверхности стали теплоносителем, определяющие механизм доставки к ней кислорода, и диффузионные свойства среды), а также внутренние условия со стороны стали с соответствующим концентрационным напором со стороны металлических компонентов. Для промежуточной области между матрицей стали и теплоносителем, т.е. оксидной пленкой, большое значение имеют ее диффузионные свойства относительно кислорода и металлических компонентов, определяющие защитные свойства оксидного покрытия.

Очевидно, что в начальный момент формирования оксидной пленки ее защитные свойства невелики вследствие малой толщины и отсутствия сплошности. Этот период всегда характеризуется максимальными скоростями протекания окислительного процесса. Здесь важную роль играют процессы, связанные с доставкой кислорода непосредственно к поверхности стали. Низкие концентрации кислорода и неудовлетворительные гидродинамические условия при определенных соотношениях могут привести к тому, что, начиная с некоторой предельной температуры, пассивация стали становится невозможной, а интегральный процесс взаимодействия развивается по механизму жидкометаллической коррозии.

При расчетах скорости окисления на начальном этапе формирования оксидной пленки, в силу сказанного выше, обязательно следует учитывать не только температуру и парциальное давление кислорода, но и гидродинамические условия. Последнее обстоятельство значительно затрудняет поэлементный расчет окислительного процесса в первом контуре для режима начала формирования оксид-

ных пленок. Кроме того, для этой стадии окисления отсутствуют надежные экспериментальные данные.

Для более поздних стадий окисления, когда процесс определяется исключительно диффузионными свойствами стали и оксидной пленки, или для условий, когда пленки формируются заранее (предварительная пассивация), расчеты можно вести без учета влияния гидродинамики.

Поскольку экспериментальные данные, которые использовались при разработке методики, были получены именно для этих условий [5, 6], то при выводе основной расчетной зависимости этот фактор не учитывался. Это является одним из ограничений использования расчетной зависимости в плане ее распространения в область предельно малых толщин оксидных пленок ($\leq 0,1$ мкм).

После завершения начальной стадии (которая весьма условна) процесс протекает в целом с увеличением толщины оксидной пленки, а также с развитием ряда других процессов, которые могут проявить себя позже в виде возрастания скорости окисления: возможное растрескивание пленок из-за накапливаемых напряжений или деформаций поверхности стали, отслоение части внешнего слоя и его унос теплоносителем. Как правило, эти процессы характерны для более поздних стадий окисления, и наблюдаются при чрезмерном увеличении толщины оксидной пленки (~ 100 мкм и выше). Эти процессы при выводе расчетной зависимости также не учитывались.

В то же время фактор роста толщины оксидного слоя и соответствующее влияние на интенсивность окислительного процесса необходимо учитывать. Для этого можно использовать либо представление о параболическом характере роста толщины пленки, либо более общий степенной закон. В первом случае поток кислорода на формирование оксидной пленки, пропорциональный приросту ее толщины, можно записать в виде

$$q_0 = k \cdot \frac{d\delta}{d\tau} \sim \frac{1}{2\delta},$$

где δ – толщина оксидной пленки; k – коэффициент пропорциональности. Во втором случае

$$q_0 \sim \frac{1}{n\delta^{n-1}},$$

где n – показатель степенной зависимости. Численные значения n в последнем случае определяются из экспериментальных данных по окислению сталей.

Как в первом, так и во втором случаях данный подход можно использовать только при постоянной температуре окисления и фиксированном кислородном режиме теплоносителя, для которых эти законы получены. В общем случае влияние изменяющейся толщины оксидной пленки и соответствующее изменение условий протекания окислительного процесса можно учесть в виде специальной функции времени, вид которой определяется реальным характером изменения условий окисления.

Поскольку основной задачей разрабатываемой методики является вывод зависимости, позволяющей оценивать потоки кислорода, расходуемого на окисление поверхности стали при вариациях температурных и кислородных режимов теплоносителя, постановка задачи сводится к следующему.

Имеется матрица различных экспериментальных значений потоков кислорода, расходуемого на окисление стали, и параметров температуры и парциального давления кислорода в теплоносителе. Требуется представить искомую зависимость потока кислорода как суперпозицию функций температуры и парциального дав-

ления кислорода. Аналитически искомая зависимость должна быть представлена в виде

$$q_0 = f_1(\tau) \cdot f_2(p_{O_2}) \cdot f_3(T), \quad (1)$$

где $f_1(\tau)$ – функция, отражающая влияние изменений условий окисления от времени, в частности, толщины оксидной пленки к моменту времени τ ; $f_2(p_{O_2})$ – функция, отражающая влияние кислородного режима теплоносителя в локальном месте контура циркуляции; $f_3(T)$ – функция, отражающая влияние температуры в данном месте контура.

Функция $f_1(\tau)$ в проведенных нами исследованиях в первом приближении отражает влияние толщины оксидной пленки, сформированной к моменту измерений. Абсолютные значения потоков кислорода при различных экспериментальных кампаниях в момент изменения температурных условий из-за различий в толщинах пленок значительно отличались. Это обстоятельство потребовало из всего массива полученных экспериментальных данных сделать выборку, в которой использованы данные, только непосредственно связанные с режимами целенаправленного ступенчатого изменения температуры. При этом сделано вполне очевидное допущение, что изменение толщины оксидной пленки непосредственно в момент измерения температурной зависимости несущественно. Баланс количества «усвоенного» сталью кислорода при проведении этих экспериментов подтвердил правомерность этого допущения и, соответственно, возможность упрощения формулы (1) в момент измерений до вида

$$q_0 = const \cdot f_2(p_{O_2}) \cdot f_3(T). \quad (2)$$

Для выявления вида зависимости $f_2(p_{O_2})$ и $f_3(T)$ по имеющимся экспериментальным данным требуется проведение специальных опытов, в которых одна из этих функций тождественна константе (при $T = const$ или при $p_{O_2} = const$). Такие опыты были проведены в работе [7], где изучалась зависимость потока кислорода q_0 от парциального давления кислорода при постоянных температурах. В результате было показано, что в области повышенных значений активности кислорода имеет место пропорциональность потока давлению кислорода в виде

$q_0 \sim p_{O_2}^{0,25} \sim p_{O_2}^{0,125}$. В области относительно низких значений активности кислорода зависимость близка к виду $q_0 \sim p_{O_2}^2 \sim p_{O_2}^1$. Величина критических значений p_{O_2} , при которых происходит смена механизма окисления сталей (при температурах примерно от 480 до 650°C), выражается прямой в координатах «ЭДС датчика активности кислорода [мВ] – температура [°C]»:

$$E = 0,35t + 193. \quad (3)$$

На основании этих данных для каждого экспериментального значения q_0 , полученного при температуре t_i и парциальном давлении кислорода $(p_{O_2})_i$, были рассчитаны значения $(q_0^*)_i$ – потока кислорода, приведенные к постоянному парциальному давлению кислорода $p_{O_2} = 1$ атм. Затем в координатах Аррениуса строилась зависимость $\ln q_0^* = f\left(\frac{1}{T}\right)$ для нахождения кажущейся энергии активации процесса окисления стали Q .

На рисунке 1 в качестве примера приведены характерные результаты такой обработки экспериментальных данных для стали X18H10T.

В результате обработки всего массива экспериментальных данных были выбраны наиболее достоверные численные значения энергии активации для каждой конструкционной стали.

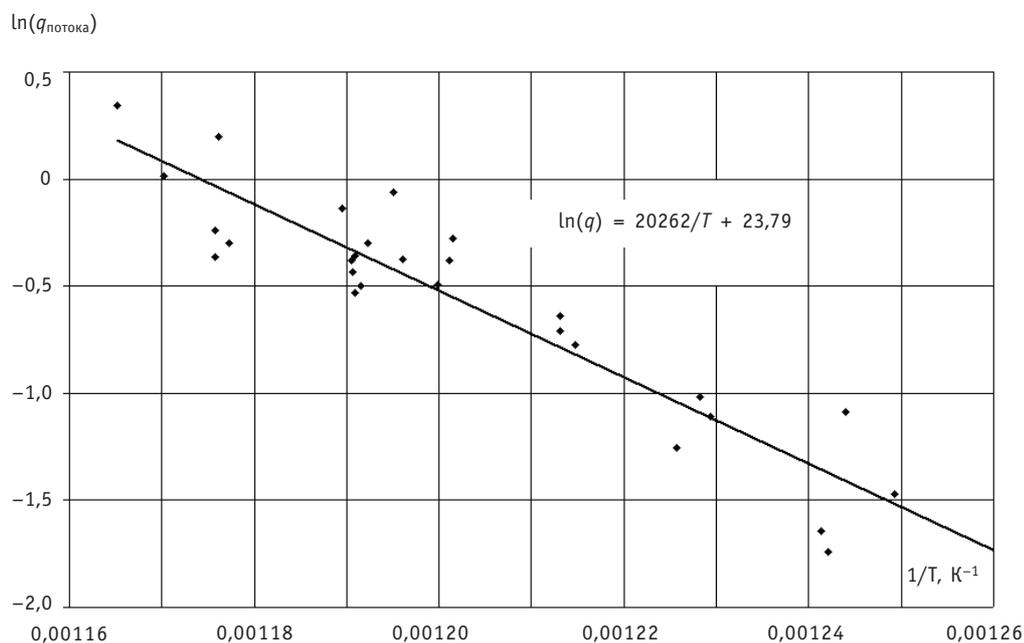


Рис. 1. Зависимость расчетного (приведенного) потока кислорода от обратной температуры для стали X18H10T

Таким образом, основная расчетная формула с учетом выявленных ранее закономерностей может быть представлена в виде

$$q_0(\tau) = q_0^\circ(\tau) \cdot p_{\text{O}_2}^n \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right), \quad (4)$$

где $q_0^\circ(\tau)$ – сомножитель, имеющий размерность удельного потока кислорода на единицу поверхности стали и отражающий изменение защитных свойств оксидного покрытия во времени; p_{O_2} – парциальное давление кислорода, равновесное с теплоносителем данного состава и выраженное в долях от атмосферы; n – показатель степени ($n = 0,125$ в области повышенных парциальных давлений кислорода, $n = 1$ в области относительно низких давлений); Q – кажущаяся энергия активации окислительного процесса, Дж/моль; $R = 8,314$ – универсальная газовая постоянная, Дж/(моль·К); T – температура, К.

Основная трудность практического использования этой формулы состояла в определении функциональной зависимости и численных значений параметра $q_0^\circ(\tau)$. С этой целью был использован массив имеющихся литературных данных, позволявший в предположении параболического роста оксидных пленок представить искомую зависимость в виде функции $q_0^\circ(\tau) = \frac{A}{\delta(\tau)}$, где константа A характеризует реализованный режим окисления стали. На рисунке 2 в качестве примера приведены результаты расчетов данной константы для стали ЭП-823.

Разброс значений A связан с двумя принципиально различными причинами:

- неточность определения кислородного режима в экспериментах, погрешности в определении толщины пленок, использование параболического приближения в расчетах, неучетом реального состава пленок;
- различия в механизмах протекания самих окислительных процессов.

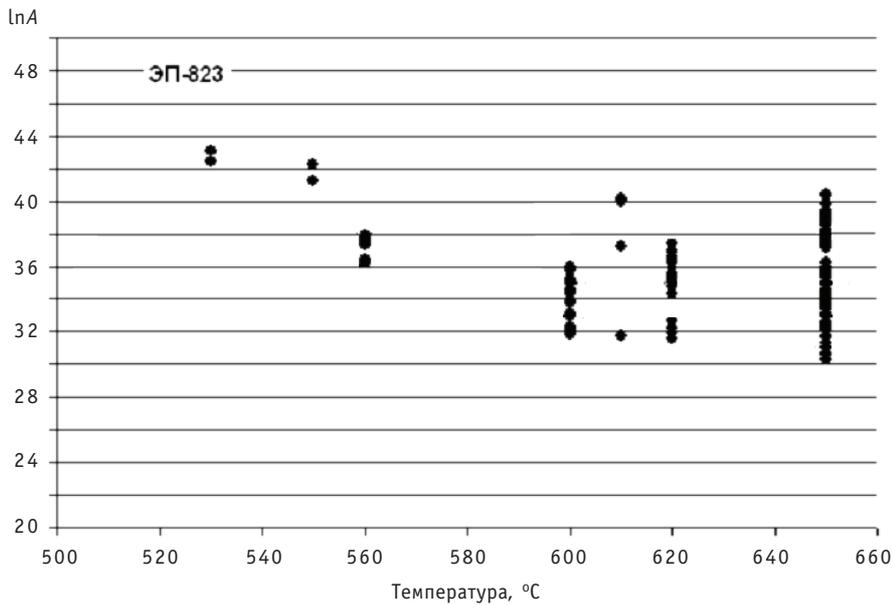


Рис. 2. Массив данных параметра A для стали ЭП-823

Анализ экспериментальных данных показал, что основные различия в значениях параметра A обусловлены последним из перечисленных факторов. В качестве подтверждения этого тезиса на рис. 3 приведены результаты расчетов параметра A по данным проведения одной из экспериментальных кампаний в свинцовом стенде при температуре 650°C в течение 1000 ч, где экспонировались различные образцы стали ЭП-823.

Представленные на рис. 3 расчетные данные параметра A , характеризующего при прочих равных условиях интенсивность окислительного процесса, демонстрируют влияние исходного состояния поверхности стали, которое в данном экс-

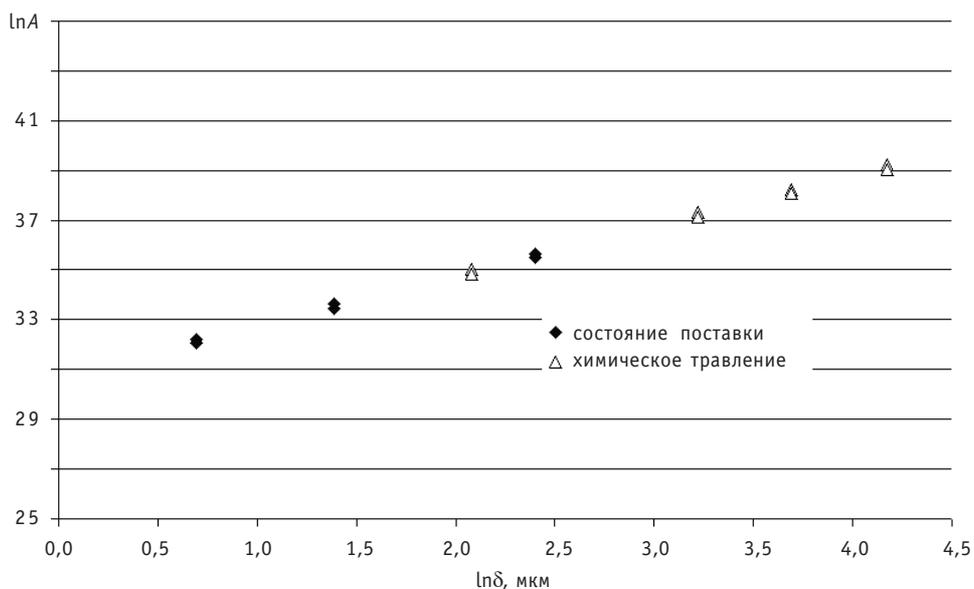


Рис. 3. Зависимость рассчитанных значений параметра A от конечной толщины оксидных пленок для образцов с различным исходным состоянием поверхности

перименте изменялось от состояния заводской поставки (минимальные значения A) до состояния после штатного режима обработки поверхности кислотным раствором.

Таким образом, в окончательном виде расчетная формула для вычисления локальных потоков кислорода записывается в виде

$$q_0(\tau) = \frac{A}{\delta(\tau)} \cdot p_{O_2}^n \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right). \quad (5)$$

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РАСЧЕТНОЙ МЕТОДИКИ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ИНТЕГРАЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ОКИСЛИТЕЛЬНОГО ВЗАМОДЕЙСТВИЯ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯ С ВНУТРЕННИМИ ПОВЕРХНОСТЯМИ ПЕРВОГО КОНТУРА РУ

При расчете интегральных характеристик, предполагающем суммирование локальных потоков с учетом температурных условий, величины поверхностей конкретных сталей, а также значений парциальных давлений кислорода в теплоносителе, контактирующем с данным элементом первого контура, необходимо знать распределение температур и кислорода по контуру. В общем случае это распределение можно получить из совместного решения тепловой и гидродинамической задач.

Для расчета распределения температуры теплоносителя и соответственно температуры поверхности стали в первом контуре существуют надежные методики, и получение конечных результатов является только вопросом времени и степени проработанности конструкторских решений по установке. В этом отношении учет температурного фактора при интегрировании сдерживается только процедурой получения распределений поверхностей сталей по температурным условиям. При этом для предварительной оценки можно задавать достаточно грубое приближение по характеру такого распределения. В дальнейшем по мере уточнения температурных условий будут уточняться и оценки интегральных потоков кислорода.

Что касается распределения активности кислорода по контуру (ее всегда можно пересчитать в равновесное парциальное давление кислорода) по температурным зонам, то аналогичный расчет массопереноса в первом контуре в настоящее время невозможен. Главным сдерживающим фактором при этом является отсутствие соответствующих констант и замыкающих уравнений, что является следствием недостаточной изученности сложных физико-химических процессов в теплоносителе.

Выходом из этого положения является использование имеющихся экспериментальных данных по распределению ТДА кислорода в циркуляционных контурах. В настоящее время различают два основных характера распределения этого параметра по длине неизотермического контура циркуляции теплоносителя:

- «изоконцентрационный», характеризующийся соответствующими наклонами прямых на известной $E-T$ -диаграмме, связывающей значения показаний датчика ТДА с температурой;
- «неизоконцентрационный», характеризующийся другими температурными наклонами в зависимости показаний датчика от температуры.

Опираясь на эти экспериментальные данные или задаваясь любым другим конкретным распределением, можно рассчитывать соответствующие зависимости изменения парциального давления кислорода в теплоносителе как функции температуры поверхности стали.

Следующим этапом, предваряющим расчет, является задание начальных условий в виде соответствующих толщин оксидных пленок $\delta(\tau = 0)$ и предполагаемого режима окисления (численные значения A для каждой стали).

Общая схема расчета интегрального потока кислорода на окисление внутренних поверхностей первого контура следующая.

Определяется поток кислорода в каждом локальном участке контура, а именно,

- определяется температура поверхности стали в локальной зоне;
- задается кислородный режим теплоносителя в виде парциального давления кислорода;
- рассчитывается значение толщины оксидной пленки как функция времени;
- рассчитывается значение потока кислорода в локальной зоне первого контура как функция времени.

После этого проводится интегрирование полученных локальных значений потоков кислорода по всем температурным зонам первого контура, результаты которого представляются в виде функции времени. Далее таким же образом могут быть получены численные значения интегральных потоков кислорода на окисление сталей для других температурных, кислородных режимов работы теплоносителя и механизмов развития окислительных процессов.

ВЫВОДЫ

На основании выполненных экспериментальных исследований по влиянию температуры и кислородного режима теплоносителя на интенсивность протекания окислительных процессов взаимодействия тяжелых теплоносителей с различными конструкционными сталями разработана методика численных оценок локальных и интегральных потоков кислорода, расходуемого на окисление внутренних поверхностей первого контура реакторных установок. Использование данной методики позволяет выполнять предварительные оценки результатов длительной эксплуатации конструкционных сталей, обосновывать использование оптимальных с точки зрения массопереноса кислородных режимов теплоносителя, формировать требования к системам технологии теплоносителя. Полученные в работе расчетные зависимости позволяют с единых позиций оценивать защитные свойства оксидных покрытий, полученных в разных условиях.

Литература

1. Перспективные реакторные установки с жидкометаллическим теплоносителем свинец-висмут/*В.С. Степанов, Н.Н. Климов и др.*/Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях: сб. докладов конф. В 2-х томах. – Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ, 1999. – Т.2. С.415-424.
2. Разработка и исследования оболочечных сталей для твэлов ЯЭУ с тяжелым теплоносителем/*А.Е. Русанов, В.М. Троянов и др.*/Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях: сб. докладов конф. В 2-х томах. – Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ, 1999. – Т.2. С.678-685.
3. *Каиштанов А.Д.* Разработка и обоснование рекомендаций для выбора конструкционных сталей теплообменного оборудования реакторов на быстрых нейтронах с тяжелыми теплоносителями. Кандидатская диссертация, Санкт-Петербург, 2010 г. – 116 с.
4. Отработка методики определения потока металлических компонентов из конструкционных сталей реакторных установок/*П.Н. Мартынов, К.Д. Иванов и др.*/Тепломассоперенос и свойства жидких металлов: материалы конференции. – Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ, 2002. – Т.1 С. 145-151.
5. Оценка диффузионного выхода металлических компонентов из конструкционных сталей при их экспозиции в тяжелых теплоносителях/*С.В. Салаев, П.Н. Мартынов, К.Д. Иванов, О.В. Лаврова*/Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях: сб. тезисов конференции. – Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ, 2003. – С. 91-92.
6. Использование разработанной методики экспериментальной оценки диффузионного выхода металлических компонентов из сталей для изучения коррозионной стойкости этих сталей в тяжелых теплоносителях/*К.Д. Иванов, О.В. Лаврова, С.В. Салаев*/Технологические аспекты безопасности ЯЭУ с реакторами на быстрых нейтронах: тез. докл. межотраслевой тематической конференции. – Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ, 2005. – С. 117-118.

Поступила в редакцию 1.10.2011

УДК 621.311.25.004.7

Place and Role of Information Technologies at Decommissioning of NPP Power Units \V.L. Tikhonovsky, B.K. Bylkin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 8 pages, 1 illustration. – References, 6 titles.

The place and role of information technologies at decommissioning (DBD) (БДВЭ) have been analysed in the context of final stage of life cycle of NPP unit, as well as prospect of creation of unified information system (IS) DBD OAO «Concern Rosenergoatom» with use of three-dimensional modeling.

It was shown, that creation of IS DBD will provide not only system unitized solution of the problem of D process information информационного accompaniment, but also solution of more wide spectrum of tasks on control of engineering-technical information at the operation stage.

УДК 621.039.534.6

Estimation of Intensity of Consumption of Oxygen Constructional Steels of Primary Coolant Circuit Power Reactor Facility with Heavy Heat-Carriers \R.Sh. Askhadullin, K.D. Ivanov, V.M. Shelemetev, R.P. Sadovnichy; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 8 pages, 3 illustrations. – References, 6 titles.

On the basis of the executed experimental researches on influence of temperature and an oxygen mode of heavy liquid-metal heat-carriers on intensity of course of oxidizing processes of their interaction with various constructional steels the technique of numerical estimations of local and integrated streams of the oxygen spent for oxidation of internal surfaces of the first contour of reactor installations is developed.

Use of the given technique allows carrying out tentative estimations of results of long operation of constructional steels, to prove use optimum from the point of view mass carry oxygen modes of the heat-carrier, to form requirements to systems of technology of the heat-carrier.

УДК 621.039.51

Creation of the WWR-c Reactor Precision Model for Its Construction Optimisation and Following Optimisation of the ⁹⁹Mo and Other Radioisotope Productivity \V.V. Kolesov, O.Yu. Kochnov, Yu.V. Volkov, V.F. Ukraintsev, R.I. Fomin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 5 pages, 2 tables, 2 illustrations. – References, 3 titles.

For the WWR-C research reactor construction optimization for optimal ⁹⁹Mo and other radioisotope productivity a precision mathematical model of reactor was created. Monte-Carlo calculation with use of this model were carried out to determine reactor criticality, neutron fluxes at an experimental channels and control rod worth. It is shown that calculated values are in good accordance with experimental ones.

УДК 621.039.526: 621.039.83

Experience of development and operation of the process radiation facility «Polymer» at the Beloyarsk NPP \Yu.V. Nosov, V.I. Ogleznev, I.A. Chernov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 9 pages, 3 tables, 2 illustrations. – References, 5 titles.

Using spent control rods with europium absorber of the BN600 reactor as gamma sources, the Beloyarsk NPP together with the Obninsk branch of the Physical-Chemical Research Centre named after L.Ya. Karpov has designed and manufactured the process radiation facility «Polymer» and successfully operated it for 18 years. This paper presents main characteristics of the facility and summarizes the technical-organizational and economic issues of ensuring its safe operation.