

621.039.5

B74

ISSN0205—4671

РОССИЙСКИЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР
“КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ”

ВОПРОСЫ АТОМНОЙ НАУКИ И ТЕХНИКИ

СЕРИЯ:

Физика ядерных реакторов

ВЫПУСК

4

2008

РОССИЙСКИЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР "КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ"

**В О П Р О С Ы
А Т О М Н О Й
Н А У К И
И
Т Е Х Н И К И**

39511кф

РОССИЙСКИЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР
НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ СБОРНИК
СЕРИЯ:
ФИЗИКА ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ

НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ СБОРНИК

СЕРИЯ:

ФИЗИКА ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ

ИЗДАЕТСЯ С 1989 г.

ВЫПУСК 4

**ДИНАМИКА И БЕЗОПАСНОСТЬ
ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК**

ИЗДАЕТСЯ С 1971 г.

МОСКВА – 2008

Сборники "Вопросы атомной науки и техники" (ВАНТ) включены в Перечень ведущих изданий Высшей аттестационной комиссии (ВАК). Подписной индекс 66675 в каталоге "Издания органов научно-технической информации" Агентства "Роспечать". Выпуски "Динамика и безопасность ядерных энергетических установок" подготавливаются Российским научным центром "Курчатовский институт".

Статьи, поступающие в редакцию, рецензируются и публикуются в авторской редакции. Мнение членов редколлегии может не совпадать с точкой зрения авторов публикаций. При перепечатке и цитировании ссылка на сборник ВАНТ обязательна. Перепечатка материалов допускается только с письменного разрешения редакции.

Редакционная коллегия серии :

А.Ю. Гагаринский (главный редактор),
С.М. Зарицкий (зам. главного редактора), В.Ф. Колесов,
А.Е. Крошилин, Е.А. Старостина (отв. секретарь)

Редакционная коллегия выпуска :

В.В. Безлепкин, С.Н. Богдан, В.Н. Васекин, А.Д. Ефанов, О.Б. Клочков, А.И. Колесников, А.С. Коршунов, А.Е. Крошилин (гл. редактор), В.М. Махин, О.И. Мелихов, В.В. Пчелин (отв. секретарь выпуска), И.Д. Ракитин, Л.В. Смирнов (зам. гл. редактора), В.П. Соловьев, В.Ф. Стрижов, В.Н. Шулимов, Н.В. Щукин, К.И. Яковлев

В выпусках "Динамика и безопасность ядерных энергетических установок" публикуются материалы по следующим вопросам:

- математическое моделирование динамических процессов в ЯЭУ и их элементах;
- результаты экспериментов по устойчивости стационарных процессов и обоснованию математических моделей ЯЭУ;
- расчетные исследования управления, переходных и аварийных процессов;
- расчетные исследования устойчивости стационарных режимов ЯЭУ;
- диагностика систем и оборудования ЯЭУ;
- описания и аннотации программ расчетов динамики и экспериментальных исследований;
- расчетно-теоретическое обоснование работоспособности и ресурса оборудования ЯЭУ.

The issues of "Dynamics and Safety of Nuclear Power Plants" contain information on the following subjects:

- mathematical simulation of dynamic processes in NPP and their components;
- experimental results on the stability of stationary processes and substantiation of mathematical models of the NPP dynamics;
- computational analysis of controlling the transient and emergency processes;
- computational analysis of stability of NPP's stationary modes;
- diagnostics of NPP's equipment and systems;
- description and summaries of programs for dynamic analysis and experimental studies;
- computational and theoretical substantiation of serviceability and resource of the NPP equipment.

ФИЗИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

УДК 621.039.51

О нейтронно-физических моделях в тренажеростроении

А.А. Болсунов, ОАО "ВНИИАЭС", 109507, Москва, Ферганская ул., 25

Приведен краткий обзор развития нейтронно-физических моделей, использованных при разработке полномасштабных тренажеров АЭС с реакторами типов ВВЭР и РБМК, построенных в ОАО "ДЖЭТ" и ВНИИАЭС. Рассматриваются некоторые тенденции дальнейшего совершенствования моделей.

About neutron models for NPP training simulators. A.A. Bolsunov. The objective of this paper is short review of neutron models used in NPP simulators with VVER and RBMK in "GET" and VNIIAES. Some tendencies of further models modernization are described.

В проектировании и строительстве полномасштабных тренажеров для энергоблоков АЭС моделирование нейтронно-физических процессов в активной зоне реактора занимает одно из ключевых мест. Естественно, что моделирование подобных процессов должно опираться на хорошо развитые и глубоко проработанные теоретические и численные методы расчета. Однако применение самых передовых методов расчета в тренажерных моделях существенно ограничено. Дело в том, что характерной особенностью полномасштабного тренажера для энергоблока АЭС является требование его функционирования в условиях реального времени, когда все моделируемые динамические процессы должны происходить в тех же временных рамках, что и реальные процессы.

С другой стороны, выбор более простой модели (заведомо обеспечивающей режим реального времени) может вступать в конфликт с требованием обеспечения заданной точности расчета нейтронно-физических характеристик активной зоны. В такой ситуации многое решает фактор быстродействия применяемых вычислительных средств.

Поскольку за последние годы как быстродействие, так и оперативная память доступных вычислительных средств выросли на порядки, это отразилось и на сложности используемых моделей расчета. В табл. 1 продемонстрировано усложнение уже примененных в тренажеростроении моделей расчета по мере совершенствования и доступности вычислительной техники. Как видно из данных табл. 1, общее совершенствование расчета происходит по разным направлениям.

1. Геометрическое представление активной зоны реактора сводится к разбиению: одна расчетная точка на ТВС и несколько точек по высоте.

Для РБМК общее число точек выросло немалого от $1\ 884 \times 7$ до $1\ 884 \times 8$, что в первую очередь связано с переходом датчиков высотного контроля поля энерговыделения (ДКЭВ) с 7 высотных секций на 8. Таким образом, всего имеется порядка 15 000 расчетных точек.

Для ВВЭР число точек по высоте выросло в 2 раза, что обусловлено имевшимся запасом вычислительных мощностей по сравнению с моделью РБМК, так как 163×15 составляют всего 2 445 точек. С другой стороны, при гексагональной решетке для каждой расчетной ячейки ВВЭР решается несколько большее число уравнений (например, при нодальных методах расчета), обусловленное большим числом граней, на которых происходит расчет перетечек нейтронов.

Число точек для ВВЭР, в плане активной зоны равно 212, означает расчет с отражателем. Несомненно, что число расчетных точек будет только возрастать, так как это простейший путь повышения точности физического моделирования активной зоны.

2. Число групп запаздывающих нейтронов принято равным 6, константы соответствуют БНАБ-93. Характеристики групп запаздывающих нейтронов зависят от загрузки и выгорания активной зоны и насчитываются по программе GETERA [1].

В последнее время ведутся разработки более совершенных наборов групповых констант запаздывающих нейтронов, нацеленных на независимость их характеристик от нуклидного состава. В связи с этим в принципе можно планировать в будущем переход на усовершенствованный набор констант, хотя, например, в работе [2] отмечается, что проблема выбора набора параметров кинетики должна решаться исходя из целей решаемой задачи и поэтому однозначности решения (в смысле выбора того или иного набора констант) в этом вопросе нет.

Т а б л и ц а 1. Совершенствование нейтронно-физических моделей, использованных в построенных полномасштабных тренажерах

Год ввода	АЭС	Тип реактора, блок	Число групп нейтронов	Методика (QS – квазистатическое приближение, IQS – улучшенное QS)	Алгоритм	Число расчетных ячеек	Число групп: запаздывающие нейтроны / остат. энерговыделение
1992	ЗапАЭС	ВВЭР-1000 5-й блок	1	Конечно-разностная, адиабатика	Факторизация	163×7	6/11
1993	БалАЭС	ВВЭР-1000	1	Конечно-разностная, адиабатика	Факторизация	163×7	6/11
1995	АЭС Моховце	ВВЭР-440	1	Конечно-разностная, адиабатика	Факторизация	349×7	6/11
1996	КалАЭС	ВВЭР-1000	1	Конечно-разностная, IQS	Факторизация	163×7	6/11
1996	НВАЭС	ВВЭР-1000	1	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×7	6/11
1997	КурАЭС	РБМК-1000	1	Конечно-разностная, адиабатика	Пространственный синтез	1 884×7	6/11
1997	ХмАЭС	ВВЭР-1000 1-й блок	1,5	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×7	6/11
1999	Кольская АЭС	ВВЭР-440 4-й блок	2	Конечно-разностная, IQS	Факторизация	349×7	6/11
1999	СмАЭС	РБМК-1000	1	Конечно-разностная, адиабатика	Пространственный синтез	1 884×7	6/11
1999	АЭС Козлодуй	ВВЭР-1000 6-й блок	1	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×7	6/11
2000	ЮУАЭС	ВВЭР-1000 3-й блок	1	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×7	6/11
2003	КалАЭС	ВВЭР-1000 2-й блок	1,5	Конечно-разностная, $IQS, P2z$	Факторизация	163×7	6/11
2003	ЮУАЭС	ВВЭР-1000 1-й блок	1	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×7	6/11
2001	РовАЭС	ВВЭР-1000	2	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×7	6/11
2002	РовАЭС	ВВЭР-440	2	Конечно-разностная, QS	Факторизация	349×7	6/11
2002	ЗапАЭС	ВВЭР-1000 1-й блок	2	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×7	6/11
2004	ВолАЭС	ВВЭР-1000 1-й блок	2	Конечно-разностная, IQS	Факторизация	163×15	6/11
2006	АЭС Тиньянь	ВВЭР-1000 1-й блок	2	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×14	6/11
2007	БалАЭС	ВВЭР-1000 4-й блок	2	Нодальный метод, IQS	Факторизация	212×15	6/11
2007	АЭС Куданкулам	ВВЭР-1000 1-й блок	2	Конечно-разностная, QS	Факторизация	163×14	6/11
2008	АЭС Бушер	ВВЭР-1000 1-й блок	2	Нодальный или конечно-разностный, IQS	Факторизация	163×13	6/11
Начат	СмАЭС	РБМК-1000 3-й блок	2	Конечно-разностная, IQS	Прямой расчет	1 884×8	6/11
Начат	КурАЭС	РБМК-1000 2-й блок	2	Нодальный метод, IQS	Прямой расчет	1 884×8	6/11

3. Число групп осколков для расчета остаточного энерговыделения выбрано равным 11. В самых первых моделях применялся упрощенный алгоритм оценки остаточного энерговыделения, основанный на расчете динамиче-

ского изменения только среднего значения. В последующих моделях использовалась распределенная модель остаточного энерговыделения с динамическим пространственным расчетом в каждой из 11 групп.

4. Выгорание топлива не моделируется. Нестационарное отравление ксеноном и самарием моделируется в каждой расчетной точке в рамках выбранной нейтронно-физической модели.

5. Моделирование условий на внешней границе. Применяется альбедное условие для каждой энергетической группы нейтронов. Значения альбеда выбираются из условий наилучшего совпадения расчета распределения энерговыделения в тренажерной модели с проектным расчетом распределения энерговыделения в номинальных условиях. Естественно, что более точным было бы прямое моделирование отражателя, так как в этом случае реальные граничные условия сохранялись бы и при моделировании переходных режимов эксплуатации. Такой опыт получен на примере моделирования отражателя для ВВЭР-1000 в полномасштабном тренажере БалАЭС (4-й блок) и показал хорошую работоспособность в режиме реального времени.

6. Выбор числа энергетических групп. Первые тренажеры проектировались в одnogрупповом приближении. В этом приближении заведомо менее точно описываются эффекты реактивности, существенно зависящие от спектральных эффектов, зато такой подход позволял организовать расчет в реальном времени, так как он требует существенно меньших объемов расчетов и хранящихся в оперативной памяти констант.

Далее, как видно из табл. 1, применялось 1,5 групповое приближение. Этот термин в общем-то не принят в российской научной литературе, но в зарубежной иногда употребляется. Под 1,5 групповым приближением понимают двухгрупповое с пренебрежением перетечками в тепловой группе на основании того, что в большом тепловом реакторе

$$-\frac{D_2 \Delta \Phi_2}{\sum_{a2} \Phi_2} = \frac{D_2 B^2}{\sum_{a2}} \cong (2 \dots 8) \cdot 10^{-3} \ll 1$$

$$\text{и } \Phi_2(\mathbf{r}) \cong \frac{\sum_{a1}^{1+2}}{\sum_{a2}} \Phi_1(\mathbf{r}).$$

Тогда, подставляя $\Phi_2(\mathbf{r})$ в уравнение для быстрой группы, получают модифицированное одnogрупповое по $\Phi_1(\mathbf{r})$ уравнение, но с полноценными двухгрупповыми константами. Такой подход уводит расчет плотности теплового потока из итераций, благодаря чему обеспечивается некоторая оптимизация времени расчета.

Все последующие модели уже основываются на полном двухгрупповом приближении, которое, по всей видимости, вряд ли потребу-

ется пересматривать в ближайшем будущем. Хотя бы потому, что современные проектные расчеты параметров критичности, эффектов и коэффициентов реактивности, дифференциальных и интегральных эффективностей органов регулирования, трехмерных распределений мощности и пр. как для ВВЭР, так и для РБМК, выполняются на основе именно двухгрупповых моделей [3, 4].

7. Выбор модели нейтронно-физического расчета. Подавляющее большинство тренажеров снабжено моделями, использующими нестационарное диффузионное приближение (в предположении разделения переменных).

Некоторое своеобразие составили первые проекты с РБМК-1000, где применена модель пространственного синтеза, представляющая собой сочетание двумерного расчета (x, y) во всей активной зоне и 12-ти аксиальных расчетов в областях, окружающих датчики ДКЭВ. Все эти расчеты связаны между собой пространственными свертками сечений и в итоге формируют модель, достаточно информативную и успешно работающую во всех режимах за исключением некоторых быстропротекающих процессов с большими локальными возмущениями нейтронного поля.

Нестационарное диффузионное приближение использовалось в различных допущениях (табл. 1). Простейшим было адиабатическое приближение, при котором считают, что пространственное распределение предшественников запаздывающих нейтронов не отличается от распределения мгновенных нейтронов, и пренебрегают членами, содержащими временные производные [5].

В QS -приближении пространственному распределению запаздывающих нейтронов приписывается уже форма поля нейтронов, соответствующая предыдущему шагу расчета, без пренебрежения временными производными [5]. В IQS -приближении пространственное распределение запаздывающих нейтронов в каждой из 6 групп рассчитывается динамически, без упрощений, но также с применением допущения о разделении переменных на пространственную и временную составляющие.

Указанные приближения хорошо работают при медленных глобальных возмущениях и хуже описывают быстрые локальные возмущения. Поэтому пространственные задачи, связанные с достаточно быстрым изменением распределения мощности в активной зоне реактора, воспроизводятся с более значительными погрешностями. С такой ситуацией столкнулись разработчики полномасштабного трена-

жера РБМК-1000 КурАЭС (1-й блок) при локальном воздействии на активную зону стержней управления. При таком возмущении расчет в QS -приближении может давать слишком большой отклик поля нейтронов на перемещение органов регулирования на дальней относительно возмущения стороне активной зоны. Частично этот эффект объясняется некоторой недоинтерпретированностью пространственного решения. По этой причине в последующих тренажерных моделях РБМК начинает применяться методика прямого решения нестационарной задачи, при использовании которой такого эффекта не наблюдается.

Известно, что теория диффузии неточно описывает распределение нейтронов в областях с большими градиентами потока, например, вблизи стержней управления. Для улучшения описания локальных эффектов в некоторых моделях применено эффективное $P2$ приближение. Поскольку $P2$ приближение использует для описания распределения нейтронного потока 9 функций вместо одной при диффузионном приближении, то исходя из требований обеспечения режима реального времени реализована эффективная модель, в которой $P2$ приближение использовалось только для Z направления, а в XY направлении оставалось диффузионное приближение.

8. Стремление точнее описывать пространственное распределение энерговыделения (табл. 1) приводит далее к применению нодальных методов оценки токов перетечек между расчетными ячейками. В конечно-разностном подходе перетечки между ячейками представляются (обозначения общепринятые) в виде

$$\int_{V_k} [\nabla \bar{D}_g \nabla \bar{\Phi}_{g1}(\mathbf{r})]_k dV = - \sum_{m=1}^M \chi_{mk}^g (\bar{\Phi}_{gk} - \bar{\Phi}_{gm}), \quad (1)$$

где $\chi_{mk}^g = \text{const}$; $g = 1, 2$ – номер энергетической группы; $k = 1 \dots N$ – число ТВС в реакторе; $m = 1 \dots M$ – номера ТВС, соседних с k -й; h – шаг решетки, а ток для случая с расчетной точкой в центре кассеты, когда линия разрыва функций D и Σ совпадает с внешней границей ячейки, – в известном виде [6]

$$J_{mk}^g = -\text{const} \frac{\bar{D}_k^g \bar{D}_{km}^g (\bar{\Phi}_k^g - \bar{\Phi}_{km}^g)}{\bar{D}_k^g + \bar{D}_{km}^g} \frac{1}{h/2}.$$

При этом константа в выражении для тока определяется выбранным видом распределения плотности потока нейтронов внутри расчетной ячейки, поскольку вид распределения именно выбирается, а не рассчитывается. Например, при линейном представлении хода потока нейтронов внутри ячейки в виде

$$\Phi_k^g(x) = \Phi_k^{\text{гран}} + \frac{(\Phi_k^{\text{гран}} - \Phi_k^g)}{h/2} x$$

константа $\text{const} = 1$, а при нелинейной функции $\Phi_k^g(x)$ пусть эта зависимость будет синусоидальной с максимумом посередине ячейки размером h , т.е.

$$\Phi_k^g(x) = \Phi_k^{\text{гран}} + (\Phi_k^{\text{макс}} - \Phi_k^{\text{гран}}) \sin\left(\frac{\pi x}{2 h/2}\right),$$

тогда константа будет равна $(\pi/2)^2$. Если же в качестве распределения потока нейтронов в ячейке использовать синусоидальную зависимость с максимумом на границе ячейки, то для константы получим следующее выражение: $\text{const} = \pi^2/8$ и т.д. Вопрос применения того или иного представления о распределении потока нейтронов внутри ячейки решается либо произвольно, либо с привлечением дополнительной информации, на основании анализа которой можно сделать выводы о точности получаемых расчетов средних потоков нейтронов по ячейкам. Например, прямой подбор указанной const показывает, что точность расчета наилучшая при использовании $\text{const} \approx \pi^2/8$ (рассматривалась первая загрузка ВВЭР-1000 Бушер), что указывает на тот очевидный факт, что в среднем энерговыделение в ячейке неравномерно и имеет смещенный максимум.

В некоторых частных случаях конкретных задач, если имеется прецизионный расчет для уточнения тока перетечки, рассчитывают поправочные коэффициенты f_{km} для токов, например, в виде [7] $J_{mk}^g = -\bar{D}_k^g \frac{(\bar{\Phi}_k^g - \bar{\Phi}_{km}^g f_{km})}{h/2}$.

В нодальных подходах ход $\Phi^g(x)$ внутри ячейки уже не выбирается, а рассчитывается при решении двухячеечной задачи. Одномерное уравнение для этой задачи получают в процедуре так называемого поперечного интегрирования трехмерного стационарного уравнения диффузии. В общем виде поперечно интегрированное уравнение для гексагональной геометрии представляется следующим образом [8, 9]:

$$-D_g \frac{d^2 \Phi^g(x)}{dx^2} + \Sigma_r^g \Phi^g(x) = Q_f^g(x) + S^g(x), \quad \text{где}$$

Σ_r^g – макросечение увода,

$$\Phi^g(x) = \int_{-y(x)}^{+y(x)} \int_{-\Delta z}^{\Delta z} \varphi(x, y, z) dy dz, \quad (2)$$

$\mp y(x)$ есть поперечная граница рассматриваемой ячейки ($y(x) = \Delta y/2$ для квадратной решетки и $y(x) = (1 - |x|)/\sqrt{3}$ для гексагональ-

ной), а $Q_j^g(x)$ определено подобно (2). Выражение $S^g(x)$ имеет сложный вид и интерпретируется как поперечная утечка [9].

Решение системы таких уравнений для двухячеечной задачи проводится далее с тем или иным упрощением выражения $S^g(x)$, с различными аппроксимациями плотности потока нейтронов и поперечной утечки внутри ячейки. Обзоры методов решения двухячеечной задачи приведены, например, в работах [10, 11].

Отметим, что даже самые простые приближения уточняют определение средних по ячейкам потоков нейтронов. Например, в проектной программе БИПР-7/А для расчета ВВЭР-1000 учет перетечек тепловых нейтронов выполняется нодальным методом в приближении двух полупространств [3].

В случае простых аппроксимаций поперечной утечки $S^g(x)$, устойчиво работающих в условиях эксплуатации тренажера, можно показать, что перетечки между ячейками приводятся к виду, подобному конечно-разностному представлению (1), но немного более сложному, например:

– в варианте использования аппроксимаций “flat” (поперечная утечка постоянна) или “buckling” (предполагается, что поперечная утечка пропорциональна $\Phi^g(x)$)

$$[\nabla D_g \nabla \Phi_g]_k = - \sum_{m=1}^M (\chi_{mk1}^g \Phi_{gk} - \chi_{mk2}^g \Phi_{gm});$$

– в варианте использования квадратичной или комбинированной (аналитическое решение

плюс квадратичная аппроксимация – “analytic”) аппроксимаций член утечки можно привести к виду $[\nabla D_g \nabla \Phi_g]_k = - \sum_{m=1}^M (\chi_{mk1}^g \Phi_{gk} - \chi_{mk2}^g \Phi_{gm} + \chi_{mk3}^g)$, где все $\chi_{mkj} = \text{const}$, $j = 1 \dots 3$ – номер коэффициента.

Из приведенных формул представления утечки из ячейки видно, что повышение точности расчета происходит путем последовательного, все более точного описания члена утечки, в нашем случае через средние потоки нейтронов в ячейках.

Применение даже простых нодальных схем расчета в тренажерной модели для ВВЭР-1000 показывает хорошую эффективность метода. Например, в случае использования “flat” или “buckling” аппроксимаций точность расчета объемного распределения энерговыделения по сравнению с конечно-разностной схемой оценки токов перетечек относительно проектного расчета увеличивается приблизительно в 3 раза (табл. 2).

Условия на внешней границе в приведенных расчетах брались каждый раз наилучшие именно для проводимого расчета. При выборе одинаковых граничных условий возникал бы вопрос: из каких соображений их выбирать и к какому расчету выбранные условия окажутся ближе. В принципе в этих условиях эталонным был бы вариант расчета распределения энерговыделения по модели с отражателем.

Необходимо отметить, что наш опыт реализации различных приближений нодальных схем расчета показал, что наилучшую устойчи-

Т а б л и ц а 2. Сравнение точности расчета энерговыделения в различных приближениях относительно проектного расчета (ВВЭР-1000, 1-й блок, АЭС Бушер)

Первая нагрузка	Точность расчета мощности по ячейкам (163×13 точек) активной зоны, %				Точность расчета мощности по ТВС (163 шт.), %			
	Нодальный расчет (“buckling” приближение)	Нодальный расчет (“flat” приближение)	Нодальный расчет (“analytic” приближение)	Конечно-разностный расчет	Нодальный расчет (“buckling” приближение)	Нодальный расчет (“flat” приближение)	Нодальный расчет (“analytic” приближение)	Конечно-разностный расчет
Начало кампании (среднее отклонение)	2,3	3,4	2,5	6,8	1,8	3,1	2,0	6,2
Начало кампании (max отклонение)	8,4	10,5	8,4	19,0	4,2	7,4	5,5	14,5

вость в переходных режимах эксплуатации тренажера (режимы АЗ1, ускоренной разгрузки блока, выброс органов регулирования СУЗ, разрывы холодных и горячих ниток петель и пр.) демонстрируют более простые схемы организации расчета. Поэтому в сочетании с меньшими временными затратами на расчет эти схемы, на наш взгляд, на сегодняшний день более предпочтительны для реализации в полномасштабных тренажерах.

9. Способ решения системы линейных уравнений. Система линейных уравнений пространственной задачи решается итерационным способом по схеме Зейделя с оптимизацией по алгоритму верхней релаксации. Точные методы решения в нашей практике не нашли применения, как требующие много большего времени на расчет для выбранного числа расчетных точек. Хотя опыт использования точных расчетных методов имеется, так как решение систем уравнений в теплогидравлическом блоке расчета производится известным методом *LU* декомпозиции по алгоритму Краута с оптимизацией решения для расчетных матриц с размерами до приблизительно 1000×1000 . В данном случае такой подход очень удобен, поскольку неоднократно решается задача с произвольной правой частью.

10. Малогрупповой набор нейтронно-физических констант применяется в виде многопараметрических полиномиальных зависимостей для каждого типа ТВС с линейной аппроксимацией по выгоранию. Погрешность используемых сверток не превышает 1 %.

11. Временной расклад расчета. Принимаемое число итераций источника, достаточное для приемлемой точности сходимости решения, составляет от 5 до 20 итераций. При таком числе итераций гарантированно обеспечивается расчет в режиме реального времени.

Пример временной раскладки для тренажера РБМК-1000 3-го блока СМАЭС

Программа нейтронно-физического расчета вызывается 6 раз в секунду, число итераций источника при каждом вызове равно 10. Таким образом, если говорить о возможных возмущениях в активной зоне на временном отрезке в 1 с, то несколько условий для реакции на это возмущение у нас будет 6×10 итераций при расчете пространственной функции. Отметим, что расчетное время при использовании алгоритмов *QS*, *IQS* и прямого метода практически одно и то же при одинаковом числе итераций.

Временные затраты (в мс) по процессам распределяются следующим образом для модулей:

- обеспечения интерфейса с другими программами – 1,5
- подготовки констант для ТВС – 15,5
- подготовки расчета пространственной функции – 15,5
- расчета пространственной функции, 10 итераций – 46,5
- расчета пространственной функции, 15 итераций – 78,0
- расчета амплитудной функции – 0,3
- расчета остаточного энерговыделения – 1,0
- расчета отравления – 5,5
- подготовки констант для СУЗ, ДП, столба воды – 3,0

Поскольку выбранный вариант конфигурации тренажера применяет 12-ти фреймовое разбиение времени (секунды), то каждый вызов любого модуля должен укладываться в 1 фрейм, т.е. в $1/12$ с = 83,33 мс. Из приведенных оценок видно, что максимальное число итераций, которое можно использовать при данной конфигурации, равно приблизительно 15 (если не применять алгоритмов рассредоточенного по ряду фреймов расчета).

Пример временной раскладки для тренажера ВВЭР-1000 1-го блока Бушер

Программа нейтронно-физического расчета вызывается 10 раз в секунду. Выбранный вариант конфигурации тренажера использует 20-ти фреймовое разбиение, в этом случае 1 фрейм = $1/20$ с = 50 мс.

Временные затраты (в мс) по процессам распределяются следующим образом для модулей:

- обеспечения интерфейса с другими программами – 1,7
- подготовки констант для ТВС – 13,0
- подготовки расчета пространственной функции – 3,4
- расчета пространственной функции, 10 итераций – 19,6
- расчета пространственной функции, 20 итераций – 40,0
- расчета амплитудной функции – 0,1
- расчета остаточного энерговыделения и отравления – 1,2
- нодального расчета поправок к току нейтронов – 31,0

Из приведенных оценок видно, что вызовы модулей нодального расчета и расчета пространственной функции необходимо осуществлять в разных фреймах. В этом случае время расчета укладывается во фрейм.

Заключение

На примере реального процесса модернизации блока нейтронно-физических моделей,

привлекаемых к обслуживанию полномасштабных тренажеров для АЭС за последние 15 лет, показано, что идет закономерный процесс усложнения используемых методик и алгоритмов расчета активной зоны, в первую очередь связанный с ростом производительности вычислительной техники. На сегодняшний день сложилась следующая конфигурация нейтронно-физического расчета: двухгрупповое диффузионное приближение с нодальным пересчетом поправок к токам нейтронов и прямым расчетом пространственно-временной задачи итерационным методом. Такой подход удовлетворяет как заданной точности расчета, так и требованию обеспечения расчета в реальном режиме времени. По точности указанная модель приближается к проектным расчетам. В перспективе можно ожидать дальнейшее совершенствование моделей в направлениях увеличения числа расчетных точек, включения в расчет отражателя, применения более совершенных нодальных приближений, оптимизации итерационных методов и выработки алгоритмов расщепленного расчета.

Контактная информация: Болсунов Андрей Александрович, тел: (495)172-91-05, e-mail: bolsunov@get.vniiaes.ru

Список литературы

1. Белоусов Н.И., Бычков С.А., Марчук Ю.В., Пряничников А.В. Программа расчета гетерогенных ячеек и полаячеек ядерных реакторов (программа GETERA). ОФАП ЯР, РНЦ "КИ", № 00237, 1991.
2. Пинегин А.А., Шумский Б.Е. Экспериментальные погрешности и возможность их компенсации при определении эффективности аварийной защиты

и дифференциальной эффективности группы ОР СУЗ в реакторе ВВЭР-1000 // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 2007, вып. 1. – С. 76 – 89.

3. Программа "БИПР-7/А". Описание алгоритма. № 32/1-22-298 от 21.05.98. РНЦ "КИ".

4. Краюшкин А.В. и др. Верификация программы STEPAN для трехмерного нейтронно-теплогидравлического расчета РБМК. Отчет РНЦ "КИ" № 33-08/95, 1995.

5. Емельянов И.Я., Гаврилов П.А., Селиверстов Б.Н. Управление и безопасность ядерных энергетических реакторов. – М.: Атомиздат, 1975.

6. Шишков Л.К. Методы решений диффузионных уравнений двумерного ядерного реактора. – М.: Атомиздат, 1976.

7. Бычков А.А., Бабийцев М.Н., Дружинин В.Е. и др. Верификация программы WIMS8 на типовых полаячееках РБМК-1000 / XIV семинар по проблемам физики реакторов "Физические проблемы топливных циклов ядерных реакторов". Москва, 4 – 8 сентября 2006 г.

8. Lawrence R.D. The DIF3D Nodal Neutronics Option for Two- and Three-Dimensional Diffusion Theory Calculations in Hexagonal Geometry. ANL-83-1, Argonne National Laboratory (Mar. 1983).

9. Wagner M.R. Three-Dimensional Nodal Diffusion and Transport Theory Methods for Hexagonal-z Geometry // Nuclear Science and Engineering: 103, 377 – 391 (1989).

10. Shober R.A., Henry A.F. Nonlinear Methods for Solving the Diffusion Equation. ANL-78-51, Argonne National Laboratory (June 1978).

11. Батурин Д.М. Развитие методов повышенной точности для решения реакторных задач. Дисс. на соиск. учен. степ. к.ф.-м.н. – М.: МИФИ, 2002.

Статья поступила в редакцию 04 июня 2008 г.

Вопросы атомной науки и техники.

Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,

с. 3 – 9.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

УДК 539.124.6

Исследование взаимодействия диоксида урана с пироуглеродом в образцах микротвэлов при их импульсном облучении на реакторе БИГР

Г.П. Кустова, А.К. Лычагин, Т.В. Макарова, В.В. Сажнов, Н.А. Тесаловский, В.А. Устищенко, ФГУП "РФЯЦ-ВНИИЭФ", 607188, г. Саров Нижегородской обл., пр-т Мира, 37

Описан экспериментальный метод определения количества газообразного оксида углерода CO, образующегося в результате химического взаимодействия диоксида урана с пироуглеродом покрытия в микротвэлах (МТ) при импульсном облучении на реакторе БИГР. Представлены результаты для импульсов с различными параметрами.

The investigation of uranium dioxide and pyrolytic carbon interaction in coated fuel particles under pulse irradiation of the BGR reactor. G.P. Kustova, A.K. Lychagin, T.V. Makarova, V.V. Sazhnov, N.A. Tesalovsky, V.A. Ustinenko. The experimental method for quantity determination of gaseous carbon monoxide generated in chemical interaction between uranium dioxide and coating layer pyrocarbon in coated fuel particles under pulse irradiation of the BGR reactor is given. The results for pulses with different characteristics are presented.

Настоящая работа является продолжением работ [1] и [2], в которых представлены методы определения температуры МТ при воздействии нейтронного импульса реактора БИГР [3] и полученные с их использованием экспериментальные и расчетные результаты по стойкости МТ к импульсному нагреву. В исследованиях моделировались проектные и запроектные аварийные режимы создаваемого на международной основе модульного высоко-температурного газоохлаждаемого реактора ГТ-МГР [4].

Образцы, сохранившие целостность в ходе облучений, применялись для дальнейших исследований, среди которых изучение химического взаимодействия диоксида урана зерна с пироуглеродом буферного слоя. В результате этого процесса, протекающего при повышении температуры, образуются газообразные оксиды углерода CO или CO₂, рост давления которых в порах буферного слоя может (в комплексе с другими факторами) способствовать разрушению покрытий и повреждению примыкающей к МТ области матрицы.

Химическая стабильность ядерного топлива в нормальных и аварийных условиях служит одной из составляющих, которые влияют на уровень безопасности установки и ее ресурс. В связи с этим представляет интерес получить экспериментальные данные, позволяющие оценить интенсивность взаимодействия диоксида урана и углерода в МТ при воздействии нейтронных импульсов с разными параметрами. Информация может быть использована при разработке и совершенствовании расчетно-теоретических моде-

лей поведения МТ в условиях импульсного облучения и для оценки предполагаемого ресурса работы топлива на основе МТ.

1. Объекты исследования. Облучательные эксперименты

Исследовались МТ с зернами из диоксида урана (обогащение 36 % по изотопу урана-235) и четырехслойным покрытием из пироуглерода различной плотности и карбида кремния: диаметр зерна от 450 до 500 мкм, диаметр МТ от 900 до 980 мкм, масса МТ от 1,1 до 1,5 мг.

Облучения МТ проводились импульсами реактора БИГР. Исследования взаимодействия диоксида урана с углеродом выполнялись на образцах, не разрушившихся при облучении. Облучения проводились в двух вариантах: 1) у боковой поверхности активной зоны (а.з.) в графитовом блоке отражателя-замедлителя (БОЗ); 2) в центральном экспериментальном канале (ЦК) реактора в сборке, представляющей собой полиэтиленовый блок в оболочке из засыпного карбида бора.

Эксперименты у боковой поверхности а.з. рассматривались в работах [1, 2]. Схема размещения экспериментальной сборки при облучении в ЦК представлена на рис. 1. МТ располагались в циркониевой кассете внутри вакуумной стальной ампулы внутренним диаметром 10 мм и длиной 65 мм. Ампула помещалась в полиэтиленовый блок, окруженный оболочкой из карбида бора (для защиты топливных колец реактора от перегрева замедлившимися в полиэтилене нейтронами).

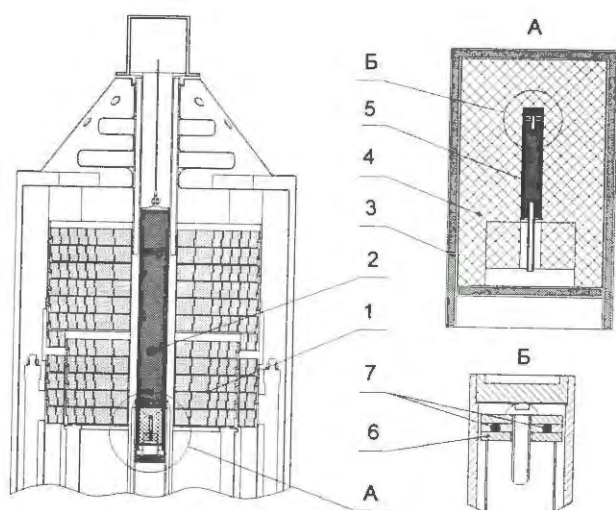


Рис. 1. Схема облучательного эксперимента при размещении МТ в ЦК: 1 – топливные кольца а.з. БИГР; 2 – контейнер ЦК; 3 – контейнер из карбида бора; 4 – полиэтиленовый блок; 5 – герметичная ампула; 6 – циркониевая кассета; 7 – МТ

Размещение объектов в ЦК реактора позволило получить более высокую мощность энерговыделения в кернах при облучении. Согласно проведенным измерениям плотность делений ядер урана-235 на облучательной позиции в ЦК приблизительно в 2 раза выше плотности делений в БОЗ у боковой поверхности а.з. В табл. 1 приведена информация по облучению МТ. Обозначения в таблице: Δt – длительность импульса мощности (ширина на полувысоте пика для импульса на мгновенных нейтронах); E – энергия, выделившаяся в кернах (по результатам активационных измерений). В настоящей статье номер опыта совпадает с номером образца.

Таблица 1. Параметры облучения образцов

№ опыта	Тип импульса:	Облучат. позиция:	Δt , с	E , Дж
1	на запазды- вающих нейтронах	графито- вый БОЗ у боковой поверхно- сти а.з.	2,0	6,5
2			0,7	6,8
3			0,7	6,2
4			0,7	6,6
5			0,6	7,7
6			0,6	7,4
7			0,8	6,7
8	на мгнов. нейтронах		$5,5 \cdot 10^{-3}$	4,0
9	на запазд. нейтронах	сборка В ₄ С + полиэти- лен в ЦК	2,0	15,1
10			2,0	16,1
11			2,0	15,6

Всего исследованы 11 микротвэлов: 10 – после воздействия импульса на запаздывающих нейтронах, один – на мгновенных нейтронах (опыт № 8). Из 11-ти образцов 8 облучались у боковой поверхности а.з. (эксперименты №№ 1...8), 3 – в ЦК (№№ 9...11).

2. Температура МТ

Температура в зоне протекания химической реакции является одним из параметров, определяющих интенсивность взаимодействия.

С помощью разработанной во ВНИИЭФ программы САФР [5] проводилось моделирование нестационарного поля температуры в МТ при облучении. Программа разработана в качестве блока расчета поведения топливных элементов в программе РАТВЭЛ расчета теплогидравлики и предназначена для определения физических параметров твэлов (вплоть до их разрушения) в экспериментах на исследовательских реакторах и аварийных ситуациях на энергетических реакторах.

Используемая расчетная модель процесса и методика проведения расчетов достаточно подробно изложены в работе [2]. На рис. 2...6 для некоторых экспериментов представлены характерные зависимости от времени температуры

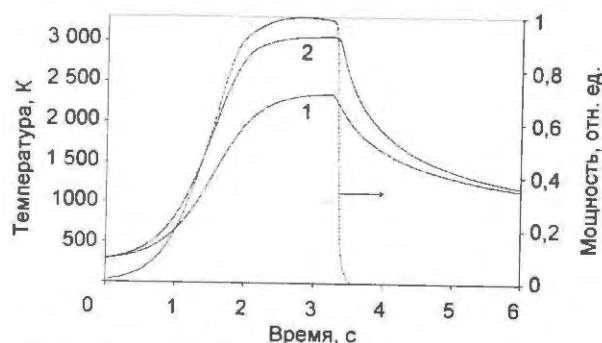


Рис. 2. Расчетные зависимости от времени температуры границы керна и форма импульса мощности для МТ, исследованных в опытах № 1 (кривая 1) и №№ 9...11 (кривая 2)

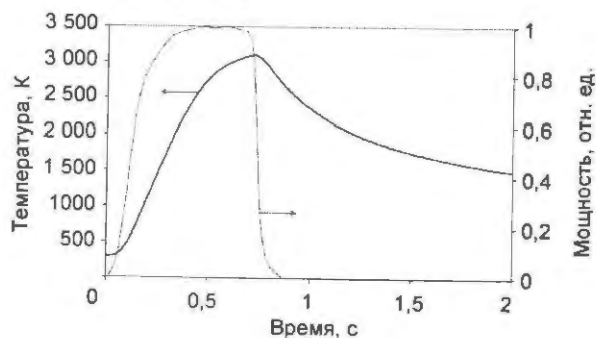


Рис. 3. Расчетная зависимость от времени температуры границы керна и форма импульса мощности для МТ, исследованного в опыте № 6

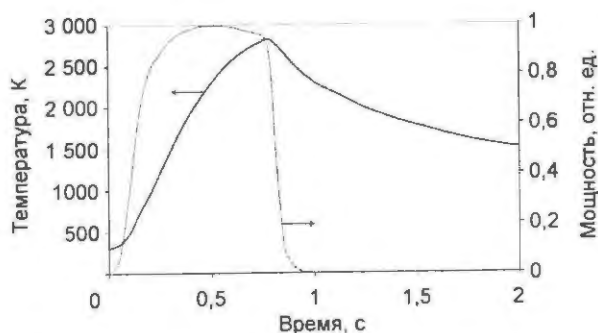


Рис. 4. Расчетная зависимость от времени температуры границы зерна и форма импульса мощности для МТ, исследованного в опыте № 3

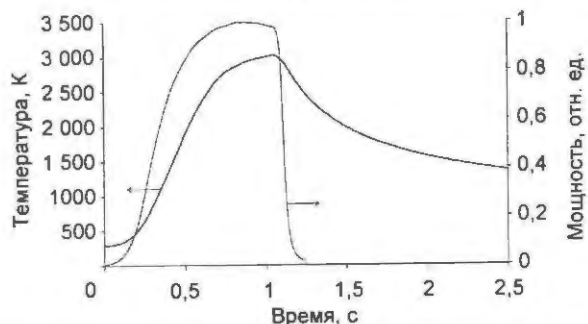


Рис. 5. Расчетная зависимость от времени температуры границы зерна и форма импульса мощности для МТ, исследованного в опыте № 7

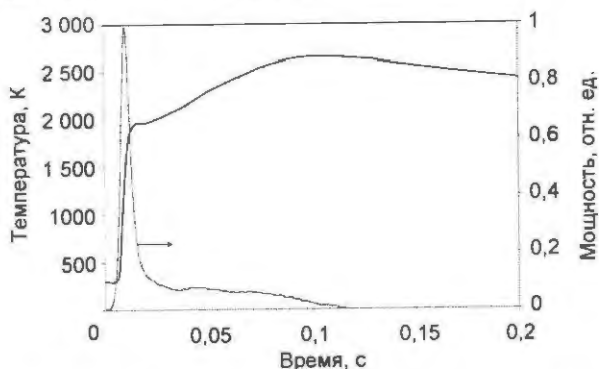


Рис. 6. Расчетная зависимость от времени температуры границы зерна и форма импульса мощности для МТ, исследованного в опыте № 8

на границе зерна и мощности тепловыделения в зерне, нормированной на максимальное значение.

3. Эксперименты по обнаружению оксида углерода CO

Образец МТ, подвергшийся импульсному облучению и сохранивший целостность, помещался в герметичную экспериментальную ампулу специальной конструкции.

За счет механического разрушения образца обеспечивался выход газообразных компонентов, содержащихся в порах слоев покрытий, в объем экспериментальной ампу-

лы, заполненной высокочистым гелием для обеспечения отбора проб. Далее проводился анализ образовавшейся смеси методами газовой хроматографии.

Экспериментальная ампула. Сборка для исследования (рис. 7) представляет собой герметичный стальной контейнер, состоящий из цилиндрического корпуса 1 (внутренний диаметр 38 мм, толщина стенки 2 мм), дна специальной формы и крышки 2, присоединяемой через фланец. На крышке расположена трубка 3 с запорным вентилем (на рисунке не изображен) для выполнения операций вакуумирования, заполнения гелием и отбора газовых проб для анализа.

Внутри ампулы вертикально размещена наковальня 4, выполненная в виде единой детали с дном и имеющая цилиндрическое углубление на верхнем торце. Углубление диаметром 10 мм и глубиной 15 мм служит для размещения МТ 6. В боковой поверхности наковальни предусмотрено сквозное отверстие 7 для выхода газа из углубления в основной объем ампулы.

Внутри ампулы через крышку введен шток 5, который может по скользящей посадке перемещаться в углублении наковальни до контакта с его дном. Шток предназначен для разрушения образца. По верхней, расположенной вне объема ампулы, части штока производится удар, при этом шток перемещается и достигает дна углубления. Герметизация в месте ввода штока в ампулу осуществляется посредством сильфона 8, также обеспечи-

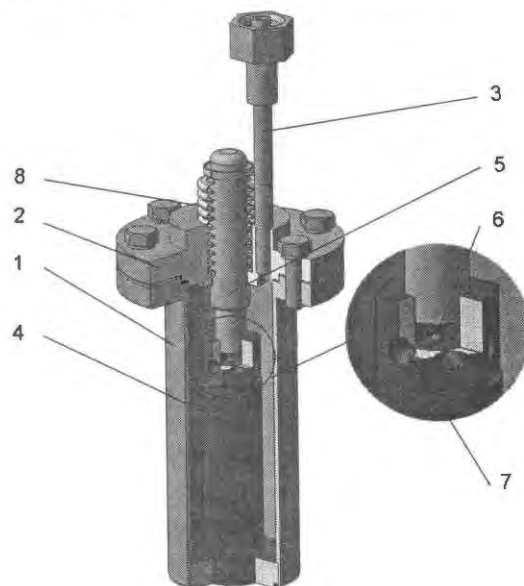
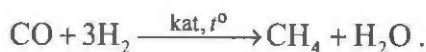


Рис. 7. Экспериментальная сборка: 1 – корпус, 2 – крышка, 3 – трубка для подключения, 4 – наковальня, 5 – шток, 6 – МТ, 7 – отверстие, 8 – сильфон

вающего требуемую подвижность штока относительно крышки 2 и возврат штока в исходное положение за счет силы упругости.

На этапе проектирования сборки проведены варианты расчеты, направленные на определение оптимального значения объема ампулы. Оно выбиралось на основании предполагаемого количества газа в МТ, предельных значений чувствительности, обеспечиваемых применяемыми методиками анализа для различных компонентов, а также исходя из требований к необходимому количеству газа в отдельной пробе и общему числу проб. В результате выбранная величина внутреннего объема ампулы равнялась 100 см^3 . Для проведения эксперимента ампула заполнялась гелием. Объем гелия, приведенный к нормальным условиям, составлял от 80 до 90 см^3 .

Метод газовой хроматографии. Определение содержания монооксида углерода (СО) проводилось методом реакционной газовой хроматографии [6]: СО отделяли от сопутствующих компонентов на двухметровой хроматографической колонке с молекулярными ситами СаА, а затем при прохождении над ни хромовым катализатором при температуре $\sim 340^\circ \text{C}$ конвертировали в метан CH_4 :



Детектирование CH_4 осуществлялось пламенно-ионизационным детектором. Предел обнаружения объемных долей метана составил $\sim 6 \cdot 10^{-5} \%$, что приблизительно в 100 раз ниже, чем при прямом определении СО катарометром (детектором по теплопроводности).

Определение содержания диоксида углерода (CO_2) проводилось методом газодсорбционной хроматографии [6] на колонке, заполненной поропаком Q, с использованием катарометра. Предел обнаружения объемных долей CO_2 составил $\sim 5 \cdot 10^{-3} \%$.

Содержание компонентов рассчитывалось методом абсолютной многоточечной градуировки по искусственным газовым смесям. Относительная погрешность определения концентрации не превышала 15 %.

4. Экспериментальные результаты

В ходе экспериментов для повышения достоверности получаемых результатов сначала отбиралась проба газа без разрушения образца и проводился ее анализ на содержание оксидов углерода. Затем образец разрушался и произво-

дились отбор и анализ рабочих проб. Во всех экспериментах анализ газа до разрушения образцов показал отсутствие оксидов углерода в пределах указанных значений чувствительности.

Результаты анализа газовых проб, отобранных после разрушения облученных образцов, на содержание монооксида углерода представлены в табл. 2 (нумерация опытов совпадает с данными табл. 1). Диоксид углерода (CO_2) в пределах чувствительности примененной методики обнаружен не был – количество не превышает $(1...2) \cdot 10^{15}$ молекул.

Таблица 2. Результаты определения содержания монооксида углерода (СО) в облученных МТ

№ опыта	Количество молекул СО, 10^{16}
1	0,6
2	1,2
3	1,1
4	2,2
5	1,4
6	1,7
7	1,9
8	1,9
9	1,3
10	3,0
11	2,6

Во всех опытах проводились отбор и анализ двух проб на содержание монооксида углерода (СО). Различие между их результатами по концентрации СО составляло не более 5 %. В табл. 2 приведены значения числа молекул, рассчитанные по среднему между двумя пробами значению концентрации.

Проведенный анализ на содержание монооксида углерода (СО) в необлученных МТ показал его отсутствие в пределах чувствительности методики измерения. Это свидетельствует о том, что образование СО в детектируемых количествах является, вероятно, результатом процессов, протекающих в образцах при облучении.

Полагая, что взаимодействие диоксида урана с углеродом происходит согласно уравнению $\text{UO}_2 + 4\text{C} \rightleftharpoons \text{UC}_2 + 2\text{CO} \uparrow$, можно на основании экспериментальных результатов оценить долю прореагировавших молекул диоксида урана: она составляет $\sim 1 \%$. Это соответствует полному превращению диоксида в пределах приповерхностного слоя зерна толщиной $\sim 1 \text{ мкм}$, т.е. существенно меньшей размера зерна.

Заключение

Представлены экспериментальный метод и результаты определения количеств газообразного оксида углерода CO, образующегося в образцах МТ в результате облучения на импульсном ядерном реакторе БИГР. В исследованиях использовались образцы МТ с кернами из диоксида урана и четырехслойным покрытием.

Исследованы одиннадцать МТ, из которых один подвергся облучению импульсом на мгновенных нейтронах (ширина 5,5 мс на полувысоте пика мощности, энерговод 4,0 Дж в керн), остальные десять – облучению импульсами на запаздывающих нейтронах (длительность от 0,6 до 2,0 с, энерговод от 6 до 16 Дж в керн). Зависимость температуры от времени на границе “кern – буферный слой” рассчитывалась по программе SAFR.

Для проведения исследований разработано и изготовлено экспериментальное устройство, обеспечивающее разрушение исследуемых МТ в атмосфере гелия и отбор газовых проб для проведения хроматографического анализа. Проведены измерения концентрации монооксида углерода по аттестованной методике анализа, основанной на реакционной газовой хроматографии.

Количество молекул монооксида углерода (CO), образующегося в результате однократного облучения МТ нейтронными импульсами реактора БИГР, составляет по экспериментальным данным $(1...3) \cdot 10^{16}$ молекул. Получено, что в необлученных образцах оксиды углерода отсутствуют или их количество меньше преде-

ла чувствительности методики $\sim 1 \cdot 10^{15}$ молекул).

Работа выполнена при финансовой поддержке проекта МНТЦ № 3119.

Контактная информация – Устиненко Василий Антонович, тел. 8(831-30)2-85-27.

Список литературы

1. Устиненко В.А., Богданов В.Н., Горбунов В.В. и др. Расчетно-теоретические и экспериментальные методы определения температуры микротвэлов в экспериментах на ИЯР БИГР // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 2006, вып. 2, с. 19 – 23.
2. Устиненко В.А., Лычагин А.К., Софронов В.Н. и др. Исследования образцов микротвэлов в импульсных экспериментах на реакторе БИГР // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 2007, вып. 2, с. 3 – 12.
3. Кувшинов М.И., Колесов В.Ф., Воинов А.М., Смирнов И.Г. Аперiodический импульсный реактор БИГР // ВАНТ. Сер. Импульсные реакторы и простые критические сборки, 1988, вып. 1, с. 3 – 12.
4. Kiryushin A.I., Kodochigov N.G., Kouzavkov N.G. et al. Project of the GT-MHR high-temperature helium reactor with gas turbine // Nucl. Engng. Design, 1997, v. 173, p. 119 – 129.
5. Самигулин М.С., Воронова О.А., Иванова Г.Г. и др. Программа РАТВЭЛ для численного моделирования аварий на ядерных энергетических установках // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 1997, вып. 2, с. 24 – 33.
6. Березкин В.Г., Татаринский В.С. Газохроматографические методы анализа примесей. – М.: Наука, 1970.

Статья поступила в редакцию 22 июля 2008 г.
Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,
с. 10 – 14.

ГИДРОДИНАМИЧЕСКИЕ, ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ И ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ЖИДКИХ МЕТАЛЛОВ В ЯЭУ

УДК 66.048.541 (088.8)

Гидродинамические проблемы технологии ТЖМТ в РУ петлевой и моноблочной конструкций

В.А. Гулевский, Ю.И. Орлов, А.Д. Ефанов, П.Н. Мартынов, Ю.Д. Левченко, В.В. Ульянов, ФГУП "ГНЦ РФ-ФЭИ", 249033, г. Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1

Исследовано влияние гидродинамики контуров циркуляции тяжелых жидкометаллических теплоносителей (ТЖМТ) Рb и Рb-Bi реакторных установок (РУ) петлевой, усовершенствованной петлевой и моноблочной конструкций на условия реализации и эффективность важнейших мероприятий технологии теплоносителя (ТТ): водородной очистки и контроля концентрации растворенного в теплоносителе кислорода. Показано, что изменение конструкции циркуляционных контуров, проводимое с целью улучшения экономики и повышения безопасности установок, приводит к появлению дополнительных требований к процессам и устройствам ТТ.

Hydrodynamic problems of heavy liquid metal coolant in loop-type and monoblock-type reactor installations. V.A. Gulevsky, Yu. I. Orlov, A.D. Efanov, P.N. Martynov, Yu. D. Levchenko, V.V. Ul'yanov. Influence of hydrodynamics of loops with heavy liquid metal coolants (Pb and Pb-Bi) reactor installations of the loopback, advanced loopback and monoblock type on conditions of realization and efficiency of the major actions of coolant technology is investigated: hydrogen clearing and the control of concentration of the oxygen dissolved in the coolant. Change of a design of loops, spent with the purpose of improvement of economy and increase of safety of installations is shown, that, leads to occurrence of additional requirements to processes and devices of coolant technology.

Для безопасной эксплуатации циркуляционных контуров с ТЖМТ Рb, Рb-Bi требуется поддержание чистоты ТЖМТ и поверхностей контуров, а также коррозионно-эрозионной стойкости конструкционных материалов. Это требование обеспечивается применением ТТ, включающей ряд процессов, важное место среди которых занимают [1] водородная очистка контура и контроль содержания растворенного в ТЖМТ кислорода.

В XX веке создано большое количество циркуляционных контуров с ТЖМТ – экспериментальных и для РУ. Практически все они имели петлевую конструкцию, применительно к которой разработаны условия и устройства для проведения процессов ТТ. В настоящее время проводится разработка ряда новых установок (РУ, ускорительно-управляемых (ADS) и др.). Они в основном имеют усовершенствованную петлевую или моноблочную конструкции. Использование их позволяет уменьшить габариты и вес, а самое главное повысить безопасность установок нового поколения. Вместе с тем анализ возможностей применения для них ТТ выявил затруднение или отсутствие возможности использования разработанных условий и устройств реализации процессов. Выявленные затруднения определяются во многом особенностями гидродинамики контуров циркуляции ТЖМТ новых установок.

1. Конструктивные особенности РУ

На рис. 1...3 приведены принципиальные технологические схемы контуров установок петлевой, усовершенствованной петлевой и моноблочной конструкций. Циркуляционный контур РУ петлевой конструкции с паропроизводящей установкой (ППУ) БМ-40/А (рис. 1) содержит следующие узлы и оборудование [2]: активную зону (а.з.) 1; два главных циркуляционных насоса (ГЦН) 2 с напором $H = 2,4$ МПа; два парогенератора (ПГ) 3; бак 5, служащий компенсатором объема ТЖМТ при изменениях температуры, в котором размещены два вспомогательных насоса (ВН) 4 с вентилями 6,

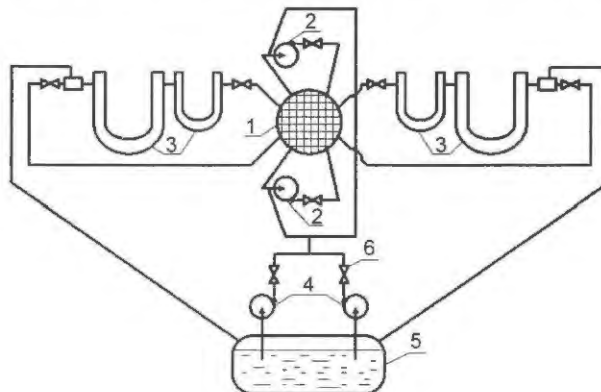


Рис. 1. Принципиальная технологическая схема РУ петлевой конструкции: 1 – а.з., 2 – ГЦН, 3 – ПГ, 4 – ВН, 5 – компенсатор объема, 6 – вентиль

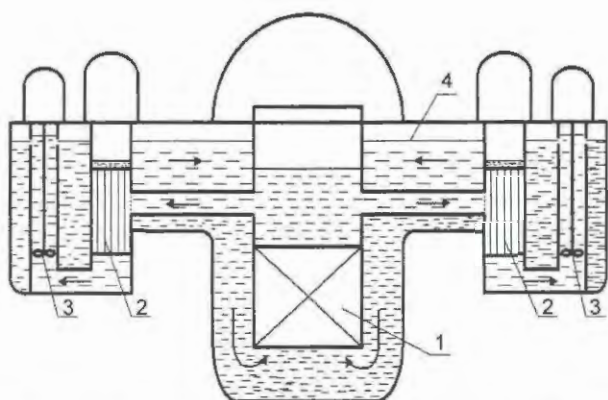


Рис. 2. Принципиальная технологическая схема РУ усовершенствованной петлевой конструкции: 1 – а.з., 2 – ПГ, 3 – ГЦН, 4 – свободный уровень ТЖМТ

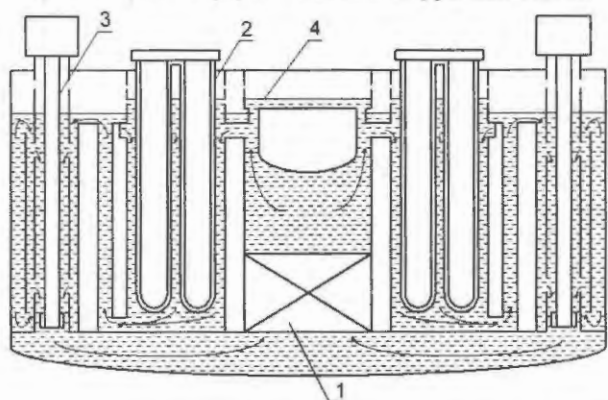


Рис. 3. Принципиальная технологическая схема РУ моноблочной конструкции: 1 – а.з., 2 – ПГ, 3 – ГЦН, 4 – свободный уровень ТЖМТ

обеспечивающие противокавитационный подпор ГЦН и возврат протечек ТЖМТ в контур; газовую систему для поддержания давления защитного газа He над свободными поверхностями ТЖМТ. Площадь свободных поверхностей ТЖМТ $S \sim 1 \text{ м}^2$.

Оборудование контура (а.з., ПГ, ГЦН, арматура и т.д.) размещено в отдельных корпу-

сах, которые соединяются короткими трубопроводами. При работе РУ отвод тепла от а.з. осуществляется принудительной циркуляцией ТЖМТ по двум петлям, каждая из которых содержит свой ГЦН, ПГ и общие для петель а.з. и бак (компенсатор объема) с ВН возврата протечек ТЖМТ. Скорость течения ТЖМТ $v \geq 1 \text{ м/с}$.

Циркуляционный контур РУ БРЕСТ-ОД-300 усовершенствованной петлевой конструкции (рис. 2) содержит следующие элементы [3]: а.з. 1, четыре ПГ 2, четыре ГЦН 3, газовую систему (защитный газ Ag). Отвод тепла от а.з. осуществляется принудительной циркуляцией ТЖМТ по четырем петлям, каждая из которых включает свой ГЦН, ПГ и общую для всех петель а.з.

БРЕСТ-ОД-300 характеризуется наличием участков с малыми значениями скоростей ТЖМТ (в каналах между ГЦН и а.з. $v \approx 0,2 \text{ м/с}$, в опускном участке на входе в а.з. $v \approx 0,3 \text{ м/с}$); наличием трех свободных уровней 4 ТЖМТ общей площадью $S > 100 \text{ м}^2$; значительной протяженностью (2...10 м) каналов с горизонтальными, подъемными и опускными течениями ТЖМТ; отсутствием арматуры и ВН; малым напором ГЦН ($H \approx 0,2 \text{ МПа}$).

Циркуляционный контур РУ СВБР [4] моноблочной конструкции (рис. 3) состоит из а.з. 1, ПГ 2 (12 шт.), ГЦН 3 (2 шт.), газовой системы (защитный газ Ag). Циркуляция ТЖМТ между а.з., ПГ и ГЦН осуществляется внутри единого корпуса без использования трубопроводов и арматуры. РУ СВБР также имеет значительные свободные уровни 4 ТЖМТ.

Основные технические характеристики контуров рассмотренных РУ сведены в табл. 1. Как видно из рис. 1...3 и данных табл. 1, конструкция и гидродинамика контуров циркуляции

Таблица 1. Основные технические характеристики РУ

№	Характеристики	ППУ БМ-40А	БРЕСТ-ОД-300	СВБР-75
1	Компоновка установки	Петлевая	Усовершенствованная	Моноблок
2	Объем ТЖМТ, м^3	~ 3,5	740	17
3	Расход ТЖМТ через а.з., $\text{м}^3/\text{час}$	930	14 000	3 492
4	Количество ГЦН, шт.	2	4	2
5	Напор главных насосов, МПа	2,4	~ 0,2	~ 0,2 *
6	Минимальная скорость теплоносителя, м/с	1	~ 0,2 *	~ 0,2 *
7	Площадь свободных поверхностей ТЖМТ, м^2	~ 1 *	> 100 *	~ 10 *
8	Характерная длина участков течения ТЖМТ, м			
	– горизонтальных;	1 *	4 *	1 *
	– подъемных и опускных	1 *	10 *	5 *
9	Количество ВН	2	0	0

* Значение параметра служит грубой (но достаточной для дальнейшего анализа) оценкой, выполненной с использованием чертежей и технических данных из приведенной литературы.

ТЖМТ существенно различаются. Рассмотрим, как влияют эти различия на возможности реализации основных процессов ТТ.

2. Водородная очистка

1. Физико-химические и гидродинамические основы. При заполнении теплоносителем и эксплуатации контура в нем возможно образование загрязнений, образующихся в основном в результате взаимодействия теплоносителя с кислородом воздуха. Кислород попадает в контур при разгерметизации последнего в холодном или разогретом состоянии. При разгерметизациях разогретого контура кислород непосредственно взаимодействует с зеркалом теплоносителя, а при разгерметизациях холодного – сорбируется поверхностями контура и теплоносителя. В дальнейшем при разогреве контура кислород десорбируется и окисляет теплоноситель. При этом образуются твердые оксиды, которые отлагаются на поверхностях контура и зеркале теплоносителя. Отложения могут блокировать теплопередающие поверхности, нарушать работу насосов, арматуры, увеличивать гидравлическое сопротивление трактов и т.д.

Как правило, отложения больше всего содержат свинец (для контуров с жидким свинцом) и компоненты эвтектики свинец и висмут (для контуров со сплавом свинец-висмут). Оксиды свинца и компонентов конструкционных материалов (в основном железа) присутствуют в отложениях в значительных количествах. Соотношение свинца (или компонентов эвтектики), оксидов свинца и железа в различных видах отложений может сильно изменяться, но сохраняются их характерные особенности. Прежде всего, несмотря на высокую массовую долю свинца (или компонентов эвтектики), отложение – это нетранспортируемая, неперекачиваемая масса сложного состава, блокирующая самые разные участки циркуляционного контура. Роль основного связующего вещества в отложениях играет оксид свинца. Именно он с примесью оксидов компонентов конструкционных материалов обеспечивает пористую пространственную структуру, внутренние объемы которой (ячейки) заполнены неокисленными свинцом или компонентами эвтектики.

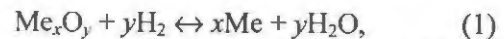
Ликвидация указанных отложений проводится при помощи водородной очистки, результатом которой является извлечение свинца или компонентов эвтектики из отложений. При этом отложения разрушаются, а свинец и висмут возвращаются в теплоноситель. Водородная очистка проводится при помощи газовых

смесей $H_2-H_2O-He(Ar)$, которые могут подаваться в контур двумя способами: 1) только в газовый объем контура; 2) одновременно в газовый объем контура и непосредственно в циркулирующий поток ТЖМТ.

В первом случае водород взаимодействует с отложениями, присутствующими только на свободных поверхностях теплоносителя. Во втором газовая смесь может разноситься по всему контуру, а водород взаимодействовать с отложениями во всех частях контура. Поэтому водородная очистка, организованная 2-м способом, является более эффективной.

При водородной очистке протекают следующие процессы:

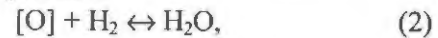
а) водородное восстановление металла (Me) из оксидов (Me_xO_y) в отложениях на поверхностях теплоносителя и конструкций контура по реакции



приводящее к разрушению отложений и последующему увлечению их частиц потоком ТЖМТ;

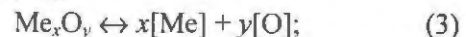
б) водородное восстановление Me по реакции (1) из оксидных образований, циркулирующих вместе с теплоносителем;

в) извлечение из теплоносителя растворенного кислорода по реакции



где [O] – растворенный кислород;

г) растворение в раскисленном теплоносителе оксидов из отложений на поверхностях и оксидных образований, циркулирующих вместе с теплоносителем:



д) механическое разрушение отложений на поверхностях контура за счет усиления динамического воздействия на них двухкомпонентного потока. Усиление динамического воздействия происходит вследствие возникновения дополнительных (по сравнению с однокомпонентным потоком) тангенциальных и нормальных напряжений вблизи твердых поверхностей загрязнений.

Процессы а)...г) подчиняются диффузионной кинетике, при которой скорость межфазового перехода вещества определяется уравнением

$$-dm/dt = KSF, \quad (4)$$

где m – масса исходного продукта реакции в момент t ; S – площадь реакционной поверхности; F – движущая сила процесса [$F = P_{H_2} - P_{H_2}^0$ для процессов а) и б); $F = a - a^0$ для процесса в); $F = a_{Me_xO_y} - a$ для процессов г);

$P_{H_2}, P_{H_2}^0$ – парциальные давления H_2 в газовой смеси $H_2-H_2O-He(Ar)$ и парциальное равновесное давление H_2 в реакции (1); $a-a^0$ – термодинамическая активность кислорода в раскисляемом теплоносителе и теплоносителе, равновесном со смесью $H_2-H_2O-He(Ar)$; $a_{Me_xO_y}$ – термодинамическая активность кислорода в теплоносителе, равновесном с Me_xO_y ; K – коэффициент массоотдачи, равный

$$K \sim D/\delta, \quad (5)$$

где D – коэффициент диффузии, δ – толщина диффузионного слоя.

Из (5) видно, что при прочих равных условиях значения K зависят от толщины диффузионного слоя, который в свою очередь определяется гидродинамической обстановкой вблизи реакционной поверхности. Чем быстрее движение теплоносителя относительно отложения или газового пузырька, тем меньше толщина δ и больше величина K и соответственно скорость процесса.

Гидродинамика контура влияет также на многие другие параметры и процессы, определяющие эффективность водородной очистки. Для доказательства этого утверждения рассмотрим основные особенности формирования и дальнейшего поведения двухкомпонентного потока “ТЖМТ-газ”. После введения газа в поток ТЖМТ протекают процессы сепарации газа, дробления и агломерации газовых пузырей.

2. Сепарация газа из объема ТЖМТ в газовую систему контура является, с одной стороны, полезным, а с другой стороны, вредным процессом. Полезность сепарации определяется следующим:

- при сепарации газа в газ контура за счет эффекта флотации выносятся частички загрязнений. При этом ТЖМТ очищается от вредных примесей, которые концентрируются на его свободной поверхности и реагируют с водородом по реакции (1);

- при сепарации газа из контура выносятся водяной пар как продукт реакции (1), замедляющий процесс водородного восстановления Me ;

- при водородной очистке значительное повышение объемного газосодержания $\alpha_r > 1...3$ об. % недопустимо из-за чрезмерного повышения уровня ТЖМТ. Сепарация газа способствует выведению газа из контура и тем самым снижению уровня ТЖМТ.

Вред сепарации заключается главным образом в ее противодействии захвату и транспортировке газа теплоносителем, т.е. в созда-

нии затруднений доставке водорода во все участки циркуляционного контура.

На процесс сепарации огромное влияние оказывает скорость всплытия газовых пузырей. Всплывание газовых пузырей в различных жидкостях исследовалось в большом количестве экспериментальных и теоретических работ. Отличительной особенностью исследований этого процесса в ТЖМТ является необходимость учета ряда факторов, а именно:

- значительное изменение статического давления при всплытии газового пузыря в слое ТЖМТ, вызываемое этим увеличением объема пузыря и изменение его геометрии;

- существенная разница между плотностями ТЖМТ и газа, позволяющая принимать разность этих плотностей равной плотности ТЖМТ;

- большое значение коэффициента поверхностного натяжения ТЖМТ (примерно на порядок превышающее это значение для других жидкостей) и соответственно большие значения давления газа внутри пузырька, обусловленные силами поверхностного натяжения;

- наличие поверхностно-активных веществ на границе раздела “ТЖМТ-газовая компонента”, что, с одной стороны, стабилизирует сформированные в объеме ТЖМТ пузыри, а с другой, препятствует образованию новых границ раздела и формированию мелкодисперсной газовой фазы.

Соотношение этих факторов в настоящее время не выявлено. Некоторое представление о влиянии отмеченных параметров на особенность всплытия газовых пузырьков в жидких металлах может дать критериальный анализ [5].

На рис. 4 представлена зависимость скорости всплытия пузырей в жидких стали и свинце от радиуса r пузырька, откуда видна особенность движения газовых пузырей в жидком свинце по сравнению с движением пузырей в жидкой стали. При ламинарном движении (восходящая ветвь кривой) скорость движения пузырьков в жидком свинце превышает скорость их движения в жидкой стали, а в области турбулентного режима (горизонтальная ветвь кривой) несколько меньше. Однако скорость пузырьков во всех случаях не превышает 0,5 м/с для пузырьков радиусом менее 10 мм. В настоящей работе не приводится зависимость скорости всплытия пузырьков газа в расплаве $Pb-Bi$. Отметим лишь, что она близка к вышеприведенной для свинца.

3. Дробление газовой фазы турбулентными пульсациями в потоке ТЖМТ. При нахождении газовой фазы в турбулентном потоке жидкости



Рис. 4. Изменение скорости U всплытия газовых пузырей в зависимости от радиуса r пузыря в жидких свинце и стали

она может дробиться под действием турбулентных пульсаций. Этот эффект определяется тем, что в турбулентном потоке скорость жидкости изменяется от точки к точке. Скорость жидкости у поверхности газовой фазы в двух ее точках также будет различной. Следовательно, на поверхности газовой фазы будут действовать разные динамические напоры в различных ее областях, что при определенных условиях может приводить к деформации и дроблению легкой фазы.

Размер пузырьков, образующихся за счет дробления в потоке жидкости, почти обратно пропорционален локальной скорости в потоке и зависит от масштаба турбулентности. А.Н. Колмогоровым предложено выражение для критического радиуса капли, образующейся в потоке несмешивающихся жидкостей, которое с допущениями может быть использовано для оценки размеров газовых пузырьков в виде

$$r_1 \approx \left(\frac{\sigma}{k_f \rho_{ж} v^2} \right)^{3/5} \lambda_0^{8/5} \approx L^{2/5} \left(\frac{\sigma}{k_f \rho} \right)^{3/5} \frac{\sqrt{2}}{U^{6/5}}, \quad (6)$$

где σ — коэффициент поверхностного натяжения; $\rho_{ж}$ — плотность жидкости; k_f — коэффициент сопротивления (формы); v — коэффициент кинематической вязкости; λ_0 — внутренний масштаб турбулентности; L — характерный размер легкой фазы; ρ — плотность легкой фазы; U — скорость потока.

Позже разными исследователями предложены аналогичные выражения, учитывающие наличие в турбулентном потоке флуктуации скорости, ограничение масштаба турбулентных пульсаций, приводящих к дроблению легкой фазы, и другие эффекты.

В неоднородном турбулентном потоке, обтекающем твердую поверхность канала, скорость потока и пространственный градиент скорости изменяются от точки к точке в поперечном сечении трубы. Для малых расстояний от стенки В.Г. Левичем предложено следующее выражение для критического радиуса образующейся в результате дробления капли (которое с рядом допущений может быть использовано для оценки размеров газовых пузырей):

$$r_2 \approx \frac{1}{U} \sqrt{\frac{\sigma}{\rho}} \cdot \sqrt{\frac{y}{\ln \frac{y}{\delta_0}}} = \sqrt{\frac{\sigma v}{25 \rho J_0^3}}, \quad (7)$$

где U — средняя скорость течения; y — расстояние от стенки; δ_0 — толщина вязкого слоя; J_0 — характерная скорость обтекания капли. При этом r_2 должно быть меньше r_1 , определенного из выражения (6).

Расчетные оценки величин r_1 и r_2 показывают следующее. В циркуляционных контурах рассмотренных выше РУ дробление газовой компоненты в каналах, исключая а.з., трубную систему ПГ и проточную часть циркуляционных насосов, за счет турбулентных пульсаций в потоке практически исключено. Относительно малые средние и локальные значения скоростей, большие проходные сечения не могут привести к разрушению газовых пузырей, даже сравнимых с размерами каналов (сотни мм и более). При движении двухкомпонентного потока со скоростью $U > 1$ м/с в зазорах между твэлами а.з., в трубной системе ПГ и проточной части насосов возможно интенсивное дробление газовой фазы до размеров ~ 1 мм газового пузыря.

4. *Агломерация (слияние) газовых пузырей* в двухкомпонентном потоке "ТЖМТ-газ" происходит вследствие ряда факторов: под действием сил турбулентного переноса пузырей вдоль и поперек потока; за счет разных скоростей всплытия крупных и мелких, деформированных и недеформированных пузырей; при увеличении концентрации газа в расплаве за счет локализации пузырей в отдельных зонах под действием инерционных, центробежных и гравитационных сил и др. Процесс агломерации чрезвычайно сложен. Математический аппарат для его описания в настоящее время разработан недостаточно. Очевидно, что агломерация пузырей усиливается при увеличении газосодержания и турбулентности потока, а также размера пузырей и протяженности каналов. При этом в элементах циркуляционного контура с установившимся режимом течения максимальный радиус пузырей, образованных за счет агломерации, не должен превышать величину r_1 , определяемую по формуле (6).

На основании анализа, проведенного в разделе 2, видно, что гидродинамика контуров циркуляции ТЖМТ может существенным образом влиять на возможность организации и эффективность водородной очистки. Увеличение скорости циркуляции ТЖМТ должно способствовать ускорению процессов водородной очистки за счет увеличения коэффициента массоотдачи и возникновения дополнительных тангенциальных и нормальных напряжений вблизи поверхностей загрязнений контура.

Для контуров установок петлевой конструкции ввод смеси $H_2-H_2O-He(Ar)$ в циркулирующий со скоростью $U \geq 1$ м/с ТЖМТ можно проводить любым практически осуществимым способом, обеспечивающим размер вводимых в ТЖМТ пузырьков $r \sim 1$ мм. В дальнейшем с учетом незначительной длины соединяющих элементы контура трубопроводов, малой площади свободных поверхностей ТЖМТ, эффективного дробления газа в а.з., ПГ, насосе такие пузыри эффективно транспортируются потоком ТЖМТ по всему контуру.

В контурах усовершенствованной петлевой и моноблочной конструкций имеются каналы большой протяженности и с низкими ($U \geq 0,2 \dots 0,3$ м/с) скоростями течения ТЖМТ, большие свободные поверхности ТЖМТ. Поэтому в них существуют условия для эффективной агломерации и сепарации газовых пузырей с $r \geq 1$ см. Для обеспечения доставки газовой фазы во все участки контура необходимо применять только такие способы ввода в ТЖМТ газа, которые обеспечивают его дробление до пузырьков размером $r \leq 300$ мкм.

5. Результаты экспериментальных исследований. Экспериментальные исследования влияния гидродинамики контуров на водородную очистку проводились в основном с целями — доказательства возможности формирования в тяжелом теплоносителе мелкодисперсной газовой фазы, поддающейся транспортировке циркулирующим теплоносителем; — экспериментального подтверждения эффективности водородной очистки в контурах с низкоскоростными двухкомпонентными потоками “теплоноситель — мелкодисперсная окислительно-восстановительная газовая фаза”.

Эксперименты проводились на водяных и жидкометаллических циркуляционных контурах.

Исследования на водяном контуре

Один из вариантов водяного контура приведен на рис. 5. Контур состоит из следующих основных частей: 1) прозрачной цилиндрической емкости 1 внутренним диаметром 215 мм и высотой 280 мм; 2) циркуляционного насоса

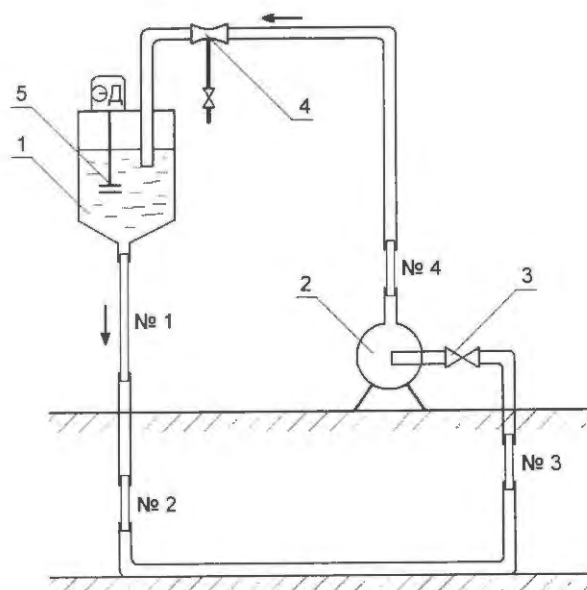


Рис. 5. Схема циркуляционного водяного контура: 1 — прозрачная емкость, 2 — циркуляционный насос, 3 — вентиль, 4 — эжектор, 5 — ДД; ЭД — электродвигатель

2; 3) прозрачных стеклянных трубок (№№ 1...4) внутренним диаметром 17 мм (длина трубки № 1 — 1,3 м, а трубок №№ 2...4 по 0,15 м); 4) гибких прозрачных соединительных шлангов внутренним диаметром 21 мм; 5) вентиля 3 для регулирования расхода воды по контуру; 6) устройств ввода газа: эжектора 4, дискового диспергатора (ДД) 5 и др.

Испытано 6 устройств для ввода газовой фазы в воду. Все они располагались сверху в емкости 1 кроме эжектора 4, который на время его испытания монтировался в контуре непосредственно перед емкостью 1. Первые два устройства представляли собой перфорированные насадки, погруженные в емкость 1, через которые принудительно под давлением из баллона через редуктор продувался аргон. Устройство № 1 представляет собой металлическую трубку диаметром 8×2, перфорированную 26-ю отверстиями диаметром 1 мм. Устройство № 2 представляет собой цилиндр диаметром 38 мм и высотой 42 мм, по образующей поверхности которого просверлено по 10 отверстий диаметрами 1 и 2 мм, а дно имеет отверстие 4 мм.

Устройство № 3 — цилиндр диаметром 62 мм и высотой 134 мм, образующая поверхность которого изготовлена из пористой нержавеющей стали с размерами пор 20...100 мкм. Устройство № 4 — эжектор представляет собой конусное сужение до 5 мм в диаметре с регулируемым байпасом. Воздух из атмосферы эжектируется струей воды через отверстие в узкой части, формируя двухфазный поток, а по байпасу течет чистая вода (фильтрат). На выходе

из эжектора эти потоки сливаются в один двухфазный поток, соотношение фаз в котором регулируется расходом воды через байпас. Устройство № 5 – падающая струя воды, организованная поднятием полупрозрачного шланга над зеркалом воды в емкости 1.

Устройство № 6 – ДД изображен на рис. 6. Его действие основано на дроблении газовых пузырей в жидкости при попадании их в поток с большим градиентом скоростей. В таком потоке благодаря неравномерности сил скоростного напора, приложенных к элементам поверхности, происходит разрушение больших пузырей на более мелкие. Создание высокоградиентного потока жидкости осуществляется в зазоре между вращающимся диском (ротором) и неподвижным диском (статором). Степень дисперсности газовой фазы при прочих равных условиях прямо зависит от градиента скоростей в потоке. Увеличение градиента скоростей осуществляется уменьшением зазора между дисками или увеличением линейной скорости относительного движения дисков. Верхний диск (статор) соединен неподвижно с корпусом. Нижний диск (ротор) установлен на вращающемся валу. Нижний диск и вал – полые, полости соединены между собой. В верхней части полости вала соединена с полостью корпуса. В нижней части корпуса имеются отверстия для смачивания подшипника скольжения жидкостью.

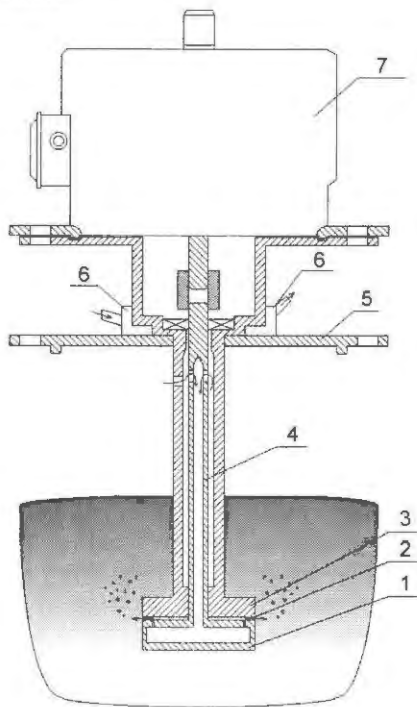


Рис. 6. Схема ДД: 1 – ротор, 2 – мелкодисперсная газовая фаза, 3 – статор, 4 – вал, 5 – фланец, 6 – водяное охлаждение, 7 – двигатель регулируемой мощности

В испытанном диспергаторе поверхность нижнего диска перфорирована тридцатью шестью отверстиями диаметром 0,5 мм, расположенными по окружности диаметром 95 мм. Диаметр самого диска составляет 115 мм, как и верхнего диска (статора), с расстоянием ~1 мм между верхним и нижним дисками. В верхней части полый вал соединен с валом электродвигателя. Диспергатор погружается в жидкость таким образом, чтобы отверстия в верхней части вала были над уровнем, а ротор и статор под уровнем жидкости. При включении электродвигателя ротор вращается с заданной угловой скоростью (n до 2 800 об/мин при $f = 50$ Гц). При этом в результате движения жидкости относительно ротора в зазоре образуется зона пониженного давления, что вызывает эжекцию газа из полости ротора через 0,5 миллиметровые отверстия в зазор, где благодаря градиенту скоростей пузырьки дробятся и мелкодисперсная газовая фаза вместе с жидкостью выбрасывается из зазора наружу.

Результаты исследований на водяном контуре показали, что все испытанные устройства генерировали газовые пузыри в широком диапазоне по размерам. После вывода из работы устройств крупные пузыри сепарировались в течение нескольких секунд, а мелкодисперсная газовая фаза наблюдалась визуально в течение нескольких минут. По соотношению генерируемых полезной мелкодисперсной и балластной крупнодисперсной фаз лучше показал себя ДД.

Для системы газ-вода в квазистатическом режиме истечения газа из отверстия размеры отрывающихся газовых пузырей определяются из условия равенства гравитационных сил, отрывающих пузырек от отверстия, и сил поверхностного натяжения, удерживающих его у кромки отверстия [6]. Соотношение, определяющее этот баланс сил, имеет следующий вид:

$$4\pi R_n^3 g(\rho_g - \rho_r) / 3 = 2\pi R_o \delta, \quad (8)$$

где R_n – отрывной радиус пузыря, м; R_o – радиус отверстия, м; ρ_r – плотность газа, кг/м³; δ – поверхностное натяжение, Н/м.

Из уравнения (8) следует, что отрывной радиус пузыря может быть вычислен по формуле

$$R_n = 1,14 [(R_o \delta / (g(\rho_g - \rho_r)))]^{1/3}. \quad (9)$$

Для смачивающих жидкостей значения отрывных радиусов пузырей, вычисленные по формуле (9), хорошо согласуются с экспериментом. Некоторое несогласование для несмачивающих жидкостей, особенно при малых размерах отверстий, связано с тем, что отрыв пузырей происходит не по периметру отверстий, а по неко-

торой “шейке” пузыря, диаметр которой может не совпадать с диаметром отверстия.

Диаметр отверстий истечения воздуха в воду из ротора ДД равен 0,5 мм. Отрывной диаметр пузыря для таких отверстий в квазистационарном режиме истечения, вычисленный по формуле (9), составил бы 2,8 мм. Однако при вращении ротора относительно статора с зазором менее миллиметра режим истечения существенно отличается от квазистационарного. Линейная скорость движения ротора относительно статора над отверстиями составляет $V = 12,6$ м/с. Отрывающая сила, действующая на зарождающийся пузырь, определяется уже не гравитацией, а скоростным напором $\rho V^2/2$ жидкости, тангенциально движущейся относительно отверстий. Эта сила пропорциональна скоростному напору и сечению пузыря, поэтому чем выше скорость обтекания отверстия, тем меньше сечение отрываемого пузыря.

Оценку сечения отрываемого пузыря можно провести приравнением отрывных сил и сил поверхностного натяжения. Сила поверхностного натяжения, как указывалось выше, определяется выражением $2\pi R_0\delta$. Отрывные силы определяются интегрированием элементарных сил, действующих на элементы поверхности пузыря по всей его поверхности. При интегрировании нужно учитывать изменение скоростного напора по высоте зазора, т.е. градиент скорости в зазоре. При заданной относительной скорости движения ротора и статора в области отверстия с уменьшением величины зазора увеличиваются градиент скорости и, следовательно, отрывающие силы. Для скорости относительного движения ротора и статора $V = 12,6$ м/с грубая оценка высоты пузыря над поверхностью ротора, при которой происходит его отрыв в зазоре 1 мм, составляет не более 0,2 мм, а при зазорах 0,5 и 0,25 мм соответственно 0,13 и 0,08 мм. В эксперименте размеры генерируемых пузырей существенно меньше. Так, при зазоре в 1 мм и скорости относительного движения ротора и статора $V = 12,6$ м/с наблюдались пузыри размером от 0,02 до 1 мм.

На рис. 7 показаны типичные фотографии двухфазной жидкости (вода-воздух) в емкости, снятые соответственно через 5, 20 и 60 с после выключения диспергатора. Из фотографий видно, как в процессе сепарации уменьшается количество газовых пузырей в воде. Однако даже после истечения 60 с в воде присутствует заметное количество газовой фазы.

При испытаниях устройств №№ 1...3 через них продувался аргон в воду. Устройства №№ 1 и 2 генерировали в основном крупнодисперс-

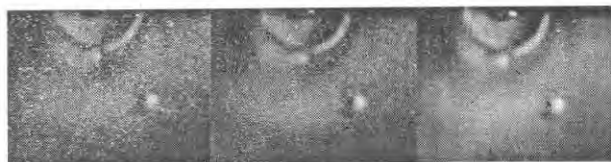


Рис. 7. Фотографии двухфазной жидкости в емкости после выключения ДД

ную газовую фазу, которая сепарировалась в течение нескольких секунд. Устройство № 3 (пористый цилиндр) генерировало дисперсную газовую фазу в широком диапазоне в зависимости от размеров пор (0,03...0,2 мм). При этом в объемном соотношении крупнодисперсная фаза превалировала гораздо сильнее, чем при испытаниях ДД.

В дальнейшем эти устройства испытаны при циркуляции воды в стенде. Гибкие трубопроводы позволяли менять конфигурацию стенда (было несколько вариантов). Окончательно выбрана следующая конфигурация: емкость генерации пузырей; опускной участок высотой 4,1 м; горизонтальный длиной 3,8 м; подъемный участок до насоса высотой 2,1 м и подъемный участок после насоса высотой 2,2 м. Выбор окончательной конфигурации контура в основном определился размерами и конфигурацией рабочего помещения.

Установлен режим циркуляции со скоростью движения воды в шлангах $V = 0,2$ м/с и стеклянных трубках $V = 0,3$ м/с. При включении в работу ДД в стеклянной трубке № 1 наблюдалось двухфазное течение с газосодержанием до 0,01 % (размеры пузырей от 500 мкм и менее). В шланге между смотровыми стеклами №№ 1 и 2 в результате уменьшения скорости опускного течения при переходе из стеклянного тракта (Ду17) в шланговый (Ду21) происходила сепарация более крупных пузырей и их агломерация в еще более крупные, которые всплывали по стеклянной трубке № 1. Оценка размеров пузырей осуществлялась визуально в сравнении с опущенными в стеклянный канал проволочками известного диаметра: 1000, 300, 50 мкм. Сравнение проводилось после выключения циркуляционного насоса, при этом в течение первой минуты всплывали более крупные пузыри с большей скоростью, а затем наблюдались только мелкие пузыри и проводилась оценка их размеров. Размеры минимально наблюдаемых визуально пузырей были существенно меньше диаметра самой тонкой проволоки (≤ 20 мкм). Скорость всплытия этих пузырей составляла 2...5 мм/с.

В стеклянной трубке № 2 наблюдалось двухфазное течение с гораздо меньшим газона-

сыщением и размеры пузырей были меньше 100 мкм. В опускном участке пузырьки двигались в ядре потока, не прижимаясь к стенкам. Скорость всплытия пузырей диаметром 500 мкм составляет 0,2 м/с. Скорость всплытия более мелких пузырей меньше скорости нисходящего потока, поэтому они беспрепятственно сносятся вниз по потоку. Агломерации пузырей вследствие разницы скоростей не наблюдалось.

В горизонтальном участке условия для сепарации более благоприятные, и пузырьки в основном сепарировались на верхней части шланга и медленно двигались по ней, при этом происходила частичная их агломерация. В подъемном участке всплывали крупные пузыри размером до 1 мм, образовавшиеся в результате агломерации на горизонтальном участке, и мелкие пузыри. По мере движения в восходящем потоке пузыри концентрировались вблизи стенок.

При вводе в работу устройств №№ 1...5 в установленном режиме ($V = 0,2$ м/с) и при уменьшении скорости движения воды ($V = 0,15$; $0,1$ м/с) при работающем ДД качественно картина формирования и поведения двухкомпонентного потока сохраняется. Уменьшается газосодержание потока, особенно на участке его возврата в емкость 1. Однако во всех случаях наблюдается транспортировка мелкодисперсной газовой фазы во всех участках водяного контура.

В результате исследований на водяном стенде экспериментально показана возможность получения газовой фазы в воде с размерами пузырей от ≤ 20 мкм до 5 мм разными способами ввода газа и при использовании различных устройств. Опробован один из перспективных способов формирования устойчивой газовой фазы с помощью ДД. Доказана возможность эффективной транспортировки мелкодисперсной газовой фазы в потоках (в том числе и нисходящих) воды с малыми ($\leq 0,2$ м/с) скоростями течения.

Проанализируем возможность переноса полученных результатов на условия жидкометаллических контуров. Определим скорость всплывания в воде ($t = 20$ °С) газовых пузырей малого размера в соответствии с известной формулой Стокса для движения "твердого" шара в жидкости при $Re \leq 1$ в виде

$$v = \frac{2(\rho - \rho')gr^2}{9\mu}, \quad (10)$$

Таблица 2. Скорости всплытия в воде газовых пузырей заданного размера $d = 2r$

v , м/с	0,05	0,10	0,15	0,2	0,25	0,3	0,35	0,4	0,45	0,5
d , мм	0,30	0,43	0,52	0,61	0,68	0,74	0,80	0,86	0,91	0,96

где Re , ρ , ρ' , r , μ – соответственно число Рейнольдса ($Re = 2\rho rv/\mu$), плотность воды и газа, радиус газового пузыря, вязкость жидкости. Определенные скорости приведены в табл. 2.

Сравнение результатов расчета с зависимостями, приведенными на рис. 4, показывает, что скорости всплытия газовых пузырей малого размера ($d \leq 1$ мм) в воде и свинце близки по своим значениям. Это указывает на схожесть процессов, протекающих в двухкомпонентных потоках "вода-газ" и "теплоноситель-газ" с мелкодисперсной газовой фазой, по крайней мере, процессов, главной движущей силой которых является сепарация газа. Поэтому с большой вероятностью можно предположить, что процессы транспортировки мелкодисперсной газовой фазы в низкоскоростных потоках воды и тяжелого теплоносителя будут во многом схожи.

Исследования на контурах с жидким металлом

Исследования проводились на рабочих участках стендов ТТ-2М (рис. 8), СВТ-3М (рис. 9) и свинцовой петле стенда ТТ-1М (рис. 10). Из рис. 8 видно, что основными узлами стенда ТТ-2М служат пробоотборник 1, мерный бачок 2 для тарировки магнитных расходомеров, магнитный расходомер 3, источник 4 металлических примесей (ИМП), датчик 5 активности кислорода, лабораторный хроматограф 6, бак 7 насоса, массообменник 8 с твердофазным окислителем, буферная емкость 9 и рабочий участок, который включает в себя эжектор, сепаратор, измеритель расхода газа, загрузочный бак, барботажное отверстие, контейнеры с PbO и индикатор пузырей.

На рабочем участке стенда СВТ-3М (рис. 9) расположены 11 точек, в которых тем или иным способом можно контролировать нахождение газовой фазы в потоке циркулирующего теплоносителя. Свинцовая петля (рис. 10) стенда ТТ-1М имеет опускное течение глубиной 6 м с расположенными на разной глубине (1; 2,7; 5; 6 м) имитаторами шлаковых отложений.

Верхний и нижний коллекторы соединены семью параллельными трубками - каналами внутренним диаметром 30 мм. Верхний коллектор имел семь сквозных стаканов длиной примерно 100 мм, расположенных соосно каналам. Отсчитывая от опускной трубы, параллельные каналы пронумерованы с 1 по 7. К 1, 3 и 5-му стаканам приварены трубки $\varnothing 18 \times 2$ длиной 4 900 мм, названные *газоотборными трубками*.

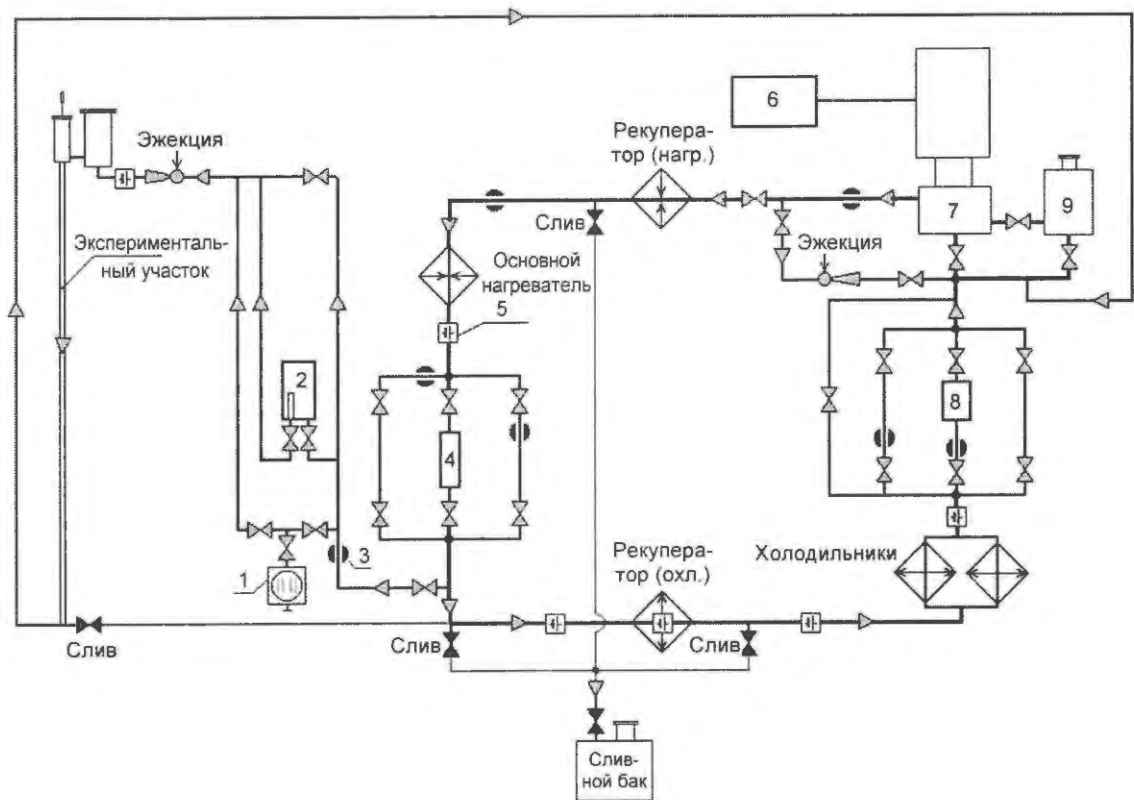


Рис. 8. Принципиальная схема жидкометаллического контура стенда ТТ-2М: 1 – пробоотборник, 2 – мерный бак, 3 – магнитный расходомер, 4 – ИМП, 5 – датчик активности кислорода, 6 – хроматограф, 7 – бак насоса, 8 – теплообменник, 9 – буферная емкость

Объем трубок внутренним диаметром 14 мм и длиной 4 900 мм равен 0,75 л. Принципиальная схема газоотборных трубок дана на рис. 11.

Нижняя часть газоотборных трубок заканчивалась расширением до диаметра 28 мм – “зонтиком”, частично входящим вовнутрь соответствующего канала, а верхняя часть этих

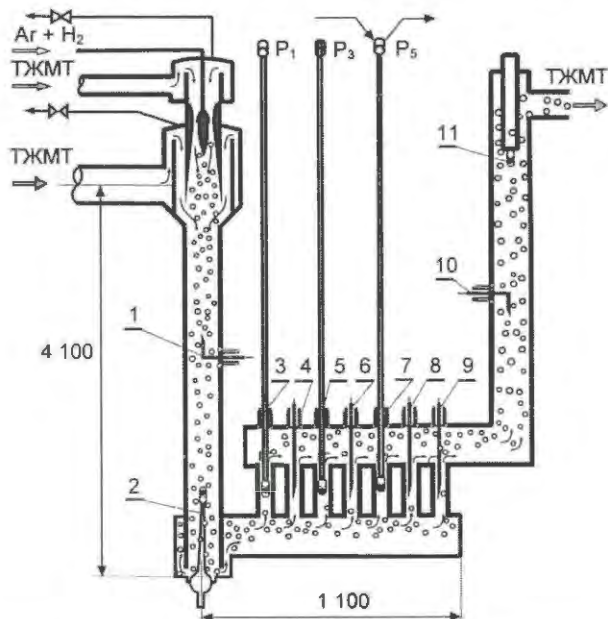


Рис. 9. Схема рабочего участка стенда СВТ-3М и размещения в нем зондов (точки 1...11)

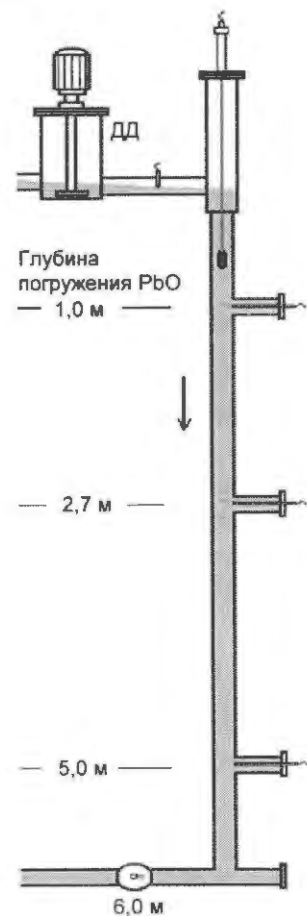


Рис. 10. Схема свинцовой петли стенда ТТ-1М



Рис. 11. Схема отбора газа из рабочего участка стенда СВТ-3М через газотводную трубку. Расположение навески с образцом оксида свинца

трех труб – разборными камерами с расположенными внутри пористыми металлокерамическими мембранами. Мембраны толщиной 0,5 мм и диаметром 41 мм выполняли защитную роль от заброса жидкого металла в газовую систему. Газотводные трубки выведены, как и ввод инжектора, на отметку +1,7 м над сепаратором. Каждая камера газотводных трубок имела по два штуцера для подсоединения к газовой системе модели.

Мелкодисперсная газовая фаза потоком жидкого металла переносилась по длине контура ЖМ-модели, распределяясь по параллельным каналам. Попадая под “зонтик” газотводной трубки, газовая фаза сепарировалась, накапливаясь в верхней части. Таким образом, назначением газотводных трубок служил отбор отсепарированного газа, переносившегося жидким металлом через соответствующий параллельный канал.

Через разъемное соединение в верхней части газотводных трубок могли вводиться в соответствующие параллельные каналы навески с оксидом свинца (шлаки). Навески закреплялись на стержнях-штангах из прутка $\varnothing 6$ мм длиной 5 100 мм. Располагавшаяся на торце штанги навеска оказывалась примерно на середине длины одного из параллельных каналов. В центре газотводных трубок штанги удерживались дистанционирующими пружинными ребрами из нержавеющей прутка $\varnothing 1,5$ мм. Размещение навесок с оксидами свинца с возможностью установки их без остановки стенда (лишь при отключенной циркуляции) было другим назначением газотводных трубок.

Единственными зондами для получения опытных данных о локальной структуре переносимых жидким металлом газовых включений служили *электроконтактные зонды газосодержания* [6]. Они изготавливались из серийно выпускаемого двухэлектродного нагревательного кабеля с диаметром оболочки $3 \times 0,36$ мм марки КНМСС. Электроды диаметром 0,65 мм – нержавеющей. Изолятором внутри кабеля служила плотноспрессованная окись магния. Путем ротационнойковки диаметр постепенно уменьшался до заданного. Чувствительная часть зонда представляла собой нержавеющую трубку диаметром $\sim 1,2$ мм и длиной $\sim 15 \dots 20$ мм, внутри которой располагались два изолированных друг от друга электрода из нержавеющей стали диаметром $\sim 0,2 \dots 0,3$ мм. Электроды были изолированными и от корпуса зонда. В качестве изолятора в торцевой части зонда применялся ситалл. Рабочий конец зонда скошен под углом ~ 15 градусов.

На оба электрода зонда, погруженного в исследуемую газожидкостную среду, подавалось синфазное знакопеременное напряжение синусоидальной или прямоугольной формы амплитудой ~ 5 В и частотой $5 \dots 10$ кГц (в экспериментах выбрана оптимальная с точки зрения амплитуды измеряемых сигналов частота 8 кГц).

Принцип действия электроконтактного зонда состоит в том, что при попадании на электрод зонда газового пузырька происходит разрыв цепи электропитания измерительной схемы, что приводит к увеличению амплитуды падения напряжения между электродом и корпусом зонда. После схода пузырька с электрода падение напряжения восстанавливается до заданного. В опытах с жидким металлом моменты прокалывания и схода газового пузырька с электрода регистрируются с крутыми передним и задним фронтами сигнала. Для анализа сигнал подвергается предварительной обработке: 1) оцифровывание электрического сигнала зонда с помощью платы L-1250.1, имеющей характерную частоту обращения 500 кГц; 2) центрирование сигнала относительно среднего по времени; 3) устранение линейного тренда сигнала с датчика; 4) вычисление модуля сигнала с датчика для повышения частоты заполнения; 5) цифровая фильтрация массива сигнала с датчика с помощью инверсного фильтра Чебышева; 6) клипирование отфильтрованного сигнала.

Пример обработанной зависимости напряжения на электроде зонда от времени при прохождении газового пузырька через слой расплавленного сплава Вуда приведен на рис. 12.

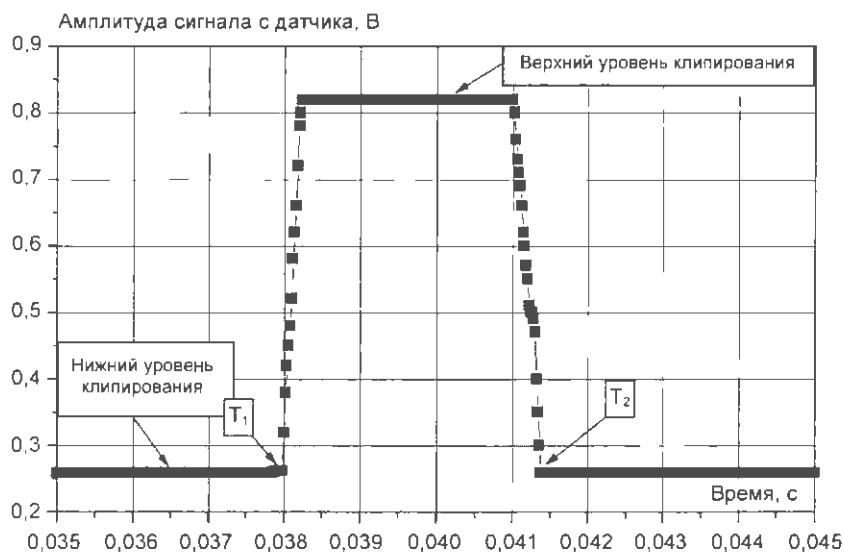


Рис. 12. Сигнал с одного из электродов датчика после фильтрации и клипирования

Частота знакопеременного напряжения, подаваемого на электроды зонда, выбирается такой, чтобы время нахождения пузырька газа на электроде было много больше периода опорного сигнала.

В результате того, что электроды пространственно разнесены на расстояние ~ 1 мм, сигнал со второго электрода запаздывает по отношению к сигналу с первого электрода на время, пропорциональное скорости движения газового пузырька. Скорость движения каждого пузырька рассчитывается по формулам

$$V_1 = L/(\tau_1^{(2)} - \tau_1^{(1)}), V_2 = L/(\tau_2^{(2)} - \tau_2^{(1)}), \\ V = (V_1 + V_2)/2, \quad (11)$$

где $\tau_1^{(1)}$ и $\tau_1^{(2)}$ – время прихода пузырька газа на 1-й и 2-й электроды зонда, соответственно; $\tau_2^{(1)}$ и $\tau_2^{(2)}$ – время схода пузырька газа с 1-го и 2-го электродов зонда, соответственно; L – база датчика. Формулой (11) усредняются значения скоростей, полученных по временам регистрации переднего V_1 и заднего V_2 фронтов сигнала.

Хорда пузырька рассчитывается по формуле

$$H^{(1)} = V_1(\tau_2^{(1)} - \tau_1^{(1)}), H^{(2)} = V_2(\tau_2^{(2)} - \tau_1^{(2)}), \\ H = (H^{(1)} + H^{(2)})/2, \quad (12)$$

где $H^{(1)}$, $H^{(2)}$ – длина хорды пузырька газа, определенная по пересечению пузырьком соответственно 1 или 2-го электродов.

Усредненное за все время τ измерений значение истинного локального газосодержания рассчитывается как отношение суммарной длительности пребывания зарегистрированных N пузырьков на одном (или на каждом из двух) электроде к времени τ , т.е.

$$\alpha^{(1)} = \sum_{n=1}^N (\tau_2^{(1)} - \tau_1^{(1)})_n / \tau, \\ \alpha^{(2)} = \sum_{n=1}^N (\tau_2^{(2)} - \tau_1^{(2)})_n / \tau, \\ \alpha = (\alpha^{(1)} + \alpha^{(2)})/2. \quad (13)$$

Верификация компьютерной программы проводилась сравнением результатов измерений различными методами размеров, частоты отрыва, скорости подъема пузырей при барботаже аргона в жидком сплаве Вуда. Наиболее вероятные размеры хорд и скорости всплытия в жидком металле соответствовали известным литературным данным [7].

В контуре рабочего участка установлено 8 электроконтактных зондов. Два зонда (1 и 2-й) располагались на оси опускного участка контура на расстояниях 1,2 и 4,2 м от инжектора. Показания первого характеризовали дисперсность газовой фазы на входной части контура, второго – установившиеся характеристики газовой фазы в потоке жидкого металла на опускном участке.

Четыре зонда (с 3-го по 6-й) установлены в центре четырех параллельных каналов. Чувствительные элементы зондов располагались на осях 2, 4, 6 и 7-го каналов на середине их длины. Они характеризовали состояние газовой фазы после прохождения двухфазным потоком опускного участка, поворотов на 180° , поворота на 90° к раздаточному коллектору, обтекания имитаторов опорных колонн ТВС, поворота на 90° к соответствующему каналу.

Навески с образцами шлаков – оксидов свинца служат основными элементами конструкции интегрального индикатора газовой водородсодержащей фазы. Оксид свинца образца-свидетеля взаимодействует с водородом по реакции



Изменение веса шаровой навески из оксида свинца от времени прямо зависит от количества водорода в двухфазном потоке, обтекающем навеску.

Для исключения механического уноса навеска – оксид свинца формируется в виде пресованных по специальной технологии сфероидов диаметром 7 мм, заключенных в перфорированную корзинку из стали X18H10T. Навески предварительно взвешивались на лабораторных весах. Устанавливается циркуляция двухфазного теплоносителя в изотермическом режиме

при температуре из диапазона 400 °С через исследуемый участок. При этом фиксируется исходное содержание водорода во вводимой в поток теплоносителя газовой фазе, равное примерно 50 ± 5 % объемных. По количественной оценке взаимодействия навесок с восстановительной средой может быть определено наличие или отсутствие газовой фазы, например, в застойных зонах контура. Таким образом, навеска служит индикатором газовой фазы в жидком металле.

При принудительном вводе газа в контур избыточное давление в циркуляционном контуре и сепараторе повышалось, и необходим периодический сброс газа в спецвентиляцию, который производился по превышению давления над заданным (0,3 ати) на 0,1 атм. При избыточном давлении в сепараторе +0,5 ати происходило срабатывание одного из двух предохранительных клапанов.

Индикация газовой фазы, отсепарировавшейся в газоотборных трубках. Количество газа, переносимого потоком жидкого металла через параллельные трубки, в общем случае различно и зависит от объемного расхода жидкого металла, объема вводимого через инжектор газа, начального среднего размера газовых включений и т.д. Газовый объем над уровнем жидкого металла служил частью газовой системы газоотборных трубок. В результате сепарации газа уровень жидкого металла понижался, а давление в газовом объеме повышалось. К газовому объему над уровнем жидкого металла подсоединены мановакууметры со шкалой $^{+0,6}_{-0,1}$ МПа, перепадомеры типа Сапфир ДИ 3110, которыми измерялось давление относительно давления в газовом объеме сепаратора.

При малых объемах отсепарировавшегося газа из восстановительной смеси применялся хроматографический метод анализа. Отсепарировавшаяся смесь Ag , H_2 и паров H_2O подхватывалась потоком гелия и направлялась в систему хроматографа ЛХМ-80. Таким образом, хроматограф служил индикатором газовой фазы, достигавшей параллельных труб, соединявших коллекторы участка. Схема хроматографа ЛХМ-80 включала газовую линию от баллона со сжатым гелием, проходившую через верхнюю часть газоотборных трубок. Поток гелия подхватывал отсепарировавшуюся смесь Ag , H_2 и паров H_2O и направлял ее в хроматограф ЛХМ-80. В этом случае могло быть обнаружено присутствие вводимого в жидкий металл аргона или смеси аргона с водородом.

Для ввода газа в поток тяжелого теплоносителя в различных экспериментах использовались разные устройства. На рабочем участке стенда ТТ-2М (рис. 8) применялись барботажная трубка с одним отверстием, эжектор и ДД, а на рабочем участке стенда СВТ-3М (рис. 9) – инжектор. На свинцовой петле стенда ТТ-1М (рис. 10) газовую фазу в поток тяжелого теплоносителя вводили при помощи ДД.

В рабочем участке стенда ТТ-2М при использовании эжекционного устройства формирование нисходящего двухкомпонентного потока происходило следующим образом. Газ, находящийся над зеркалом расплава, засасывался движущимся теплоносителем в узкой части эжектора. Двухкомпонентный поток, проходя через сепаратор и загрузочный бак, обеднялся газовой фазой вследствие сепарации крупных газовых пузырей. Поэтому в нисходящем потоке (за загрузочным баком) увеличивалась доля мелкодисперсной газовой фазы (по сравнению с потоком на выходе из эжектора).

В случае применения барботажного устройства формирование двухкомпонентного потока происходило непосредственно в верхней части опускной трубы (при заглублении барботажного отверстия ниже верхнего среза трубы на ~5 см). Газ в барботажную трубку подавался принудительно из газового баллона. Барботируемый газ частично выделялся в загрузочный бак из-за сепарации крупных пузырей. Мелкие пузыри увлекались теплоносителем.

Первый этап испытаний проведен в следующей последовательности: а) эжекция инертного газа He в течение ~23 часов; б) барботаж He в течение ~24 часов; в) выбор устройства диспергирования для дальнейших испытаний; г) проведение водородного восстановления оксидов PbO в имитаторе шлаковых отложений в течение ~48 часов.

При эжекции He в баке насоса накопилось за 23 часа ~46 л He (скорость накопления ~2 л/час). При этом усредненный расход газа, подаваемого в эжектор, составлял 4,1 л/час. Очевидно, что около половины эжектируемого газа проходило через РУ, поступало в бак насоса и сепарировалось там. Другая половина частично циркулировала по замкнутому циклу: загрузочный бак – измеритель расхода газа – эжектор – сепаратор газа, а частично “набивалась” в газовых полостях (“гусаках”) контура.

При барботаже He в течение 24 часов накопление последнего в баке насоса составило величину ~40 л (скорость накопления ~1,7 л/час). При этом усредненный расход барботируемого газа составил величину ~6,2 л/час. Можно счи-

тать, что доля газа, которая проходила через РУ и поступала в циркуляционный насос, составляла ~27 %.

Исходя из результатов, полученных при эжекции и барботаже газа, делается вывод, что в конкретных условиях эксперимента эжектор служил более эффективным устройством диспергирования газовой фазы, чем барботер с одним барботажным отверстием. Тем не менее для дальнейших испытаний выбран последний как устройство с более простой конструкцией. Кроме того, последующий эксперимент с использованием барботера интересен тем, что в результате его проведения создавались далеко не лучшие условия для водородного восстановления. При применении большинства известных диспергаторов возможно формирование двухкомпонентных потоков с большими газосодержанием и дисперсностью газовой фазы. Поэтому проведенное восстановление является практически "предельным" (при наихудшей эффективности процесса) экспериментом.

Водородное восстановление происходило в течение 50 часов при температуре теплоносителя 370 °С и скорости нисходящего потока теплоносителя в основном $\leq 0,15$ м/с. При этом в барботер подавался чистый водород со средним расходом ~6 л/час.

В табл. 3 приведены исходные и после восстановления массы РbО в контейнерах, расположенных на различной глубине. Здесь же приведен процент восстановленного Рb в этих контейнерах. Видно, что степень восстановления уменьшается с увеличением заглубления оксидов. Тем не менее во всех случаях наблюдается заметное восстановление Рb из его оксидов. Таким образом показано, что даже в неблагоприятных условиях процесса (низкая скорость нисходящего потока ТЖМТ, применение неэффективного диспергатора газа, относительно низкая для контура с ТЖМТ температура) возможны осуществление водородного восстановления и очистка контура от оксидов свинца.

Т а б л и ц а 3. Массы РbО в имитаторах отложений на рабочем участке стенда ТТ-2М до и после восстановления при использовании барботажной трубки с одним отверстием

Глубина погружения, м	Исходная масса РbО, г	Убыль массы РbО, г	Степень восстановления Рb, %
1	26,04	26,04	100,0
2	26,45	12,09	45,7
3	27,02	2,41	8,9
4	27,35	2,06	7,5

На втором этапе испытаний для формирования газовой фазы в теплоносителе применялся ДД. Формирование двухкомпонентного потока происходило в объеме ТЖМТ загрузочного бака. Восстановительная смесь подавалась из газового объема бака, выбрасывалась в ТЖМТ через щель между подвижным и неподвижным дисками диспергатора и увлекалась нисходящим потоком в трубе $d = 4$ см. Исходная концентрация водорода в газе загрузочного бака ~20 % об., температура ТЖМТ 400...420 °С, скорость ТЖМТ ~0,1 м/с, время проведения этапа испытаний ~16 часов.

В табл. 4 представлены массы РbО в имитаторах отложений, расположенных на различной глубине, до и после водородного восстановления. Суммарное изменение веса РbО в имитаторах отложений в процессе работы ДД составило 65,1 г. В это же время убыль объема H_2 за 16 часов составила ~7 л. Этим количеством водорода можно восстановить Рb из ~70 г РbО. Полученная расчетная убыль массы РbО удовлетворительно совпадает с экспериментально зафиксированной.

Т а б л и ц а 4. Массы РbО в имитаторах отложений на рабочем участке стенда ТТ-2М до и после восстановления с использованием ДД

Глубина погружения, м	Исходная масса РbО, г	Убыль массы РbО, г	Степень восстановления Рb, %
1	25,58	25,58	100,0
2	27,16	27,16	100,0
3	25,91	10,10	39,0
4	27,88	2,26	8,1

В рабочем участке СВТ-3М в течение суток в теплоноситель подавался инертный газ (аргон) и в газоотборных трубках отсепарировалось ~0,75 л из 6 000 л, введенных в металл. Но главным в данном случае являлось то, что газ регистрировался в различных участках контура модели и транспортировался по всей ее длине.

Электроконтактные зонды располагались на осях соответствующих труб. При несимметричной геометрии элементов проточной части газовая фаза при малых газосодержаниях могла не проходить через центры труб и поэтому не регистрировалась зондами. Пример осциллограммы, полученной с помощью электроконтактного зонда № 8, дан на рис. 13. Длительность прохождения импульса напряжения на зонде характеризовала размер хорды газового пузыря, прокалывавшегося зондом. При средней скорости опускного течения потока жидкого металла примерно 0,5 м/с наиболее вероятная скорость движения газовой фазы составляла примерно 0,3 м/с.

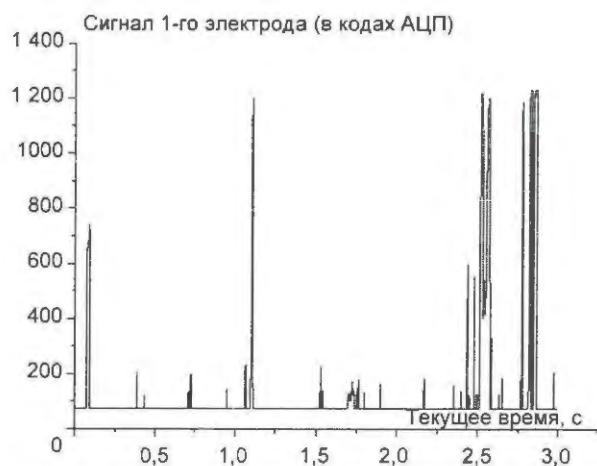


Рис. 13. Осциллограмма электрического сигнала электроконтактного зонда № 8, расположенного на выходе из рабочего участка

При проведении водородного восстановления на этом же рабочем участке навески с оксидами свинца устанавливались в пяти местах контура: один — в нижней части опускного участка модели, три — в гребенке параллельных труб (в 1, 3 и 5-й трубах), один — в верхней части подъемного участка вблизи выхода из модели.

Схема размещения в газоотборной трубке индикатора с образцами-свидетелями представлена на рис. 11. К торцу стержня длиной 5100 мм и диаметром 5 мм сваркой прикреплялась перфорированная цилиндрическая корзинка наружным диаметром 8,5 мм и длиной 20 мм, внутри которой свободно размещены два сфероиды оксидов диаметром 6 мм. По высоте корзинки расположены с таким расчетом, чтобы корзинка располагалась в середине длины параллельных труб-каналов, соединявших оба коллектора модели. Газовая фаза регистрировалась хроматографом в третьей газоотборной трубке и по уменьшению массы образцов оксидов во всех пяти навесках.

Две корзинки с оксидами крепились к стержням длиной 290 мм. Эти навески располагались на осях опускной и подъемной труб модели. Все посадочные места навесок были разъемными для извлечения корзинок с оксидами после опытов. Время опыта с образцами-свидетелями при температуре потока 400 °С и 50 % об. водорода в газовой смеси составляло примерно трое суток работы стенда. Полученные результаты сведены в табл. 5.

В свинцовой петле стенда ТТ-1М для формирования газовой фазы в теплоносителе применялся ДД. Температура ТЖМТ составляла ~420 °С, скорость ТЖМТ ~0,2 м/с, время проведения этапа испытаний ~256 часов. Полученные результаты приведены в табл. 6.

Таблица 5. Массы PbO в имитаторах отложений на рабочем участке стенда СВТ-3М до и после восстановления с использованием инжектора

№ места зонда	Исходная масса PbO, г	Убыль массы PbO, г	Степень восстановления Pb, %
2	3,02	3,02	100,0
3	2,94	2,00	68,0
5	2,80	0,70	25,0
7	2,66	0,50	18,8
11	2,82	1,26	44,7

Таблица 6. Массы PbO в имитаторах отложений на свинцовой петле стенда ТТ-1М до и после восстановления с использованием ДД

Глубина погружения, м	Исходная масса PbO, г	Убыль массы PbO, г	Степень восстановления Pb, %
1	100,3	45,4	45,2
2,7	91,7	35,8	39,1
5	103,2	38,2	37,0
6	87,6	32,0	36,6

Подтверждены работоспособность и эффективность различных диспергаторов газа (барботажная трубка, эжектор, инжектор, ДД), их способность формировать мелкодисперсную (< 100 мкм) газовую фазу, транспортируемую теплоносителем на большие расстояния (> 6 м). Полученные результаты открывают широкие возможности проведения эффективной “объемной” водородной очистки контуров РУ как петлевой, так и баковой конструкций.

3. Контроль содержания растворенного в ТЖМТ кислорода

Выше отмечалась важная роль присутствующего в теплоносителе и контуре кислорода. Поэтому одним из основных контролируемых параметров при эксплуатации систем с теплоносителями на основе свинца и проведении экспериментальных исследований процессов массопереноса в циркуляционных контурах с этими теплоносителями является концентрация C и термодинамическая активность a кислорода, растворенного в теплоносителе. Направление и интенсивность протекающих процессов, как правило, определяются уровнем и изменением значений a . Измерение a осуществляется кислородными сенсорами.

В теплоносителях на основе свинца принято определять a из соотношения

$$a = C/C_s, \quad (15)$$

где C и C_s — соответственно текущая концентрация и концентрация насыщения растворенного кислорода в объеме теплоносителя с фик-

сированной температурой. Из соотношения (15) следует, что при постоянстве C и температуры сохраняется постоянство a , а каждому температурному распределению C соответствует строго заданное температурное распределение a , определяемое температурной зависимостью C_s .

Для температурного диапазона $t = 400...700$ °С в свинце рекомендуется соотношение

$$\lg C_s = 3,438 - 5240/T, \quad (16)$$

где T – температура, К; размерность C_s – масс. %. С использованием соотношений (15), (16) определяется функциональная связь a и T при заданных значениях C , носящая линейный характер.

При проведении экспериментальных исследований в системах с ТЖМТ обычно применяются кислородные сенсоры на основе гальванических концентрационных ячеек с твердым электролитом $ZrO_2 + Y_2O_3$ и электродом сравнения $Bi-Bi_2O_3$. Показания таких сенсоров в свинце выражаются уравнением

$$E = 131,2 - 1,54 \cdot 10^{-2} T (1 + 6,61 \lg a). \quad (17)$$

Используя уравнения (15)...(17), строятся диаграммы $E-C-a-t$, $E-C-t$ или $E-C-C_{Fe}-t$. Последние получают дополнением диаграмм $E-C-t$ линиями изоконцентраций железа (линиями температурного распределения концентраций кислорода, равновесных с Fe_3O_4 и с заданными концентрациями железа). Полученными диаграммами пользуются при исследовании процессов, протекающих в системах с ТЖМТ. При этом количество и место расположения сенсоров в каждом конкретном случае выбираются, с одной стороны, исходя из содержания и целей проводимых исследований. С другой стороны, на этот выбор существенное влияние оказывают представления исследователей о характере распределения примеси кислорода в теплоносителе.

В настоящее время доминирует точка зрения, что в реальном циркуляционном контуре реализуется изоконцентрационное распределение примесей в теплоносителях, так как циркуляция теплоносителя способствует выравниванию содержания примесей во всех его объемах. Все примеси в циркулирующем теплоносителе тем или иным образом взаимодействуют друг с другом. Для иллюстрации рассмотрим взаимодействие железа и растворенного оксида свинца $[PbO]$ в виде



с константой равновесия

$$K = a_{Fe_3O_4} a_{Pb}^4 / (a_{Fe}^3 a_{PbO}^4). \quad (19)$$

При наличии защитных оксидных покрытий (при существовании твердой фазы Fe_3O_4) можно принять $a_{Fe_3O_4} = 1$ и $a_{Pb}^4 \approx A$. Поэтому выражение для константы равновесия примет вид

$$K = A / (a_{Fe}^3 a_{PbO}^4). \quad (20)$$

Из выражения константы равновесия видно, что в фиксированном объеме теплоносителя величина $[PbO]$ строго соответствует содержанию $[Fe]$. С другой стороны, содержание $[PbO]$ однозначно стехиометрически связано с содержанием растворенного кислорода $[O]$.

Видно также, что любое изменение активности железа (и наоборот кислорода) влияет на активность кислорода (железа). Помимо вышеуказанных взаимодействий металлических примесей с кислородом, отклонения от изоконцентрационного распределения примесей должны вызывать также источники и стоки примесей, которые всегда присутствуют в контуре (на границе раздела "теплоноситель-газ", "теплоноситель-сталь", а также в самом теплоносителе). Поэтому распределение активностей примесей в неизотермическом контуре в принципе не может соответствовать абсолютному изоконцентрационному распределению. Однако очевидно, что при слабой интенсивности источников и стоков примесей и большом содержании одной из примесей (по сравнению с другими) возможно ее распределение, близкое к изоконцентрационному или практически изоконцентрационное.

Из вышеприведенного следует, что существующие представления о характере распределения примеси кислорода, механизмах взаимодействия примесей между собой и моделях массопереноса в реальных неизотермических циркуляционных контурах существенно различаются, что не позволяет достаточно обоснованно решать целый ряд практических задач. К последним можно в первую очередь отнести определение температурных зон установки кислородных сенсоров и их количества при эксплуатации РУ.

Поэтому в ФЭИ проведен цикл исследований [7] температурного распределения термодинамической активности кислорода в тяжелых теплоносителях на лабораторных циркуляционных контурах. Также разработана методика "быстрого" и "медленного" термоциклирования

навески (пробы) теплоносителя (соответственно $\Delta t/\Delta \tau \leq 1 \text{ }^\circ\text{C}/\text{с}$ и $\Delta t/\Delta \tau \geq 100 \text{ }^\circ\text{C}/\text{час}$) с различным примесным составом. Особенностью методики является термоциклирование малого объема теплоносителя без его принудительной циркуляции. При термоциклировании обеспечиваются скорости изменения температуры, близкие средним значениям таковых при циркуляции теплоносителя в реальных контурах, и непрерывный контроль термодинамической активности примеси кислорода в теплоносителе.

В результате проведенных исследований получены новые данные, касающиеся вопросов форм существования примесей в реальных теплоносителях на основе свинца, взаимодействия примесей между собой, образования и распада продуктов этих взаимодействий в зависимости от температурных условий в циркуляционном контуре. Экспериментально показано, что в реальном ТЖМТ кислород всегда находится как в растворенном виде, так и в виде различных оксидных образований (вероятнее всего в растворенном либо коллоидном виде). Эти оксидные образования могут распадаться с выделением в расплав кислорода при температурах ниже $\sim 500 \text{ }^\circ\text{C}$ и образовываться, связывая растворенный в расплаве кислород, при температурах выше $\sim 500 \text{ }^\circ\text{C}$. Количество присутствующего в теплоносителе кислорода может на много порядков превышать расчетные значения, определенные по показаниям кислородных сенсоров.

Экспериментально выявлена возможность как изоконцентрационного, так и неизоконцентрационного распределения кислорода в ТЖМТ циркуляционного контура. Определено, что одним из основных факторов, влияющих на характер распределения кислорода, служит скорость изменения температуры циркулирующего ТЖМТ, а следовательно, его скорость и кратность циркуляции. С уменьшением скорости изменения температуры ТЖМТ увеличивается вероятность отклонения распределения кислорода от изоконцентрационного. Наглядно влияние величины $\Delta t/\Delta \tau$ на характер темпера-

турного распределения кислорода прослеживается в графиках рис. 14 и 15.

Из вышеприведенного следует, что особенности гидродинамики циркуляционных контуров существенным образом влияют на контроль состояния ТЖМТ. Так, в контурах петлевой конструкции с большими скоростями ТЖМТ и значениями $\Delta t/\Delta \tau$ с большой вероятностью предполагается изоконцентрационное распределение кислорода. При этом контроль содержания кислорода можно проводить одним кислородным сенсором.

Для контуров усовершенствованной петлевой и моноблочной конструкций в настоящее время невозможно представить аналитическую зависимость для распределения примеси кислорода в реальном ТЖМТ. Поэтому даже "грубые" контроль процессов массопереноса и прогнозирование термодинамической ситуации в контуре невозможны при использовании од-

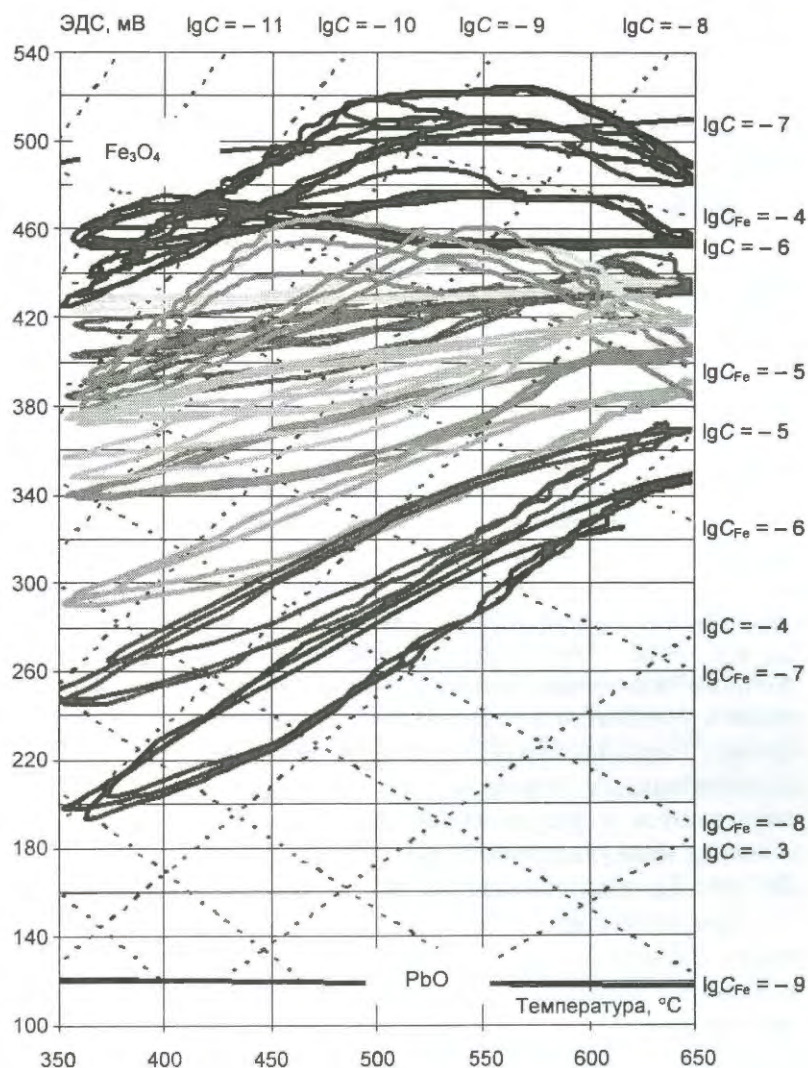


Рис. 14. Показания кислородного сенсора при термоциклировании ($\Delta t/\Delta \tau \approx 1 \text{ }^\circ\text{C}/\text{с}$): C , C_{Fe} — концентрации растворенных кислорода и железа, соответственно

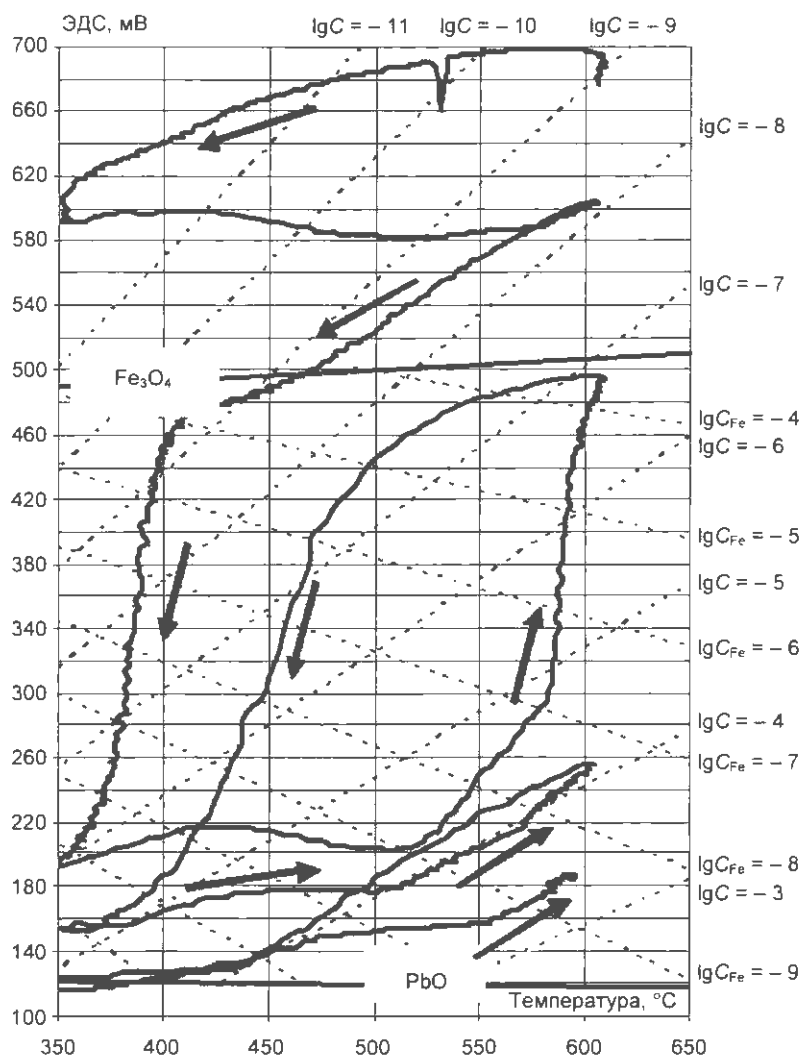


Рис. 15. Показания кислородного сенсора при термоциклировании ($\Delta t/\Delta \tau \approx 100 \text{ }^\circ\text{C}/\text{час}$)

ного кислородного сенсора. Необходимо применять, как минимум, три кислородных сенсора, расположенных в разных температурных зонах, например, в контуре РУ БРЕСТ-ОД-300 сенсоры должны располагаться в зонах с t_{\max} , t_{\min} и $t = 460 \dots 540 \text{ }^\circ\text{C}$. Для обеспечения более "точного" контроля в зонах с $t = 460 \dots 540 \text{ }^\circ\text{C}$, а также в участках контура с малыми скоростями течения теплоносителя, возможна установка дополнительных сенсоров. Эти выводы подтверждаются и результатами исследований в условиях циркуляционного контура стенда ТТ-2М (рис. 8), приведенными на рис. 16.

При отсутствии возможности такого контроля должны использоваться разработанные методики "быстрого" и "медленного" термоциклирования. Они могут быть применены раздельно, а особенно эффективно совместно, для контроля процессов массопереноса, примесного состояния теплоносителя (а значит и состояния системы "жидкометаллический теплоноси-

тель - материал контура" в целом) непосредственно в условиях РУ. Для этого необходима разработка штатной установки.

Заключение

Проведен анализ влияния гидродинамики контуров циркуляции ТЖМТ Рb и Рb-Bi РУ петлевой, усовершенствованной петлевой и моноблочной конструкций на условия реализации и эффективность важнейших мероприятий ТТ: водородной очистки и контроля концентрации растворенного в теплоносителе кислорода. Показано, что изменение конструкции циркуляционных контуров, проводимое с целью улучшения экономики и повышения безопасности установок, приводит к появлению дополнительных требований к процессам и устройствам ТТ.

В установках петлевой конструкции возможно применение устройств ТТ, расположенных на байпасах или в трубопроводах основного контура циркуляции ТЖМТ, расход которого через устройства можно обеспечивать за счет напора ГЦН и ВН и изменять регулирующей и запорной арматурой. Вследствие достаточности больших скоростей движения ТЖМТ в этих установках сравнительно легко проводятся процессы водородной очистки. Контроль кислородного режима ТЖМТ в принципе можно проводить одним кислородным сенсором.

В контурах установок усовершенствованной петлевой и моноблочной конструкций проведение ТТ может быть усложнено по следующим причинам:

В контурах установок усовершенствованной петлевой и моноблочной конструкций проведение ТТ может быть усложнено по следующим причинам:

- для проведения эффективной водородной очистки ТЖМТ и циркуляционного контура в целом необходимо обеспечить диспергирование (дробление) вводимой в ТЖМТ газовой фазы до размеров пузырей порядка сотни и менее микрон; только при этом формируется низкоскоростной и с малым газосодержанием двухкомпонентный поток "ТЖМТ-газ", способный доставлять реакционную газовую смесь в разные участки циркуляционного контура и осуществлять процесс очистки контура от оксидов ТЖМТ:

- контроль состояния ТЖМТ желательнее проводить одновременно несколькими сенсорами, расположенными в различных участках контура.

Контактная информация – тел.: (48439)9-80-14; e-mail: olgakir@ippe.ru, Гулевский Валерий Алексеевич; vladvu@obninsk.com, Ульянов Владимир Владимирович

Список литературы

1. Мартынов П.Н., Орлов Ю.И. Процессы шлакообразования в свинец-висмутовом контуре. Предупреждение и ликвидация критических ситуаций / Сб. докладов конф. "ТЖМТ в ядерных технологиях", 1999, том 2, с. 608 – 619.
2. Степанов В.С., Драгунов Ю.Д., Кумарев В.М. и др. Паропроизводящая установка БМ-40/А. Опыт создания и эксплуатации. Там же, том 1, с. 88 – 91.
3. Филин А.И., Цыкунов В.С., Леонов В.Н. и др. Задачи и требования к конструкции опытно-демонстрационного реактора БРЕСТ-ОД-300. Там же, том 2, с. 455 – 457.
4. Читайкин В.И., Громов Б.Ф., Тошинский Г.И. и др. Перспективные реакторные установки с жидкометаллическим теплоносителем свинец-висмут. Там же, с. 415 – 424.
5. Бердников В.И., Левин А.М. О скорости всплывания газовых пузырей в металлических и шлаковых расплавах // Изв. Вузов. Черная металлургия, 1977, № 12, с. 24 – 27.
6. Orlov Yu.I., Gulevsky V.A., Ulyanov V.V. et al. Gas phase dispersion processes and devices / 11-th international topical meeting on nuclear reactor thermal hydraulics. Book of abstracts, 2005, p. 220.
7. Гулевский В.А., Мартынов П.Н., Орлов Ю.И. и др. Обобщение результатов экспериментальных исследований поведения примеси кислорода в циркуляционных контурах с тяжелыми теплоносителями /

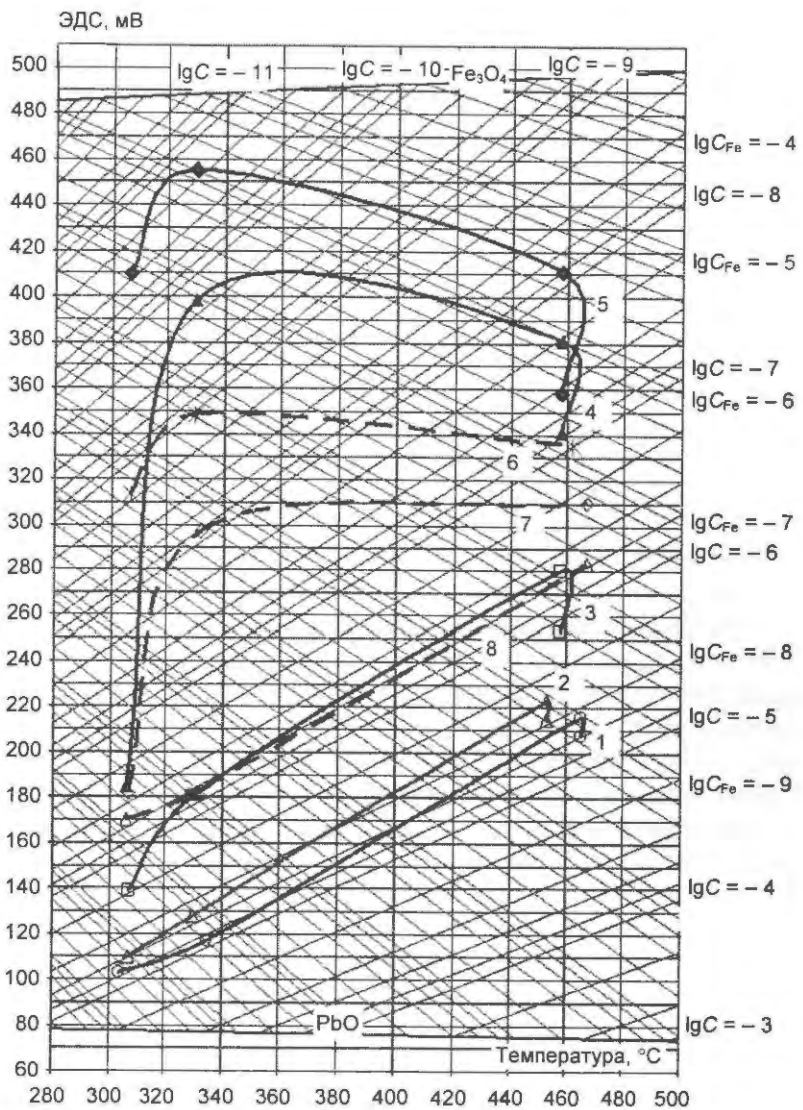


Рис. 16. Показания кислородных сенсоров в контуре стенда ТТ-2М (теплоноситель Pb-Bi, раскисление теплоносителя за счет ИМП): номера 1...8 кривых – показания соответствующих сенсоров; ——— ИМП введен в работу; - - - - ИМП выведен из работы

Тезисы докладов конф. "Тепломассоперенос и свойства жидких металлов", 2002, том 1, с. 163 – 164.

Статья поступила в редакцию 28 декабря 2007 г.
Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,
с. 15 – 33.

Анализ влияния продуктов коррозии на основе сложных оксидов хрома на гидравлические сопротивления в натриевом контуре реактора БОР-60

В.Н. Ефимов, Ю.В. Привалов, Ю.Е. Штында,

ФГУП "ГНЦ РФ НИИАР", 433510, г. Димитровград-10 Ульяновской обл.

Измерение гидравлических характеристик реактора БОР-60 на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем и его сборок показало их периодическое изменение, в связи с чем проведены исследования поведения коллоидного раствора на основе сложных оксидов хрома в натриевом контуре реактора и анализ возможности их отложений на поверхностях элементов контура циркуляции.

The analysis of effect of corrosion based on chromium oxide compounds on hydraulic resistance in the BOR-60 sodium circuit. **V.N. Efimov, Yu.V. Privalov, Yu.E. Shtynda.** A measurement of hydraulic characteristics of fast sodium-cooled reactor BOR-60 revealed their periodical change that caused investigation on the behavior of colloidal solution based on complex chromium oxides available in the sodium circuit of the reactor as well as analysis of their possible deposition on the surface of the circulation loop.

Высокая теплонапряженность и значительные перепады температур на твэлах БН-реакторов наряду с малыми проходными сечениями в ТВС даже при небольшой их блокировке могут привести к заметному перегреву твэлов. В связи с этим к содержанию примесей в натриевом теплоносителе предъявляются очень жесткие требования. За время работы натриевых систем накоплен большой опыт по изучению появления, накопления и распределения примесей по участкам контуров, а также созданию методов и средств контроля и очистки теплоносителя. Тем не менее при длительном использовании натрия в составе реакторной установки (на реакторе БОР-60 почти 40 лет) возможны эффекты, требующие нетрадиционного подхода к вопросам натриевой технологии.

1. Наблюдаемые гидродинамические эффекты в I контуре БОР-60

При работе реактора БОР-60 на мощности и в период остановок (температуры в I натриевом контуре соответственно 310...500 и 200...250 °С) отмечаются следующие гидродинамические эффекты, обусловленные массопереносом примесей в теплоносителе.

1) При работе реактора на мощности в процессе измерения температуры начала осаждения примесей ("температуры забивания") пробковым индикатором (ПИ) фиксируют высокотемпературную примесь при температуре T_1 (170...260 °С) более высокой, чем температуры кристаллизации кислорода или водорода T_2, T_3 (120...150 °С). При достижении T_1 наблюдается снижение расхода натрия

через индикатор на 10...20 % с последующей его стабилизацией до начала кристаллизации оксида или гидроксида натрия (рис. 1). В период остановок и снижения температуры натрия до 250 °С высокотемпературная примесь не фиксируется. При работе реактора на мощности и постоянной температуре в ПИ (выше T_1) расход натрия в проточных канавках 0,5×0,5 мм индикатора медленно снижается примерно в 2 раза за 30...50 суток.

2) В процессе работы реактора в течение микрокампании (МК) в активной зоне в материаловедческих пакетах (МП) без топлива с малыми гидравлическими диаметрами 2...4 мм и небольшим подогревом теплоносителя (10...20 °С) иногда происходит снижение расходов в 1,2...1,5 раза. Измерение расхода через пакеты при 250 °С в начале и конце МК значительных изменений не показывает. В ТВС существенного отклонения расходов от достигнутых после выхода на мощность не отмечается (рис. 2). Во всех случаях расход через МП и ТВС в процессе работы реактора определяется косвенно путем измерения подогрева натрия.

3) При работе реактора на мощности отмечается снижение расхода натрия со скоростью от 1 до 10 % в час в контуре холодной ловушки (ХЛ) примесей в режиме очистки, поэтому требуется периодическая корректировка расхода

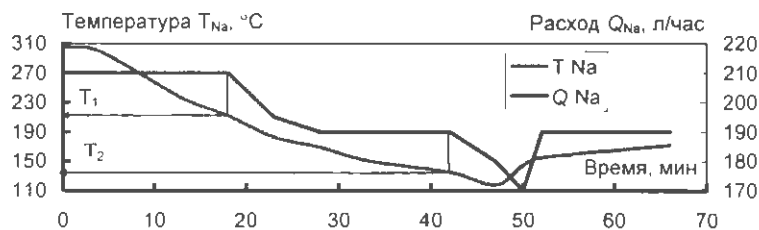


Рис. 1. Расход и температура в ПИ при измерении температуры забивания в I контуре ($T_1 = 215$ °С, $T_2 = 135$ °С)

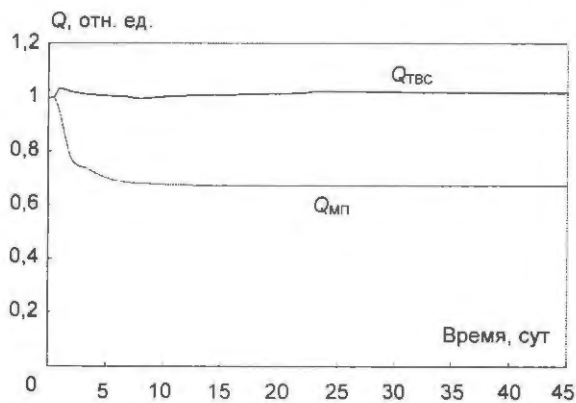


Рис. 2. Изменение за МК приведенных к номинальным параметрам расходов через ТВС и МП без топлива

регулирующим клапаном. В изотермическом режиме в период остановок реактора расход через ХЛ не меняется при неизменном положении регулирующего клапана.

4) В период остановки реактора на 180 часов прокачивали теплоноситель I контура с расходом $2,4 \text{ м}^3/\text{час}$ при температуре $250 \text{ }^\circ\text{C}$ через трубчатые пористые фильтры (пористость 20 мкм), установленные в пакете активной зоны реактора. При фильтрации не наблюдали заметного снижения расхода натрия через пакет, фильтрами задержано незначительное количество фильтрата – $1,3 \text{ г}$.

5) Контроль гидравлики реакторного контура сравнением расходов и перепадов давления с начальными значениями при выходе на мощность показывает, что коэффициент гидравлического сопротивления реактора иногда изменяется в течение МК на $2...5 \%$.

6) Анализы состава примесей натрия из частично забитых пакетов активной зоны и фильтрата натриевого теплоносителя I контура [1] показывают, что основными примесями в фильтрате и осадках (масса $0,2 \text{ г}$) являются продукты коррозии материала контура: хром ($24...33 \%$), железо ($10...20 \%$), марганец ($5...20 \%$), никель ($2...7 \%$) и нейтронной активации натрия – магний ($10...13 \%$).

2. Анализ поведения коллоидной системы в условиях циркуляции натрия в контуре реактора

Анализ литературных данных [2...4] по поведению сложных оксидов хрома в натрий-калиевых контурах и общих свойств коллоидных систем [5] позволил предположить образование в натриевом контуре в присутствии кислорода и хрома коллоидной системы на основе хромитов натрия, образуемых в результате хи-

мических реакций на высокотемпературных поверхностях натриевого контура.

Из свободнодисперсного коллоидного раствора (золя) в результате коагуляции может выделиться гель, представляющий собой связнодисперсную систему (новую фазу) из пространственной сетки, в узлах которой находятся указанные частицы, а внутри натрий. Гель всегда обладает хорошей адгезионной способностью и высокой по сравнению со средой вязкостью, что приводит к образованию осадков на поверхностях. Коллоидная система из золя и геля имеет высокую каталитическую активность, приводя к интенсификации коррозии и при определенных условиях к массопереносу хрома в низкотемпературную часть контура при увеличении содержания кислорода (оксида натрия) в системе. Осадки геля могут влиять на гидравлику натриевых контуров реакторов.

По данным [2] можно оценить, что в контуре массовая доля хромита составляет десятки процентов от оксида натрия, а в геле для разных веществ по данным [5] – $10^{-2}...10^{-5}$ долей. Согласно приближенным оценкам в сильно загрязненном кислородом контуре (до 30 ppm) при полном переходе хромитов в гель объемная доля геля в натрии может достигать 10^{-3} .

По литературным данным поведение таких сложных систем в условиях циркуляции с появлением новой фазы и осаждением ее на стенки детально не исследовалось ни теоретически, ни экспериментально. Поэтому выдвинутые здесь положения, базируясь на опытных данных лабораторных исследований ФЭИ, анализе работы различного оборудования БОР-60 и на общих свойствах коллоидных систем, являются априорными логическими построениями, удовлетворяющими опытным данным. Рассмотрим основные факторы, влияющие на поведение коллоидной системы в циркуляционном контуре.

1. Концентрация хромитов в золе, под которой понимают концентрацию частиц хромитов, определяет скорость образования в натрии новой полужидкой фазы – микрофрагментов геля. Ее рост приводит к росту скорости образования пространственных комбинаций, приводящих к появлению геля. Чем выше начальная концентрация, тем глубже протекает процесс образования геля. Гель, образованный из раствора с высокой концентрацией, обладает следующими свойствами:

- является более концентрированным по частицам хромитов;
- более устойчив к механическим и температурным воздействиям;

- имеет лучшие адгезионные свойства;
- физико-химическое равновесие между частицами в растворе и в геле характеризуется меньшей концентрацией частиц в растворе по сравнению с низкоконцентрированным гелем.

Равновесие между золей и гелем можно сместить в сторону уменьшения прочности геля (или его полного удаления) путем уменьшения концентрации хромитов в золе.

2. Температура. Молекулы хромитов распадаются при пониженных температурах. Известно, что при температурах ниже 130 °С полный распад хромитов завершается за 16...24 часа [2]. При более высоких температурах процесс распада замедляется, но количественных данных нет.

Рост температуры при прочих равных условиях способствует ослаблению связей в геле вплоть до его полного развала и, кроме того, уменьшает адгезию геля. При более высокой температуре уменьшается концентрация хромитов в геле и соответственно растет в растворе. Распад молекул хромита можно не учитывать в условиях работы основного оборудования I контура на мощности. Но он, безусловно, эффективно идет при попадании и задержке золя и геля в ХЛ (при 100...120 °С) и с меньшей скоростью при длительной выдержке контура и вспомогательных систем при относительно низкой температуре ~ 200...250 °С во время планово-предупредительного ремонта (ППР).

3. Турбулентность. Высокая турбулентность (большой критерий Re) приводит к разрушению связей между хромитами и молекулами натрия, т.е. к невозможности образования микрофрагментов геля в потоке или разрушению случайно образуемых связей. Умеренная турбулентность способствует образованию микрофрагментов геля и их прилипанию к стенкам канала, т.е. росту осадка. Таким образом, физико-химическое равновесие в потоке коллоидного раствора между концентрациями хромитов в данном сечении и на стенках в том же сечении определяется многими факторами: температурой, турбулентностью потока и общей концентрацией хромитов в сечении.

Примем, что осаждение образованного геля на стенки, если не достигнута равновесная толщина осадка, идет очень быстро. Кроме того, турбулентность, скоростной напор потока и прочность геля определяют толщину осадка геля в данном сечении. В канале малой протяженности (например, в дросселе) возможность выпадения осадка и его конечная толщина при прочих равных условиях будут определяться

скоростью натрия. Заметим, что использование только критерия Re для объяснения с гидродинамической точки зрения сложного механизма образования осадка геля является, безусловно, упрощенным подходом.

4. Коллоидная система в проточном канале. Проанализируем поведение коллоидной системы, образующей осадок в изотермическом канале постоянного сечения, на вход которого поступает натрий с некоторой концентрацией хромитов. Расход обеспечивается постоянным перепадом давления на канале. Логично предположить существование трех характерных участков канала.

Начальный участок. Поскольку процесс формирования микрофрагментов геля требует определенного времени, то на начальном участке канала не идет осаждение геля на стенки. Скорость формирования микрофрагментов геля и скорость потока определяют длину этого участка. Чем выше концентрация и ниже скорость потока, тем меньше должна быть при прочих равных условиях длина этого участка.

Участок с осадком геля. На этом участке идет непрерывный процесс образования микрофрагментов геля. Примем, что с небольшим запаздыванием во времени после образования микрофрагмента достаточного размера он в результате турбулентных поперечных пульсаций проникает сквозь ламинарный натриевый подслои и прилипает к стенке. Постепенно натриевый подслои заменяется слоем осадка геля, имеющим лучшую адгезию к стенке. Со временем на первом отрезке участка канала при постоянных значениях температуры, входной концентрации и расхода образуется квазиравновесный осадок с сохраняющимся распределением его толщины по длине. В потоке раствора формируются микрофрагменты геля, выпадающие в осадок на втором отрезке рассматриваемого участка со снижающейся по длине толщиной осадка. При постоянных концентрации на входе, расходе и температуре потока участок с осадком геля неограниченно растет по длине.

Выходной участок. За границей участка с осадком при заданных температуре, турбулентности и концентрации хромитов прекращаются образование микрофрагментов геля и (или) их прилипание к стенке, т.е. на этом участке осадка геля нет и движется поток раствора с меньшей концентрацией по сравнению с входной.

Соотношения длин участков (или времен транспорта в них) зависят от многих факторов. Очевидно, что длина участка с осадком геля должна расти со временем, а длина выходного

участка падать. Одновременно с этим должна расти и толщина осадка, достигая на первом отрезке участка с осадком некоторого квазиравновесного распределения.

5. Толщина осадка должна ограничиваться скоростным напором потока и вязкостью геля, т.е. концентрацией хромитов в геле и его температурой. Можно провести относительную аналогию с толщиной ламинарного подслоя в турбулентном потоке однородной жидкости. Согласно [6] ее можно оценить следующим выражением: $\delta = Cv^{1,25}u^{-0,875}d^{0,125}$, где C – постоянная, v – кинематическая вязкость, u – средняя скорость в трубе, d – диаметр трубы.

По этой аналогии можно ожидать, что за счет большей вязкости геля по сравнению с натрием (возможно в десятки и сотни раз) толщина осадка может превышать толщину ламинарного подслоя в натрии примерно в том же соотношении. По нашим оценкам, толщина ламинарного подслоя натрия в условиях реальных потоков в каналах реактора составляет 0,01...0,02 мм. Таким образом, можно ожидать, что слой осадка геля достигает долей мм или нескольких мм.

В застойных зонах потока рост осадка, по видимому, ограничивается только скоростным напором потока на границе этих зон, где происходят срыв и унос фрагментов геля. Такие зоны существуют в камерах высокого и низкого давления реактора, в вентилях и некоторых других элементах контура.

6. Влияние осадка на гидравлическое сопротивление каналов. Осадок геля указанных выше размеров должен существенно (на десятки – сотни процентов) уменьшать расход через канал гидравлическим диаметром до 1...4 мм и слабо влиять на расход при диаметре 10 и более мм. При уменьшении расхода по мере выпадения осадка усложняется механизм образования осадка в канале: изменяется скорость образования и роста толщины осадка, и он перемещается ко входу в канал. На возможность и интенсивность отложения осадка в дросселирующих устройствах (например, канавки вентиля ПИ или кольцевой зазор в клапане закрытого вентиля) влияют те же факторы: температура, скорость и концентрация золя в потоке. Чем больше скорость потока в дросселе, тем большее понижение температуры требуется для быстрого выпадения в нем осадка геля и тем меньше квазиравновесная толщина осадка.

В нашей практике не наблюдалось полного перекрытия полужидким гелем небольших каналов с диаметром 0,5 мм (в ПИ) и более и отношением длины к диаметру до 40, если они

находились под полным напором главных циркуляционных насосов контура.

3. Объяснение наблюдаемых гидродинамических эффектов

1. Измерения пробковым индикатором. Температура T_1 (рис. 1) вызвана началом выпадения геля в канавках ПИ. Затем по мере снижения температуры натрия осадок начинает выпадать в холодильнике ПИ, не влияя на гидравлическое сопротивление до тех пор, пока не достигнута температура начала кристаллизации оксида в канавках, после чего идет резкое уменьшение расхода. Относительно высокая скорость $\sim 10^{-2}$ мм/мин забивания каналов малого сечения ПИ (0,5×0,5 мм) объясняется осаждением частиц геля и не может быть обусловлена осаждением растворенных в натрии и взвешенных примесей металлов и их оксидов, скорость которого на несколько порядков ниже и составляет величину около 0,04 мм/год [7].

Температура T_1 соответствует в первом приближении концентрации хромитов в натрии в месте расположения ПИ. Эта концентрация значительно меньше концентрации в основном контуре из-за выпадения осадка геля в транспортной линии до ПИ при десятикратном снижении перед измерениями расхода в этой линии (по технологии). Этот фактор и большая скорость натрия в канавках (около 20 м/с) приводят к тому, что измеряемая T_1 примерно на 100 °С ниже температуры выпадения осадка геля в основном контуре, т.е. T_1 только косвенно свидетельствует о концентрации хромитов в I контуре.

2. Гидродинамические эффекты в I контуре. В период остановки реактора при циркуляции натрия с малыми расходами $\sim 50...80$ м³/час и температурой 200...250 °С хромит натрия частично находится в золе, но его основная доля находится в осадке геля, распределенном по всем поверхностям контура. Процесс изотермического перераспределения осадка после остановки реактора занимает время до трех суток. С учетом этого явления толщины осадков геля на всех поверхностях, в том числе и в узких каналах сборок, становятся столь малы, что не влияют на их сопротивления, в том числе и при измерении расходов через сборки при расходе через реактор 300 м³/час и температуре 200...250 °С за счет их кратковременности и невысокой температуры. Концентрация хромитов в натрии, равновесная с относительно низкотемпературным гелем, мала и не фиксируется ПИ.

В процессе подъема мощности реактора удаляется осадок из высокотемпературной части контура (температура повышается до 500 °С и расход до 1000 м³/час) и сильно уменьшается в низкотемпературной части контура за счет повышения температуры до 310...320 °С, но главным образом из-за увеличения числа Re до $2,5 \cdot 10^6$, т.е. в 15...20 раз. При этом растет концентрация хромитов в натрии (фиксируется Т₁), а осадок геля в узких каналах низкотемпературной части (Re ~ $2 \dots 5 \cdot 10^4$) вырастает до толщины, увеличивающей их сопротивление в несколько раз. Количество хромитов в контуре растет также за счет перехода накопленных во время ППР кислородосодержащих соединений со стенок реактора в натрий. Непрерывная очистка от оксидов и хромитов ловушкой уменьшает толщины осадков и увеличивает расход в этих каналах, но медленно и до некоторого предела.

В топливные сборки и МП натрий поступает из камер высокого (КВД) и низкого (КНД) давлений. Основной объем натрия обеих камер характеризуется высокой турбулентностью потока за счет коллекторных втулок в КВД, расположенных перпендикулярно потоку входящего натрия, и благодаря дросселированию натрия на входе в КНД. Поэтому считаем, что на вход в любые сборки поступает раствор без микрофрагментов геля. Однако в объемах камер всегда есть участки стенок с застойными зонами потока натрия, на которых со временем может нарастать осадок геля.

По результатам измерений на БОР-60 забиваются МП, запитанные из КВД, и аналогично могут забиваться, но менее интенсивно, экранные пакеты, запитанные из КНД. Забивание сборок начинается до начала подъема мощности реактора, так как перед подъемом расход и температура в контуре повышаются до 600 м³/час и 300 °С, соответственно. Подогрев теплоносителя в отдельных сборках вначале возрастает, а затем медленно снижается. На практике наблюдаются различные варианты этого процесса (рис. 3).

Динамика расхода через МП в течение МК реактора зависит от нескольких основных факторов: имеющихся в контуре перед началом МК хромитов, попавшего в контур в процессе перегрузочных операций кислорода, графика выхода на мощность, эффективности очистки ХЛ. Для снижения вероятности забивания сборок можно принять следующие меры: уменьшать наполнение МП образцами с тем, чтобы расход натрия в пакетах был не менее 6...7 м³/час (в ряде случаев наблюдалось отсутствие

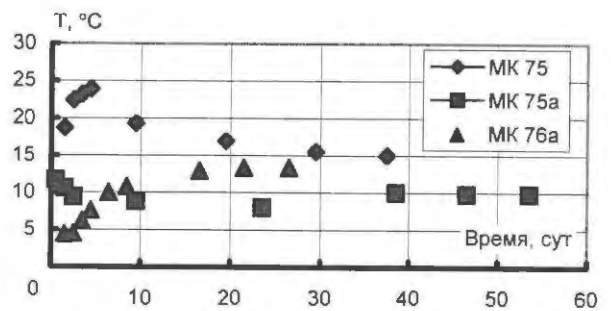


Рис. 3. Приведенный к номинальным параметрам реактора подогрев натрия в МП, установленных в инструментальной ячейке

забивания); ускорять очистку натрия ХЛ до температур забивания по оксиду менее 120 °С; выдерживать контур во время ППР при температуре около 200 °С; снижать поступление кислорода в натрий в технологических операциях при перегрузках и ремонтных работах.

В ТВС не происходит сколько-нибудь существенное уменьшение расхода в течение МК. Это объясняется тем, что время транспорта натрия в изотермической части ТВС до входа в активную зону мало для образования микрофрагментов геля и его осадка, а в зоне идет резкий подъем температуры натрия и оболочек твэлов.

3. *Изменение расхода натрия через ХЛ.* Прежде всего нужно отметить, что во избежание забиваний пакетов при непрерывном образовании хромитов в активной зоне требуется непрерывная очистка натрия ловушкой. Наряду с очисткой от оксида, ХЛ будет эффективно чистить от хромита в натрии, находящемся в геле, за счет полной задержки геля и менее эффективно от хромита в виде золя из-за кратковременного пребывания в ХЛ при низкой температуре.

Измерения расхода через ХЛ БОР-60 выявляют его непрерывное уменьшение, сопровождающееся колебаниями с частотой 10...15 изменений/час и амплитудой около 3 %. Через 4...6 часов наблюдаются сильные возмущения, превышающие в пике 50 % и продолжающиеся около 1 мин. Расход в транспортной линии к ХЛ диаметром 40 мм регулируется вентилем Ду40, в котором для создания расхода 0,5...1 м³/час при 310 °С практически полностью срабатывается напор главных циркуляционных насосов. Расчеты показывают, что радиальный зазор между клапаном и седлом составляет для этих расходов 0,05...0,1 мм, а скорость натрия в зазоре около 20 м/с. Если бы уменьшение расхода определялось только осадком в зазоре, то расход по аналогии с ПИ быстро уменьшился бы на несколько десятков %, а затем мед-

ленно увеличивался по мере очистки контура ХЛ.

В действительности расход через ХЛ падает линейно и непрерывно во времени, и требуется периодическая его корректировка с использованием вентиля. Уменьшает частоту корректировок, если не иметь в виду конструктивные меры, только увеличение чистоты натрия по кислороду и хромитам. Так, во время ППР с хорошо очищенным контуром не требуется корректировка расхода в течение 10...20 суток. Периодическая корректировка расхода через ХЛ ухудшает эффективность очистки. Корректировка заключается, как правило, в очень малом открытии клапана и затем его установке на прежнее положение.

Наряду с механизмом забивания зазора осадком геля действует еще один механизм, который, по нашему мнению, состоит в перекрытии входа в зазор фрагментами геля, размер которых не позволяет их продавливать перепадом давления через такие малые зазоры. Пульсации расхода объясняются тем, что часть фрагментов с размером, близким к размеру зазора, продавливается через зазор с задержкой во времени. Источником фрагментов служат осадки геля больших размеров, накапливаемые в застойных зонах транспортной линии или самого вентиля.

По достижении некоторого критического размера осадка происходит его частичный срыв, и относительно крупные фрагменты геля, разрушаясь в турбулентном потоке транспортной линии, перекрывают периметр на входе в кольцевую щель в вентиле Ду40. Заметим, что в канавках ПИ зазоры в 5...10 раз больше: в них пульсации не наблюдаются. Также не наблюдается непрерывное снижение расхода в спектрометрической линии I контура диаметром 16 мм, где расход 0,5...1 м³/час задается вентилем Ду16, в котором зазор в 2,5 раза больше, хотя пульсации расхода меньшей величины также наблюдаются.

Анализ изменения расхода через ХЛ весьма доказательно подтверждает существование осадков геля в контуре. Причем это справедливо при любой реальной чистоте натрия, достигаемой с помощью ХЛ, так как кислород на образование хромитов при высокой чистоте натрия поступает из ловушки.

4. *Анализ примесей в натрии.* Химические анализы натрия изборок, которые частично забиты, не дают явного подтверждения наличия в них сложных оксидов, хотя содержание хрома в них выше, чем других продуктов коррозии, и составляет $1 \cdot 10^{-1}$, а железа $4 \cdot 10^{-2}$ масс. %. Это

объясняется тем, что массовая доля золя в геле может быть очень мала – вплоть до 10^{-5} . Отсутствие значимого количества твердых взвесей при длительной прокачке натрия через пористые фильтры при остановленном реакторе позволяет считать, что взвешенные частицы примесей не являются причиной наблюдаемого забивания каналов.

Заключение

Поведение коллоидного раствора на основе сложных оксидов хрома в контуре реактора сложно изучать как в теоретическом плане, так и экспериментально, потому что, во-первых, нет методов измерения основного определяющего фактора – концентрации сложного оксида, во-вторых, исследования нужно вести в режиме "on line", так как какие-либо лабораторные методы с отбором проб неприменимы из-за распада сложных оксидов при низкой температуре.

Предложенный априорный механизм поведения коллоидного раствора в контуре, не подтвержденный по ряду положений прямыми экспериментами, качественно описал наблюдаемые явления, проявляющиеся в изменении гидродинамики реактора, при индикации примесей в натрии и очистке натрия.

Повышенные вязкость и адгезия геля сложных оксидов хрома в натрии реакторной чистоты приводят к частичному забиванию осадками геля низкотемпературных пакетов активной зоны без топлива при работе реактора на мощности, однако в тех же условиях благодаря высокой температуре и расходам топливные сборки практически не забиваются.

Наблюдаемая температурная зависимость скорости осаждения примеси в каналах малого сечения не характерна для взвешенных частиц. Относительно высокая скорость забивания каналов малого сечения $\sim 10^{-2}$ мм/мин объясняется осаждением частиц геля и не может быть обусловлена потоком осаждения растворенных в натрии и взвешенных примесей металлов и их оксидов, который на несколько порядков меньше.

Отсутствие заметного влияния осадков примесей на гидравлику каналов при выдержке контура с температурой 250 °С и ниже вызвано изотермическим перераспределением осадка геля по всем поверхностям контура, а при длительной выдержке – низкотемпературным распадом хромитов натрия.

Непрерывное забивание узких зазоров размером 0,05...0,1 мм в регулирующих вентилях Ду40 происходит в результате задержки фраг-

ментов геля больших размеров, частично перекрывающих зазор. Для устранения этого эффекта целесообразно для регулирования использовать вентили с меньшим проходным сечением и, соответственно, большим радиальным зазором.

Гелеобразный характер осадка предотвращает полное перекрытие каналов размером в несколько десятых долей мм, так как полужидкий гель не выдерживает перепада давления в несколько кг/см², развиваемого циркуляционными насосами.

Увеличение гидравлического сопротивления контура реактора в процессе выхода на мощность вызвано переносом образующихся в высокотемпературной части контура хромитов в фазе геля в низкотемпературные пакеты и перераспределением накопленного ранее осадка геля в неизотермическом контуре.

Для уменьшения дополнительных гидравлических сопротивлений рекомендуется повышать эффективность очистки натрия ХЛ до температур забивания по оксиду менее 120 °С и выдерживать контур во время ППР при температуре около 200 °С.

В МП при высоких требованиях к температурному режиму следует увеличивать размер проточного канала и расход натрия, в используемых МП снижать наполнение образцами с целью увеличения номинального расхода до 6...7 м³/час.

В отличие от исследовательского реактора BOR-60 рассмотренные эффекты со сложными оксидами хрома менее актуальны для больших энергетических реакторов с нечастыми и внутриреакторными перегрузками и, видимо, могут иметь место только при нештатных ситуациях в I и II натриевых контурах при попадании большого количества кислорода, как проявилось, например, при загрязнении натрия I контура реактора Superphenix взаимодействием с воздухом в июле 1990 г. [8]. Тем не менее такую возможность необходимо рассматривать и продолжать исследование этого явления.

Контактная информация – Штында Юрий Евгеньевич, тел.: (84235)6-53-77, e-mail: shtynda@niiar.ru

Список литературы

1. Баринков О.П., Коновалов В.И., Привалов Ю.В., Штында Ю.Е. Очистка натриевого теплоносителя от радионуклидов и примесей компактными ловушками / Тезисы докладов конф. “Ядерные энергетические технологии с реакторами на быстрых нейтронах”. 9-10 декабря 2003 г., Обнинск, с. 38.
2. Ивановский М.Н., Логинов Н.И., Миловидова А.В. и др. Проблемы технологии натрий-калиевого теплоносителя / Междтр. конф. Теплофизика-91 “Использование жидких металлов в народном хозяйстве”. Сб. тезисов докладов, Обнинск-1993, с. 65 – 68.
3. Ивановский М.Н., Морозов В.А., Шимкевич А.Л., Шматко Б.А. О термодинамической устойчивости сложных оксидов в щелочных металлах // ТВТ, 1982, с. 1098 – 1101.
4. Ивановский М.Н., Миловидова А.В., Плетенец С.С. и др. Особенности технологии теплоносителя натрий-калий / Тезисы докладов межвед. конф. “Теплогидравлические и физико-химические процессы переноса примесей в теплоносителях” Теплофизика-93. Сб. тезисов докладов, Обнинск-1995, с. 35.
5. Воюцкий С.С. Курс коллоидной химии. – М.: Химия, 1976.
6. Шлихтинг Г. Теория пограничного слоя. – М.: Наука, 1974.
7. Алексеев В.В. Моделирование массопереноса продуктов коррозии в первом контуре БН-600 / Сб. тезисов докладов отрасл. семинара “Проблемы технологии и теплогидравлики жидкометаллических теплоносителей”, Обнинск, 2000, с. 87 – 88.
8. Overview of the feed back experience from French sodium cooled reactors operation / Working Material of IAEA Technical Meeting, Obninsk, 14-18 February, 2005. Analyses and lessons learned from the operational experience with fast reactor equipment and systems. p. 46.

Статья поступила в редакцию 09 января 2008 г.

Вопросы атомной науки и техники.

Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,

с. 34 – 40.

Технология использования натрия как теплоносителя реакторов на быстрых нейтронах

*Ф.А. Козлов, В.В. Алексеев, Л.Г. Волчков, Т.А. Воробьева, Ю.И. Загорулько,
Ю.П. Ковалев, П.С. Козуб, Г.П. Сергеев,*
ФГУП "ГНЦ РФ-ФЭИ", 249033, г. Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1

Представлено краткое изложение основных результатов исследований по технологии натриевого теплоносителя применительно к ядерным энергетическим установкам (ЯЭУ) с реакторами на быстрых нейтронах (БН). Проведенные исследования и разработки обеспечили успешную многолетнюю эксплуатацию установок БР-5, БОР-60, БН-350 и БН-600. Отмечается следующее:

- изучены источники примесей, их интенсивность, возможные негативные последствия, обусловленные примесями, при эксплуатации АЭС;
- с использованием оригинальных расчетно-теоретических и экспериментальных методик изучено состояние примесей в теплоносителе и защитном газе в зависимости от компонентного состава системы и ее температуры как в условиях термодинамического равновесия, так и с учетом кинетики реакций;
- выполнено комплексное исследование процессов тепло- и массообмена и гидродинамики в холодных ловушках (ХЛ). Разработан и внедрен на промышленных установках оригинальный метод регенерации ХЛ;
- предложены модели гомогенного и гетерогенного массопереноса примесей в натриевых контурах;
- исследованы процессы горения натрия при истечении его в атмосферу.

Особое внимание уделено аспектам обеспечения нормальной эксплуатации ЯЭУ с учетом потенциальных отказов по технологическим причинам. Рассмотрены неотложные задачи в рамках дальнейшего развития технологии натрия.

Technology of sodium as the coolant of fast neutrons reactors. F.A. Kozlov, V.V. Alekseev, L.G. Volchkov, T.A. Vorob'jeva, Yu.I. Zagoru'ko, Yu.P. Kovalev, P.S. Kozub, G.P. Sergeev. In the article is given a brief description of principal results obtained in sodium coolant technology researches as applied to development of nuclear plants (NP) with fast breeder reactors. The researches and developments, having been carried out, provided successful long-term operation of the reactors BR-10, BOR-60, BN-350 and BN-600. The progress has been achieved on the following topics:

- varieties and intensities of sodium coolant impurities sources have been established and classified with regards to their possible detrimental consequences for NP's long-term operation;
- using original theoretical and experimental methods has been studied the state of impurities in sodium both in equilibrium and with account for variations of impurities content, temperature conditions and possible chemical reactions;
- multiple experimental investigation of heat-mass transfer and hydrodynamic processes in cold traps has been performed. Simultaneously an original method of the cold traps regeneration has been developed and implemented at NP's;
- mathematical models of impurities homogeneous and heterogeneous mass transfer in sodium have been developed;
- sodium fires at sodium leaks into air and their extinguishing procedures have been investigated.

Special attention is paid to the aspects ensuring NP's normal operation with account for potential failures due to technological reasons. There are considered the mostly urgent tasks of sodium coolant technology further development.

Практически с самого начала в задачи освоения натрия-теплоносителя входили: изучение характеристик системы "натрий-примеси-конструкционные (технологические) материалы-защитный газ", очистка натрия от примесей и контроль за их содержанием, безопасная эксплуатация установок в рабочих режимах и при проведении ремонтных работ.

Эти задачи при создании установки БР-5 как первого масштабного прототипа быстрого реактора решены испытанием на экспериментальных стендах ХЛ, охлаждаемых толуолом, пробковых индикаторов (ПИ) и устройств отбора проб теплоносителя для последующего анализа их физико-химическими методами.

Аналогичные задачи решались и при создании АЭС с реакторами БОР-60, БН-350, БН-600. Одновременно проводились исследования физико-химических процессов в системе "натрий-примеси-конструкционные (технологические) материалы-защитный газ" [1...10].

1. Примеси в теплоносителе и защитном газе

Изучены источники примесей, их интенсивность, возможные негативные последствия, обусловленные примесями, при эксплуатации АЭС. На основании этих данных обосновано допустимое содержание примесей в теплоносителе и защитном газе и разработан ОСТ на на-

трий при поставке и в период эксплуатации ЯЭУ (табл. 1) [11].

Кислород является наиболее опасной с точки зрения коррозионного воздействия на конструкционный материал примесью. Содержание кислорода в натрии, поставляемом с завода, не должно превышать 50 млн^{-1} , а в процессе эксплуатации, учитывая различные ситуации с возможным поступлением кислорода во время ремонтов и разгерметизации контура, его содержание ограничено 10 млн^{-1} . Помимо кислорода на коррозию конструкционных материалов в натрии оказывают влияние углерод, азот, водород.

Исходя из допустимости снижения прочностных характеристик стали на 10 % в процессе эксплуатации реакторной установки, рекомендованы следующие нормы содержания углерода в натрии: для I контура 20 млн^{-1} , для II контура 30 млн^{-1} . На стадии поставки натрия с завода на АЭС содержание углерода не должно превышать 30 млн^{-1} .

Водород оказывает меньшее коррозионное воздействие на конструкционные материалы, чем кислород, однако совместное воздействие этих примесей приводит к возрастанию коррозии сталей. Основываясь на подходе, аналогичном для кислорода, норма содержания в натрии для водорода установлена $0,5 \text{ млн}^{-1}$.

В начальный период освоения натрия как теплоносителя считалось, что азот не оказывает

существенного влияния на механические свойства сталей. Однако в дальнейшем обнаружено, что наличие азота в защитном газе вызывает азотирование стали. Поэтому принято, что при температурах выше $300 \text{ }^\circ\text{C}$ концентрация азота в защитном газе над натрием должна быть меньше $\sim 0,3 \%$ об.

2. Контроль примесей в натрии и защитном газе

При обосновании требований к методам контроля по оперативности, диапазону концентрации, чувствительности учитывались не только важность создания условий для длительной безаварийной работы промышленных установок и их прототипов, поддержания радиационной обстановки и минимизации дозовых нагрузок, но и необходимость обеспечения экспериментальных работ (табл. 2).

При разработке пробоотборных устройств большое внимание уделено обеспечению представительства пробоотбора, необходимой чувствительности и точности анализа.

Из большого количества разработанных пробоотборников нашли применение три типа устройств: трубчатый пробоотборник, пробоотборник-дистиллятор (рис. 1) и пробоотборник радиоактивного натрия (рис. 2). При отработке режима дистилляции в пробоотборниках-дистилляторах и анализе проб, отобранных в трубчатый пробоотборник, уделено первостепенное внимание обоснованию параметров этого процесса и обеспечению минимальных загрязнений пробы в последующем анализе. В результате достигнуто следующее. Пределы обнаружения составляют: по кислороду (оксидная, гидроксидная и карбонатная формы) – 2 млн^{-1} , по углероду (нелетучие формы) – 4 млн^{-1} , азоту (нитридные формы) – $1,6 \text{ млн}^{-1}$, хлоридам – 2 млн^{-1} . Новые методы анализа и аппаратура внедрены на предприятиях-поставщиках натрия и реакторных установках БР-10, БОР-60, БН-350, БН-600.

Среди оперативных методов контроля примесей в натрии основное внимание уделено ПИ (рис. 3), датчикам с диффузионными мембранами и электрохимическим методам. Расчетно-теоретическим анализом установлено, что показания ПИ зависят от ряда

Таблица 1. Примеси в натрии

№№ п/п	Примеси	Требования ОСТ, млн^{-1}		Содержание в натрии БН-600, млн^{-1}	
		Период поставки	Период эксплуатации	I контур	II контур
1	Калий	1000	1000	600	500
2	Кальций	10	10	5	4
3	Углерод	30	30	6	18
4	Хлориды	30	30	9	9
5	Азот	10	10*	3	3
6	Железо	50	50	25	22
7	Кремний	10	10	< 10	< 10
8	Висмут	10	10	< 10	< 10
9	Барий	10	10	< 10	< 10
10	Олово	20	20	< 20	< 20
11	Кислород	50	10	2	2
12	Водород	–	0,5	не измер.	0,02
13	Цезий, МБк/кг	–	185	176	–

*В защитном газе I контура содержание азота допускается до 0,3 % об.

Т а б л и ц а 2. Требования к системам и методам контроля за содержанием примесей в натрии

Характеристики метода		Диапазон измерений, млн ⁻¹	Предельная чувствительность, млн ⁻¹	Необходимое время измерения
Примесь				
Водород	в Na	0,05...2	10 ⁻²	≤20 с
		0,1...10 ³	0,1	
	в Ag	5...10 ³	2	≤20 с
		5...10 ³	2	
Углерод*		10 ⁻³ ...5·10 ⁻¹	5·10 ⁻³	≤ 1 час
		0,1...10 ³	~ 1	
Кислород		1...10	10 ⁻¹	≤20 с
		1...10 ⁵	1	
Продукты коррозии (Fe, Cr, Ni)		1...100	1	1 сут
Литий		1...100	1	1 сут
Бор		5...10	5	1 сут
Азот		1,6...100	1,6	3 часа
Хлор		2...1000	2	3 часа

Примечания: 1. Верхняя графа – оперативные методы контроля примесей.

Нижняя графа – контроль примесей с отбором пробы.

2. * – для оперативного метода контроля углерода – в единицах термодинамической активности.

параметров: диаметра отверстий, их числа, расхода и скорости охлаждения теплоносителя, протекающего через отверстия, вида кристаллизующейся примеси, а также от конструкции ПИ. Из выполненного анализа следует, что если измерение проводить при растворении образовавшейся пробки, то фиксируемая температура начала ее размывания будет ближе к температуре насыщения, чем температура начала закупоривания ПИ в процессе охлаждения. Экспериментально определены значения параметров, гарантирующих достоверность показаний ПИ. Проведена градуировка ПИ по кисло-

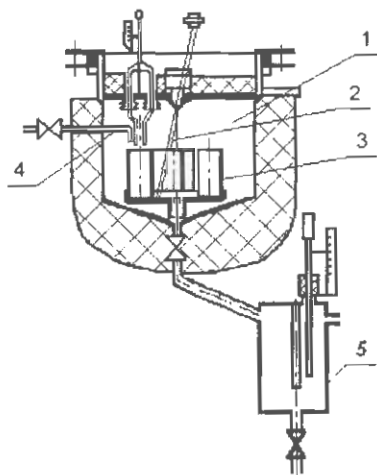


Рис. 1. Пробоотборник-дистиллятор: 1 – вакуумная камера; 2 – поворотное устройство; 3 – стаканы; 4 – сливная трубка; 5 – конденсатор

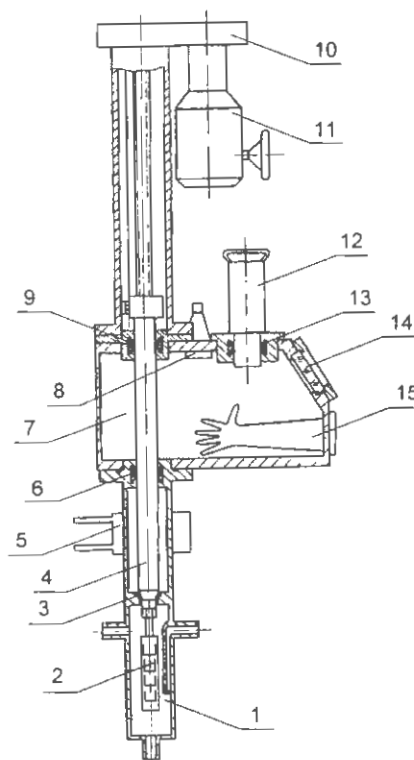


Рис. 2. Пробоотборник радиоактивного натрия: 1 – корпус камеры пробоотбора; 2 – кассета со стаканчиками для проб; 3 – основное уплотнение; 4 – шток; 5 – замораживающее уплотнение; 6 – нижнее уплотнение бокса; 7 – перчаточный бокс; 8 – лампа освещения бокса; 9 – верхнее уплотнение бокса; 10 – редуктор; 11 – электропривод; 12 – контейнер для транспортировки кассеты с пробами; 13 – уплотнение контейнера; 14 – стекло; 15 – перчатки

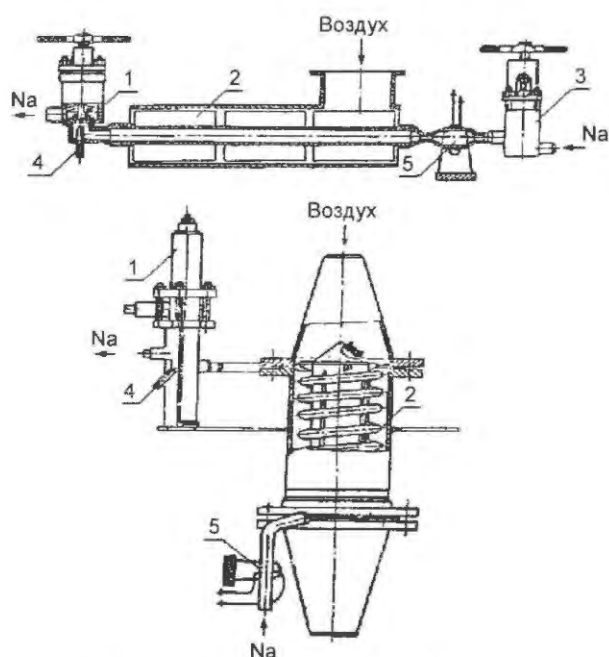


Рис. 3. Конструкция ПИ (две модификации): 1 – основной вентиль, 2 – теплообменник, 3 – регулирующий вентиль, 4 – карман термопары, 5 – расходомер

роду, водороду и продуктам взаимодействия натрия с водой.

Метод контроля за термодинамической активностью примесей в натрии с использованием датчиков с диффузионными мембранами основан на измерении потока примесей из теплоносителя через специальные мембраны в другую среду (вакуум, инертный газ, специальная газовая смесь) при контролируемых параметрах.

Для контроля водорода в натрии в качестве материала диффузионной мембраны выбран никель. Для измерения потока водорода использованы различные методы. Лучшие результаты получены при применении магнито-разрядных насосов. На их основе создан индикатор водорода автоматический ИВА-1 (рис. 4), содержащий следующие основные элементы: блок подогрева натрия до рабочей температуры; высоковакуумный блок, состоящий из датчика, внутренняя полость которого связана с вакуумной полостью магнито-разрядного насоса; блоки формирования электрического сигнала (ток насоса) как функции потока водорода, питания насоса высоковольтным напряжением, измерения тока насоса, формирования аварийного сигнала, управления нагревателем, проверки метрологических характеристик ИВА-1. Основные характеристики ИВА-1 – чувствительность по водороду в натрии и инерционность равны $0,01...0,06 \text{ млн}^{-1}$ и $15...18 \text{ с}$, соответственно. Главное назначение ИВА-1 на про-

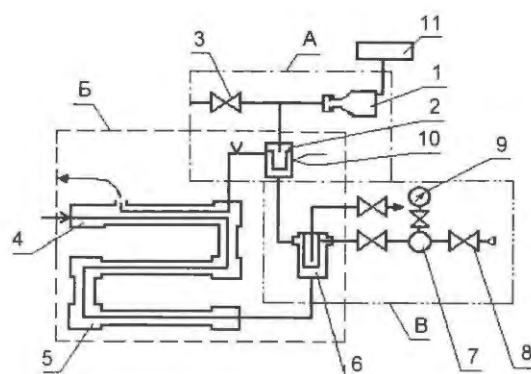


Рис. 4. Схема индикатора водорода в натрии ИВА-1: А – блок высоковакуумный, Б – блок натриевый, В – устройство калибровочное; 1 – насос НМД-0,0063, 2 – датчик водорода, 3 – вентиль или пережим вакуумный, 4 – рекуператор, 5 – основной нагреватель, 6 – дозатор водорода, 7 – бачок мерный, 8 – вентили, 9 – манометр, 10 – термопары, 11 – блок питания

мышленных установках – обнаружение попадания воды в натрий при течи парогенератора.

Для контроля углерода в натрии используется датчик с мембраной из железа армко. Одна сторона мембраны омывается натрием, имеющим температуру 750°C , вторая – специальным газом, который, взаимодействуя с углеродом на поверхности мембраны, образует окись углерода или метан. Измеряемое количество образующейся окиси углерода или метана пропорционально термодинамической активности углерода в натрии. Эта система применялась в натриевой лаборатории ФЭИ при исследовании поведения углерода в натрии.

Для измерения кислорода в натрии разработаны ЦИЯИ (ГДР) совместно с ФЭИ электрохимические ячейки (ЭХЯ), опытные образцы которых прошли испытания на экспериментальных натриевых стендах, в радиоактивном натрии реактора БР-10. На II контуре установки БН-350 они проработали более 20 000 часов. Погрешность измерения концентрации кислорода с помощью ЭХЯ – 20 %. К сожалению, проблема промышленного освоения ЭХЯ в настоящее время не решена.

Методы оперативного измерения активности нуклидов в контуре и контроль герметичности оболочек твэлов. На реакторной установке БОР-60 отработан метод оперативного контроля активности нуклидов в потоке натриевого теплоносителя работающего реактора устройством ЦЕНА (“цезий в натрии”). Измерение активности осуществляют германий-литиевым детектором в сорбционной зоне объемом примерно 1 см^3 , расположенной в проточной трубке. За время измерения $1...10 \text{ мин}$ надежно идентифицируется и измеряется удельная радиоактивность нуклидов цезия в

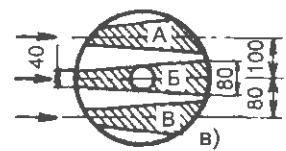
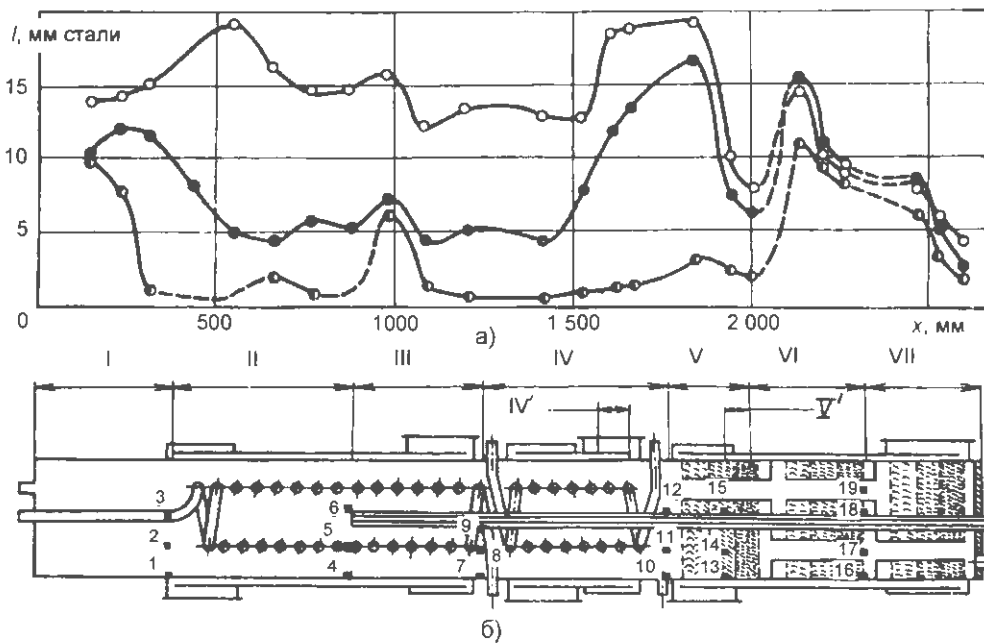


Рис. 5. Распределение окиси натрия в ловушке, измеренное γ -методом: а) ● — $G_{Na_2O} = 63$ кг; ○ — $G_{Na_2O} = 111$ кг; — — $G_{Na_2O} = 14$ кг; б) — схема разрезки ловушки на части и места отбора локальных проб; в) — схема разрезки частей IV' и V' для градуировки γ -методом

натрия, а при некоторых условиях также и ксенона.

Для контроля водорода в защитном газе разработаны и внедрены в промышленном масштабе методики анализа примесей с использованием стандартных приборов: газового хроматографа ЛХМ-8, "Циркон", "Байкал", газоанализатора ВТИ, позволяя контролировать кислород, азот и летучие углеродосодержащие примеси в пределах $10^{-7} \dots 10^{-3}$ об. долей.

Для контроля водорода в аргоне II контура и газообразных продуктов деления в газовой полости реактора (ГПР) разработаны специальные схемы отбора газа, включающие фильтры для очистки от паров натрия и нагнетатели газа (для I контура). Содержание водорода в защитном газе II контуров АЭС БН-350, БН-600 определяется кондуктометрическим анализатором водорода КАВ-7.

3. Очистка натрия от примесей

Основными устройствами очистки натрия в контурах быстрых реакторов служат ХЛ. Исследованы особенности процессов гидродинамики тепло- и массообмена в ХЛ (рис. 5). Для режимов работы ловушек характерны малые скорости теплоносителя, большие проходные сечения, уменьшающиеся по мере накопления примесей в ловушке, значительные перепады температур, наличие разветвленных массообменных поверхностей. Исследования проводились как на специальных экспериментальных участках, моделирующих различные зоны ХЛ (изотермический и неизотермический отстойники и фильтры, зона окончательного охлажде-

ния), так и на моделях прототипов ловушек, которые проектировались в ФЭИ и ОКБМ. Конструкции ХЛ показаны на рис. 6 и 7.

Исследования показали:

— распределение примесей в охлаждаемых проточных зонах характеризуется большой неравномерностью. При нисходящем потоке охлаждаемого натрия максимальная локальная концентрация примесей превышает среднюю в 10 и более раз. Подобный режим течения ха-

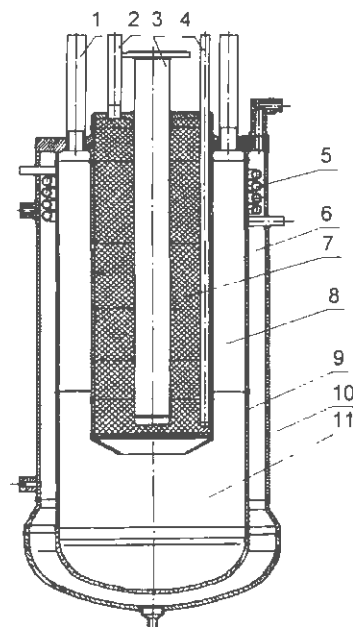


Рис. 6. Схема ХЛ примесей натрия реактора БР-10: 1 — входной патрубок натрия; 2 — выходной патрубок натрия; 3 — полость нагревателя; 4 — карман термодпары; 5 — змеевик водяного охлаждения; 6 — полость толуола; 7 — фильтр; 8 — канал охлаждения натрия; 9 — внутренний корпус ХЛ; 10 — наружный корпус ХЛ; 11 — отстойник

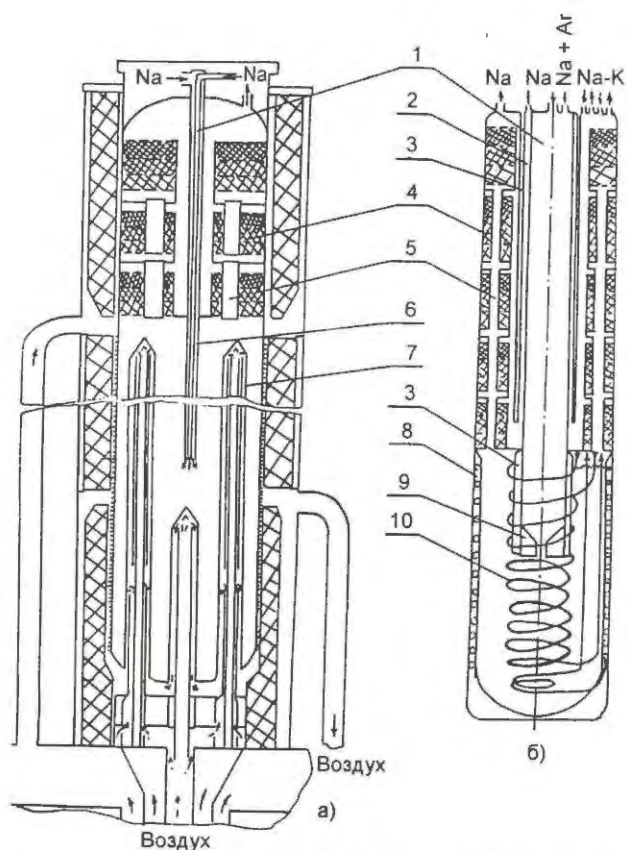


Рис. 7. Схемы ХЛ примесей натрия БН-600 (а) и БН-350 (б): 1 – центральная труба; 2 – внешний канал рекуператора; 3 – воздушный зазор; 4 – фильтр; 5 – проточные трубки; 6 – аксиальная труба; 7 – трубки воздушного охлаждения; 8 – кожух охлаждения; 9 – конус; 10 – змеевик

рактен для первых испытанных моделей ХЛ, что объясняет низкую емкость по примесям;

– выявлено, что отстойник служит эффективной составляющей ХЛ, удерживая до 25 % примесей. Причем при работе отстойника в составе ловушки, когда над ним находится зона окончательного охлаждения, коэффициент удержания примесей в отстойнике возрастает до 50 %. Средняя массовая концентрация примесей в отстойнике достигала 56 %; доля объема, занятая примесью, составляла 35 %.

Эти результаты, а также данные исследований тепло- и массообмена в неизотермическом и изотермическом фильтрах и испытаний различных моделей ХЛ, определили отечественный подход к конструированию ХЛ, которая должна иметь три последовательно расположенные зоны: охлаждаемый отстойник, зону окончательного охлаждения и изотермический фильтр. Испытания ХЛ показали, что они эффективно очищают натрий от кислорода и водорода (при времени пребывания натрия в ловушке более 15 мин коэффициент удержания примесей близок к единице).

Минимальная концентрация кислорода и водорода в натрии после очистки его ловушками разных типов равна их растворимости при температуре 120...150 °С на выходе из ловушки. Для этих температур растворимость кислорода и водорода составляет 3...5 и 0,02...0,05 млн⁻¹, соответственно. Очистка натрия от продуктов коррозии и особенно от углерода менее эффективна. Разработаны основные подходы к конструированию ХЛ (определение объема ХЛ, ее зон и их геометрии), выбору хладагента и конструированию узлов охлаждения, к созданию методик теплового расчета ХЛ.

Для восстановления работоспособности ловушки при возрастании гидравлического сопротивления из-за накопления в ней примесей разработан метод регенерации. Он заключается в переводе тугоплавких примесей (окиси натрия), локализованных в ловушке, в легкоплавкую каустическую фазу. Основой этой фазы служит гидроокись натрия, образующаяся в результате взаимодействия окиси натрия с водородом. В ней растворены окись и гидрид натрия и другие примеси. До проведения регенерации основная масса натрия удаляется из ловушки. После этого ловушка разогревается до температуры 450...500 °С. Если в ловушке имеется достаточное количество водорода (в виде гидрида натрия), то нет необходимости подавать газообразный водород для превращения окиси натрия в гидроокись. Избыток газообразного водорода, который может образовываться при разложении гидрида, сбрасывается в атмосферу через спецвентиляцию.

Каустическая фаза, образующаяся в процессе регенерации, стекает в отстойник ловушки. Так как она имеет высокую плотность, ее объем значительно меньше объема, занимаемого примесями в ловушке до регенерации. При необходимости каустическая фаза может быть удалена из ловушки в специальную емкость. Метод применен в ФЭИ на различных моделях ХЛ более 15 раз. На одной из экспериментальных ловушек он использовался 8 раз. Данный метод регенерации показал высокую эффективность и экономичность, что позволило внедрить его на промышленные установки БН-350, БН-600, а также рекомендовать для БН-800. В табл. 3 приведены данные по отечественному опыту регенераций ХЛ.

Улавливание радионуклидов в ХЛ. Исследования распределения радионуклидов по объему штатных ХЛ реакторов БР-5, БОР-60 выявили способность ловушек в той или иной степени накапливать радионуклиды. Определена эф-

Т а б л и ц а 3. Регенерация ХЛ и их моделей

№№ п/п	Объект	Место проведения регенерации	Накопленные в ХЛ продукты	Количество регенераций
1	ХЛ V~105 л	Экспериментальный стенд ФЭИ	Na ₂ O, NaH, NaOH	1 (1973)
2	ХЛ V~105 л	Экспериментальный стенд ФЭИ	Na ₂ O, NaH, NaOH	1 (1973)
3	ХЛ V~105 л	Экспериментальный стенд ФЭИ	Na ₂ O, NaH, NaOH	8 (1975-1982)
4	Модель ХЛ V~36 л	Экспериментальный стенд ФЭИ	Na ₂ O	2 (1974)
5	Модель ХЛ БН-600 V~800 л	Экспериментальный стенд ФЭИ	Na ₂ O, NaH, NaOH	3 (1973-1987)
6	ХЛ системы приготовления натрия V~3 м ³	БН-350 (опробование метода)	Na ₂ O, NaH, NaOH	2 (1980, 1981)
7	ХЛ петли № 9 V~3 м ³	БН-350 (опробование метода в условиях петли)	Na ₂ O, NaH, NaOH, NaT	1 (1983)
8	ХЛ петли № 12 V~3 м ³	БН-350	Na ₂ O, NaH, NaOH, NaT	1 (1984)
9	ХЛ петли № 8 V~3 м ³	БН-350	Na ₂ O, NaH, NaOH, NaT	1 (1985)
10	ХЛ петли № 11 V~3 м ³	БН-350	Na ₂ O, NaH, NaOH, NaT	1 (1985)
11	ХЛ петли № 5 V~6 м ³	БН-600	Na ₂ O, NaH, NaOH, NaT	1 (1987)
12	ХЛ петли № 5 (вторая ХЛ) V~6 м ³	БН-600	Na ₂ O, NaH, NaOH, NaT	1(1988)

эффективность очистки натрия от различных нуклидов. (Отношение равновесных объемных активностей до и после очистки: для ¹³¹I – 100, ⁶⁵Zn – 7,1, ^{137,134}Cs – 1,5, ⁶⁰Co и ¹²⁴Sb – 1,3, а для остальных нуклидов – 1 (отсутствие очистки)). Видно, что радиоактивные изотопы йода удерживаются и распадаются в ловушке. Показано, что улавливание изотопов цезия в ХЛ в основном обусловлено его осаждением на углеродных примесях, накопленных в ловушке.

Для эффективной очистки натрия от цезия предложен и обоснован метод сорбционной очистки с применением графитовых материалов. Их сравнивали по отношению объемных активностей сорбируемого радионуклида в

опытном образце и натрия (коэффициент распределения), а также по стойкости их в натрии. После исследования более десятка материалов для последующего испытания в радионуклидных ловушках рекомендованы графиты марок ГМЗ, РБМ и ГМЗ-6.

Разработаны различные типы устройств очистки натрия от цезия и обоснованы режимы их эксплуатации. В частности, на остановленном реакторе рекомендован режим очистки при температуре 200...230 °С, а для более глубокой очистки – две стадии: а) при 240...320 °С и б) при 160...220 °С. Результаты очистки натрия от цезия сорбционными ловушками приведены в табл. 4.

Т а б л и ц а 4. Условия и результаты очистки теплоносителя реакторов от цезия с использованием разработанных ловушек

Установка	БОР-60				БН-350			БН-600	
	02.75	07.75	06.80	11.86	11.79	04.80	07.84	09.84	08.86
Дата: месяц, год	02.75	07.75	06.80	11.86	11.79	04.80	07.84	09.84	08.86
Продолжительность, час	45	140	155	382	123	759	199	403	346
Отношение масс графита и натрия, 10 ⁻⁵	18	5,5	3,7	8,2	2,1	2,1	2,0	1,2	1,2
Температура, °С	190±20	230±20	240±20	235±10	225; 180	200; 175	250; 175	250; 185	220±10
Удельная активность Cs после очистки, кБк/г	190	80	40	42	410	210	70	160	110
Отношение мощности дозы до и после очистки	2,6	2,7	1,4	3,4	1,5	2,5	1,8	1,4	1,5

4. Исследования в области физической химии и массопереноса

Определены растворимости кислорода, водорода, углерода, серы и кремния в натрии. С учетом анализа литературных данных рекомендованы аналитические зависимости по растворимости более 20 индивидуальных веществ в натрии.

С использованием оригинальных расчетно-теоретических и экспериментальных методик изучено состояние примесей в теплоносителе и защитном газе в зависимости от компонентного состава системы и ее температуры как в условиях термодинамического равновесия, так и с учетом кинетики реакций. Такие элементы, как Ca, Ba, Ti, Zr, V, Nb, La, U, будут присутствовать в натрии преимущественно в виде соответствующих окислов.

Углерод в основном будет присутствовать в натрии в свободном виде и в незначительных количествах в виде ацетилида натрия, а в газовой фазе над натрием появятся метан и двуокись углерода (при соответствующем наличии водорода и кислорода в натрии).

Определены константы скоростей реакций, необходимые для расчетов изменения состава системы натрий-примеси при взаимодействии натрия с газообразным водородом, гидроокисью натрия (для гомогенной и гетерогенной реакций), с двуокисью углерода и метаном.

Изучение кинетики скоростей реакции летучих продуктов взаимодействия нефтепродуктов с натрием показало, что контроль попадания масла в натрий по углеводородам в газовой фазе над натрием наиболее целесообразно осуществлять по концентрации метана.

Экспериментально установлено, что взаимодействие карбоната натрия с натрием начинается при температурах 350...360 °С. Конечными продуктами реакции являются окись натрия и свободный углерод.

Предложены модели гомогенного и гетерогенного массопереноса примесей в натриевых контурах. На их основе разработаны компьютерные коды для расчета интегрального массопереноса водорода и трития, а также продуктов коррозии конструкционных материалов.

Предложена модель массопереноса трития в трехконтурной ЯЭУ с натриевым теплоносителем, включая выход трития в помещения АЭС и окружающую среду, и выполнены расчеты по разработанным компьютерным кодам для стационарного состояния системы, а также с учетом нестационарности процесса. Они показали, что основное количество трития, обра-

зующегося в быстром реакторе, поступает в ХЛ I и II контуров. При этом в ловушках I контура его накапливается примерно в полтора раза больше. В III контур через парогенераторы трития выносится примерно на два порядка меньше, чем накапливается в ХЛ. Через стенки натриевых контуров в атмосферу его попадает на два-три порядка меньше, чем в ловушки. Результаты расчета динамики изменения содержания трития в первых контурах установок БН-600 и Феникс показаны на рис. 8.

При непрерывной работе установки БН-600 на номинальных параметрах выход трития в атмосферу, включая производственные помещения, составляет по расчетам 33 Ку/год. Общий выход трития через III контур с безвозвратно теряемой питательной водой составляет 86 Ку/год. Этот тритий в основном попадает в гидросферу.

Применительно к неизотермическим циркуляционным натриевым контурам разработана принципиально новая математическая модель массопереноса продуктов коррозии конструкционных материалов. Модель учитывает одновременный перенос растворенных примесей и взвесей. Проведены эксперименты по исследованию массопереноса продуктов коррозии в неизотермическом участке натриевого контура, на основании которых уточнены значения физических констант, необходимых для численной реализации кодов.

С использованием предложенной модели рассчитаны плотности потока массы продуктов коррозии, осаждающихся на поверхности гидравлического тракта установки БН-600. Показано, что за 20 лет непрерывной эксплуатации реактора толщина отложений в ПТО в максимуме составит около 1,6 мкм. Наибольшая скорость коррозии конструкционного материала имеет место в высокотемпературной зоне. Ее величина составляет около 1 мкм/год. Резуль-

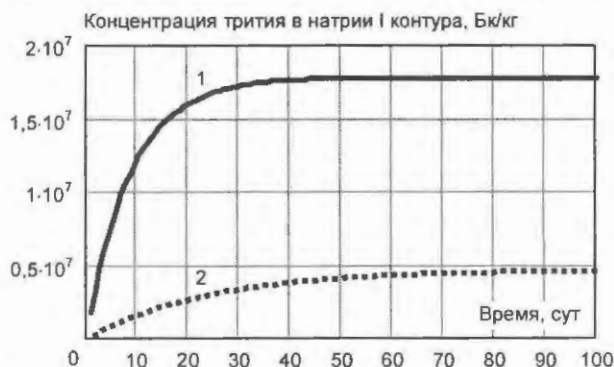


Рис. 8. Изменение концентрации трития в натрии I контура БН-600 (1) и Феникс (2) после запуска установок в номинальном режиме (исходное содержание трития в натрии пренебрежимо мало)

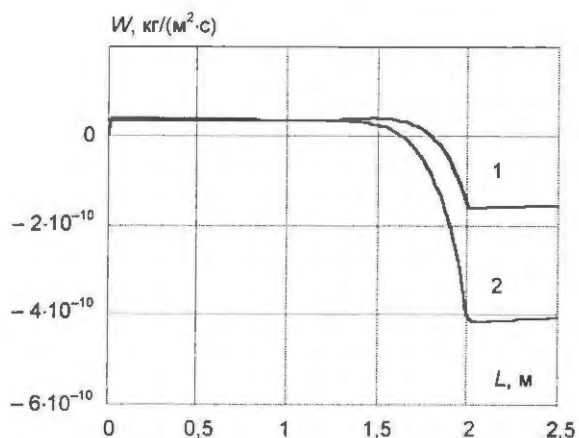


Рис. 9. Распределение плотности потока массы компонентов стали, осаждающихся на поверхность твэла по его длине, для реакторов БН-600 (кривая 1) и БН-1800 (кривая 2) (отрицательная область соответствует растворению стали)

таты расчетов для БН-600 и БН-1800 представлены на рис. 9 и в табл. 5.

Таблица 5. Результаты расчетов массопереноса продуктов коррозии в I контуре ЯЭУ

Установка	БН-600	БН-1800
$T_{\text{вых а.з.}}$, °С	550	575*
Выход продуктов коррозии из а.з., кг/год	11	52
Наибольшая скорость растворения стали на выходе из а.з., мкм/год	0,8	1,7
Накопление отложений в экстремальных точках (а.з./ПТО) при пористости отложений 50 %, мкм/год	0,3/0,09	0,32/0,14

* — выбрана на начальном этапе разработки проекта

5. Вопросы безопасности при аномальных ситуациях на реакторе

Исследование истечения натрия из контуров при характеристиках натриевых систем быстрых реакторов показало, что внутренние причины для быстрого образования крупных дефектов отсутствуют. Это подтверждается и многолетним опытом эксплуатации. Тем не менее в проектах быстрых реакторов учитывается возможность больших течей натрия и проводятся соответствующие исследования [9].

Такие исследования осуществлены на экспериментальных стендах в условиях, максимально приближенных к условиям работы конкретных натриевых систем отечественных быстрых реакторов. При этом изучены:

- характеристики протечек натрия через дефекты макетов трубопроводов, имитирующих реальные трубопроводы натриевых систем быстрых реакторов;

- особенности горения распыленного, разбрызгиваемого и разлившегося слоя натрия;
- выход аэрозольных продуктов при горении натрия (в том числе радиоактивного) и их перенос в технологических помещениях реактора и окружающей среде;
- характеристики различных средств и систем пожаротушения натрия, локализации и подавления горения, локализации и улавливания аэрозольных продуктов;
- разные способы и средства отмывки и дезактивации оборудования и помещений здания реактора после горения натрия.

Разработаны, верифицированы и использованы на практике методики и компьютерные программы расчета параметров горения натрия и последствий горения. Это позволило проанализировать аварийные ситуации с течью и горением натрия применительно к конкретным проектам быстрых реакторов. Разработаны, обоснованы теоретически и экспериментально и внедрены высокочувствительные и надежные системы обнаружения течи и горения натрия. Это системы контроля замыкания токоведущих проводников электрообогрева натриевых трубопроводов, системы обнаружения радиоактивных аэрозолей, ионизационные детекторы и др.

Разработанные средства и системы пожаротушения натрия и локализации последствий его горения основаны преимущественно на пассивном принципе действия. Это, например, страховочные кожухи, которые устанавливаются на корпусе реактора и некоторых трубопроводах. Пространство между кожухом и стенкой, за которой находится натрий, постоянно заполнено инертным газом, исключающим горение в случае течи натрия.

Широкое применение получил метод самотушения, когда прекращение горения натрия, вытекающего в заполненное воздухом замкнутое пространство (некоторую емкость или даже технологическое помещение), достигается в результате снижения концентрации кислорода за счет его взаимодействия с натрием. С помощью определенного режима работы системы вентиляции, оснащенной специальными высокоэффективными фильтрами, предотвращается выброс аэрозолей в атмосферу.

Активные методы пожаротушения предусматривают принудительную подачу огнегасительных сред и материалов к очагу горения. При этом используются стационарные системы порошкового пожаротушения, а также переносные (передвижные) огнетушители.

Разрушение бетонных строительных конструкций предотвращается облицовкой внутренних поверхностей стен помещения сталью, что обеспечивает отсутствие прямого контакта натрия с бетоном и теплоизоляцией, размещаемой между облицовкой и бетоном. Кроме того, разработаны специальные типы бетона, химически не реагирующего с натрием.

Опыт эксплуатации отечественных быстрых реакторов показал, что принятые и внедренные технические решения обеспечивают надежную защиту от горения натрия.

Аномальный режим 21 января 1987 г. на III блоке БАЭС. На реакторе БН-600 системами измерения физических и технологических параметров зарегистрирован переход реактора в состояние аномального режима, выразившегося в ряде событий и эффектов, характеризующихся самопроизвольным отклонением этих параметров от установившихся, заданных значений.

Исходя из физической природы событий, зарегистрированных в ходе аномального режима, и их сочетания в качестве наиболее вероятной причины его возникновения и развития

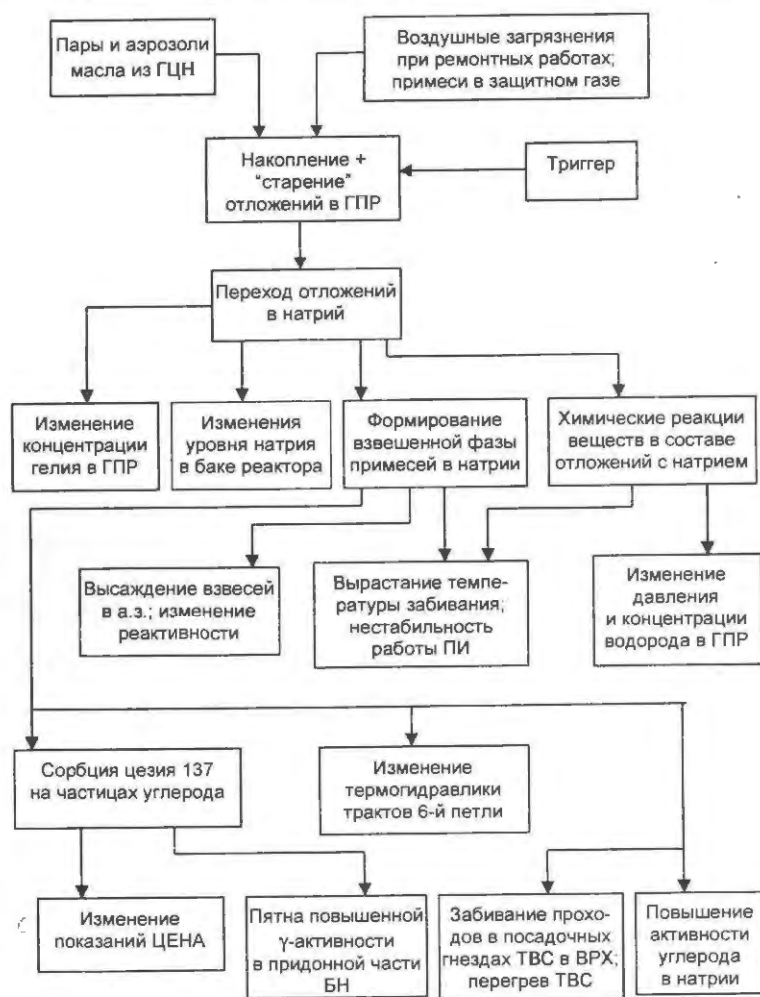


Рис. 10. Предполагаемая схема процессов при аномальном режиме в I контуре БН-600 21.01.1987 г. и в последующий период [12]

принято попадание в циркулирующий теплоноситель примесей, накопленных за предшествующий период эксплуатации реактора на поверхностях ГПР.

Источниками формирования отложений примесей на поверхностях ГПР служат:

- пары и аэрозоли масла из ГЦН;
- влага, оксиды углерода и углеводороды, содержащиеся в виде примесей в аргоне (защитный газ);
- воздушные загрязнения (включая влагу), попадающие в реактор при проведении замены оборудования и ремонтных работ.

На рис. 10 представлена предполагаемая схема процессов при аномальном режиме в I контуре БН-600 21.01.1987 г. и в последующий период.

Для установки БН-600 среди многих вопросов, связанных с безопасностью и продлением ресурса, большое значение имеет состояние центральной поворотной колонны (ЦПК) реактора. Имеется анализ негативных последствий взаимодействия графита с натрием, попавшим в ЦПК. По проблеме взаимодействия графита с натрием в ФЭИ выполнен цикл исследований. Их результаты использованы при разработке первой версии расчетного кода для прогнозирования поведения ЦПК при дальнейшей эксплуатации БН-600. На рис. 11 показано прогнозируемое перемещение некоторых точек на поверхности обечайки ЦПК относительно ее геометрического центра в течение времени для одного из сценариев попадания натрия внутрь колонны.

6. Очистка оборудования от остатков теплоносителя и уничтожение отходов [4, 11, 12]

В результате исследований и обобщения опыта разработаны безопасные приемы проведения различных операций: очистки оборудования от остатков натрия и его дезактивации; защиты натрия от окисления при вскрытии контуров; работ при извлечении и установке оборудования в контур; уничтожения отходов и утилизации отработавшего теплоносителя.

Исследовались различные методы очистки от остатков теплоносителя и уничтожения отходов: парогазовый; спиртовой и водноспиртовой; водовакуумный метод; вакуумная отгонка натрия; отмывка водяным туманом. По каждому

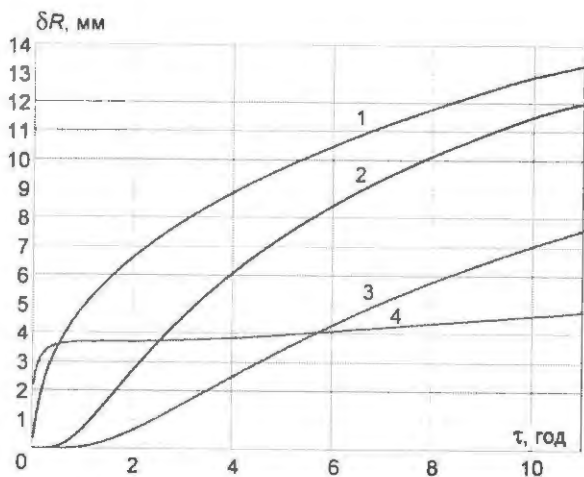


Рис. 11. Перемещение в течение времени точек 1...4, расположенных равномерно по окружности обечайки ЦПК, на поверхности обечайки относительно геометрического центра ЦПК

методу подобраны рецептуры реагентов, условия и режимы проведения операций (температура, длительность и пр.), обеспечивающие безопасность проведения работы.

Парогазовый способ снижает скорость реакции натрия с водой регулированием содержания пара в газовой смеси азот-пар в пределах от 5 до 60 %. Безопасность проведения операций обеспечивается контролем за содержанием водорода и кислорода в отмывочной шахте, предварительным разогревом оборудования до $t = 110...130$ °С (для предотвращения конденсации пара), постоянным удалением продуктов реакции и образующегося водорода из зоны реакции. Данный метод применяется для отмывки крупногабаритного оборудования: ГЦН, теплообменников, модулей парогенераторов; для этого оборудования сооружены специальные шахты на реакторах БН-350 и БН-600. С помощью парогазового способа отмыто от остатков натрия 12 ГЦН, 18 модулей парогенераторов, а также значительное количество среднего и мелкого оборудования, в том числе большое число ТВС (БН-600, БН-350).

Метод отмывки мелкодисперсной водой (водяным туманом) разработан для снижения коррозионного воздействия на конструкционные материалы. Форсунки, используемые при производстве водяного тумана, рассчитаны и сконструированы исходя из требований дисперсности капель, формы факела и расходных характеристик. Важной особенностью этого метода является отсутствие коррозионного повреждения материала оборудования ввиду того, что отмывка производится при низких температурах. Конструкция водяных форсунок внедрена на шахтах мойки крупного и среднего обо-

рудования реактора БН-600 и применяется для окончательной очистки оборудования от натрия после его парогазовой обработки.

При водовакуумной отмывке, предложенной и разработанной ОКБМ, процесс ведется вакуумированием при непрерывном удалении водорода, образующегося при взаимодействии натрия с водой. Безопасность процесса обеспечивается соблюдением режима, при котором температура и давление не должны превышать следующих значений: при отмывке водой $t < 25$ °С, $P < 250$ Па; при отмывке туманом $t < 25$ °С, $P < 2$ кПа; при паровой отмывке $t < 100$ °С, $P < 45$ кПа.

На установке, сооруженной в ОКБМ, отмыто более 100 единиц оборудования, включая ХЛ, транспортные емкости, макеты ТВС, арматуру и др. Метод обеспечивает безопасное ведение процесса, высокое качество отмывки и отсутствие коррозионного повреждения материала.

Для отмывки сложного и тонкостенного оборудования, склонного к повреждаемости, разработаны технологии спиртовой отмывки от остатков натрия, при этом используются различные виды спиртов: этиловый, метиловый, этанола, гликоли, целлозольвы и пр. Реакционная способность натрия по отношению к спиртам уменьшается в порядке от первичных к вторичным, а также с увеличением числа атомов углерода: метанол > этанол > пропанол-1 > пропанол-2 и т.д. Спиртовой отмывке в основном подвергаются отработавшие ТВС, не потерявшие своей герметичности. Этот метод отмывки ТВС этиловым спиртом внедрен на всех отечественных реакторах. Негерметичные сборки очищаются расплавленным свинцом. Дальнейшим шагом в развитии спиртовой отмывки послужили исследования методов применения тяжелых спиртов, снижающих опасность возникновения пожаров при очистке оборудования от натрия.

Очистка оборудования и контуров вакуумной дистилляцией обладает рядом преимуществ по сравнению с другими способами: гарантия безопасности (отсутствие выделения водорода); уменьшение количества сопутствующих отходов. Процесс вакуумной дистилляции ведется при температуре 400...450 °С и вакууме 30...40 Па. Этот способ используется для предварительной очистки сложного и разветвленного оборудования, имеющего карманы, недренируемые участки и т.д. Например, с помощью вакуумной дистилляции очищен I контур реактора БР-10 в 1980 г.

Для уничтожения отходов щелочных металлов разработаны и применяются два метода: обработка парогазовой смесью или методом сжигания. Уничтожение производится в специальном помещении, оборудованном вытяжной вентиляцией и фильтрами, исключающими выброс продуктов реакции в окружающую среду, а также манипуляторами и приборами контроля, необходимыми для управления процессом.

При больших количествах отходов, а также для отработавшего теплоносителя используются различные методы утилизации. В ФЭИ исследовались следующие процессы для перевода отходов натрия в пожаробезопасное состояние: амальгамирование, жидкофазный метод, методы газофазного и твердофазного окисления.

Метод амальгамирования основан на реакции металла со ртутью и образовании амальгамы типа Na-Hg₂, растворении ее в воде с выделением щелочи и водорода.

Жидкофазный метод переработки отходов заключается в растворении диспергированного на шлаке натрия в щелочном растворе. Концентрированная щелочь в дальнейшем преобразуется в цементный камень, пригодный для захоронения.

Газофазный метод переработки отходов натрия основан на процессе окисления диспергированного на соде или шлаке натрия при температуре 300...350 °С. Образующийся сухой порошок окислов при добавлении воды преобразуется в геоцементный камень, пригодный для захоронения.

Твердофазный метод переработки отходов основан на окислении натрия оксидами элементов, содержащихся в шлаке металлургического производства. Реакция идет при температуре ~ 450 °С; конечный продукт переработки представляет собой камнеподобное соединение, пригодное для длительного захоронения. Преимущества данного способа: отсутствие выделения водорода и меньшее увеличение конечного продукта по сравнению с вышеприведенными тремя методами. Этот метод отработан на лабораторных образцах и предполагается применять для утилизации радиоактивных отходов натрия при выводе из эксплуатации реактора БР-10.

Переработка отработавшего натриевого теплоносителя для его захоронения связана со значительным увеличением конечного продукта, поэтому целесообразно использовать этот натрий для вновь строящихся БН или найти ему применение в промышленности.

Для повторного использования натрия I контура для вновь строящихся БН требуется

его очистка от долгоживущих радиоактивных изотопов. Например, натрий БН-600 требуется очистить от изотопов цезия в $2 \cdot 10^3$ раз и от натрия-22 в 300 раз (выдержка в течение ~ 20 лет). Натрий II контура может быть применен без дополнительной очистки. Для использования натрия II контура в химической, металлургической промышленности и других областях народного хозяйства требуется его очистка от трития до $7 \cdot 10^4$ Бк/кг, если вес партии превышает 1 т. Для повторного применения натрия I контура потребуется его глубокая очистка от долгоживущих радиоактивных продуктов (на 4...5 порядков). Практически этот натрий может быть использован в тех областях промышленности, где он применяется в качестве промежуточного продукта, например, при производстве тетраэтилсвинца.

Заключение

Исследования по физической химии и технологии натрия характеризуются тем, что накоплены обширные знания по физхимии и технологии натрия как теплоносителя быстрых реакторов, имеется значительный опыт использования его на АЭС с реакторами БН-600, БН-350, а также на зарубежных АЭС. Вместе с тем прогресс в этой области науки и техники далеко не исчерпан. Ниже представлен перечень основных проблем, решение которых не должно откладываться на последующий период, ввиду сегодняшней необходимости повышения безопасности и экономичности действующих и проектируемых перспективных ЯЭУ.

1. *Применительно к I контуру (а.з., теплообменники, контур циркуляции натрия, газовые системы, бак реактора)* задача максимум – выполнение исследований, направленных на разработку верифицированного кода, учитывающего взаимосвязь тепло-, массообменных, желательных и ядерно-физических, физико-химических и технологических процессов для расчета массопереноса примесей в гетерогенных и гомогенных системах в режимах нормальной эксплуатации и аномальных ситуаций.

Необходимые экспериментальные и расчетно-теоретические работы:

– теплогидравлика I контура и газовых систем с определением зон пассивной циркуляции и застойных зон;

– изучение механизма и кинетики образования и распада сложных оксидов и углеродных соединений в условиях неизотермического контура;

- определение диффузионных характеристик сложных жидкометаллических систем;
- получение данных по растворимости и дисперсности гетерогенной системы с учетом спонтанного образования зародышей кристаллической фазы из пересыщенных растворов;
- экспериментальное и расчетно-теоретическое определение констант, входящих в расчетные коды, с учетом рабочих параметров перспективных ЯЭУ и используемых в них материалов.

Данная информация будет основой для разработки физико-химической модели, необходимой для описания процессов теплопереноса в контуре с жидкометаллическим теплоносителем и газовых системах установки, а также интегрального кода. Это определит структуру его интегральной математической модели. Такой код не только даст информацию о возможном опасном накоплении примесей, но и сделает возможным обоснование мероприятий, минимизирующих их накопление в застойных зонах, а следовательно, обеспечивающих предотвращение аномальных ситуаций при эксплуатации ЯЭУ.

2. *Применительно к парогенератору натрий-вода* задача максимум: научно-техническое обоснование высокоэффективных, экономичных парогенераторов, минимизирующих возможность возникновения течи воды в натрий и его последствий, гарантирующих высокий ресурс их работы.

Необходимые экспериментальные и расчетно-теоретические работы:

- разработка материалов и обоснование научно-технических решений, направленных на замедление процессов саморазвития и последующего развития течей воды в натрий;
- обоснование водно-химического режима, минимизирующего коррозионные процессы в III контуре и поступление водорода из III контура в натриевые системы;
- проведение комплексных испытаний систем автоматической защиты парогенераторов на стенде САЗ (в первую очередь для установки БН-800);
- разработка акустической системы обнаружения течей воды в натрий в парогенераторах натрий-вода. Создание такой системы имеет особую актуальность для крупноблочных парогенераторов.

3. *Применительно к перспективным АЭС: более высокие параметры теплоносителя, двухконтурные схемы (например, типа БН КЗГТУ-300/100).* Необходимые экспериментальные и расчетно-теоретические работы:

– задачи, сформулированные в п. 1, при переходе на высокие температуры приобретают первостепенную актуальность. При этом особое внимание необходимо уделить: разработке конструкционных материалов, работоспособных в натрии при температурах перспективных ЯЭУ; определению констант, характеризующих физико-химические и массообменные (коррозионные) процессы в натрии при использовании этих материалов, и коэффициентов проницаемости газов через эти материалы и диффузии различных элементов в них;

– изучение влияния технологий, используемых во II или III контурах (например, для ЯЭУ с КЗГТУ или при производстве водорода), на физико-химические процессы, а следовательно, и на технологии, необходимые для обеспечения длительной безаварийной, экономичной эксплуатации ЯЭУ: источники примесей и возможности минимизации их интенсивности; особенности теплопереноса трития; интенсивность генерации дисперсной фазы, необходимость очистки от нее, методы и системы очистки.

4. *Общие задачи для всех систем с натриевым теплоносителем:*

- разработка более совершенных приборов и методов контроля содержания примесей в натрии, например ЭХЯ; более совершенных методов и устройств очистки натрия от примесей, выбор оптимального сочетания встроенных в бак реактора и внешних устройств очистки, исследование способов очистки теплоносителя от взвесей; виброакустического метода контроля функциональных отклонений и состояния оборудования натриевых контуров;
- исследование процессов, сопровождающих тяжелые аварии, в том числе с расплавлением а.з.;
- усовершенствование технологий отмывки контуров, оборудования, в том числе систем очистки, уничтожения и переработки натрия;
- решение других, в том числе локальных задач, связанных с проектированием новых установок, продлением ресурса установки БН-600.

Контактная информация – Загоруйко Юрий Иванович, тел.: (48439)9-80-84, e-mail: sodium@ippe.ru; Алексеев Виктор Васильевич, тел.: (48439)9-42-34, e-mail: alexeev@ippe.ru

Список литературы

1. *Жидкие металлы* / Сб. статей под ред. П.Л. Кирilloва, В.И. Субботина, П.А. Ушакова. – М.: Атомиздат, 1967.
2. *Багдасаров Ю.Е., Пинхасик М.С., Кузнецов И.А. и др.* Технические проблемы реакторов на быстрых нейтронах / Под ред. Ю.Е. Багдасарова и др. – М.: Атомиздат, 1969.
3. *Субботин В.И., Ивановский М.Н., Арнольд М.Н.* Физико-химические основы применения жидкометаллических теплоносителей. – М.: Атомиздат, 1970.
4. *Горохов М.А., Тымош Б.С., Сафаров Г.Ф.* Безопасность работы с литием, натрием, калием. – М.: Атомиздат, 1971.
5. *Зотов В.В., Иванов В.А., Старков О.В., Краев Н.Д.* Коррозия конструкционных материалов в жидких щелочных металлах / Под ред. проф. Б.А. Неворова. – М.: Атомиздат, 1977.
6. *Козлов Ф.А., Волчков Л.Г., Кузнецов Э.К., Матюхин В.В.* Жидкометаллические теплоносители ЯЭУ. Очистка от примесей и их контроль / Под ред. Ф.А. Козлова. – М.: Энергоатомиздат, 1983.
7. *Чечеткин Ю.В., Кизин В.Д., Поляков В.И.* Радиационная безопасность АЭС с быстрым реактором и натриевым теплоносителем. – М.: Энергоатомиздат, 1983.
8. *Поплавский В.М., Козлов Ф.А.* Безопасность парогенераторов натрий-вода. – М.: Энергоатомиздат, 1990.
9. *Козлов Ф.А., Иваненко В.Н.* Натрий – теплоноситель АЭС с быстрыми реакторами // Атомная энергия, 1996. Т. 80. Вып. 5. – С. 337 – 345.
10. *Субботин В.И., Арнольд М.Н., Козлов Ф.А., Шимкевич А.Л.* Жидкометаллические теплоносители для ядерной энергетики // Атомная энергия, 2002. Т.92. Вып. 1. – С. 31 – 42.
11. *Турчин Н.М., Дробышев А.В.* Экспериментальные жидкометаллические стенды. – М.: 1978.
12. *Kozlov F.A., Alexeev V.V., Zagorul'ko Yu.I. et al.* The summary of the sodium coolant technology development in application to LMFBFRs / Working material "TM on the Coordinated Project (CRP) "Analyses and Lessons Learned from the Operational Experience with Fast Reactor Equipment and Systems". Obninsk, 14-18 February 2005, TM-27172 and TM-26984, TWG-FR/123, IAEA, Vienna, 2005, p. 237 – 259.

Статья поступила в редакцию 28 декабря 2007 г.
Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,
с. 41 – 54.

УДК 621.039

Изучение физико-химических свойств легкоплавких сплавов в обоснование выбора экологически безопасного теплоносителя для энергетических установок

Е.В. Сулим, Н.Г. Богданович, О.В. Старков, Е.А. Кочеткова, А.Н. Васильева,
ФГУП "ГНЦ РФ-ФЭИ", 249033, г. Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1

Представлены результаты исследований свойств легкоплавких жидкометаллических систем на основе сплавов щелочных металлов, цинка, алюминия, галлия, индия, олова, свинца и висмута в интервале температур от 273 до 1 295 К. Впервые обнаружено уникальное свойство некоторых сплавов щелочных металлов системы натрий-калий-цезий окисляться на воздухе без воспламенения, видимого выделения аэрозолей и практически без повышения температуры сплава. Предложена гипотеза механизма окисления невоспламеняющихся сплавов этой системы о преимущественном окислении тройного сплава в его поверхностном слое. Аномальное окисление обусловлено образованием легкоплавкой системы, эндотермическими процессами растворения продуктов окисления сплавов и перераспределением кислорода между компонентами в жидкой среде невоспламеняющихся сплавов.

Research of physical and chemical properties of low-melting alloys for a choice of ecologically safe coolant of power installations. E.V. Sulim, N.G. Bogdanovich, O.V. Starkov, E.A. Kochetkova, A.N. Vasil'eva. The results of research of properties of low-melting liquid-metal systems on basic of alkaline metals, of zinc, aluminium, galium, indium, tin, lead and bismuth at temperature range of 293...1 295 K are submitted. It was found out that some alloys of system sodium-potassium-cesium could oxidize in the ambient air without intensive aerosol formation, flame and temperature increase. The hypothesis of the mechanism of oxidation of unflammable alloys of system sodium-potassium-cesium about primary oxidation of an alloy in a superficial layer of a these alloys is offered. The abnormal oxidation is caused by the formation of low-melting system of products of alloy oxidation and redistribution of oxygen between components in the liquid medium of unflammable alloys.

Многокомпонентные жидкометаллические системы представляют собой теплоносители принципиально нового типа: с регулируемыми свойствами. Изменяя компонентный состав,

можно создать теплоноситель с заданными характеристиками, сохраняя при этом достоинства чистых компонентов. Жидкометаллические системы на основе щелочных металлов имеют

комплекс уникальных теплофизических, термодинамических, электро- и ядернофизических свойств [1, 2]. Недостатком щелочных металлов и большинства их сплавов является способность окисляться на воздухе при температуре окружающей среды, самовоспламеняться и поддерживать горение с выделением большого количества аэрозолей, что может реализоваться при аварийных ситуациях.

Одно из направлений исследования – изучение процессов высокотемпературного окисления, механизмов воспламенения и горения металлов, а также выбор составов сплавов и материалов, вводимых в теплоноситель, которые способствовали бы снижению температуры горения сплавов и количества выделяемых в газовую фазу аэрозолей при их горении. Поиск жидкометаллических сплавов, обладающих пониженной пожароопасностью, является важной практической задачей, решение которой повысит безопасность эксплуатации ядерных энергетических установок (ЯЭУ).

В работе систематизированы результаты экспериментальных и расчетно-теоретических исследований свойств жидкометаллических систем на основе щелочных и других легкоплавких металлов в интервале температур от 273 К до 1 295 К.

1. Описание механизмов воспламенения и горения металлов

Механизм воспламенения и горения частиц металлов и сплавов связан с их физическими свойствами. При их описании металлы подразделяют [3] на два класса: летучие и нелетучие; по свойствам оксидов последние делят в свою очередь на группы металлов, имеющие растворимые, нерастворимые, летучие оксиды. Летучие металлы имеют низкую температуру плавления и при горении находятся в жидком состоянии, а их оксиды, образующиеся на поверхности металла, могут находиться как в твердом, так и жидком состоянии. Если температура горения летучих металлов превышает температуру кипения их оксидов, последние находятся в зоне горения в газообразном состоянии. Из зоны горения пары оксидов диффундируют как в твердую корку оксидов, так и в воздух, где они, охлаждаясь, конденсируются и превращаются затем в мельчайшие твердые частицы оксида – дым [4]. Образование аэрозолей в виде белого плотного дыма служит одним из признаков горения летучих металлов.

Воспламенение металлов является начальной стадией горения и характеризуется резким изменением режима протекания химического

процесса окисления. Воспламенение происходит вследствие нарушения теплового равновесия, приводящего к самоускоряющемуся росту температуры. Когда энергия экзотермического окисления превышает потери тепла теплопроводностью, конвекцией и излучением, реакция становится самоускоряющейся и температура возрастает спонтанно.

Побочные реакции (охлаждение из-за летучести продукта окисления, образование защитной оксидной пленки) могут подавить развитие процесса воспламенения. Способность металла к воспламенению определяется следующими факторами: характеристикой образующейся на поверхности оксидной пленки; составом окислительной среды, ее давлением; теплофизическими свойствами металла; геометрией и поверхностью металла; условиями эксперимента. Следует заметить, что температура воспламенения зависит от многих факторов и не является постоянной характеристикой [3].

Температура горения служит периодической функцией от атомного номера металла. Так, щелочные металлы натрий, калий, цезий и сплавы на основе этих металлов, которые относятся к летучим, интенсивно окисляются на воздухе, воспламеняются при температуре от 301 до 391 К и поддерживают горение в паровой фазе с выделением большого количества аэрозолей. Горение щелочных металлов представляет собой экзотермический гетерогенный процесс, при котором одно из реагирующих веществ находится в жидкой фазе, а окислитель – в газовой среде. Продукты реакции находятся в твердом, жидком и газообразном состояниях. Начальной стадией горения является самовоспламенение металлов – резкое ускорение экзотермической химической реакции. На воздухе поверхность щелочных металлов натрия, калия и цезия покрывается пленкой, состоящей из оксидов, гидроксидов, карбонатов и других соединений. Наличие этой пленки предотвращает воспламенение металлов при температуре ниже точек их плавления.

В настоящее время наиболее полно изучены и сформулированы физические и химические модели воспламенения и горения натрия [5]. Воспламенению натрия предшествует стадия образования на поверхности металла оксидной пленки, структура которой является дендритной. Это приводит к неравномерности окисления и созданию температурного градиента, что в свою очередь ведет к возникновению градиента поверхностного натяжения, обеспечивая капиллярную конвекцию. В результате часть натрия прорывается через оксидную пленку, образуя гейзеры и бугорки, ко-

торые относятся к сверхтемпературным явлениям.

Механизм воспламенения натрия характеризуется спонтанным ускоряющимся окислением чистой поверхности бугорков металла. Возникающие на поверхности натрия бугорки окисляются, нагреваются и воспламеняются более быстро, чем окружающая, покрытая оксидной пленкой поверхность металла. Горение натрия определяется двумя встречными процессами: диффузией кислорода через пламя к натрию и переносом паров натрия к поверхности пламени. В зависимости от способа подвода металла в зону горения рассматривают два механизма горения: парофазное диффузионное горение, характеризующееся свободной от оксидов поверхностью при температуре натрия более 923 К, и горение с капиллярным испарением, характеризующееся наличием оксидного слоя на поверхности, через который благодаря капиллярному эффекту поднимается расплавленный металл, испаряется и сгорает при температуре натрия менее 923 К.

Известно, что характеристики сплавов определяются их фазовым составом, графически описываемым диаграммой состояния. От состава сплава зависят хорошо изученные свойства сплавов: температура плавления, плотность, электропроводность, электрический потенциал, химическая активность, пластичность. Графически эти зависимости представляют собой сложные кривые, которые, как правило, коррелируются с линией ликвидуса диаграммы состояния. Воспламеняемость также представляет собой сложную зависимость от состава сплава, что объясняется разнообразием реакций между компонентами сплава. Температура воспламенения сплавов не является аддитивной функцией их состава. Диаграмма зависимости температуры самовоспламенения от состава сплава представляет собой кривую, которую нельзя аппроксимировать какой-либо заданной аналитической функцией [5].

Выбор композиций сплавов металлов, а также изучение свойств их оксидных пленок является актуальным направлением исследований по предотвращению или подавлению развития процессов воспламенения и горения металлов и их сплавов.

2. Методы исследования

Исследование процессов воспламенения, горения металлов и их сплавов, а также изучение свойств продуктов их сгорания, проводили на экспериментальной установке, схема которой представлена на рис. 1. Воспламенение и

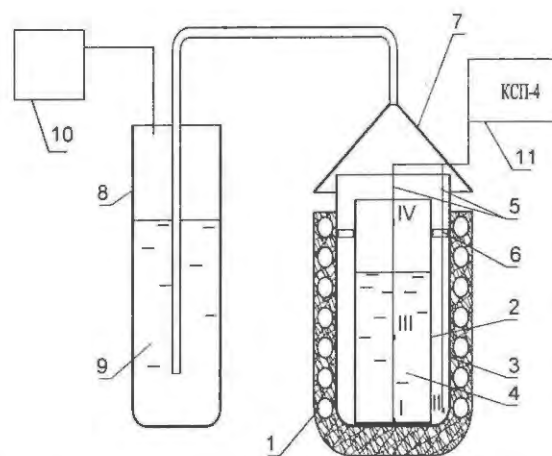


Рис. 1. Схема установки для изучения окисления сплавов на воздухе: 1 – электропечь; 2 – малый металлический стакан; 3 – большой металлический стакан; 4 – металл или сплав; 5 – расположение термопар: I – дно малого стакана, II – печь, III – сплав, IV – воздушная зона; 6 – фиксирующее кольцо; 7 – сборник для улавливания аэрозолей; 8 – сосуд для поглощения аэрозолей; 9 – раствор; 10 – аспиратор для отбора проб воздуха; 11 – прибор КСП-4, контролирующий температуру

горение изучали в среде окружающего воздуха (при относительной влажности от 40 до 60 %) после нагревания исследуемого металла или сплава в электрической печи до определенной температуры. В процессе изучения непрерывно регистрировали температуру сплава и газовой среды. Момент воспламенения регистрировали визуально по наличию яркого свечения, изменению температуры металла и воздушной зоны над ним.

Улавливание продуктов сгорания исследуемых сплавов и отбор проб газовой среды осуществляли при помощи аспиратора поглощением аэрозольных продуктов сгорания водным раствором. Состав продуктов сгорания и их количество определяли по результатам анализа поглотительных растворов. Содержание продуктов взаимодействия в пересчете на суммарное содержание гидроксидов металлов рассчитывали по результатам ацидометрического титрования, содержание ионов щелочных металлов – по результатам метода пламенной фотометрии, содержание ионов щелочноземельных металлов – по результатам комплексонометрического титрования.

3. Определение параметров воспламеняемости и горения бинарных систем щелочных металлов

Одним из направлений исследований является определение параметров самовоспламенения и горения жидкометаллических систем на

основе натрия. С целью расширения экспериментальных данных по изучению воспламеняемости сплавов щелочных металлов проведены исследования в интервале температур 293...973 К бинарных систем щелочных металлов: натрий-калий, натрий-цезий, калий-цезий, натрий-литий при соотношении компонентов натрия, лития, калия и цезия от 0,0 до 1,0 ат. д. Экспериментально установлено, что практически все бинарные сплавы натрия с литием, цезием и калием имеют аналогичный с натрием механизм горения: при воспламенении сплавов наблюдается резкое повышение температуры воздушной зоны над поверхностью сплава, в процессе горения возникают вторичные очаги возгорания.

Для иллюстрации на рис. 2 показаны типичные зависимости изменения температуры воздушной зоны и металла: волнообразные кривые отражают возникновение вторичных очагов горения и повышение температуры металла и газовой фазы над его поверхностью. Содержание аэрозольных продуктов сгорания натрия и исследованных сплавов систем натрий-калий, натрий-литий, натрий-цезий при сгорании образцов массой примерно 30 г имеет практически одинаковые значения и составляет величины от 0,4 до 2,0 г-экв. $\text{MeOH}/\text{м}^3$. При горении сплава натрия и лития с содержанием 5 % масс. наблюдается уменьшение количества аэрозольных продуктов до 0,2 г-экв. $\text{MeOH}/\text{м}^3$.

Установлено, что при нагревании эвтектического сплава калий-цезий в интервале температуры от 293 до 973 К не наблюдается его воспламенение. Невоспламеняющийся сплав окисляется на воздухе без повышения температуры сплава (1) и газовой зоны (2), что отражено на рис. 2. Содержание аэрозольных продук-

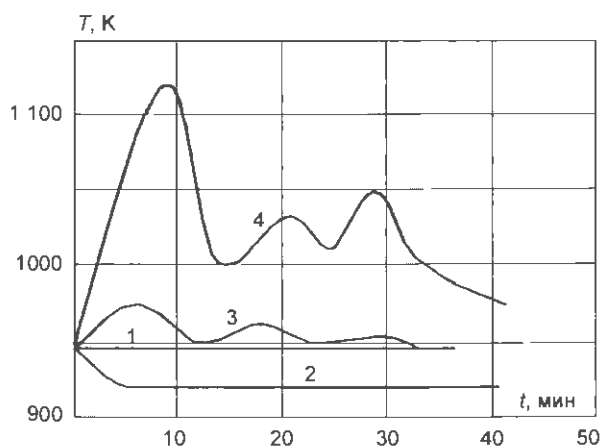


Рис. 2. Изменение температуры среды при окислении сплава калий-цезий (1, 2) и при горении натрия (3, 4): жидкая фаза: сплав – 1, натрий – 3; газовая фаза: сплав – 2, натрий – 4

тов данного сплава резко уменьшается приблизительно в 100 раз.

4. Определение параметров воспламеняемости и горения сплавов на основе натрия и щелочноземельных металлов

С целью определения влияния введения щелочноземельных металлов на процесс горения натрия исследованы сплавы натрия с добавками кальция до 0,1 % масс. и магния до 0,6 % масс. Установлено, что введение магния усиливает интенсивность горения натрия и увеличивает содержание аэрозолей в газовой среде примерно в 4 раза. Введение добавки кальция способствует уменьшению плотности образующихся аэрозольных продуктов сгорания и снижению содержания аэрозолей в 2 раза.

5. Определение параметров воспламеняемости и окисления сплавов на основе цинка, алюминия, галлия, индия, олова, свинца и висмута

Другим направлением исследования является изучение физико-химических свойств легкоплавких сплавов на основе цинка, алюминия, галлия, индия, олова, свинца и висмута. Были выбраны легкоплавкие сплавы, которые по своим теплофизическим свойствам и химической активности удовлетворяли характеристикам теплоносителей для ЯЭУ. Состав исследуемых сплавов и характеристика химической активности сплавов представлены в табл. 1.

Для предварительной оценки свойств сплавов экспериментально определены: температура плавления исследуемых сплавов, для которых не найдены литературные данные; химическая активность сплавов по отношению к влажному воздуху, воде и натрию; температура плавления продуктов взаимодействия исследуемых сплавов и натрия.

Установлено, что сплавы на основе галлия (сплавы №№ 2...4 в табл. 1) обладают пониженной химической активностью и могут быть рекомендованы в качестве объекта для исследования комплекса свойств как теплоносителя ЯЭУ с пониженной пожароопасностью.

6. Определение параметров воспламеняемости и горения сплавов системы щелочных металлов натрий-калий-литий

При изучении воспламеняемости тройных систем щелочных металлов натрий-калий-литий установлено, что исследованные сплавы следующего состава: натрий 35,78; 34,63; 97,52

Таблица 1. Состав исследуемых легкоплавких сплавов

№№ сплава	Состав сплава			$t_{\text{пл}}, ^\circ\text{C}$	Химическая активность	
	металл	% масс.	ат. д.		Воздух при 500 $^\circ\text{C}$	Натрий при 400 $^\circ\text{C}$
1	Pb	37,5	0,25	130,0	Окисляется на воздухе без воспламенения	Выделение аэрозолей и повышение температуры до 600 $^\circ\text{C}$
	Sn	37,5	0,44			
	In	25,0	0,31			
2	Ga	67,0	0,75	13,0	Не окисляется	Повышение температуры до 480 $^\circ\text{C}$
	In	29,0	0,20			
	Zn	4,0	0,05			
3	Ga	62,0	0,73	10,8	Не окисляется	Повышение температуры до 490 $^\circ\text{C}$
	In	25,0	0,18			
	Sn	13,0	0,09			
4	Ga	61,0	0,71	3,0	Не окисляется	Повышение температуры до 540 $^\circ\text{C}$
	In	25,0	0,18			
	Sn	13,0	0,09			
	Zn	1,0	0,02			
5	Bi	50,0	0,44	92,0	Окисляется на воздухе без воспламенения	Выделение аэрозолей и повышение температуры до 680 $^\circ\text{C}$
	Pb	30,0	0,25			
	Sn	20,0	0,31			
6	Bi	46,4	0,33	102,0	Окисляется на воздухе без воспламенения	Выделение аэрозолей и повышение температуры до 650 $^\circ\text{C}$
	Sn	33,6	0,42			
	In	20,0	0,25			
7	Bi	52,2	0,38	110,0	Окисляется на воздухе без воспламенения	Выделение аэрозолей и повышение температуры до 680 $^\circ\text{C}$
	Sn	37,8	0,48			
	In	10,0	0,14			

% масс.; калий 60,67; 58,72; 1,71 % масс.; литий 3,55; 6,65; 0,77 % масс. не обладают пониженной пожароопасностью по сравнению с натрием.

7. Определение параметров воспламеняемости и горения сплавов системы щелочных металлов натрий-калий-цезий

По некоторым показателям термодинамических и теплофизических свойств сплавы тройной системы натрий-калий-цезий уступают щелочным металлам натрий, калий и их сплавам, используемым в качестве теплоносителя ЯЭУ:

- большее значение плотности эвтектического сплава (на 50 %) по сравнению с натрием и калием приведет к увеличению энергетических затрат на перекачку сплава;
- теплопроводность сплава имеет наименьшее значение из величин теплопроводности его компонентов (в 5...7 раз меньше теплопроводности натрия);
- величина давления насыщенных паров сплава имеет значение на порядок выше, чем натрия, что значительно усложняет обращение с ним в циркуляционных контурах при температурах 700...900 К (температура кипения сплава при нормальном давлении составляет 994 К).

Однако безусловное преимущество тройного эвтектического сплава – самая низкая из щелочных металлов и сплавов температура плавления (195 К), т.е. системы с тройным эвтектическим сплавом являются жидкими в любых условиях на Земле и в космосе, обладают оптимальными пусковыми характеристиками и не требуют подогрева. В данном разделе представлены результаты исследования физико-химических свойств сплавов системы натрий-калий-цезий [6...10].

1) Приготовление двойных и тройных сплавов системы натрий-калий-цезий

Щелочные металлы натрий, калий, цезий являются высокоактивными химическими элементами, взаимодействуя с компонентами воздуха с возгоранием. Присутствие примесей в этих металлах и сплавах существенно влияет на их эксплуатационные характеристики как теплоносителей. Поэтому на первом этапе исследования физико-химических свойств сплавов щелочных металлов отработаны способы приготовления сплавов натрия с цезием и калием, повышающие качество сплавов и безопасность работ при их приготовлении.

Процесс приготовления двойных и тройных сплавов щелочных металлов осуществляли в перчаточном газовакуумном боксе. В качестве инертной среды применялся газообразный

аргон, дополнительно очищенный с помощью поглотителей углекислого газа и влаги (аскарит, ангидрон, расплавленный натрий). Приготовление двойных и тройных сплавов натрий-калий-цезий возможно осуществить при смешивании расплавленных компонентов.

При рассмотрении диаграммы состояния системы калий-цезий выявлено, что выше температуры 185 К (-88 °С) данные металлы неограниченно взаимно растворяются как в жидком, так и твердом состояниях. Линия ликвидуса имеет значение в интервале температуры от 301,64 до 336,76 К с минимальным значением для эвтектического сплава калий-цезий 250 К (-23 °С). Таким образом, сплавы данной системы находятся в жидком состоянии при комнатной температуре. Поэтому данное свойство рассматриваемой системы использовано для приготовления двойных сплавов калия и цезия. Экспериментально установлено, что смешивание расплавленного цезия и твердого калия при комнатной температуре позволяет получать сплавы цезия и калия, которые находятся в жидком состоянии.

В процессе приготовления сплава происходит повышение температуры от 301,63 К (28,63 °С) до 313...323 К (40...50 °С) после введения твердого калия в жидкий цезий, а также от 301 до 313...323 К после введения твердого натрия в полученный жидкий двойной сплав калий-цезий. Устранение предварительного этапа расплавления калия и натрия обеспечивает повышение безопасности работ и получение сплавов с пониженным содержанием продуктов окисления присутствующими примесями в защитном газе и на поверхности конструкционных материалов. Предложенный способ приготовления уменьшает энергетические затраты, снижает пожаро- и взрывоопасность процесса приготовления сплава и повышает его качество. Для реализации данного способа предложена установка, схема которой представлена на рис. 3. На представленный способ приготовления сплавов системы натрий-калий-цезий и конструкцию установки получены авторские свидетельства [7, 8].

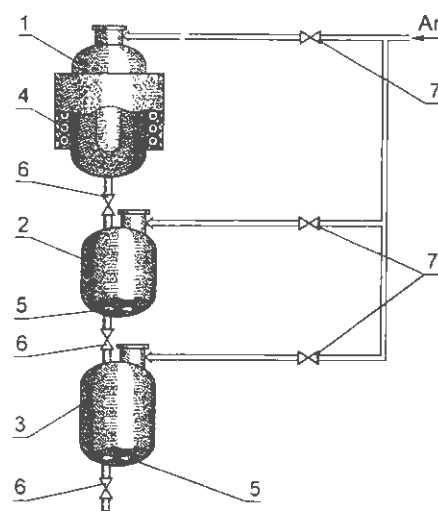


Рис. 3. Схема установки для приготовления сплавов системы натрий-калий-цезий: 1 – загрузочный бак; 2, 3 – баки-реакторы; 4 – электронагреватель; 5 – перемешивающие лопасти; 6 – приспособление для вскрытия ампулы с цезием, сливное устройство и жидкометаллические вентили; 7 – газовакуумные вентили

2) Определение параметров воспламеняемости и горения сплавов системы щелочных металлов натрий-калий-цезий

Экспериментально установлено неизвестное ранее свойство системы натрий-калий-цезий определенного состава окисляться на воздухе в интервале исследованных температур 293...973 К без интенсивного выделения аэрозолей и образования пламени, а также без повышения температуры. Граница области невоспламеняющихся сплавов аппроксимируется уравнением эллипса, соотношение полуосей которого составляет 2,4. Центр эллипса расположен в точке О, соответствующей сплаву, близкому к эвтектическому (точка Е). Состав сплава приведен в табл. 2.

Состав невоспламеняющихся сплавов тройной системы описывается неравенством $(6C_{Na} - 1)^2 \leq (8C_K C_{Cs} - 1)$, где C_{Na} , C_K , C_{Cs} – атомная доля компонентов сплава. Область невоспламеняющихся сплавов тройной системы натрий-калий-цезий показана в концентрационном треугольнике Розебума на рис. 4.

Таблица 2. Состав невоспламеняющихся сплавов тройной системы Na-K-Cs

Точка или область на диаграмме состояния	Содержание компонентов					
	атомная доля			массовая доля, %		
	Na	K	Cs	Na	K	Cs
т. О	0,12	0,44	0,44	3,52	21,88	74,60
т. Е	0,14	0,43	0,43	4,16	22,08	73,75
Область невоспламеняющихся сплавов	0,02...	0,19...	0,19...	0,50...	7,60...	46,50...
	0,24	0,69	0,69	7,80	43,70	89,20

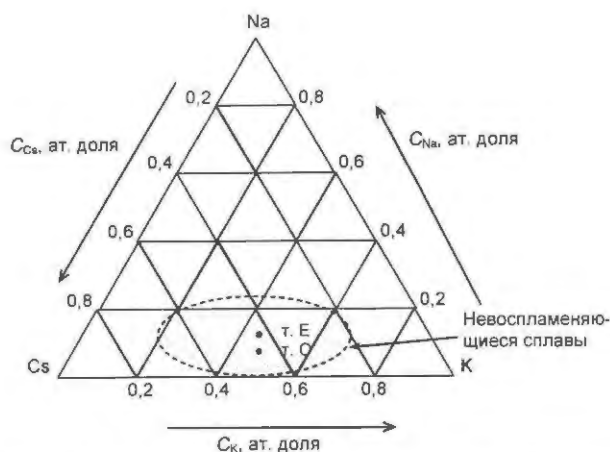


Рис. 4. Концентрационный треугольник системы натрий-калий-цезий

Невоспламеняющиеся сплавы исследованной системы окисляются на воздухе без повышения температуры сплава и воздушной зоны. Зависимость изменения температуры воздуха и металла при окислении невоспламеняющихся сплавов тройной системы натрий-калий-цезий аналогична характеру температурной зависимости сплава калий-цезий эвтектического состава, которая представлена на рис. 2.

3) Определение концентрации аэрозолей при окислении сплавов натрия, калия и цезия на воздухе

Для оценки эффективности снижения пожароопасности невоспламеняющихся сплавов проведены эксперименты по определению количества выделяющихся в газовую фазу аэрозолей продуктов горения самовоспламеняющихся и окисления невоспламеняющихся сплавов в интервале температур 293...973 К.

Содержание аэрозолей при горении самовоспламеняющихся сплавов имеет значения 1,0...2,0 г-экв. $\text{MeOH}/\text{м}^3$, причем с увеличением содержания натрия в сплаве количество выделяющихся аэрозолей повышается. Соотношение компонентов аэрозольных продуктов горения сплавов по сравнению с исходными сплавами изменяется: содержание натрия уменьшается в 2...4 раза, а калия и цезия увеличивается примерно в 1,3 раза.

При окислении сплавов, невоспламеняющихся на воздухе, содержание аэрозолей в газовой среде над сплавом уменьшается не менее, чем в 100 раз, и имеет значения в интервале $(0,8...0,4) \cdot 10^{-2}$ г-экв. $\text{MeOH}/\text{м}^3$. Аэрозольные продукты окисления невоспламеняющихся сплавов обогащаются соединениями натрия примерно в 3,5 раза, а соединениями калия и цезия обедняются примерно в 1,2 раза.

4) Метод и программа расчета равновесных состояний систем эвтектического тройного сплава натрия, калия, цезия с газообразными соединениями

Целью данной серии исследований является изучение систем: невоспламеняющийся тройной сплав щелочных металлов натрия, калия, цезия – водород, кислород, компоненты влажного воздуха. Термодинамический расчет выполнен для систем взаимодействия эвтектического тройного сплава щелочных металлов натрия, калия, цезия с водородом, кислородом, компонентами влажного воздуха в интервале температур 195...1 295 К при давлении систем 10^5 Па для масс систем, равных 1 кг. Начальный состав расчетных систем представлен в табл. 3.

Установлено, что конденсированная фаза системы тройной сплав – водород состоит из жидких щелочных металлов от температуры 195 до 845 К, гидридов калия и натрия в области температур 195...695 К, а газовая фаза этой системы в области температур 195...1 295 К в основном из паров металлов (одноатомных, одно- и разноименных димеров). Для предварительной оценки свойств сплавов экспериментально определены: температура плавления исследуемых сплавов, для которых не найдены литературные данные; химическая активность сплавов по отношению к влажному воздуху, воде и натрию; температура плавления продуктов взаимодействия исследуемых сплавов и натрия.

Состав продуктов взаимодействия тройного эвтектического сплава системы натрий-калий-цезий и компонентов воздуха представлен в табл. 4. Конденсированная фаза системы

Таблица 3. Состав расчетных систем тройного эвтектического сплава натрия, калия, цезия и газообразных веществ

Компонент системы:	Компоненты тройного сплава Na-K-Cs, моль			Содержание газообразных веществ, моль				
	Na	K	Cs	H ₂	O ₂	CO ₂	N ₂	H ₂ O
водород	1,5660	5,5890	5,6090	$1,7 \cdot 10^{-3}$	–	–	–	–
кислород	1,5660	5,5890	5,6090	–	$1 \cdot 10^{-4}$	–	–	–
влажный воздух	1,5050	5,3540	5,3910	–	0,6170	$4 \cdot 10^{-4}$	2,0830	$8,04 \cdot 10^{-2}$

Таблица 4. Состав продуктов взаимодействия системы эвтектический сплав – компоненты влажного воздуха: Cs (5,3910 моль); K (5,3540 моль); Na (1,5050 моль); N₂ (2,0830 моль); O₂ (0,6170); CO₂ (4·10⁻⁴ моль); H₂O (0,0804 моль)

Фаза	T, К	Содержание каждого компонента системы, моль	Компонент системы
Конденсированная	195...345	0,68...4,5	Na, K, Cs
		~ 10 ⁻¹	Na ₂ O, K ₂ O, Cs ₂ O
		10 ⁻² ...10 ⁻⁴	NaOH, KOH, CsOH, Cs ₂ CO ₃
		< 10 ⁻⁴	NaH, KH, CsH
	395...495	0,68...4,5	Na, K, Cs
		~ 10 ⁻¹	Na ₂ O, K ₂ O, Cs ₂ O
		10 ⁻² ...10 ⁻⁴	NaOH, KOH, NaH, KH, CsH, Cs ₂ CO ₃
		< 10 ⁻⁴	CsOH
	545...745	0,68...4,4	Na, K, Cs
		10 ⁻¹ ...10 ⁻⁴	Na ₂ O, K ₂ O, Cs ₂ O, K ₂ CO ₃
		< 10 ⁻⁴	NaOH, KOH, CsOH, NaH, KH, CsH, Na ₂ CO ₃ , Cs ₂ CO ₃
	795...945	0,1818...4,3510	Na, Na ₂ O, Cs ₂ O, Cs, K
		< 10 ⁻⁴	K ₂ CO ₃
	995...1 095	0,3841	Na ₂ O
		~ 10 ⁻⁴	Na, K
< 10 ⁻⁴		Cs ₂ O, Cs	
1 145...1 295	0,3841	Na ₂ O	
	< 10 ⁻⁴	Na, K	
Газовая	195...1 295	2,0830	N ₂
	195...245	~ 10 ⁻⁴	CO ₂
	495...695	~ 10 ⁻²	H ₂ , Cs
		< 10 ⁻⁴	Cs ₂ O, K ₂ O, Na
	695...895	~ 10 ⁻¹	H ₂ , K, K ₂ O, Cs ₂ O
		10 ⁻² ...10 ⁻⁴	Na, Cs, Na ₂ CO ₃ , K ₂ CO ₃
		< 10 ⁻⁴	K-Na, Cs-Na, Cs-K, Na ₂ , K ₂ , Cs ₂ , Cs ₂ CO ₃
	995...1 295	8 10 ⁻²	H ₂
		0,35...5,2360	Na, K, Cs
		10 ⁻¹ ...10 ⁻²	K-Na, Cs-Na, Cs-K, Na ₂ , K ₂ , Cs ₂
~ 10 ⁻⁴		Na ₂ CO ₃ , K ₂ CO ₃	
		< 10 ⁻⁴	K ₂ O, Cs ₂ O

эвтектический тройной сплав – влажный воздух состоит из жидких щелочных металлов, их оксидов, гидроксидов, карбонатов и гидридов. Газовая фаза этой системы состоит в основном из паров металлов (одноатомных, одно- и разноименных димеров), оксидов калия и цезия, водорода, углекислого газа. Образование в системе водорода при температуре выше 995 К может создавать определенную опасность: температура самовоспламенения водорода составляет 783 К.

Расчетные показатели состава конденсированной и газовой фаз рассмотренных систем удовлетворительно согласуются с литературными данными. Динамика образования и разложения продуктов взаимодействия компонентов системы на основании расчета соответствует их физическим свойствам в соответствии с литературными данными. Так, например, в паровой фазе одноатомные щелочные металлы

преобладают над ди- и многоатомными молекулами этих металлов, что подтверждается результатами расчета. Присутствие в конденсированной фазе расчетной системы гидроксидов металлов обусловлено их легкоплавкими свойствами: температура плавления гидроксида цезия составляет 545,0 К, гидроксида калия 653,0 К и гидроксида натрия 593,0 К.

5) *Гипотеза механизма аномального окисления невоспламеняющихся сплавов натрия, калия и цезия*

Проведенные исследования окисления на воздухе тройных сплавов системы натрий-калий-цезий показали, что в этой системе существует область, для которой характерно аномальное поведение сплавов на воздухе. На основании исследования свойств сплавов данной системы и полученных результатов термодинамического расчета равновесных состояний

системы тройного эвтектического сплава натрия, калия, цезия и компонентов влажного воздуха предложен механизм аномального окисления невоспламеняющихся сплавов системы натрий-калий-цезий, схема которого представлена на рис. 5. Авторы предполагают наличие двух следующих основных причин аномального окисления на воздухе сплавов натрия-калия-цезия установленного состава:

- существование в этих сплавах в достаточно широком интервале температуры дополнительных направленных связей между разноименными атомами, возможно, интерметаллических соединений, которые обеспечивают низкую упругость паров этих металлов над сплавом, что приводит к окислению металлов только в жидкой фазе в поверхностном слое. Окисление этих интерметаллических соединений протекает, видимо, с тепловыми эффектами значительно более низкими, чем индивидуальных металлов этой системы;

- уникальных свойств пленки, образующейся при поверхностном окислении таких сплавов. Продукты окисления в этой пленке, по-видимому, образуют первоначально легкоплавкую систему, благодаря чему образуется сплошная и достаточно эластичная пленка, препятствующая испарению компонентов сплава. Химические соединения пленки хорошо растворимы в сплаве, за счет чего идет постоянно процесс периодического освобождения поверхности сплава и его последующего окисления. Процесс растворения этих соединений в сплаве, возможно, эндотермический, поэтому не наблюдается значительных тепловых эффектов при окислении таких сплавов. Кроме того, некоторые из этих соединений в оседающей пленке продуктов окисления могут быть дополнительными источниками кислорода (например, оксиды цезия) для окисления, например, натрия и калия во внутренних, более глу-



Рис. 5. Схема процесса окисления невоспламеняющихся сплавов

боких слоях сплава, при этом на такой процесс затрачивается энергия, что приводит к понижению общего суммарного теплового эффекта окисления сплава. Процесс освобождения поверхности сплава от продуктов окисления протекает за счет высокой плотности образующихся продуктов, которые оседают на дно при образовании поверхностного слоя.

Таким образом, представленная гипотеза механизма окисления невоспламеняющихся сплавов системы натрий-калий-цезий основана на преимущественном окислении тройного сплава не в газовой фазе, а в слое тройного сплава, находящемся в жидком (расплавленном) состоянии. Образующиеся продукты окисления этих сплавов создают тонкую, эластичную, хорошо растворимую в сплаве пленку с высокой плотностью. Эта пленка служит барьером и снижает выход основных компонентов в газовую фазу. Процессы растворения и взаимодействия продуктов окисления являются эндотермическими, приводящими к снижению суммарного теплового эффекта окисления сплава.

Полученные данные термодинамического расчета системы тройной сплав щелочных металлов эвтектического состава – компоненты влажного воздуха подтверждают предполагаемую гипотезу о наличии в конденсированной фазе продуктов взаимодействия, которые являются легкоплавкими соединениями (CsOH, KOH, NaOH) и имеют высокую плотность. Известны высокая растворимость кислорода в цезии [10] и образование в системе цезий-кислород субоксидов цезия (Cs₇O, Cs₄O, Cs₇O₂, Cs₃O), которые являются легкоплавкими соединениями: при температуре выше 437 К переходят в устойчивое соединение Cs₂O, плотность которого превышает плотность сплава в 3 раза [11]. Это подтверждает отсутствие в газовой фазе продуктов окисления компонентов эвтектического сплава натрия, калия и цезия рассматриваемой системы.

Заключение

По результатам проведенных экспериментальных и расчетно-теоретических исследований определены составы жидкометаллических сплавов в качестве перспективных теплоносителей ЯЭУ с пониженной пожароопасностью. Для дальнейших исследований ядерно-физических и технологических свойств рекомендованы три типа сплавов: на основе натрия (95 % масс. натрий; 5 % масс. литий); на основе галлия

(61...67 % масс. галлий; 25...29 % масс. индий; 1...4 % масс. цинк; 13 % масс. олово); на основе цезия (46,5...89,2 % масс. цезий; 0,5...7,8 % масс. натрий; 7,6...43,7 % масс. калий).

На основании изучения физико-химических свойств сплавов жидкометаллической системы натрий-калий-цезий:

- представлена гипотеза механизма окисления невоспламеняющихся сплавов системы натрий-калий-цезий о преимущественном окислении тройного сплава не в газовой фазе, а в поверхностном слое тройного сплава щелочных металлов;
- разработан способ приготовления сплавов системы натрий-калий-цезий, повышающий качество сплава, снижающий энергетические затраты, уменьшающий пожаро- и взрывоопасность процесса приготовления;
- определен по данным термодинамического анализа состав конденсированной и газовой фаз систем эвтектический тройной сплав натрия, калия, цезия – водород, кислород, компоненты влажного воздуха.

Для практического применения жидкометаллических сплавов важно знание границы существования воспламеняющихся и невоспламеняющихся сплавов, а также механизма их окисления, что позволит целенаправленно выбирать композиции на основе металлов в качестве теплоносителей с меньшей экологической опасностью.

Контактная информация: тел. (48439)9-59-64, e-mail: bogdanovich@ippe.ru, Богданович Наталья Григорьевна; тел.: (48439)9-42-67, Сулим Елена Васильевна

Список литературы

1. Быстров П.И., Казан Д.Н., Кречетова Г.А., Шпильрайн Э.Э. Жидкометаллические теплоноси-

тели тепловых труб и энергетических установок. – М.: Наука, 1988.

2. Дриц М.Е., Зуслам Л.Л. Сплавы щелочных и щелочноземельных металлов. Справочник. – М.: Металлургия, 1986.

3. Злобинский Б.М., Иоффе И.Г., Злобинский В.Б. Воспламеняемость и токсичность металлов и сплавов. – М.: Металлургия, 1972.

4. Демидов П.Г., Шандыба В.А., Щеглов П.П. Горение и свойства горючих веществ. – М.: Химия, 1973.

5. *Introduction, Summary and Recommendations / In IAEA: Spec. Meeting on Sodium Fires and Prevention. 20 – 24 November 1978, Cadarache, p. 12. Перевод № Б-4308. – М.: ВЦП, 1979.*

6. Казачковский О.Д., Старков О.В., Кочеткова Е.А. и др. Некоторые особенности сплавов системы натрий-калий-цезий // Атомная энергия. 1992. Т. 73. Вып. 6. – С. 500 – 502.

7. Старков О.В., Кочеткова Е.А., Богданович Н.Г. и др. А.с. SU № 1508589 А1. Способ приготовления сплавов системы натрий-калий-цезий. 11.02.1988 г.

8. Кочеткова Е.А., Богданович Н.Г., Левченко В.Е. и др. А.с. SU № 1753724 А1. Устройство для получения сплавов натрий-калий-цезий. 23.10.1990 г.

9. Старков О.В., Казачковский О.Д., Кочеткова Е.А. и др. А.с. SU № 1605558 А1. Сплав щелочных металлов. 21.03.1988 г.

10. Богданович Н.Г., Сулим Е.В., Шумская В.Д. Цезий. Свойства и методы определения газообразующих примесей: Обзор ФЭИ-0198. – М.: ЦНИИатоминформ, 1985.

11. *Handbook of Thermodynamic and Transport Properties of Alkali Metals. International Union of Pure and Applied Chemistry. Chemical Data Series № 3. Editor: Roland W. O h s e. – Oxford, London, Edinburgh: Blackwell Scientific Publications, 1985.*

Статья поступила в редакцию 25 декабря 2007 г.
Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,
с. 54 – 63.

**Методический анализ нового способа определения энергии Гиббса
и экспериментальные данные о термодинамических свойствах
жидкометаллических теплоносителей на основе сплавов щелочных металлов**

Д.Н. Казан, Г.А. Кречетова, Э.Э. Шпильраин,

Объединенный институт высоких температур РАН, 125412, Москва, ул. Ижорская, 13/19

Дан детальный методический анализ и представлены результаты применения нового варианта эффузионного метода определения энергии Гиббса (термодинамической активности) двойных и тройных систем щелочных металлов Cs-Na, K-Na, Cs-K, Cs-K-Na. Активность определяется через парциальные давления компонентов, измеряемые эффузионным методом по интенсивности их атомарных пучков. Интервал давлений в эксперименте является промежуточным между кнудсеновским и гидродинамическим режимами истечения. Предложенный обобщенный вариант эффузионного метода включает в себя диапазон давлений за пределами применимости уравнения Герца – Кнудсена (УГК). Использование данного метода обеспечило граничным условием дифференциальное уравнение химической термодинамики, решение которого дает возможность построить энергию Гиббса в интервале температур $400 \leq T \leq 1\ 200$ К и концентраций $0 \leq x_i \leq 1$.

Analysis of a new method for determining the Gibbs energy and experimental data on thermodynamic properties of liquid-metal coolants based on alkali metal alloys. D.N. Kagan, G.A. Krechetova, E.E. Shpil'rain. Analysis and applying of a new variant of the effusion method for measuring Gibbs energy (thermodynamic activity) in the liquid alkali-metal binary and ternary systems (Cs-Na, K-Na, Cs-K, Cs-K-Na) are presented. The activity is determined using the components partial pressures by the effusion method with measurement of atomic beam intensity. The pressure range was intermediate between Knudsen's mode and hydrodynamic one. A detailed analysis shows that it is possible to operate outside the range where the Hertz – Knudsen equation applies. Applying this method allowed to supply with the boundary conditions the differential equation of chemical thermodynamics, the solution of which enables one to construct Gibbs energy of above alloys in the range of temperatures $400 \leq T \leq 1\ 200$ K and concentrations $0 \leq x_i \leq 1$.

Предложен новый вариант эффузионного метода в интервале давлений между кнудсеновским и гидродинамическим режимами истечения и изложена концепция его применения для определения термодинамических свойств многокомпонентных щелочнометаллических теплоносителей с регулируемыми характеристиками. Дан детальный методический анализ и представлены результаты использования этого варианта эффузионного метода определения энергии Гиббса (термодинамической активности) двойных и тройных систем щелочных металлов Cs-Na, K-Na, Cs-K, Cs-K-Na.

Активность определяется через парциальные давления компонентов, измеряемые эффузионным методом по интенсивности их атомарных пучков. Поскольку кислород реагирует с расплавленным щелочным металлом, эффузионное отверстие не может быть приготовлено заранее. Поэтому оно изготавливается непосредственно в вакуумной камере электронно-лучевым импульсом (линейный электронный ускоритель расположен внутри камеры) после выхода эффузионной ячейки на рабочий температурный режим.

Интервал давлений в эксперименте является промежуточным между кнудсеновским и гидродинамическим режимами истечения.

Предложенный обобщенный вариант эффузионного метода включает в себя диапазон давлений за пределами применимости УГК. Использование данного метода обеспечило граничным условием дифференциальное уравнение химической термодинамики, решение которого дает возможность построить энергию Гиббса данных сплавов в интервале температур $400 \leq T \leq 1\ 200$ К и концентраций $0 \leq x_i \leq 1$.

Легкоплавкие многокомпонентные жидкометаллические системы служат перспективными теплоносителями для энергетических установок нового поколения с атомными реакторами на быстрых нейтронах. Сохраняя все преимущества чистых жидких металлов по теплоемным и теплоаккумулирующим свойствам, эти системы обладают дополнительными положительными качествами, а именно, максимально широким температурным интервалом жидкой фазы (в сторону как высоких, так и предельно низких температур) и возможностью регулирования служебных характеристик варьированием компонентного состава [1].

Как и ряд легкоплавких систем тяжелых металлов, взаимные двойные и тройные щелочнометаллические сплавы имеют наиболее близкую перспективу применения благодаря своим уникальным свойствам. В частности, эв-

тектический сплав тройной системы Na-K-Cs (в атомных долях x_i : 0,139Na-0,435K-0,426Cs) имеет температуру кристаллизации 195 К, минимальную среди всех известных на Земле металлических жидкостей. Этот сплав является одновременно как высокотемпературным, так и низкотемпературным теплоносителем, остающимся жидким в любых земных условиях.

В основе термодинамического описания сплава лежит энергия Гиббса – характеристическая функция (в координатах P, T, x_i), определяющая все термодинамические свойства системы. Цель исследования – разработка метода построения энергии Гиббса для двойных и тройных систем с компонентами Na, K, Cs в диапазоне параметров $400 \leq T \leq 1\ 200$ К и $0 \leq x_i \leq 1$.

Предложенная авторами концепция определения энергии Гиббса и ее экспериментальное оформление представлялись на конференции “Теплофизика-2005”, поэтому в настоящей статье эти вопросы даны в сжатом изложении, а основное внимание уделено методическому анализу и полученным экспериментальным результатам.

1. Концентрация и экспериментальная часть

Прямое измерение парциальной энергии Гиббса (термодинамической активности a_i компонентов) $\Delta \bar{G}_i = RT \ln a_i = f(T, x_i)$ жидкометаллического сплава при высоких температурах чрезвычайно сложно, а применительно к щелочным металлам практически невозможно. Причины в отсутствии стойких высокотемпературных твердых электролитов с необходимым ионным составом (для обеспечения униполярной проводимости), используемых в качестве мембран концентрационных ячеек (для метода ЭДС), влиянии вклада излучения соответствующих линий (для метода атомной абсорбции), относительно большом давлении насыщенного пара (для метода Кнудсена).

Поэтому вместо прямого измерения энергии Гиббса образования жидкого сплава при высоких температурах применен расчетно-экспериментальный метод, основанный на вычислении этой функции в широкой области температур T и концентраций x_i путем интегрирования дифференциального уравнения химической термодинамики

$$\left[\partial (\Delta \bar{G}_i / T) / \partial (1/T) \right]_{p, x_i} = \Delta \bar{H}_i, \quad (1)$$

решение которого имеет вид

$$\Delta \bar{G}_i(T, x_i) = \Delta \bar{G}_i(T_1, x_i) (T/T_1) - T \int_{T_1}^T \Delta \bar{H}_i(T, x_i) T^{-2} dT \quad (2)$$

В выражениях (1) и (2) подынтегральная функция $\Delta \bar{H}_i(T, x_i)$ (парциальная энтальпия образования во всей исследуемой области параметров состояния $400 \leq T \leq 1\ 200$ К и

$0 \leq x_i \leq 1$) и граничное условие $\Delta \bar{G}_i = RT \ln a_i = f(T_1, x_i)$ (концентрационная зависимость энергии Гиббса только при одной невысокой отсчетной температуре $400 \leq T_1 \leq 450$ К) определяются экспериментально.

Таким образом, алгоритм исследования позволяет найти энергию Гиббса образования жидкометаллического сплава при высоких температурах, не прибегая к ее прямому измерению в этой области. Данная схема не требует каких-либо специальных допущений и может быть обеспечена надежными входными экспериментальными данными.

Энтальпия образования во всей указанной выше области T и x_i ($400 \leq T \leq 1\ 200$ К и

$0 \leq x_i \leq 1$) измерялась на калориметрической аппаратуре с уровнем чувствительности, фиксирующим избыточные энтальпию и теплоемкость жидкометаллических систем [2].

Непосредственная задача данной работы состоит в развитии метода измерения энергии Гиббса (активности компонентов) на отсчетной изотерме T_1 , т.е. определения граничных условий $\Delta \bar{G}_i = RT \ln a_i = f(T_1, x_i)$ для интегрирования уравнения (1), что дает возможность замкнуть термодинамическое описание изучаемых сплавов во всем рабочем диапазоне температур и концентраций.

Как было сказано выше, термодинамическая активность определяется эффузионным методом через парциальные давления компонентов, получаемые измерением интенсивности их атомарных пучков. Поскольку кислород реагирует с расплавленным щелочным металлом, эффузионное отверстие не может быть изготовлено заранее. Поэтому рабочая ячейка, заполненная исследуемым жидким сплавом методом вакуумной разлики, помещается в герметичном виде в камеру под линейный электронный ускоритель, расположенный внутри камеры, после чего камера вакуумируется и ячейка выводится на требуемый температурный режим T_1 . Затем дозированным электронно-лучевым импульсом пробивается эффузионное отверстие, а ячейка дистанционным приво-

дом переводится для проведения эффузионного эксперимента под сменный криогенный конденсатор, охлаждаемый жидким азотом.

Спектрально-химический анализ конденсата на криогенном сменном конденсаторе определяет состав конденсата и, соответственно, эффузионного потока, который в свою очередь дает возможность найти состав насыщенного пара в эффузионной ячейке и, следовательно, термодинамическую активность компонентов.

2. Анализ режима истечения

Частицы газа, находящегося в равновесии в изотермической камере, совершают хаотическое движение, при котором частота соударений их со стенкой (ν – интенсивность потока) составляет $\nu = 0,25n\bar{v}$ м²·с⁻¹ (n – число частиц в единице объема в м⁻³; \bar{v} – средняя тепловая скорость молекул в м·с⁻¹). В мольных единицах $q = 0,25N\bar{v}$ моль·м⁻²·с⁻¹ (N – число молей в единице объема в моль·м⁻³). В достаточно разреженном газе $N = P/(RT)$ (R – газовая постоянная), а для изотропного максвелловского газа $\bar{v} = (8RT/(\pi\mu))^{1/2}$ (μ – молекулярная масса).

Эффузионный метод является одним из динамических методов измерения давления насыщения. Поскольку в данном случае осуществляется отбор пара, необходимо обеспечить условия процесса, сводящие к минимуму влияние отбора на равновесие. Чтобы полученная интенсивность потока частиц на стенку для равновесного газа не менялась в случае наличия эффузионного отверстия вместо данного участка стенки, необходимо, чтобы распределение скоростей в газе при наличии отверстия не изменилось, т.е. оставалось изотропным и максвелловским, что реализуется при малых размерах отверстия.

Указанные выше соотношения приводят к УГК для мольных (q) и массовых (g) единиц:

$$q = 0,25N\bar{v} = P(2\pi RT\mu)^{-1/2} \text{ моль}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}; \quad (3)$$

$$g = 0,25\rho\bar{v} = P(2\pi RT)^{-1/2} \mu^{1/2} \text{ кг}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}, \quad (4)$$

где ρ – плотность пара, кг·м⁻³.

Отождествление интенсивности потока частиц, попадающего изнутри камеры на отверстие, с интенсивностью потока, покидающего камеру через бесконечно тонкое отверстие, возможно только при исключении вероятности столкновения атомов в зоне отверстия, т.е. их частичного возврата в камеру. Это также достигается только при малом размере отверстия, когда число Кнудсена

$$\text{Kn} = \lambda/(2r_e) \geq 10, \quad (5)$$

где λ – длина свободного пробега, r_e – радиус эффузионного отверстия. Условие (5), при котором отраженный поток < 1%, принимается обычно [3] в качестве необходимого для применимости метода Кнудсена.

Для бинарной системы средняя длина λ_i свободного пробега компонентов с учетом максвелловского распределения скоростей [4]

$$\lambda_i = (n_i\sigma_{ii}\sqrt{2} + n_j\sigma_{ij}\sqrt{1+m_i/m_j})^{-1} = \\ = kT(P_i^s\gamma_i x_i\sigma_{ii}\sqrt{2} + P_j^s\gamma_j x_j\sigma_{ij}\sqrt{1+\mu_i/\mu_j})^{-1}, \quad (6)$$

где $\sigma_{ii} = \pi(2r_i)^2$, $\sigma_{ij} = \pi(r_i + r_j)^2$ – соответствующие эффективные сечения частиц; m_i , x_i , γ_i – соответственно масса частиц, мольная концентрация и коэффициент активности компонентов; k – константа Больцмана.

Таким образом, длина свободного пробега имеет величину порядка

$$\lambda = (\sqrt{2} \cdot \sigma n)^{-1} = (\sqrt{2} \cdot \sigma)^{-1} kT/P,$$

и оказывается, что в реальных условиях эксперимента ($400 \leq T_1 \leq 450$ К, $r_e \approx 1$ мм) для сплавов с компонентами Na, K, Cs условие (5) выполняется только для чистого натрия (давление насыщения $P_s < 1$ Па, $\lambda > 10$ мм). Для других компонентов и соответственно для сплавов эффузионный поток в указанных условиях перестает быть свободно-молекулярным, т.е. теряет бесстолкновительный характер ($P_s \approx 10$ Па, $\lambda \approx 1$ мм, $\text{Kn} \approx 0,5 \dots 1$) и переходит в гидродинамический режим.

Для гидродинамического режима ($P \geq 100$ Па, $\lambda \leq 0,1$ мм, $\text{Kn} \leq 0,05 \dots 0,1$) истечение в вакуум носит сверхзвуковой характер (отношение давлений до и после эффузионного отверстия > 200) и, соответственно, массовый поток [5, 6] равен

$$g = PC_D \left\{ \gamma \left[\frac{2}{(\gamma+1)} \right]^{\frac{(\gamma+1)}{(\gamma-1)}} \right\}^{1/2} (RT)^{-1/2} \mu^{1/2}, \quad (7)$$

где $\gamma = C_p/C_v$. Коэффициент C_D не зависит от атомарного состава газа и в общем виде зависит от перепада давлений. При больших перепадах он достигает асимптотического максимального предела. Анализ данных [5, 6] для одно-, двух- и трехатомных газов дает общую величину $C_D = 0,85 \pm 2\%$.

Таким образом, для свободно-молекулярного и гидродинамического режимов в эффузионном эксперименте можно записать общее выражение для массового расхода

$$g = P\Gamma(\bar{RT})^{-1/2} \mu^{1/2}, \quad (8)$$

где параметр

$$\Gamma = \Gamma_k = (2\pi)^{-1/2} = 0,399 \quad (9)$$

соответствует свободно-молекулярному (кнудсеновскому) режиму, а

$$\Gamma = \Gamma_{hd} = C_D \left\{ \gamma \left[2/(\gamma+1) \right]^{(\gamma+1)/(\gamma-1)} \right\}^{1/2} \quad (10)$$

– гидродинамическому режиму. Как видно, УГК (4) служит частным случаем выражения (8) при $\Gamma_k = (2\pi)^{-1/2}$.

Для одноатомного газа, каковым является пар щелочного металла при температуре T_1 , $\gamma = 1,67$, откуда по формуле (10) для гидродинамического режима получим $\Gamma = 0,617$. Таким образом, в гидродинамическом режиме интенсивность реального эффузионного потока превышает интенсивность, рассчитанную для тех же давлений по УГК, в 1,55 раза. В промежуточной области между двумя режимами коэффициент Γ для пара щелочного металла растет от 0,399 до 0,617.

Важный методический вывод заключается в том, что эффузионный метод можно применять за пределами кнудсеновской области давлений. При этом общий вид физических закономерностей с точностью до коэффициента сохраняется, однако конкретный алгоритм расчета имеет принципиальные численные различия. В частности, неучет перехода эффузионного потока в гидродинамический режим, т.е. использование УГК в чистом виде, в этой и промежуточной областях приводит к существенному завышению определяемых давлений по сравнению с истинными результатами ($P_k = P_t$ в кнудсеновской области, $P_k > P_t$ в гидродинамической и переходной областях, где P_k – давление насыщения, полученное по УГК; P_t – истинное давление насыщения).

Ниже рассмотрены экспериментальные и расчетные методы подавления возможных систематических погрешностей обобщенного эффузионного метода.

3. Гомогенизация жидкой фазы

Принципиальная трудность применения эффузионного метода при исследовании сплавов связана с непрерывным изменением состава остающейся в ячейке конденсированной фазы (а соответственно и уходящей паровой фазы) в процессе испарения. При этом главным является не изменение общей концентрации конденсированной фазы, легко поддающееся учету, а возникновение градиентов концентрации в слое испаряющегося сплава. Отличие состава паровой фазы, образующейся в данный момент и

соответствующей концентрации поверхностного слоя конденсированной фазы, от состава соответствующего интегральной концентрации испаряющегося сплава зависит от соотношения скоростей конкурирующих процессов: уноса пара через эффузионное отверстие с единицы поверхности зеркала испарения и диффузии компонентов в конденсированной фазе.

Эта проблема трудно разрешима при исследовании твердых сплавов. Однако для жидких сплавов удается реализовать равновесный случай, причем не только за счет более интенсивной диффузии, а главным образом с помощью искусственной гомогенизации состава испаряющегося вещества. С этой целью рабочая ячейка снабжена специальным устройством-гомогенизатором, обеспечивающим равномерность концентрации по высоте исследуемого жидкого сплава. Это достигалось посредством дистанционного электромагнитного привода, который сообщал ячейке колебательные движения в вертикальной плоскости вокруг горизонтальной оси, перпендикулярной продольной оси симметрии ячейки, с частотой в доли Герца. Поскольку ячейка представляет собой горизонтальную цилиндрическую ампулу ($l = 50..60$ мм, $d = 20$ мм) с эффузионным отверстием в верхней образующей цилиндра, эти колебания приводят к волнообразованию и постоянному обновлению поверхности жидкости.

4. Учет конечной длины эффузионного отверстия

При заданном диаметре эффузионного отверстия, но конечной толщине стенок ячейки, т.е. длине эффузионного канала l_e , интенсивность потока падает по сравнению со случаем $l_e = 0$, так как определенная часть атомов возвращается в камеру за счет адсорбционно-десорбционных процессов на стенках канала. Этот эффект рассмотрен Клаузингом и учитывается соответствующим коэффициентом $L = f(l_e/r_e) \leq 1$. Для рассматриваемых условий ($l_e = 0,4$ мм, $r_e = 0,7..1,3$ мм, $l_e/r_e = 0,6..0,3 < 1,5$) $L = (1 + 0,5 l_e/r_e)^{-1} = 0,77..0,87$.

Оказывается, фактор Клаузинга корректно учитывает длину эффузионного канала как для свободно-молекулярного, так и для гидродинамического режимов. Это обстоятельство, естественно, не является очевидным и требовало экспериментального подтверждения. В [5, 6] выполнены специальные измерения в широком диапазоне давлений от 10^{-1} Па (свободно-молекулярный режим) до 600 Па (гидродинамический режим) и отношений l_e/r_e от 0,03 до

1.7. Данные обнаруживают понижающее влияние относительной длины отверстия на величину потока, которое не зависит от режима истечения и соответствует формулам Клаузинга.

Интерпретацией этого факта может служить заключение, что основная часть понижения давления вдоль потока в гидродинамическом режиме осуществляется до отверстия, а в критическом сечении (которое, следовательно, находится в начальной части канала) и после него давление соответствует свободно-молекулярному режиму, что согласуется с теорией сверхзвукового истечения в вакуум. Поэтому, если на входе в отверстие распределение скоростей может не быть максвелловским, то вдоль канала оно является таковым для любого режима, что и приводит к идентификации взаимодействия молекул газа со стенками канала по типу эффекта Клаузинга. Таким образом, выражение (8) для обобщенного эффузионного метода приобретает вид

$$g = P\Gamma(RT)^{-1/2} \mu^{1/2} L. \quad (11)$$

5. Исключение абсолютной величины эффундированной массы (применение уравнения Гиббса – Дюгема (УГД))

Весьма желательной является возможность получения данных об активностях компонентов только на основе измерений их концентраций в атомарном потоке, т.е. соответствующих отношений масс, а не их абсолютных значений, исключая ряд источников методических погрешностей. К ним относятся адсорбция на поверхности конденсата остаточных газов и возможное некоторое его окисление (несмотря на наличие трехступенчатой криогенной ловушки), маловероятная возможность отличия коэффициента конденсации от единицы, широкоугольный разлет. Эти процессы отразятся на абсолютной величине эффундированной массы, но не скажутся на компонентном составе конденсата.

Преимущества использования только концентраций компонентов (отношений их эффундированных масс) аналогичны преимуществам применения в эффузионном методе с масс-спектральным анализом продуктов испарения в качестве измеряемой величины не ионного тока, а отношения ионных токов, исключая систематические погрешности, связанные с флуктуацией чувствительности масс-спектрометра [3]. Возможность исключения измерений абсолютной величины эффундированной массы при определении активности компонентов основана на использовании УГД, записанного через от-

ношение (ГДО) соответствующих энергий Гиббса (логарифмов активности).

УГД в общем случае имеет вид $\sum_i x_i d\bar{Z}_i = 0$, где \bar{Z}_i – парциальная функция

от соответствующей экстенсивной величины, что для двойной жидкометаллической системы приводит к уравнению

$$\frac{d\bar{Z}_1/dx_1}{d\bar{Z}_2/dx_2} = x_2/x_1. \quad (12)$$

После преобразований УГД приобретает вид

$$\frac{d\bar{Z}_1/dx_1}{d(\bar{Z}_2 - \bar{Z}_1)/dx_2} = x_2. \quad (13)$$

особенно удобный для функции вида $\Delta\bar{G}_i = RT \ln a_i$:

$$\frac{d \ln a_1 / dx_1}{d \ln(a_2/a_1) / dx_2} = x_2. \quad (14)$$

Применение уравнения (14) непосредственно в дифференциальной форме

$$\frac{d \ln a_1}{dx_1} = x_2 \frac{d \ln(a_2/a_1)}{dx_2} \quad (15)$$

или в форме интеграла

$$\ln a_1^{(2)} - \ln a_1^{(1)} = x_2^{(1)} \ln(a_2^{(1)}/a_1^{(1)}) - x_2^{(2)} \ln(a_2^{(2)}/a_1^{(2)}) + \int_{x_2^{(1)}}^{x_2^{(2)}} \ln(a_2/a_1) dx_2 \quad (16)$$

дает возможность определять функции одного из компонентов через отношения этих функций обоих компонентов.

Из формулы (11) для общего случая истечения находим

$$a_2/a_1 = \frac{C_2}{C_1} \frac{\Gamma_1 \mu_1^{1/2} P_1^S}{\Gamma_2 \mu_2^{1/2} P_2^S} = \frac{C_2}{C_1} B, \quad (17)$$

где C_2/C_1 – отношение концентраций компонентов в конденсате (в атомарном пучке, покидающем эффузионную ячейку);

$B = \Gamma_1 \mu_1^{1/2} P_1^S / (\Gamma_2 \mu_2^{1/2} P_2^S)$; P_1^S и P_2^S – давления насыщения чистых компонентов.

В частных случаях свободно-молекулярного (т.е. в области применимости УГК) и гидродинамического ($C_p/C_v = \text{idem}$ для атомарного пара компонентов) потоков $\Gamma_1/\Gamma_2 = 1$, $B = \text{const}$. В общем виде $\Gamma_i = f(\lambda_j)$, вследствие чего $B \neq \text{const}$. Однако оценка этой зависимости с учетом того, что Γ меняется на 50 % при изменении λ на два порядка, показывает, что при коротких шагах интегрирования данной зависимостью можно пренебречь.

Таким образом, уравнения (15) и (16) приобретают вид

$$\frac{d \ln a_1}{dx_1} = x_2 \frac{d \ln(C_2/C_1)}{dx_2}, \quad (18)$$

$$\ln a_1^{(2)} - \ln a_1^{(1)} = x_2^{(1)} \ln(C_2^{(1)}/C_1^{(1)}) - x_2^{(2)} \ln(C_2^{(2)}/C_1^{(2)}) + \int_{x_2^{(1)}}^{x_2^{(2)}} \ln(C_2/C_1) dx_2, \quad (19)$$

где $C_2/C_1 = f(x_2)$ – измеряемая в опыте величина.

Из (15) следует, что при $x_2 = 0$ ($x_1 = 1$)

$$d \ln a_1 / dx_1 = da_1 / dx_1 = 1. \quad (20)$$

Это, наряду с требованием в этой же точке $\ln a_1 = \ln \gamma_1 = 0$ (γ_1 – коэффициент активности), служит граничными условиями при использовании расчетных уравнений в дифференциальной (18) и интегральной (19) формах при определении абсолютных значений a_i или γ_i .

В случае применения метода ГДО для исследования тройных жидкометаллических систем можно записать с учетом граничных условий $x_i = 1, x_j = 0, \ln a_i = 0$

$$\ln a_i(x_i, x_j) - \ln a_i(x_i = 1, x_j = 0) = - \sum_{j=2}^3 \int_{x_j=1, x_i=0}^{x_j, x_i} x_j d \ln(C_j/C_i), \quad (21)$$

где полный дифференциал $d \ln(C_j/C_i)$ при интегрировании по лучам, проходящим через вершину $x_i = 1, x_j = 0$ [7], может быть представлен как $[d \ln(C_j/C_i)/dx_i] dx_i$.

6. Анализ влияния димеризации

Спектрально-химический анализ конденсата дает элементный состав молекулярного пучка, включающий вклад димеров и более высоких ассоциатов. Проведенные расчетные оценки на основе литературных данных, посвященных составу пара щелочных металлов [8], позволяют ввести необходимые отрицательные поправки, чтобы отделить вклад, обязанный существованию димеров (ассоциатов) в насыщенном паре. Скорректированные значения C_j/C_i относятся только к мономерам, парциальные давления p_i , которых необходимо знать для определения активностей компонентов.

Если мольное содержание d димера (ассоциата) в насыщенном паре внутри ячейки равно Δx_d , то соответствующий массовый вклад ΔC_d этого ассоциата в состав молекулярного потока, покинувшего ячейку (т.е. вклад в состав конденсата), будет равен

$$\Delta C_d = \Delta x_d \mu_d^{1/2} / \left(\sum_i x_i \mu_i^{1/2} + \sum_d \Delta x_d \mu_d^{1/2} \right). \quad (22)$$

В случае применения методики ГДО влияние димеризации, как и указанных выше других источников систематической погрешности, уменьшается, поскольку в расчетных формулах фигурирует отношение концентраций. Это видно из соответствующего выражения

$$\frac{C_{i,m}}{C_{i,exp}} = \frac{C_{i,exp}}{C_{i,exp}} \frac{1 - \left(\sum_d \Delta C_{i,d} \right) / C_{i,exp}}{1 - \left(\sum_d \Delta C_{j,d} \right) / C_{i,exp}}, \quad (23)$$

где $C_{i,m}, C_{j,m}$ – массовые концентрации мономеров в молекулярном потоке (в конденсате); $C_{i,exp}, C_{j,exp}$ – измеренные в опыте величины концентраций компонентов; $\Delta C_{i,d}, \Delta C_{j,d}$ – абсолютные поправки на ассоциацию, рассчитываемые по формуле (22).

В рабочем диапазоне параметров эффузионного эксперимента ($400 \leq T_1 \leq 450$ К, т.е. вблизи линии ликвидуса) рассматриваемая поправка весьма мала и практически не влияет на результаты определения активности компонентов.

7. Анализ равновесия в паровой фазе эффузионной ячейки

Как и для выполнения условия изотропности газовой фазы, определяющим фактором в сохранении равновесия между паровой и жидкой фазами является предельно малый диаметр эффузионного отверстия. В предположении сохранения равенства между коэффициентами испарения $\alpha_{исп}$ и конденсации $\alpha_{конд}$ при давлении, не только равном, но и меньшем, чем давление насыщения, и независимости этих коэффициентов аккомодации от давления можно показать из рассмотрения материального баланса в эффузионной ячейке [3], что

$$P_s / P_{изм} = g_s / g_{изм} = 1 + S_e L / (S_v \alpha), \quad (24)$$

где P_s и $P_{изм}$ – соответственно давление насыщения и измеряемое давление, установившееся в ячейке и определяемое по эффузионному потоку; g_s и $g_{изм}$ – интенсивности потоков на поверхность, соответствующие этим давлениям; S_e и S_v – площади эффузионного отверстия и поверхности испарения, соответственно; L – коэффициент Клаузинга; $\alpha = \alpha_{исп} = \alpha_{конд}$ – коэффициент аккомодации. Минимальным значением S_v (т.е. без учета адсорбированного слоя на внутренней поверхности ячейки) служит площадь зеркала испарения жидкости. В опытах данной работы $S_e \approx 1,5 \dots 5$ мм², $S_v \geq 10^3$ мм², т.е. поправка на “недонасыщение” (“undersaturation”) составляет 0,2...0,5 %.

8. Анализ влияния процессов теплообмена (градиентов температуры) в жидкой фазе эффузионной ячейки

Процесс испарения эндотермичен, поэтому поверхность испарения является областью с отрицательными источниками тепла, что при достаточно больших скоростях эффузии с единицы поверхности может привести к занижению истинной температуры поверхности испарения по отношению к измеряемой (температура измерялась в осевом термодинамическом капилляре под поверхностью испарения). Как и в случае с "недонасыщением", данный эффект определяется величиной S_e/S_v . Для жидкометаллических образцов, обладающих высокой теплопроводностью, и реальных значений плотности теплового потока на поверхности влияние рассматриваемого эффекта оказывается пренебрежимо малым. Соответствующие оценки подтверждаются данными [5, 6] для солей щелочных металлов, имеющих существенно меньшую теплопроводность и, следовательно, более высокие градиенты.

9. Учет переходных температурных режимов

Время изотермического периода в экспериментах составляло 1,5...2,5 часа. Максимально возможный вклад нестационарного температурного режима (после выключения нагревателей) оценивался расчетным путем (см. формулу (11)):

$$\Delta g_i = R^{1/2} \mu^{1/2} L \int_{\tau_1}^{\tau_2} P_i \Gamma_i T^{-1/2} d\tau, \quad (25)$$

где τ_1 и τ_2 – времена соответственно отключения нагревателей и окончания эксперимента ($T \approx 300$ К). Вследствие подачи в момент τ_1 инертного газа, что приводило к резкому подавлению эффузионного потока и уменьшению времени переходного режима, реальная поправка не превышала 1,5 %. К сожалению, не представлялось возможным исключить данный эффект для конкретного образца классическим методом варьирования времени изотермического периода, когда в расчетные уравнения вводятся разности эффузионных масс (или концентраций) и общих экспозиций в "длинном" и "коротком" экспериментах, и полученные величины относятся только к изотермическому периоду.

10. Результаты и обсуждение

Результаты измерений представлены в таблице, где x_i – мольные доли, a_i – активность компонентов.

Таблица активности компонентов в бинарных и тройных сплавах щелочных металлов при 400 К, экспериментальные результаты

Cs-Na	x_{Na}	0,152	0,250				
	a_{Na}	0,302	0,463				
	a_{Cs}	0,863	0,779				
K-Na	x_{Na}	0,200	0,319	0,334	0,500	0,668	
	a_{Na}	0,358	0,475	0,493	0,658	0,741	
	a_K	0,833	0,753	0,735	0,639	0,531	
Cs-K	x_K	0,149	0,350	0,499	0,499	0,700	0,850
	a_K	0,159	0,366	0,496	0,493	0,687	0,843
	a_{Cs}	0,847	0,653	0,528	0,525	0,316	0,150
Na-K-Cs	x_{Na}	0,139	x_K	0,435	x_{Cs}	0,426	
	a_{Na}	0,260	a_K	0,473	a_{Cs}	0,465	

Данные получены при температурах $400 \leq T \leq 450$ К и приведены к отчетной изотерме $T_1 = 400$ К метода с использованием значений энтальпии образования в этой области [2, 7]. Анализ источников методических погрешностей, остающихся после введения рассмотренных выше поправок, а также систематических и случайных измерительных погрешностей, позволяет оценить суммарную погрешность данных для среднего по интервалу концентраций значения активности величиной ≈ 5 %.

Сравнение полученных результатов с литературными, имеющимися в основном только для отдельных компонентов двух из рассматриваемых систем при температурах ~ 400 К (Cs-Na [9...11], метод ЭДС, a_{Na} ; K-Na [12], метод атомной абсорбции, a_{Na} , a_K), показывает вполне удовлетворительное соответствие, что позволяет сформировать общий массив данных при этой температуре и построить изотерму активности компонентов при $T_1 = 400$ К, $0 \leq x_i \leq 1$ для бинарных систем Cs-Na, K-Na, Cs-K (рис. 1...3). УГД применялось при построении кривой a_{Cs} сплава Cs-Na (дополнительно к полученным экспериментальным данным). Как от-

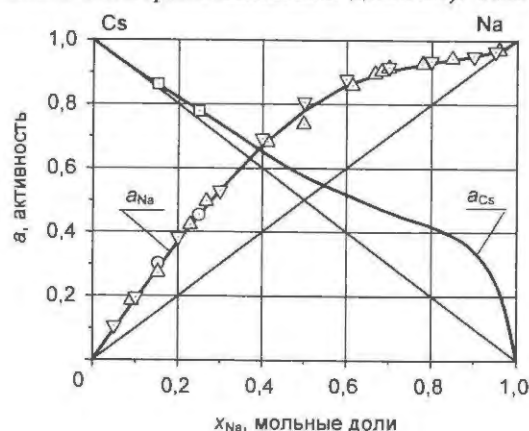


Рис. 1. Термодинамическая активность компонентов сплава Cs-Na при $T = 400$ К: □, ○ – данная работа; Δ – [9]; ▽ – [10, 11]; прямые линии – идеальные растворы

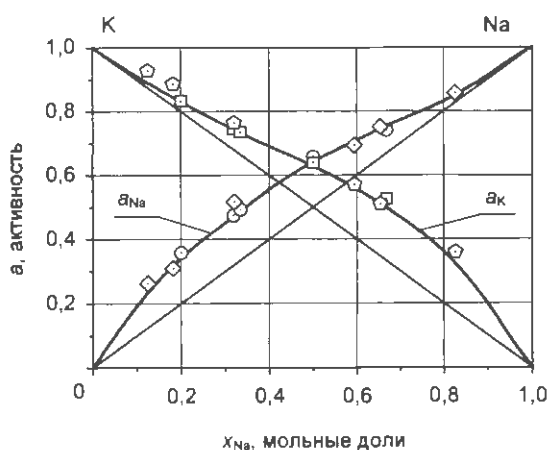


Рис. 2. Термодинамическая активность компонентов сплава К-Na при $T = 400$ К: \square , \circ – данная работа; \diamond , \circ – [11]; прямые линии – идеальные растворы

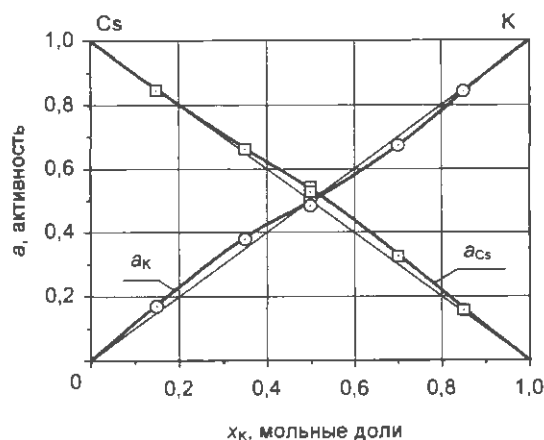


Рис. 3. Термодинамическая активность компонентов сплава Cs-K при $T = 400$ К: \square , \circ – данная работа; \diamond , \circ – [11]; прямые линии – идеальные растворы

мечено в разделе выше, эти результаты служат граничными условиями при интегрировании уравнения (1) в интервале параметров $400 \leq T \leq 1200$ К, $0 \leq x_i \leq 1$.

Заключение

Предложен новый вариант эффузионного метода для определения энергии Гиббса (активности компонентов) многокомпонентного жидкометаллического сплава при давлениях, существенно превышающих кнудсенские.

Использование данного варианта метода позволило определить энергию Гиббса на отсчетной изотерме T_1 ($400 \leq T_1 \leq 450$ К), т.е. обеспечить граничным условием дифференциальное уравнение химической термодинамики (1) и таким образом замкнуть его решение, которое дает возможность построить энергию Гиббса сплавов Cs-Na, K-Na, Cs-K, Cs-K-Na во всей исследуемой области параметров состояния ($400 \leq T \leq 1200$ К и $0 \leq x_i \leq 1$).

Предложенный вариант эффузионного метода заполняет пробел в измерениях давления

насыщения между областями применимости манометрических методов ($P > 100$ Па) и методов, основанных на УГК ($P < 1$ Па).

Авторы выражают признательность Российскому фонду фундаментальных исследований, при поддержке которого выполнена эта работа (грант № 05-02-16129).

Контактная информация – тел.: (495)485-91-45, e-mail: d.n.kagan@mtu-net.ru, Казан Дмитрий Наумович

Список литературы

1. Bystrov P.I., Kagan D.N., Krechetova G.A., Shpilrain E.E. Liquid-Metal Coolants for Heat Pipes and Power Plants. – New York: Hemisphere, 1990.
2. Казан Д.Н., Кречетова Г.А., Шпильрайн Э.Э. Анализ особенностей и внутренней согласованности термодинамических свойств бинарных щелочнометаллических теплоносителей на основе корреляционной функции концентрационных флуктуаций // ТВТ. 2004. Т. 42. № 3. – С. 401.
3. Сидоров Л.П., Коробов М.В., Журавлева А.В. Масс-спектральные термодинамические исследования. – М.: Изд-во МГУ, 1985.
4. Сивухин Д.В. Термодинамика и молекулярная физика. – М.: Наука, 2005.
5. Ewing C.T., Stern K.H. Equilibrium Vaporization Rates and Vapor Pressures of Solid and Liquid NaCl, KCl // J. Phys. Chem. 1974. V. 78. № 20. – P. 1198.
6. Ewing C.T., Stern K.H. Equilibrium Vaporization Rates and Vapor Pressures of Solid and Liquid KBr, CsI, LiF // J. Phys. Chem. 1975. V. 79. № 20. – P. 2007.
7. Казан Д.Н., Кречетова Г.А., Шпильрайн Э.Э. Внутренне согласованное термодинамическое описание трехкомпонентных жидкометаллических систем при высоких температурах во всей области концентрационного треугольника // ТВТ. 2001. Т. 39. № 6. – С. 904.
8. Захарова О.Д., Семенов А.М. Давления, при которых свойства паров щелочных металлов соответствуют модели идеального реагирующего газа // ТВТ. 2002. Т. 40. № 1. – С. 150.
9. Ichikawa K., Granstaff S.M., Thompson J.C. Chemical Potentials and Related Thermodynamics of Liquid Na-Cs Alloys // J. Chem. Phys. 1974. V. 61. № 10. – P. 4059.
10. Neale F.E., Cusack N.E. Thermodynamic Properties of Liquid Sodium-Caesium Alloys // J. Phys. F: Metal Physics. 1982. V. 12. – P. 2839.
11. Neale F.E., Cusack N.E. Thermodynamic Model for Liquid Sodium-Caesium Alloys // J. Non-Crystalline Solids. 1984. V. 61 – 62. – P. 169.
12. Cafasso F.A., Khanna V.M., Feder H.M. Thermodynamic Properties and Ordering in Liquid Na-K Alloys // Advances in Physics. 1967. V. 16. – P. 535.

Статья поступила в редакцию 30 ноября 2007 г.
Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов. 2008. вып. 4,
с. 64 – 71.

**Исследование свойств сплава натрий-свинец
с целью выбора состава пожаробезопасного теплоносителя**

*И.И. Засорин, Л.М. Кузнецова, В.В. Кумской, Н.И. Логинов, А.С. Михеев,
А.В. Морозов, В.А. Морозов, С.С. Плетенец, А.А. Тихомиров,
ФГУП "ГНЦ РФ-ФЭИ", 249033, г. Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1*

Изложены результаты анализа данных по свойствам сплавов натрий-свинец, рассматриваемых как возможный вариант теплоносителя для реакторов на быстрых нейтронах. Уточнена диаграмма состояния в области 1...21 % ат.Рб. оценены термодинамические свойства, плотность и теплопроводность сплавов до 10 % ат.Рб. Представлены данные по технологическим свойствам сплавов: воспламеняемость, растворимость и активность кислорода в системе сталь-сплав. Определен состав негорящего "натрия" ≥ 10 % ат.Рб.

Investigation of the properties of sodium-lead system to choose the composition of fire-safety coolant. I.I. Zasorin, L.M. Kuznetsova, V.V. Kumskey, N.I. Loginov, A.S. Mikheev, A.V. Morozov, V.A. Morozov, S.S. Pletenets, A.A. Tikhomirov. The results of analysis of data on properties of sodium-lead alloys regarding as possible variant of coolant for fast reactors are presented. The state diagram in the range of 1...21 % at.Pb is improved, thermodynamic properties, density, and heat conductivity of the alloys up to 10 % at.Pb are estimated. The data on such technological properties of the alloys as ignitability, solubility, and oxygen activity in the steel-alloy system are presented.

Сплавы натрия со свинцом рассматриваются как потенциальные теплоносители ядерных реакторов на быстрых нейтронах с целью устранения основного недостатка натрия: пожароопасности. Добавки свинца в натрий, естественно, должны изменить свойства этого великолепного теплоносителя. Определить, насколько серьезны эти изменения, – задача настоящей работы.

Исследования термодинамической системы натрий-свинец проводятся в ФЭИ с 2001 г. Изучались диаграммы состояния, воспламеняемость, плотность, теплопроводность, микроструктура, термодинамический потенциал кислорода в сплавах; анализировались литературные данные по активности натрия в сплавах и теплоемкости. Ниже приводятся оценки некоторых свойств, важных, по нашему мнению, для выбора теплоносителя.

1. Диаграмма состояния

Диаграмма состояния системы натрий-свинец хорошо изучена [1, 2] за исключением "натриевого угла", где не уточнена линия ликвидуса и не выяснен вопрос о наличии эвтектической точки. Для выбора теплоносителя из этой системы очень важно определить раство-

римость свинца, ибо, если такой теплоноситель будет, это единственный в своем роде неэвтектический сплав, работающий в надликвидусной области. По растворимости свинца в натрии в диапазоне концентраций 0...21,05 % ат.Рб ($\text{Na-Na}_{15}\text{Pb}_1$) имеется множество уравнений (табл. 1) и экспериментальных точек (табл. 2).

Т а б л и ц а 2. Линия ликвидуса, экспериментальные данные, x – % ат.Рб;
 T_l , °C – температура ликвидуса

x , % ат.Рб	T_l , °C	$10^3/T$, K ⁻¹	$\lg x$	Лит-ра
0,10	100	2,681	-1,00	Данные авторов
0,32	144	2,398	-0,495	
0,75	182	2,198	-0,125	
1,03	199	2,115	0,013	
1,54	222	2,02	0,188	
2,38	250	1,912	0,377	
3,60	268	1,848	0,556	
7,88	308	1,721	0,897	
16,00	362	1,575	1,204	
6,50	294	1,764	0,813	
14,1	355	1,592	1,149	[1]
21,05	386	1,517	1,323	[5]
7,79	314	1,704	0,892	
10,01	325	1,672	1,00	
12,65	335	1,645	1,102	
14,61	352	1,60	1,165	

Т а б л и ц а 1. Растворимость свинца в натрии в форме $\lg x$ (% ат.Рб) = $A - B/T$

№ урavn.	A	B	T , °C	Лит-ра	№ урavn.	A	B	T , °C	Лит-ра
1	5,515	2 639	100...260	[2]	5	5,178	2 639	120...250	[4]
2	5,115	2 465	119...244	[3]	6	4,082	1 840	290...386	[1]
3	3,346	1 600	100...165	[3]	7	3,140	1 840	180...340	Авт.
4	5,157	2 380	165...200	[3]	8	4,160	1 880	290...386	Авт.

Эти экспериментальные данные приведены на рис. 1 и 2 и обобщены единым уравнением

$$\lg x(\% \text{ ат. Pb}) = 2,2 + 0,701 \cdot 10^3/T - 0,84264 \cdot 10^6/T^2 \quad (1)$$

на том основании, что линейные зависимости типа

$$\lg x = A - B/T \quad (2)$$

служат уравнениями касательных к некоторой кривой, что видно на рис. 1, и описывают экспериментальные точки в ограниченном диапазоне температур. Уравнения 3, 4, 7 (см. табл. 1) и экспериментальные точки авторов при $x \leq 1\%$ ат. Pb являются неравновесными и при оценке коэффициентов уравнения (1) не использовались.

2. Термодинамические свойства

Данные по активности натрия в сплавах натрий-свинец приведены в статье [6] как наиболее полные и представительные из всех известных [5 и др.]. Представим $\lg \gamma_{\text{Na}}$ (γ_{Na} - ко-

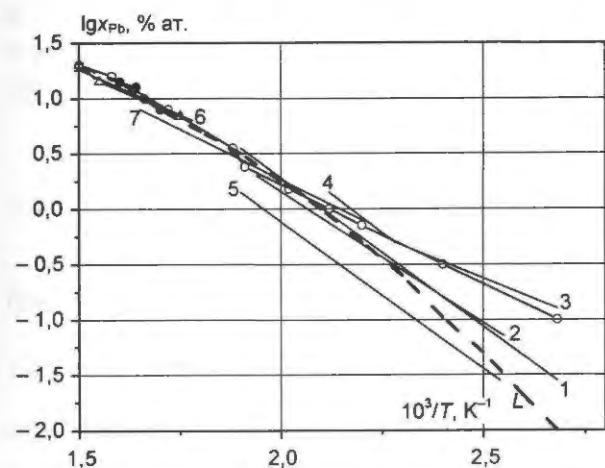


Рис. 1. Растворимость свинца в натрии: Δ - данные [1]; \bullet - данные [5]; \circ - данные авторов; цифры - номер уравнения в табл. 1; L - ликвидус (формула (1))

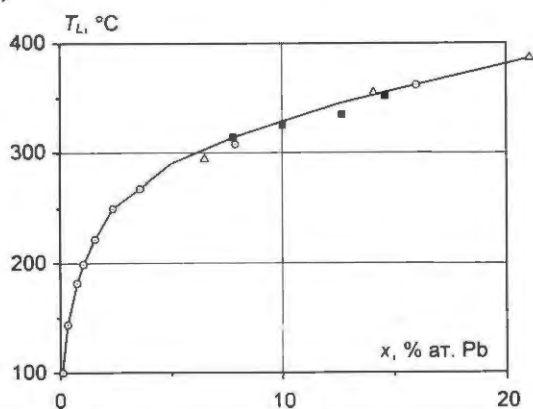


Рис. 2. Линия ликвидуса системы натрий-свинец: Δ - данные [1]; \blacksquare - данные [5]; \circ - данные авторов

эффициент активности натрия) в виде произведения функций от температуры и концентрации

$$\lg \gamma_{\text{Na}} = F(T)F(x) \quad (3)$$

и примем

$$F(x) = x^{n(x)}, \quad (4)$$

где x - атомная доля свинца.

$F(T)$ естественно определить в виде $\lg \gamma_{\text{Na}}^0(x=1)$, т.е. предельного значения в бесконечно разбавленном растворе натрия в свинце, которое не зависит от концентрации. Представим $F(T)$ в виде многочлена

$$F(T) \equiv \lg \gamma_{\text{Na}}^0 = A - B/T + \varphi(T). \quad (5)$$

Последний член введен, чтобы учесть вклад избыточной теплоемкости сплавов в $\lg \gamma_{\text{Na}}$.

Зная температурную зависимость c_p^E хотя бы для одного из сплавов, введем эффективный параметр взаимодействия Виттига для теплоемкости

$$W(T) = c_p^E (1 + (\lambda - 1)x) / [x(1 - x)], \quad (6)$$

где λ - отношение ионных объемов свинца и натрия. Для системы натрий-свинец ($\lambda = 10$) можно найти конкретное значение $F(T)$. Используя данные работы [6] для $\lg \gamma_{\text{Na}}^0(x=1)$: $\lg \gamma_{\text{Na}}^0(400^\circ\text{C}) = -2,89$; $\lg \gamma_{\text{Na}}^0(500^\circ\text{C}) = -2,37$ и $\lg \gamma_{\text{Na}}^0(600^\circ\text{C}) = -1,97$, а также данные по теплоемкости сплава натрий-свинец ($x = 0,5$) $c_p = 43,467 - 9,667 \cdot 10^{-3}T$ [7], получим

$$F(T) \equiv \lg \gamma_{\text{Na}}^0 = 8,953 - 3395/T - 1,051 \ln T + 1982/T^2 - 4,47 \cdot 10^{-6}T + 9,8 \cdot 10^{-8}T^2 \quad (7)$$

Показатель степени $n(x)$ получим из экспериментальных данных с помощью уравнений (3) и (4) в виде

$$n(x) = [\lg(\lg \gamma_{\text{Na}} / F(T))] / \lg x \quad (8)$$

($n(x)$ имеет четко выраженную концентрационную зависимость и слабую температурную). Приближенно

$$n(x) = \begin{cases} 5/3 \cdot x^2 & \text{при } x = 0 \dots 0,6; \\ x & \text{при } x = 0,6 \dots 1. \end{cases} \quad (9)$$

Пример расчета термодинамических свойств сплавов натрий-свинец приведен на рис. 3 для 698 K в виде зависимости $\bar{G}_i = RT \ln \gamma$ от концентрации свинца. Для сравнения на этом рисунке приведены данные расчета из работы [8], в которой применены результаты работы [6]. Из этих оценок следует, что активность свинца в сплавах с $\sim 10\%$ ат. Pb равна $\sim 10^{-5}$ и, следовательно, агрессивность его по отношению к конструкционным материалам

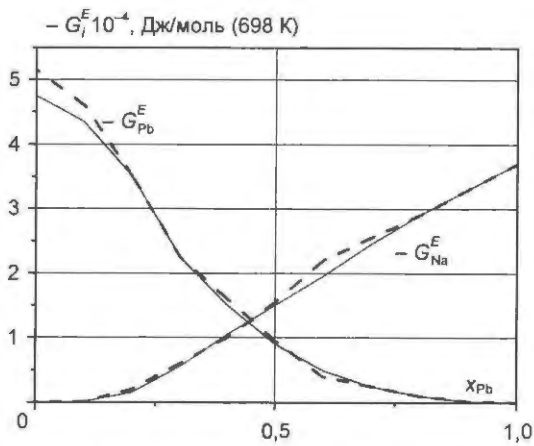


Рис. 3. Парциальные избыточные потенциалы Гиббса компонентов системы натрий-свинец: — — расчет авторов; - - расчет [8]

в сплавах с натрием на несколько порядков ниже, чем в чистом свинце.

3. Теплофизические свойства

1. Плотность сплава 2,4 % ат.Рв оценена объемным методом при измерении уровня в баке во время нагрева и охлаждения сплава. Эта оценка выполнена с погрешностью $\pm 3\%$ и может быть представлена уравнением

$$\rho(\text{г/см}^3) = 1,228 - 2,526 \cdot 10^{-4} T(\text{К}). \quad (10)$$

Вторая оценка плотности выполнена для сплава 7,9 % ат.Рв при 700 К по смещению положения главного пика структурного фактора $S(Q)$ сплава относительно $S(Q)$ натрия, измеренных методом дифракции нейтронов. При оценке плотности использовано предположение, что состав сплава в первой координационной сфере в среднем отражает его макросостав, т.е.

$$\left. \begin{aligned} n_c &= (1-x)n_{\text{Na}} + xn_{\text{Pb}}; \\ n_i &= 4/3 \cdot \pi d_i^3 (\rho_i N_A) / M_i; \\ d_i &= 1,23(2\pi/Q_i), \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

где n_i — число атомов сорта i в первой координационной сфере радиуса d_i (межатомное расстояние); ρ_i, M_i — соответственно плотность и молярная масса компонента i ; N_A — число Авогадро; Q_i — положение главного пика $S(Q)$; плотность сплава —

$$\rho_c = 3M_c n_c / (4\pi d_c^3 N_A). \quad (12)$$

В эксперименте по дифракции нейтронов определено: $Q_i(\text{Na}) = 2,05 \text{ \AA}^{-1}$, $Q_i(\text{Pb}) = 2,20 \text{ \AA}^{-1}$, $Q_i(\text{c}) = 2,11 \pm 5 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$; соответственно $d_{\text{Na}} = 3,770 \text{ \AA}$, $d_{\text{Pb}} = 3,513 \text{ \AA}$, $d_c = 3,663 \text{ \AA}$ и плотность сплава при 700 К равна $1,525 \text{ г/см}^3$.

Введем параметр Виттига для избыточного мольного объема сплава в виде

$$W(T) = V^E(x, T)(1 + (\lambda - 1)x) / [x(1 - x)], \quad \lambda = 10. \quad (13)$$

С помощью зависимости (10) получим

$$W(T) = -11,44 - 2,25 \cdot 10^{-2} T - 3,14 \cdot 10^{-5} T^2. \quad (14)$$

Используя (13) и (14), а также расчетный идеальный мольный объем сплавов, можно рассчитать плотность сплавов во всем концентрационном диапазоне. Оценка плотности сплава с концентрацией свинца 7,9 % ат. с применением указанных зависимостей дает $\rho_c = 1,5240 \text{ г/см}^3$ при 700 К, что вполне совпадает с приведенным выше расчетом. Для иллюстрации на рис. 4 приведена концентрационная зависимость плотности сплавов при 700 К. Видно, что сплавы сжаты относительно своего идеального образа.

2. Теплопроводность сплавов измерялась методом нагрева цилиндра высотой l постоянным тепловым потоком q на его верхней плоскости при наличии изоляции на остальных поверхностях. Температура измерялась хромель-копелевыми термопарами в трех точках по оси цилиндра: $x = l$ (верх), $x = l/2$ (середина), $x = 0$ (низ). В регулярном режиме нагрева подогрев в каждой точке, если отсутствуют боковые потери тепла, должен подчиняться зависимостям

$$\left. \begin{aligned} \Delta T &= Q\tau / (F\rho c_p l) - Ql / (6\lambda F) \text{ при } x = 0; \\ \Delta T &= Q\tau / (F\rho c_p l) - Ql / (24\lambda F) \text{ при } x = l/2; \\ \Delta T &= Q\tau / (F\rho c_p l) + Ql / (3\lambda F) \text{ при } x = l. \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

Из разности двух последних уравнений системы (15) получим

$$\lambda = 3/8 \cdot (Q_{\text{ж}} - Q_{\text{н}}) l K / \langle F [T(\tau, l) - T(\tau, l/2)] \rangle, \quad (16)$$

где $Q_{\text{ж}}$ — мощность нагревателя; $Q_{\text{н}}$ — потери тепла; F — поверхность нагрева; $K = 2,5 \dots 3$ — тарировочный множитель, полученный при измерении теплопроводности натрия на данном участке. Теплопроводность натрия измерена с

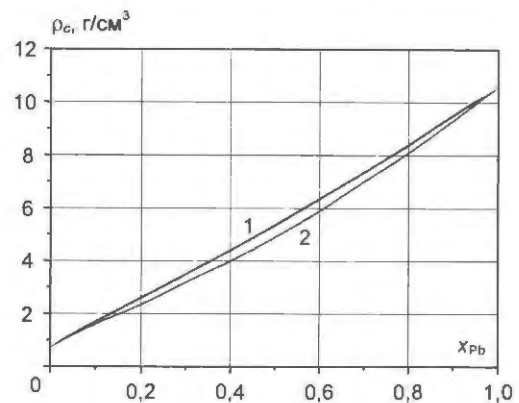


Рис. 4. Плотность сплавов системы натрий-свинец при 700 К: 1 — ρ_c ; 2 — $\rho_{\text{ид}}$

разбросом $\pm 7\%$ относительно известных табличных значений [9].

Сплавы натрия со свинцом приготавливались в смесительном баке и заправлялись в рабочий участок через трубку, расположенную на дне рабочего цилиндра. Проведены оценки теплопроводности сплавов 1; 4,8 и 9 % ат.Рb, погрешность оценок $\sim \pm 15\%$. Полученные данные представлены на рис. 5.

Видно, что свинец снижает теплопроводность сплавов в 1,5...2 раза, причем влияние концентрации свинца в натрии в этом эксперименте не отмечено. В то же время теплопроводность сплавов натрий-свинец в два – три раза выше, чем у эвтектик натрий-калий и свинец-висмут в интервале температур 300...500 °С. Полученные данные рассматриваются как оценочные, измеренные в процессе отработки методики.

3. Теплоемкость сплавов натрий-свинец определим на основании данных [7, 9]. Теплоемкость сплава при $x = 0,5$ [7]:

$$c_p(x=0,5) = 43,6(6) - 9, (6) \cdot 10^{-3} T \text{ Дж/(моль} \cdot \text{К)};$$

теплоемкость свинца [9]:

$$c_p(\text{Pb}) = 30,519087 \text{ Дж/(моль} \cdot \text{К)};$$

теплоемкость натрия [9]:

$$c_p(\text{Na}) = 38,12 - 6,9 \cdot 10^{-4} T^{-2} + 1,9493 \cdot 10^{-2} T + 1,024 \cdot 10^{-5} T^2 \text{ Дж/(моль} \cdot \text{К)}.$$

Избыточная теплоемкость сплава, при $x = 0,5$ равная $c_p(x=0,5) = (1-x)c_p(\text{Na}) - xc_p(\text{Pb})$, выразится формулой

$$c_p^E(x=0,5) = 9,147 - 3,45 \cdot 10^{-4} T^{-2} + 7,983 \cdot 10^{-5} T - 5,12 \cdot 10^{-6} T^2 \text{ Дж/(моль} \cdot \text{К)},$$

а параметр взаимодействия –

$$W(T)c_p = 201,23671 - 7,59 \cdot 10^5 T^{-2} + 1,7563 \cdot 10^{-6} T - 1,1264 \cdot 10^{-4} T^2 \text{ Дж/(моль} \cdot \text{К)}.$$

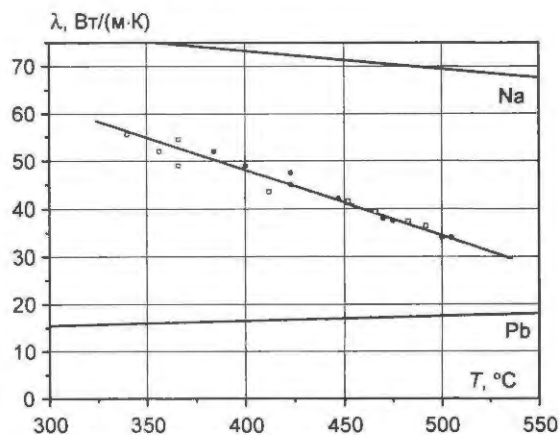


Рис. 5. Оценка теплопроводности сплавов натрий-свинец: \circ – 1 % ат.Рb; \bullet – 4,8 % ат.Рb; \square – 9 % ат.Рb

Отсюда избыточная теплоемкость сплавов равна

$$c_p^E = [x(1-x)/(1+9x)] \times \left(201,23671 - 7,59 \cdot 10^5 T^{-2} + 1,7563 \cdot 10^{-6} T - 1,1264 \cdot 10^{-4} T^2 \right) \text{ Дж/(моль} \cdot \text{К)}, (17)$$

а полная молярная теплоемкость сплава

$$c_p(x,T) = x \cdot 30,519087 + (1-x) \times \left(38,12 - 6,9 \cdot 10^{-4} T^{-2} + 1,9493 \cdot 10^{-2} T + 1,024 \cdot 10^{-5} T^2 \right) + [x(1-x)/(1+9x)] \times \left(201,23671 - 7,59 \cdot 10^5 T^{-2} + 1,7563 \cdot 10^{-6} T - 1,1264 \cdot 10^{-4} T^2 \right). (18)$$

Значение избыточной молярной теплоемкости сплавов Na-Pb при 700 К показано на рис. 6. Достоверность этих оценок ограничена ближайшей окрестностью $x = 0,5$.

4. Технологические свойства сплавов

Технологические свойства сплавов натрия и свинца – наименее изученный предмет.

1. Известно, что для получения гомогенных расплавов требуются значительные усилия для перемешивания ввиду различия в плотностях компонентов и существования нескольких достаточно тугоплавких соединений, например, Na_9Pb_4 .

Для перемешивания сплавов применялись механический способ, барботажа инертного газа, естественная конвекция. Гарантии полной гомогенизации нет при температурах несколько выше ликвидуса, поэтому при этой операции желательно температуру держать выше 40 °С и использовать принудительную конвекцию.

В области составов, интересной для выбора теплоносителя ($x < 20\%$ ат.Рb), ниже линии ликвидуса сплавы распадаются с выделением

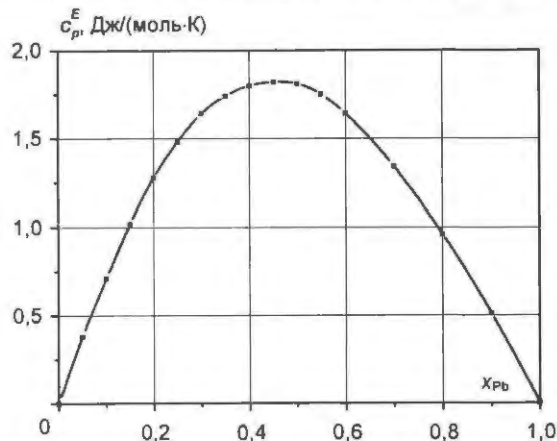


Рис. 6. Оценка избыточной теплоемкости сплавов натрий-свинец

фазы $\text{Na}_{15}\text{Pb}_4$, которая примерно в три раза тяжелее натрия, следовательно, остывающий сплав расслаивается и при каждом новом разогреве в баке его надо гомогенизировать, т.е. разогревать бак до $\sim 400^\circ\text{C}$ и перемешивать насосом. Таким образом, бак должен иметь собственный контур циркуляции.

2. Проведены оценки растворимости и термодинамического потенциала кислорода в сплавах $\sim 1...5\%$ ат.Рб методом активометрии кислорода. Растворимость описывается зависимостью

$$\lg x_{\text{O}} (\text{ppm}) = 6,53 - 2500/T. \quad (19)$$

Измерения проводились датчиком с твердым кислородо-ионным электролитом $\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$ и электродом сравнения $\text{In-In}_2\text{O}_3$.

Термометрический потенциал кислорода, преобразованный с помощью уравнения Кернета в концентрацию кислорода, представлен на рис. 7. На этом графике приведены данные по активометрии кислорода в натрии и сплавах 1,4 и 5 % ат.Рб в виде линий растворимости кислорода в натрии и сплавах и равновесия кислорода в системах натрий-кислород-сталь, натрий-свинец-кислород-сталь.

В системе натрий-кислород-хромоникелевая сталь при температуре выше 280°C происходит раскисление натрия и концентрация кислорода опускается ниже 1 ppm вследствие образования соединения NaCrO_2 . Минимум термодинамического потенциала кислорода находится при $\sim 400^\circ\text{C}$. Введение свинца в натрий приводит к смещению этого минимума в область низких температур $\sim 200^\circ\text{C}$. Это означает, что коррозионные продукты в сплавах наиболее устойчивы в холодных ловушках не в пример натрию, где они распадаются с выделением кислорода в расплав и не накапливаются там. Зато они устойчивы в области высоких температур и, возможно, защищают сталь от коррозии растворения.

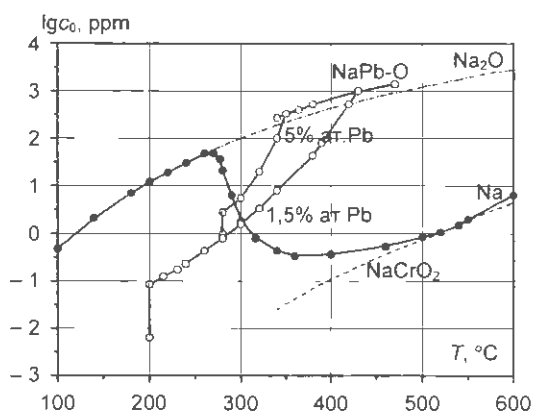


Рис. 7. Температурная зависимость концентрации кислорода в системах Na-O , Na-Pb-O , Na-O-сталь , Na-Pb-O-сталь : ● — $\text{Na-O-сталь X18H10T}$; ○ — $\text{Na-Pb-сталь X18H10T}$

Коррозионных испытаний в сплавах не проводилось, поэтому в настоящее время нельзя определенно сказать, влияет ли кислород на коррозию сталей. Что касается влияния собственно свинца на увеличение растворимости элементов стали в натрии, то термодинамически это вряд ли стоит внимания ввиду низкой активности свинца ($10^{-4}...10^{-5}$).

3. Относительно применения холодных ловушек для контроля кислорода в сплавах можно сказать следующее. Если в натрии для поддержания кислорода на уровне 2 ppm требуется температура на выходе из ловушки $\sim 130^\circ\text{C}$, то в сплавах $1,5...5\%$ ат.Рб — 300°C .

4. Последнее, что надо сказать относительно технологических свойств, — это влияние свинца на воспламеняемость сплавов. Установлено, что 10 % ат.Рб в гомогенизированном сплаве ингибируют воспламеняемость даже при $T > 700^\circ\text{C}$. Однако, плохо гомогенизированные сплавы с содержанием свинца до 8 % ат.Рб воспламеняются при $350...450^\circ\text{C}$ вследствие повышенной поверхностной активности натрия при их расслаивании. Поэтому опыты с $x \leq 8\%$ ат.Рб из-за недостаточного перемешивания сплавов после замерзания непредставительны, и пока неизвестен уровень концентрации свинца в гомогенизированных сплавах, необходимый для предотвращения возгорания.

Заключение

Сделав оценки некоторых свойств сплава натрий-свинец для выбора возможного состава теплоносителя, приходим к следующим выводам:

- 1) несгорящие сплавы существуют при концентрациях свинца 10 и более % ат.;
- 2) добавки свинца в натрий сжигают теплопроводность в 2...2,5 раза;
- 3) согласно модельным оценкам молярная и объемная теплоемкости сплавов могут быть выше, чем у натрия. Для уточнения оценок нужны экспериментальные данные при $x < 0,5$ и $x > 0,5$;
- 4) растворимость кислорода в сплавах $1...5\%$ ат.Рб приблизительно в полтора раза выше, чем в натрии;
- 5) минимум термодинамического потенциала кислорода в этих сплавах смещен относительно натриевого в область низких температур, что, с одной стороны, позволяет накапливать в холодных ловушках коррозионный шлам, с другой стороны, по-видимому, ослабляет защитную окисную пленку. Коррозионных исследований не проводилось;

6) присутствие свинца в натрии усложняет технологические процедуры при использовании сплавов в качестве теплоносителей, например, требуется держать температуру выхода из холодной ловушки выше линии ликвидуса $-300\text{ }^{\circ}\text{C}$, необходима тщательная гомогенизация расплавов и т.п.;

7) введение свинца в натрий $\sim 1\%$ ат. и более согласно расчетам авторов работы [10] повышает внутреннюю самозащищенность быстрых реакторов от тяжелых аварий;

8) сплав с содержанием свинца $\sim 10\%$ ат. обеспечивает повышение пожаробезопасности установки;

9) однако прежде всего надо решить вопрос о коррозионном воздействии сплавов на конструкционные материалы и исследовать изменение термодинамического потенциала кислорода в движущемся теплоносителе.

Контактная информация – Михеев Александр Сергеевич, тел.: (48439)9-89-34, e-mail: mikheyev@ippe.ru; Логинов Николай Иванович, тел.: (48439)9-85-55, e-mail: loginov@ippe.obninsk.ru

Список литературы

1. Хансен М., Андерко К. Структура двойных сплавов. Т. 2. – М.: Металлургия, 1962.
2. Диаграммы состояния двойных металлических систем. Т. 3, кн. 1 / Под ред. акад. Н.П. Лякшова. – М.: Машиностроение, 2001.

3. Козлов Ф.А. и др. Растворимость индивидуальных веществ в натрии. Обзор ФЭИ ОБ-51. – Обнинск: ФЭИ, 1974.

4. Загорюлько Ю.И. и др. Дополнительные данные по растворимости индивидуальных веществ в натрии. Обзор ФЭИ ОБ-2412. – Обнинск: ФЭИ, 1997.

5. Hubberstey P. and Castleman A.W. Thermodynamic Properties of Solutions of Group IV Metals Dissolved in Liquid Sodium // J. of the Electrochemical Soc. 1972, v. 119, № 7, p. 963 – 966.

6. Алабышев А.Ф., Лантратов Ф.М., Морачевский А.Г. Термодинамические свойства жидких сплавов, содержащих щелочные металлы // Успехи химии, 1958. Т. XXVII. Вып. 8. – С. 921 – 937.

7. Saboungi M.L., Reijers H.T.J., Blander M., Johnson G.K. Heat capacity of some liquid Zintl compounds: Equiatomic alkali-lead alloys // J. Chem. Phys. 1988, v. 89, № 9, p. 5869 – 5875.

8. Hultgren R., Orr R.L., Anderson P.D., Kelley L.L. Selected Values of Thermodynamic Properties of Metals and Alloys. John Wiley and Sons. New-York. 1963, p. 868 – 871.

9. Теплофизические свойства материалов ядерной техники / Под ред. проф. П.Л. Крилова. 2-е изд. доп. – М.: ИздАт, 2007.

10. Кузьмин А.М., Окунев В.С. Исследование характеристик внутренней самозащищенности быстрого реактора с натриево-свинцовым охлаждением активной зоны // Изв. вузов. Ядерная энергетика, 2000, № 2. – С. 94 – 100.

Статья поступила в редакцию 25 декабря 2007 г.
Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,
с. 72 – 77.

УДК 621.039.534

Прямоконтактные парогенераторы в реакторных установках со свинцовым и свинец-висмутовым теплоносителями

А.В. Безносков, Т.А. Бокова, С.Ю. Савинов, П.А. Боков, М.Д. Зефиоров,
НГТУ им. Р.Е. Алексеева, 603950, г. Нижний Новгород, ул. Минина, 24

Рассмотрена возможность применения прямоконтактных (объемных) парогенераторов в реакторных установках со свинцовым и свинец-висмутовым теплоносителями и приведены отдельные результаты экспериментальных исследований прямоконтактного теплообмена свинцовый теплоноситель – вода, пар.

Directly contact steam generators in reactor installations with lead and lead-bismuth heat-carriers. A.V. Beznosov, T.A. Bokova, S.Yu. Savinov, P.A. Bokov, M.D. Zefirov. The opportunity of application of directly contact (volumetric) steam generators in reactor installations with lead and lead-bismuth heat-carriers is considered and separate results of experimental researches of directly contact heat exchange the lead heat-carrier – water, pairs are resulted.

Тяжелые жидкометаллические теплоносители (свинец и эвтектика свинец-висмут) – единственные из применяемых и рассматриваемых в проектных проработках теплоносителей, которые могут использоваться в парогенераторах при непосредственном контакте тепло-

носителя реакторного контура и питательной воды с генерацией пара, направляемого в турбину. В Японии прорабатывался проект реактора на быстрых нейтронах (PBWFR), охлаждаемого эвтектикой свинец-висмут, в котором генерация пара производится путем прямого

контакта впрыскиваемой питательной воды в объем теплоносителя выше активной зоны [1].

Авторами предложена конструктивная схема реакторной установки со свинцовым теплоносителем, представленная на рис. 1. Теплоноситель находится в корпусе реакторного блока и, нагреваясь в активной зоне, поступает в рабочий объем 3 секции прямоконтактного парогенератора. Питательная вода из коллектора 4 поступает через опускные трубы 5 в нижние раздающие камеры с отверстиями истечения воды в объем свинца. Подогреваясь в опускных трубах, вода частично вскипает вследствие понижения давления в каналах отверстий истечения и образует дисперсную фазу пузырей воды и пара в объеме свинца. В этих пузырях находятся капли конденсата при температуре, равной температуре насыщения при давлении в конкретной локальной точке контура свинцового теплоносителя. Капля конденсата в пузыре окружена паровой прослойкой.

При подъемном движении в рабочем объеме 3 прямоконтактного парогенератора происходит испарение капли конденсата в результате следующих процессов:

- конвективного теплообмена на границе пузыря теплоноситель-водяной пар и внутри паровой прослойки;
- передачи тепла излучением от поверхности свинца (вероятно, частично покрытой слоем примесей) к поверхности капли конденсата;

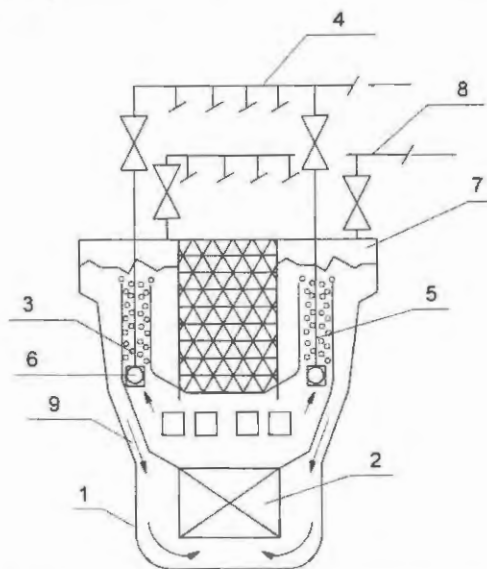


Рис. 1. Конструктивная схема реакторной установки с прямоконтактным теплообменом: 1 – корпус реакторного блока; 2 – активная зона; 3 – рабочий объем прямоконтактного парогенератора; 4 – коллектор питательной воды; 5 – опускная труба; 6 – коллектор с отверстиями истечения воды; 7 – объем паровой; 8 – коллектор паровой; 9 – опускной канал теплоносителя

- конвективного теплообмена внутри капли конденсата.

При установке в рабочем объеме интенсификаторов теплообмена и диспергаторов пузырей, например, в виде перфорированных решеток процесс теплообмена интенсифицируется. В процессе подъема пузыри увеличиваются в объеме за счет генерации пара из капли конденсата и дробятся. После полного испарения воды в пузыре пар перегревается и, сепарируясь на свободной поверхности свинца, выходит в паровой объем 7 реакторного блока, откуда отводится в паровой коллектор. Свинец опускается через канал 9 и поступает на вход в активную зону 2. Циркуляция свинцового теплоносителя в реакторном контуре осуществляется за счет разности плотностей свинца в опускном участке и смеси свинца с водопаровыми пузырями в рабочем участке прямоконтактного парогенератора, а также за счет увлечения свинца всплывающими водопаровыми пузырями.

Рассмотренная схема реакторного блока обладает следующими основными преимуществами:

1. В реакторном контуре отсутствуют поверхностные парогенераторы и соответственно исключена одна из наиболее потенциально опасных аварийных ситуаций – “межконтурная неплотность парогенератора”.

2. В реакторном контуре отсутствуют главные циркуляционные насосы или какие-либо другие циркуляторы и соответственно исключена потенциально опасная ситуация с отказом главных циркуляционных насосов. На всех режимах циркуляция в реакторном контуре осуществляется за счет естественной циркуляции ввиду разности плотностей сред в опускном и подъемном участках контура и увлечения теплоносителя всплывающими пузырями “легкой” фазы.

3. Аварийное расхолаживание установки может осуществляться за счет подачи конденсата на свободную поверхность свинца и конденсации образующегося при этом пара в воздушных теплообменниках расхолаживания.

Можно утверждать, что такая установка обладает свойствами внутренней безопасности. Наряду с этим рассматриваемая схема обладает недостатками или требует решения ряда научно-технических проблем, а именно:

1) элементы конструкций реакторного блока должны работать в области высоких температур (450...550 °С), высоких давлений (6,0...24,0 МПа) и агрессивного воздействия тяжелого жидкометаллического теплоносителя, воды, пара;

2) для обеспечения эффективного теплообмена пузыри воды, пара в объеме свинца должны иметь достаточно небольшие размеры – порядка десятков и сотен микрон;

3) в свинцовом теплоносителе в качестве примеси в реакторных условиях всегда будет присутствовать примесь висмута, из которого в нейтронном потоке активной зоны образуется биологически опасный изотоп полоний-210. Этот изотоп будет поступать в систему пара, конденсатно-питательную систему турбины и, вероятно, концентрироваться в конденсаторе паровой турбины, что существенно усложнит эксплуатацию парогенераторной установки;

4) в прямоконтактном парогенераторе реализуется спутное движение жидкометаллического теплоносителя и воды, пара (схема прямотока), что усложняет получение пара с высокой температурой. В традиционных парогенераторах поверхностного типа предусматривается схема противотока.

Несмотря на отмеченные недостатки, наличие свойств внутренней безопасности делает привлекательными такие установки и инициирует работы, направленные на решение указанных проблем.

В Нижегородском государственном техническом университете (НГТУ) проводились исследования характеристик контактного теплообмена в традиционных реакторных контурах со свинцовым и свинцово-висмутовым теплоносителями применительно к аварийной ситуации “межконтурная неплотность парогенератора”, отраженные в научно-технических отчетах и публикациях [2, 3].

В настоящее время в НГТУ на макетных образцах прямоконтактных парогенераторов проводятся исследования характеристик теплообмена, гидродинамики, отрабатываются основные элементы конструкции применительно к прямоконтактным парогенераторам реакторных установок и опреснителя морской воды. Спроектированы и созданы высокотемпературные стенды для исследования характеристик прямоконтактных парогенераторов со свинцовым и свинец-висмутовым теплоносителями.

Модифицированный стенд ФТ-31М (рис. 2) предназначен для исследования характеристик барботажной воды и пароводяной смеси через слой свинца, а стенд 2007ФТ-МО1 (рис. 3) – для теплофизических испытаний и отработки конструктивных решений ввода и дисперга-

ции воды в свинец макетного образца прямоконтактного парогенератора МО1. Стенд 2007ФТ-МО2СТ (рис. 4) предназначен для исследований процессов физико-химического взаимодействия свинцового теплоносителя с соленой (морской) водой и содержащимися в ней примесями, накопления этих продуктов при повышенных содержаниях (до 40 г/кг) в воде и коррозионного воздействия расплава свинца совместно с водой, содержащей примеси и продукты контакта свинца с примесями воды, на конструкционные материалы (стали) в составе макетного образца МО2 прямоконтактного парогенератора.

Методика проведения экспериментов на всех указанных стендах заключалась во вводе воды с температурой 20...150 °С под уровень расплава в объем свинца при температурах 350...550 °С с заглублениями отверстий истечения от 150 до 3 000 мм. Давление воды перед отверстиями истечения круглой, щелевой и трещинообразной форм с характерными размерами от 0,5 до 3,0 мм составляло от 0,2 до

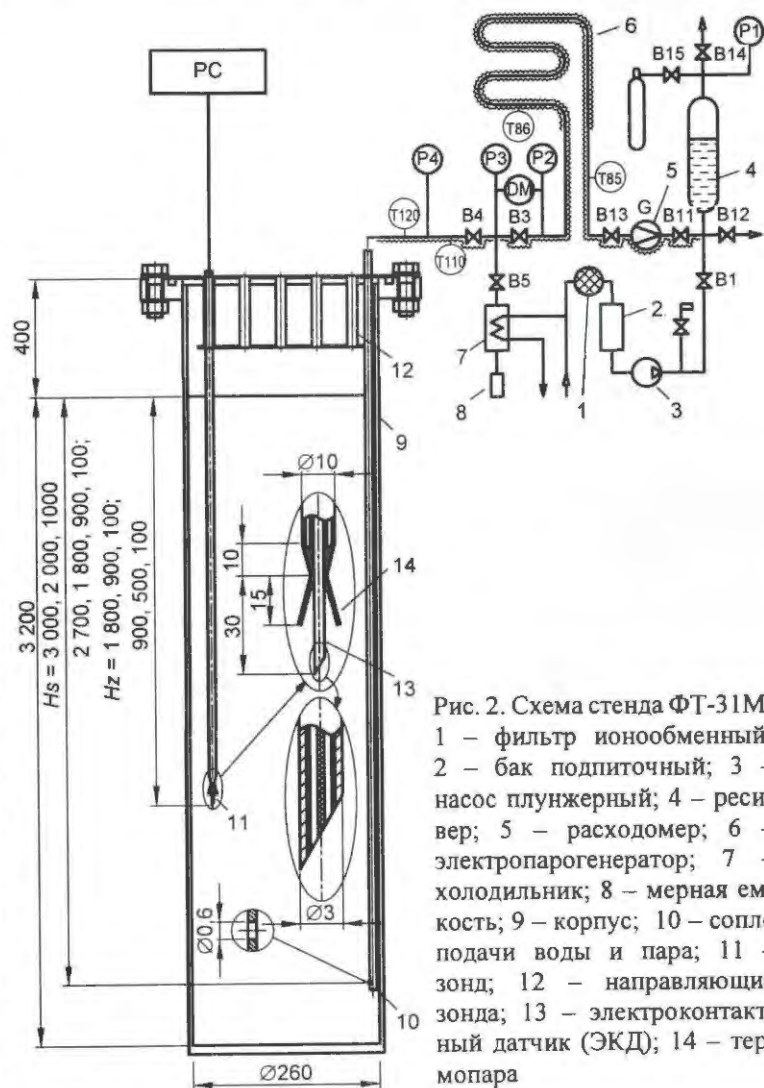


Рис. 2. Схема стенда ФТ-31М: 1 – фильтр ионообменный; 2 – бак подпиточный; 3 – насос плунжерный; 4 – ресивер; 5 – расходомер; 6 – электропарогенератор; 7 – холодильник; 8 – мерная емкость; 9 – корпус; 10 – сопло подачи воды и пара; 11 – зонд; 12 – направляющие зонда; 13 – электроконтактный датчик (ЭКД); 14 – термопара

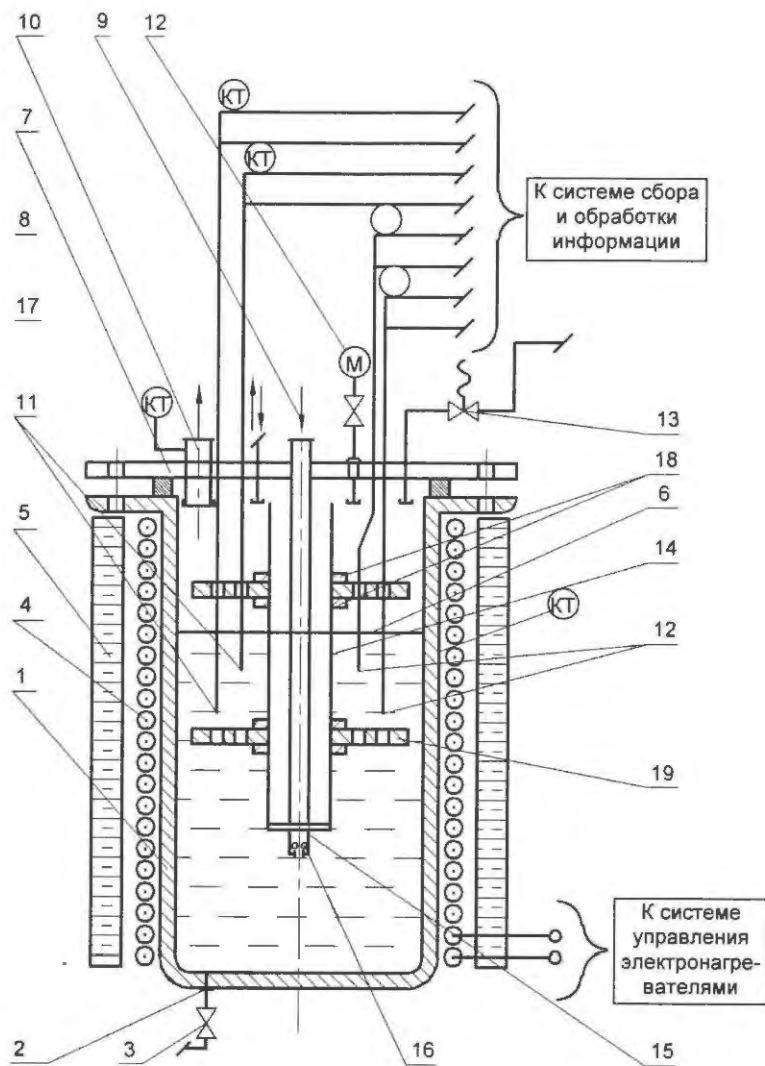


Рис. 3. Схема принципиальная макетного образца 1 (МО1): 1 – корпус; 2 – штуцер дренажный; 3 – вентиль сильфонный запорный; 4 – спираль электронагревательная; 5 – теплоизоляция; 6 – свободный уровень свинца перед подачей воды; 7 – крышка; 8 – прокладка; 9 – штуцер трубы подачи воды; 10 – штуцер трубы отвода пара; 11 – микро-термопары; 12 – ЭКД пузырей пара-воды; 13 – клапан предохранительный; 14 – труба чехловая; 15 – коллектор ввода воды в свинец; 16 – сопловые устройства (отверстия истечения) воды в свинец; 17 – лист перфорированный верхний; 18 – шайба; 19 – лист перфорированный нижний

8,0 МПа, что формировало пузырьковый или струйный (факельный) режимы истечения “легкой” фазы (воды, пара).

Варьировались режимные и конструктивные параметры. Исследовалось влияние на характеристики теплообмена наличия перфорированных листов в объеме свинца и величин заглубления отверстий истечения воды под свободный уровень расплава свинца. На макетном образце МО2 осуществлялась подача воды с повышенным содержанием солей, на других стендах – отстоявшейся водопроводной воды.

Исследования геометрии и размеров отверстий истечения воды в свинец показали, что наиболее оптимальна с

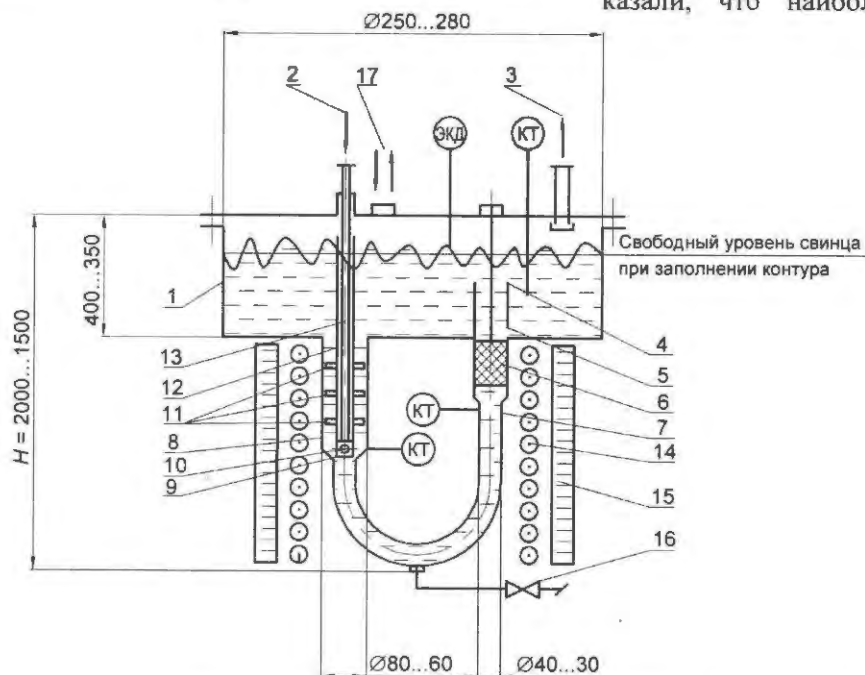


Рис. 4. Схема принципиальная макетного образца 2 (МО2): 1 – расширитель; 2 – подвод “соленой” воды; 3 – отвод пара; 4 – стакан переливной; 5 – отверстие дренажное; 6 – фильтр механический “путанка”; 7 – опускной участок; 8 – испаритель; 9 – коллектор; 10 – отверстие истечения воды; 11 – перфорированные листы ($\delta = 3$ мм, $d_{отв} = 3,0$ мм); 12 – труба чехловая; 13 – труба подвода воды; 14 – спираль электронагревательная; 15 – теплоизоляция; 16 – вентиль дренажный; 17 – штуцер газовый

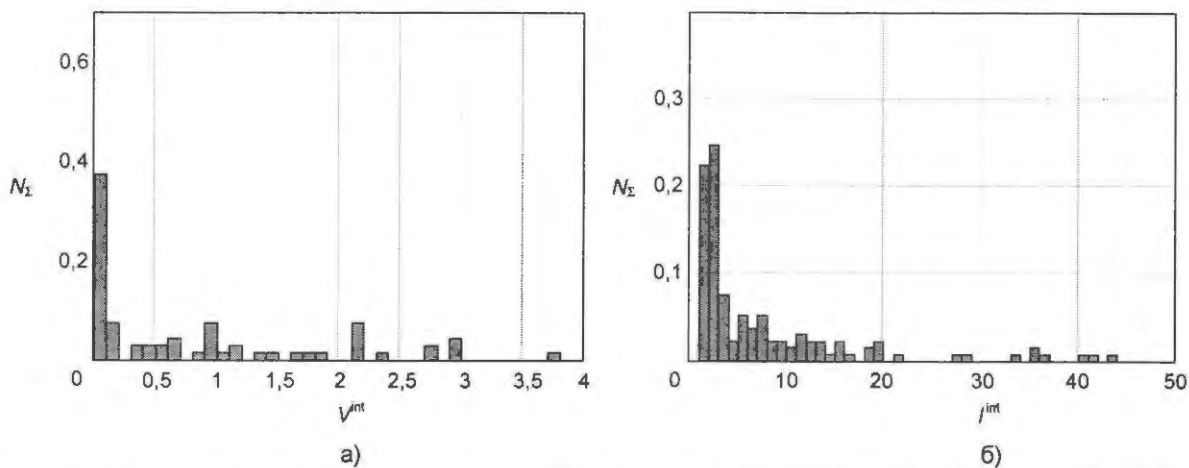


Рис. 5. Распределение вертикальных составляющих скоростей подъема пузырей воды, пара (а) и размеров пузырей (б) в свинце на макетном образце МО2 (величина заглубления ЭКД относительно свободной поверхности свинца ~530мм): условия испытаний – подача воды через насадку со щелями шириной 1,4 мм с установленными отбойными листами; заглубление насадки под свободный уровень свинца $h_c = 1\ 400$ мм; давление воды в насадке $P = 0,15$ МПа; длительность подачи воды $t = 120$ мин; расход воды $Q = 0,33$ л/час через насадку

точки зрения диспергации “легкой” фазы геометрия горизонтально ориентированных щелей и трещин. Подтверждено, что перфорированные листы, установленные на пути всплытия пузырей, способствуют дроблению пузырей и интенсифицируют теплообмен.

На рис. 5 приведено распределение размеров пузырей, зафиксированное ЭКД конструкции НГТУ, и вертикальных составляющих скоростей пузырей воды, пара.

Показано, что полного испарения капель конденсата в паровом пузыре можно достичь через ~ 400 мм высоты его подъема в составе двухкомпонентного потока свинец-вода, пар. Достижение существенного перегрева пара в пузырьках требует значительно большей продолжительности времени контакта пара в пузыре со свинцом до его сепарации на свободной поверхности последнего. На макетных образцах величина паровой нагрузки на единицу поверхности свинца, при которой фиксируются допустимые удары и вибрации, сопровождающие разрыв пузырей и не ведущие к разрушению экспериментальной установки, составляет около $0,7\ \text{м}^3/(\text{м}^2 \cdot \text{час})$.

Заключение

Использование прямоконтактного теплообмена жидкометаллического теплоносителя и

воды открывает возможность создания ядерного реактора, обладающего рядом преимуществ.

Однако имеется ряд специфических проблем, для решения которых авторами разработаны и эксплуатируются экспериментальные стенды. Представленные в работе данные проведенных экспериментов демонстрируют направление и методики исследований, а также уже полученные результаты.

Контактная информация – Бокова Татьяна Александровна, e-mail: beznosov@nntu.nnov.ru

Список литературы

1. *Безносков А.В., Дразунов Ю.Г., Рачков В.И.* Тяжелые жидкометаллические теплоносители в атомной энергетике. – М.: ИздАт, 2007.
2. *Безносков А.В., Пинаев С.С., Давыдов Д.В. и др.* Экспериментальные исследования контактного теплообмена свинцовый теплоноситель-рабочее тело // Атомная энергия, 2005, т. 98, вып. 3, с. 182 – 187.
3. *Безносков А.В., Бокова Т.А., Молодцов А.А.* Экспериментальные исследования процессов, сопровождающих межконтурную неплотность парогенератора со свинцовым и свинец-висмутовым теплоносителями, и оптимизация его конструкции // Изв. вузов. Ядерная энергетика, № 4, 2006.

Статья поступила в редакцию 04 декабря 2007 г.

Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4,
с. 77 – 81.

СОДЕРЖАНИЕ

ФИЗИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

<i>Болсунов А.А.</i> О нейтронно-физических моделях в тренажеростроении	3
---	---

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

<i>Кустова Г.П., Лычагин А.К., Макарова Т.В., Сажнов В.В., Тесаловский Н.А., Устиненко В.А.</i> Исследование взаимодействия диоксида урана с пироуглеродом в образцах микротрещин при их импульсном облучении на реакторе БИГР	10
--	----

ГИДРОДИНАМИЧЕСКИЕ, ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ И ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ЖИДКИХ МЕТАЛЛОВ В ЯЭУ

<i>Гулевский В.А., Орлов Ю.И., Ефанов А.Д., Мартынов П.Н., Левченко Ю.Д., Ульянов В.В.</i> Гидродинамические проблемы технологии ТЖМТ в РУ петлевой и моноблочной конструкций.....	15
<i>Ефимов В.Н., Привалов Ю.В., Штында Ю.Е.</i> Анализ влияния продуктов коррозии на основе сложных оксидов хрома на гидравлические сопротивления в натриевом контуре реактора БОР-60 .	34
<i>Козлов Ф.А., Алексеев В.В., Волчков Л.Г., Воробьева Т.А., Загорюлько Ю.И., Ковалев Ю.П., Козуб П.С., Сергеев Г.П.</i> Технология использования натрия как теплоносителя реакторов на быстрых нейтронах.....	41
<i>Сулим Е.В., Богданович Н.Г., Старков О.В., Кочеткова Е.А., Васильева А.Н.</i> Изучение физико-химических свойств легкоплавких сплавов в обоснование выбора экологически безопасного теплоносителя для энергетических установок.....	54
<i>Каган Д.Н., Кречетова Г.А., Шпильрайн Э.Э.</i> Методический анализ нового способа определения энергии Гиббса и экспериментальные данные о термодинамических свойствах жидкометаллических теплоносителей на основе сплавов щелочных металлов.....	64
<i>Засорин И.И., Кузнецова Л.М., Кумской В.В., Логинов Н.И., Михеев А.С., Морозов А.В., Морозов В.А., Плетенец С.С., Тихомиров А.А.</i> Исследование свойств сплава натрий-свинец с целью выбора состава пожаробезопасного теплоносителя	72
<i>Безносков А.В., Бокова Т.А., Савинов С.Ю., Боков П.А., Зефиоров М.Д.</i> Прямоконтактные парогенераторы в реакторных установках со свинцовым и свинец-висмутовым теплоносителями...	77

CONTENTS

PHYSICAL MODELLING

<i>Bolsunov A.A.</i> About neutron models for NPP training simulators.....	3
--	---

EXPERIMENTAL RESEARCHES

<i>Kustova G.P., Lychagin A.K., Makarova T.V., Sazhmov V.V., Tesalovsky N.A., Ustinenko V.A.</i> The investigation of uranium dioxide and pyrolytic carbon interaction in coated fuel particles under pulse irradiation of the BIGR reactor	10
---	----

HYDRODYNAMICAL, PHYSICAL-CHEMICAL AND TECHNOLOGICAL ASPECTS OF USE OF LIQUID METALS FOR NEW GENERATION NNP's

<i>Gulevsky V.A., Orlov Yu. I., Efanov A.D., Martynov P.N., Levchenko Yu. D., Ul'yanov V.V.</i> Hydrodynamic problems of heavy liquid metal coolant in loop-type and monoblock-type reactor installations	15
<i>Efimov V.N., Privalov Yu.V., Shtynda Yu.E.</i> The analysis of effect of corrosion based on chromium oxide compounds on hydraulic resistance in the BOR-60 sodium circuit.....	34
<i>Kozlov F.A., Alekseev V.V., Volchkov L.G., Vorob'jeva T.A., Zagorul'ko Yu.I., Kovalev Yu.P., Kozub P.S., Sergeev G.P.</i> Technology of sodium as the coolant of fast neutrons reactors.....	41
<i>Sulim E.V., Bogdanovich N.G., Starkov O.V., Kochetkova E.A., Vasil'eva A.N.</i> Research of physical and chemical properties of low-melting alloys for a choice of ecologically safe coolant of power installations.....	54
<i>Kagan D.N., Krechetova G.A., Shpil'rain E.E.</i> Analysis of a new method for determining the Gibbs energy and experimental data on thermodynamic properties of liquid-metal coolants based on alkali metal alloys.....	64
<i>Zasorin I.I., Kuznetsova L.M., Kumskey V.V., Loginov N.I., Mikheev A.S., Morozov A.V., Morozov V.A., Pletenets S.S., Tikhomirov A.A.</i> Investigation of the properties of sodium-lead system to choose the composition of fire-safety coolant	72
<i>Beznosov A.V., Bokova T.A., Savinov S.Yu., Bokov P.A., Zefirov M.D.</i> Directly contact steam generators in reactor installations with lead and lead-bismuth heat-carriers	77

Правила оформления статей

(уточненные в соответствии с требованиями ВАК 2008 г. – выделены п/ж шрифтом)

При подготовке статьи в сборник автор должен руководствоваться стандартом “Оригиналы авторские и текстовые издательские” (ОСТ 29.115 – 88). К авторским оригиналам, передаваемым для издания, предъявляются следующие требования:

1. Экземпляр статьи должен быть первым, отпечатан на одной стороне листа формата А4 шрифтом № 12 через 2 интервала. Статья должна быть составлена в следующем порядке: индекс УДК; заглавие; инициалы и фамилии авторов; место работы каждого автора с почтовым адресом; аннотация (не более 10 строк); **ключевые слова – все вышеперечисленное на русском и английском языках**; текст; список литературы; рисунки; подрисуночные подписи (на отдельном листе).

2. Статья должна также предоставляться обязательно в виде электронной версии обычным шрифтом № 11 Times New Roman, междустрочный интервал – одинарный, в редакторе Word 97 или более поздних версий. Текст не форматируется, в качестве имени файла используется ФИО первого автора статьи. Кавычки в тексте ставятся при английской раскладке клавиатуры (“.”).

3. Содержание статьи должно быть кратким и четким. Исключаются общие рассуждения, известные положения. Не допускается дублирование материала в тексте, таблицах, подрисуночных надписях. Необходимо соблюдать единообразие в написании терминов, наименований физических величин и единиц измерения, условных обозначений, сокращений, символов. Наименования и обозначения единиц физических величин необходимо приводить в системе СИ.

Необходимо обращать внимание на написание прописных и строчных букв: русские и греческие буквы (α , β , γ , ϕ и т.д.) набираются прямо, а латинские (x , y , z , w и т.д.) – курсивом. Те же требования в обозначениях нужно соблюдать при написании индексов и степеней в формулах. Обозначения матриц и векторов набираются полужирным шрифтом прямо. Формулы, включенные в текст, следует набирать без увеличения интервала между строками, например b/d , $\exp(x/e)$.

4. Таблицы нумеруются, каждая таблица должна иметь заголовок. Сокращения в графах таблицы не допускаются. В тексте необходимы ссылки на все таблицы. Таблицы печатаются в общем тексте после первой ссылки.

5. Формулы и буквенные обозначения величин должны быть размечены и сразу расшифрованы. Формулы нумеруются арабскими цифрами, номер ставится с правой стороны листа в круглых скобках. Нумеровать следует только те формулы и уравнения, на которые есть ссылка в последующем изложении. Формулы выполняются в редакторе Equation 3.0 при невозможности набора на клавиатуре

(x_n^2 , y_m^n , \sqrt{x} , $\int_0^1 x$, $\frac{1}{y}$ и т.д.). Подстрочные и надстрочные индексы вводятся с клавиатуры (x_3 , км^2 и т.д.),

греческие буквы вставляются через Меню *Вставка* → *символ*.

6. В тексте статьи рисунок обязательно представляется на отдельном листе формата не более А4. На рисунках допускается минимальное число обозначений – краткие цифровые (по порядку номеров слева направо или по часовой стрелке) или буквенные обозначения. Все пояснения выносятся в подрисуночные подписи. На обороте каждого рисунка указываются фамилии авторов, название статьи, номер рисунка, обозначения верха и низа. Внутренние надписи на рисунках набираются шрифтом № 10. Внизу каждого рисунка должны быть приведены его номер и подрисуночная подпись шрифтом № 10. При наличии нескольких различных графиков на одном рисунке каждый из них обозначается русскими буквами а), б), в) и т.д. и расшифровывается.

В компьютерном виде рисунки представляются в отдельных файлах, выполненные в графических редакторах *Paint*, *PhotoShop*, *CorelDraw* в черно-белом цвете (фотографии в растровом формате *tif*, *dpi*-300). Рисунки в Word не вставлять кроме случаев, когда рисунок изначально выполнен в Word.

7. Ссылки на литературу в тексте даются по порядку арабскими цифрами в квадратных скобках. Список литературы составляется в той же последовательности, в которой приводятся ссылки на литературу. Фамилии и инициалы авторов набираются полужирным курсивом.

8. Список литературы следует оформлять в соответствии с Государственным стандартом “Библиографическое описание документа” (ГОСТ 7. 1-2003), в частности, необходимо указать :

а) для журнальных статей – фамилии и инициалы авторов (не менее трех первых), название статьи, название журнала (без кавычек), год, том, выпуск, номер, страницы;

б) для книг – фамилии и инициалы авторов, полное название книги, место издания, издательство (без кавычек), год издания;

в) для авторефератов диссертаций – фамилию и инициалы автора, название автореферата диссертации, на соискание какой ученой степени написана диссертация, место и год защиты;

г) для препринтов – фамилии и инициалы авторов, название препринта, наименование издающей организации, шифр и номер, место и год издания;

д) для патентов – фамилии и инициалы авторов, название патента, страну, номер и класс патента, дату и год заявления и опубликования патента;

е) для отчетов – фамилии и инициалы авторов, название отчета, инвентарный №, наименование организации, год выпуска;

ж) для электронных источников – полный электронный адрес, позволяющий обратиться к публикации.

9. В конце текста перед списком литературы указывается **контактная информация о всех авторах статьи: фамилия, имя и отчество (полностью), должность, телефон, e-mail** и по желанию автора – домашний почтовый адрес.

Вниманию читателей
научно-технического сборника

“Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика ядерных реакторов”!

Редколлегия сборника “ВАНТ. Серия: Физика ядерных реакторов” информирует авторов и читателей сборника об организации со II полугодия 2007 г. подписки на “ВАНТ. Серия: Физика ядерных реакторов”. Сборник включен в Каталог “Издания органов научно-технической информации” ОАО Агентства “Роспечать” (индекс 66675, подписная цена 200 руб. за один экземпляр).

Напоминаем, что “ВАНТ. Серия: Физика ядерных реакторов” по-прежнему издается в трех выпусках: Физика и методы расчета ядерных реакторов, Динамика и безопасность ядерных энергетических установок и Импульсные реакторы и простые критические сборки.

Призываем заинтересованных специалистов поддержать активной подпиской сборник “ВАНТ. Серия: Физика ядерных реакторов”.

ВОПРОСЫ АТОМНОЙ НАУКИ И ТЕХНИКИ

С е р и я: Физика ядерных реакторов

Выпуск 4

Ответственный за выпуск **С.М. Зарицкий**

Редактор **В.В. Пчелин**

Подписано в печать 29.09.08. Формат 70×108/16
Печать офсетная. Усл. печ. л. 11,0. Уч.-изд. л. 12,5. Тираж 250. Индекс 3646. 9 статей. Заказ 60

Отпечатано в Российском научном центре "Курчатовский институт"
123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1

Индекс 3646

ISSN 0205—4671. Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, вып. 4, 1—88