

## РЕЗУЛЬТАТЫ ВЕРИФИКАЦИИ И ВАЛИДАЦИИ МОДУЛЯ OXID ИНТЕГРАЛЬНОГО КОДА ЕВКЛИД/V2 В ЧАСТИ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ МОДЕЛЕЙ ПРОЦЕССОВ В СВИНЦОВОМ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕ<sup>1</sup>

© 2022 г. В. И. Чухно<sup>а</sup>, Д. А. Назаров<sup>а</sup>, А. А. Сорокин<sup>а</sup>,  
Т. В. Сычева<sup>а</sup>, Э. В. Усов<sup>а, \*</sup>, Н. А. Мосунова<sup>а</sup>

<sup>а</sup>Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Б. Тульская ул., д. 52, Москва, 115191 Россия  
\*e-mail: usovev@gmail.com

Поступила в редакцию 31.08.2021 г.

После доработки 02.10.2021 г.

Принята к публикации 27.10.2021 г.

Представлены модели физико-химических процессов в свинцовом теплоносителе, которые в составе CFD-кода могут применяться для обоснования технологии теплоносителя, в составе интегрального кода – для описания состояния реакторной установки на момент начала моделируемого динамического режима. Описанные модели интегрированы в модуль OXID интегрального кода ЕВКЛИД/V2, разрабатываемого в ИБРАЭ РАН. Модуль OXID позволяет рассчитывать на основе двуслойной модели рост оксидной пленки в свинцовом теплоносителе на поверхности металла, который контактирует с жидким свинцом, кристаллизацию растворенных оксидов на стенках канала, образование частиц оксидов свинца (нуклеацию) в потоке теплоносителя, коагуляцию твердых частиц оксидов в свинцовом теплоносителе, осаждение частиц оксидов на стенки канала, кристаллизацию растворенных оксидов на частицах и растворение частиц оксидов в свинцовом теплоносителе, перенос образовавшихся примесей в теплоносителе. Приведена система соотношений и уравнений, позволяющих проводить моделирование указанных процессов в составе программного модуля. С помощью интеграции данного модуля в код ЕВКЛИД/V2 можно проводить связные расчеты физико-химических процессов в свинцовом теплоносителе, характерных для различных условий эксплуатации реакторной установки типа БРЕСТ-ОД-300. Для демонстрации работоспособности реализованных моделей приведены результаты верификации на основе аналитических тестов и валидации на базе экспериментальных данных по росту оксидной пленки на поверхности нержавеющей стали при разных концентрациях кислорода в свинце, полученных в АО ГНЦ РФ-ФЭИ на циркуляционном стенде СМ-2. Проведенная валидация позволила оценить погрешности вычисления отдельных важных для безопасности параметров.

**Ключевые слова:** реакторная установка, свинцовый теплоноситель, оксидная пленка, модуль OXID, интегральный код ЕВКЛИД/V2

**DOI:** 10.1134/S0040363622060029

Наиболее обоснованным к настоящему времени техническим решением для минимизации коррозии конструкционных материалов в свинцовом теплоносителе при долговременной эксплуатации реакторной установки (РУ) является активный контроль содержания кислорода в теплоносителе [1]. Технология формирования и контроля толщины оксидного слоя на поверхностях конструкционных материалов путем мониторин-

га концентрации кислорода в свинцовом теплоносителе позволяет обеспечить защиту материалов от коррозионного разрушения даже при достаточно высоких температурах теплоносителя.

В соответствии с условиями термодинамической стабильности для образования оксидов свинца требуется большая концентрация кислорода в свинце, чем для образования оксидов железа и хрома. Это обуславливает допустимые концентрации кислорода в свинце в заданном температурном диапазоне:

*верхняя граница* по концентрации кислорода должна быть такой, чтобы в контуре с теплоносителем при нормальной эксплуатации РУ не сформировались предпосылки для образования твер-

<sup>1</sup> Исследование проведено в рамках Государственного контракта № Н.4о.241.19.21.1068 от 14.04.2021 на выполнение научно-исследовательских работ “Разработка интегрированных систем кодов нового поколения для разработки и обоснования безопасности ядерных реакторов, проектирования атомных электростанций, создания технологий и объектов ядерного топливного цикла. Этап 2021–2023 годов”.

дых примесей оксидов свинца (обеспечение “чистоты” теплоносителя);

*нижняя граница* по концентрации кислорода должна обеспечить формирование защитной оксидной пленки из магнетита и шпинели на поверхности стали, способствующей коррозионной стойкости стальных конструкций.

По этой причине численное моделирование физико-химических процессов в контуре РУ требует наличия моделей для описания как динамики изменения толщины оксидной пленки на поверхности стали, так и процессов образования в потоке теплоносителя частиц оксидов, их последующего переноса и осаждения на поверхностях.

Для расчета характеристик указанных процессов в интегральном коде ЕВКЛИД/V2 [2], предназначенном для моделирования режимов нормальной эксплуатации и нарушений нормальной эксплуатации, включая аварии, АЭС с реакторными установками на быстрых нейтронах с жидкометаллическими теплоносителями типа БРЕСТ-ОД-300, реализован модуль OXID [3]. В настоящей работе приведено описание моделей, которые были внедрены в программный модуль OXID для расчета физико-химических процессов в свинцовом теплоносителе. Следует отметить, что моделирование указанных процессов в интегральном коде важно для описания состояния установки на момент начала моделируемого режима, в том числе и с учетом влияния образующихся на теплообменных поверхностях отложений на интенсивность теплообмена.

Если говорить о моделях физико-химических процессов, то самыми близкими аналогами модуля OXID в составе интегрального кода ЕВКЛИД/V2 по назначению являются код MASKA-LM (АО ГНЦ РФ-ФЭИ, Россия) [4] и модуль для расчета поведения оксидов в реакторе MYRRHA (Бельгия) [5]. Указанные коды позволяют рассчитывать физико-химические процессы в теплоносителе и на поверхности конструкционных материалов. Наиболее близкий аналог модуля OXID – модуль формирования и движения оксидов свинца MASKA-LM, разработанный в Бельгии в Ядерном исследовательском центре для обоснования безопасности проектируемого ускорителя MYRRHA с теплоносителем в виде эвтектики PbBi. В коде MASKA-LM рассматриваются:

перенос примесей кислорода и водорода вместе с потоком свинцового теплоносителя;

коррозия и окисление в теплоносителе продуктов коррозии;

образование оксидной пленки магнетита на поверхности металла и ее эрозия.

В отличие от других кодов, код ЕВКЛИД/V2 с модулем OXID позволяет взаимосвязанно моделировать перенос продуктов коррозии с образованием и переносом продуктов активации, а также образование многокомпонентных частиц оксидов. К недостаткам этого расчетного кода можно отнести использование одномерного теплогидравлического модуля, который не позволяет рассчитывать распределение кислорода и продуктов коррозии по сечению сборки.

### МОДЕЛЬ ДЛЯ РАСЧЕТА ИЗМЕНЕНИЯ ТОЛЩИНЫ ОКСИДНОЙ ПЛЕНКИ НА ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛА

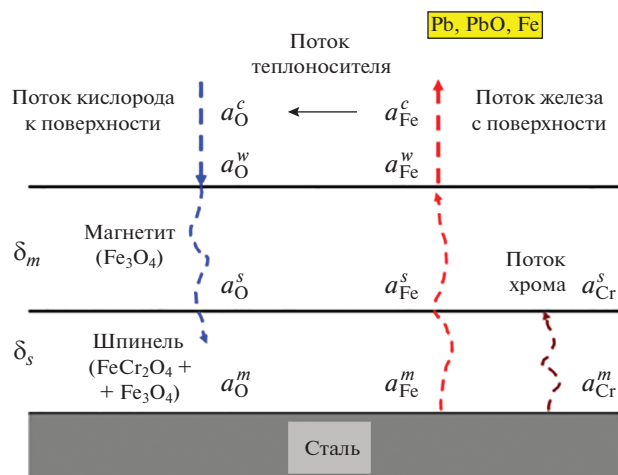
В этом разделе рассматриваются подходы к расчету образования и изменения толщины оксидной пленки на поверхности металла.

Результаты экспериментов, выполненных со свинцовым и свинцово-висмутовым теплоносителем, в условиях, характерных для проектируемых реакторных установок, показывают, что на стали образуется оксидная пленка, состоящая, как правило, из двух подслоев – магнетита и железохромистой шпинели [6–9].

Согласно данным экспериментальных исследований, верхний слой, контактирующий со свинцом, состоит из магнетита. При этом при достаточно низкой концентрации кислорода в свинце слой магнетита может отсутствовать. Так, например, для стали ЭИ-852 при концентрации кислорода в теплоносителе в терминах химической активности  $a_O^c < 0.0001$  этого слоя не наблюдается [6], а оксидный слой состоит преимущественно из шпинели.

На рис. 1 показаны основные потоки веществ и обозначения активностей кислорода, железа и хрома (нижние индексы соответственно O, Fe, Cr) на стальной поверхности, поверхностях раздела шпинель – магнетит и магнетит – теплоноситель, в объеме теплоносителя (верхние индексы соответственно  $m, s, w, c$ ). Нижний слой, состоящий из шпинели, толщиной  $\delta_s$ , является более термодинамически устойчивым, чем слой магнетита толщиной  $\delta_m$ . Как показывают результаты химического анализа, нижний слой может содержать кроме шпинели и небольшое количество магнетита  $Fe_3O_4$  [6, 8, 9].

Далее в качестве основных моделируемых динамических параметров принимаются переменная толщина слоя магнетита  $\delta_m$ , толщина слоя шпинели  $\delta_s$ , массы железа  $M_{Fe}^c$  и кислорода  $M_O^c$  в объеме теплоносителя  $V$  с площадью поверхности  $S$ , доступной для образования оксидной пленки.



**Рис. 1.** Качественная схема потоков масс в свинцовом теплоносителе при формировании оксидной пленки на поверхности стали, состоящей из двух слоев: магнетита и железохромистой шпинели

Размер слоев определяется через массу продуктов, составляющих слой магнетита  $M_m$  и  $M_s$  для внутреннего слоя шпинели:

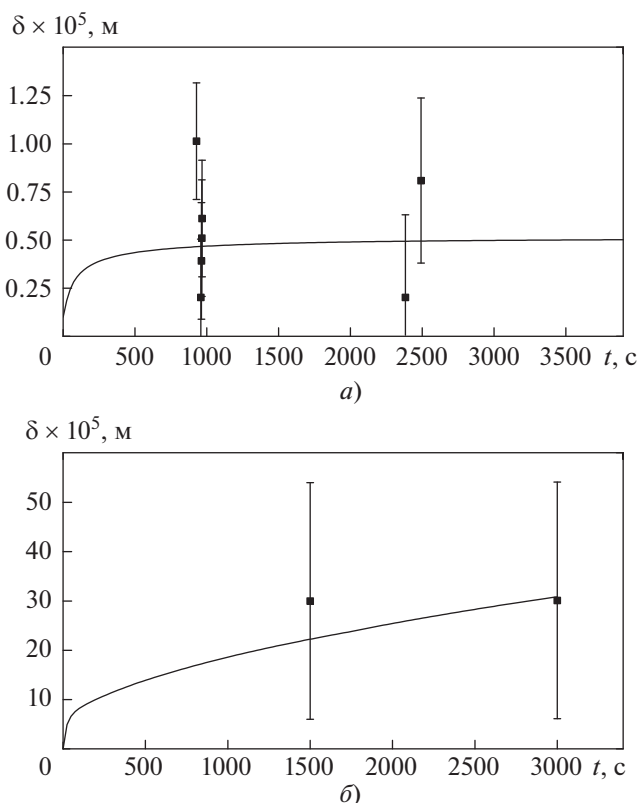
$$M_m(t) = \delta_m(t)S\rho_m; \quad M_s(t) = \delta_s(t)S\rho_s,$$

где  $t$  — время;  $\rho_m$  и  $\rho_s$  — плотности магнетита и шпинели.

Массы слоев рассчитываются на основе баланса потоков веществ, поступающих в слой и уходящих из него вследствие диффузии и эрозии. Детальное описание модели для расчета скорости изменения толщины пленок на поверхности магнетита представлено в [3].

Валидация разработанной модели выполнялась на базе длительных ресурсных стендовых испытаний в АО ГНЦ РФ-ФЭИ. Эксперименты проводились на циркуляционном стенде СМ-2 [9].

В поток свинцового теплоносителя при разных концентрациях кислорода (от  $1.5 \times 10^{-8}$  до  $5.0 \times 10^{-5}\%$ ) и при различных температурах (450–650°C) помещались макеты оболочек из стали ЭП823. Температурный диапазон экспериментов частично перекрывал диапазон рабочих температур, характерных для РУ БРЕСТ-ОД-300 (примерно от 430 до 540°C). Используемая для валидации марка стали по своему составу не отличается от марки ЭП823-Ш, которая планируется к использованию в составе РУ БРЕСТ-ОД-300. В каждом эксперименте поддерживались постоянными температура и массовая концентрация кислорода. В различных экспериментах температура



**Рис. 2.** Результаты расчета и эксперимента по росту оксидной пленки. Эксперимент: точки — среднее значение; усы — минимальное и максимальное значения. Сплошная кривая — результаты расчета. Концентрация кислорода, %: а —  $2.5 \times 10^{-6}$ ; б —  $4.0 \times 10^{-5}$

и концентрация были разными. Скорость свинца сохранялась постоянной и составляла 2 м/с, что близко к скорости свинца в РУ.

Концентрация кислорода, растворенного в расплаве Pb, определялась посредством измерения ЭДС в системе Pb–O электрохимическими датчиками активности кислорода. Содержание кислорода в теплоносителе в валидационных экспериментах находится в диапазоне, который предполагается поддерживать в РУ БРЕСТ-ОД-300: массовая доля кислорода составляет  $(1-4) \times 10^{-6}\%$  для режима нормальной эксплуатации.

Результаты расчетов зависимости средней толщины оксидной пленки от времени двух экспериментов приведены на рис. 2. Среднеарифметическая погрешность определения средней толщины пленки, рассчитываемая путем усреднения относительного отклонения экспериментальных данных от расчетных в заданные в экспериментах моменты времени, составила 30%.

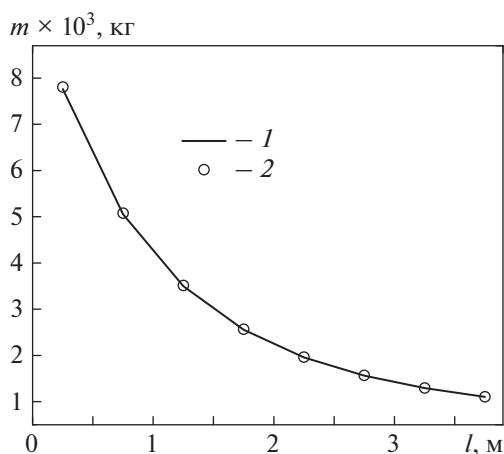


Рис. 3. Изменение по длине канала  $l$  стационарного распределения массы оксидов свинца PbO в расплаве свинца.

1 – расчет; 2 – аналитическое решение

### ОБРАЗОВАНИЕ ЧАСТИЦ ОКСИДОВ СВИНЦА (НУКЛЕАЦИЯ) В ПОТОКЕ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯ

Твердые частицы оксида в объеме свинца образуются, когда концентрация PbO в свинце становится выше концентрации насыщения при заданной температуре, т.е. при выполнении следующего условия:

$$M_{ox}(t) > M_{ox}^{sat}(T_{Pb}), \quad (1)$$

где  $M_{ox}$  – масса растворенного в объеме оксида свинца для данной ячейки;  $M_{ox}^{sat}(T_{Pb})$  – равновесная масса оксида свинца в свинце при температуре свинца  $T_{Pb}$ , которая рассчитывается по формуле

$$M_{ox}^{sat}(T_{Pb}) = X_{ox}^{sat}(T_{Pb}) \rho_{Pb} V;$$

здесь  $\rho_{Pb}$  – плотность свинца;  $V$  – объем расчетной ячейки;  $X_{ox}^{sat}(T_{Pb})$  – равновесная массовая доля оксида свинца в свинце при температуре свинца  $T_{Pb}$  [6], определяемая как

$$X_{ox}^{sat} = 10^{-2.06 - 2176/T_{Pb}}.$$

Для выполнения условия (1) моделируется образование частиц PbO в объеме свинца в приближении “мгновенной нуклеации” с переходом массы растворенного оксида свинца в текущий момент времени  $M_{ox}(t)$  к массе, соответствующей пороговому значению  $M_{ox}^{sat}(T_{Pb})$ , за один расчетный шаг по времени. Избыток массы растворенного оксида

свинца переходит в массу твердых частиц свинца минимального размера.

Для верификации представленной модели проведены расчеты аналитического теста по распределению массовой доли оксида свинца по длине канала. Рассматривалась возможность промоделировать образование частиц оксидов свинца в потоке свинцового теплоносителя при его охлаждении в трубе и последующее превышение концентрацией растворенных оксидов PbO равновесного значения при текущей температуре свинца. Задавалось распределение по длине трубы температуры свинцового теплоносителя. Массовый расход свинца на входе в канал был равен 10 кг/с. В начале канала был задан источник оксида свинца производительностью  $10^{-4}$  кг/с. Площадь поперечного сечения канала равнялась  $0.01$  м<sup>2</sup>, длина – 4 м. Температура свинца по длине трубы снижалась от 795 до 705 К. На рис. 3 показано распределение массы оксида свинца по длине канала, полученное как аналитически, так и численным расчетом. Видно очень хорошее совпадение этих данных. Среднеарифметическая относительная погрешность результатов расчетов распределения по длине канала массы растворенных оксидов свинца составила менее 0.1%.

### КОАГУЛЯЦИЯ ТВЕРДЫХ ЧАСТИЦ ОКСИДОВ СВИНЦА В СВИНЦОВОМ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕ

После появления твердых частиц оксида свинца в свинце начинается процесс их коагуляции с образованием частиц большего размера. Скорость коагуляции, обусловленной диффузией  $K_{i,j}^D$ , м<sup>3</sup>/с, при столкновении твердых частиц в жидкости рассчитывается в диффузионном приближении с учетом радиуса частиц  $r_i$ ,  $r_j$  и вязкости свинца  $\mu_{Pb}$  следующим образом:

$$K_{i,j}^D = \varphi_{ij} \frac{2k_B T_{Pb}}{3\mu_{Pb}} (r_i + r_j) \left( \frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j} \right),$$

где  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $\varphi_{ij} \leq 1$  – эффективность слипания твердых частиц в жидкости.

Для упрощения расчета коагуляции используется метод фракций, в котором массы частиц из последовательных фракций упорядочены таким образом, что отношение масс частиц из соседних фракций превышает 2:  $\alpha = m_{i+1}/m_i > 2$ , где  $i = 1, 2, \dots, N_{bin}$  ( $N_{bin}$  – число размерных фракций в расчете, задаваемое пользователем).

Таким образом, моделируется изменение со временем массы  $p$ -го компонента  $M_i^p$  во всех частицах  $i$ -й фракции для частиц дисперсной фазы в теплоносителе. Концентрация частиц  $i$ -й фракции обозначается как  $N_i$ . Масса  $p$ -го компонента в одной частице  $i$ -й фракции обозначается как  $m_i^p$ . При этом выполняются очевидные соотношения для массы одной частицы как суммы масс каждого из компонентов в составе частицы данной фракции  $m_i = \sum_p m_i^p$  и концентрации частиц  $N_i = \frac{1}{m_i} \sum_p M_i^p$ .

Система уравнений для изменения во времени массы  $M_i^p$  в частицах  $i$ -й фракции имеет вид:

$$\left. \begin{aligned} &\text{при } i = 1 \\ &\frac{dM_1^p}{dt} = -M_1^p \left( C_{1,1} K_{1,1} N_1 + \sum_{j=2}^{N_{bin}} K_{1,j} N_j \right); \\ &\text{при } i = 2, \dots, N_{bin} - 1 \\ &\frac{dM_i^p}{dt} = N_{i-1} \sum_{j=1}^{i-1} [C_{j,i-1} K_{j,i-1} N_j (m_j^p + m_{i-1}^p) V] - \\ &- M_i^p \sum_{j=1}^{N_{bin}} [C_{j,i} K_{j,i} N_j]; \\ &\text{при } i = N_{bin} \\ &\frac{dM_{N_{bin}}^p}{dt} = N_{N_{bin}-1} \sum_{j=1}^{N_{bin}-1} [C_{j,N_{bin}-1} K_{j,N_{bin}-1} N_j \times \\ &\times (m_j^p + m_{N_{bin}-1}^p) V, \end{aligned} \right\}$$

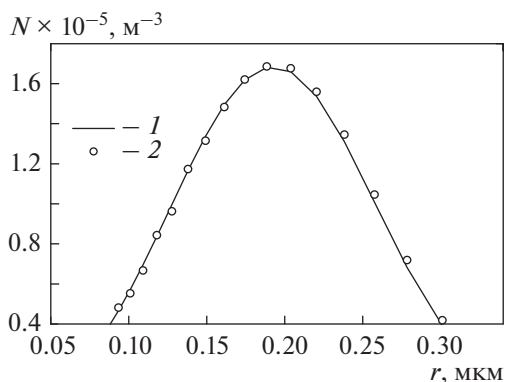


Рис. 4. Расчетное распределение концентрации частиц по размерам для времени расчета 100 с и точное аналитическое решение тестовой задачи коагуляции твердых частиц оксидов свинца в расплаве свинца с постоянной скоростью коагуляции. Обозначения см. рис. 3

где коэффициенты распределения

$$C_{j,i} = \begin{cases} j < i: & m_j / (m_{i+1} - m_i); \\ j = i: & 0.5 m_i / (m_{i+1} - m_i); \\ j > i: & 1.0. \end{cases}$$

Для верификации представленных моделей был проведен расчет аналитического теста по коагуляции частиц оксидов свинца в свинцовом теплоносителе с заданной скоростью коагуляции  $K_0 = 10^{-8} \text{ м}^3/\text{с}$ . В данном тесте рассматривалась только коагуляция в сосуде объемом  $1 \text{ м}^3$  без учета осаждения частиц оксида свинца на стенки сосуда. В тесте проверялись выполнение закона сохранения суммарной массы частиц и соответствие расчетной концентрации частиц следующему аналитическому решению:

$$n(v, t) = \frac{4N_0}{v_0(\tau + 2)^2} \exp\left[-\frac{2v}{v_0(\tau + 2)}\right],$$

где  $n$  — концентрация частиц заданного объема  $v$  в момент времени  $t$ ;  $v_0$  — начальный объем частиц;  $\tau = N_0 K_0 t$ ;  $N_0 = 10^{-8} \text{ м}^{-3}$  — начальная концентрация частиц.

На рис. 4 представлено распределение частиц по размерам в потоке теплоносителя, рассчитанное численно и аналитически. Средняя относительная погрешность расчетов для распределения концентрации частиц по фракциям составила менее 1.0%.

#### КРИСТАЛЛИЗАЦИЯ РАСТВОРЕННЫХ ОКСИДОВ СВИНЦА НА ЧАСТИЦАХ И РАСТВОРЕНИЕ ЧАСТИЦ ОКСИДОВ СВИНЦА В СВИНЦОВОМ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕ

Уменьшение размеров частиц оксидов свинца может быть связано с растворением этих частиц в потоке. Нуклеация и рост частиц вследствие кристаллизации растворенных в свинце оксидов на частицах и обратный процесс растворения частиц оксидов реализуются при следующих условиях:

$M_{ox} > M_{ox}^{sat}(T_{Pb})$  — нуклеация и кристаллизация оксидов на частицах;

$M_{ox} < M_{ox}^{sat}(T_{Pb})$  — растворение частиц оксидов в свинце.

В модели оба процесса рассматриваются динамически, т.е. с учетом конечной скорости их протекания при текущих условиях в растворе.

Для частицы изменение ее массы  $m(t)$  вследствие кристаллизации и растворения представляется уравнением баланса следующего вида:

$$\frac{dm}{dt} = \Lambda_{ox-m} \frac{S_m}{V} [M_{ox} - M_{ox}^{sat}(T_{Pb})],$$

где  $m = \rho_p \pi d^3 / 6$  – масса частицы;  $d$  – ее диаметр;  $\rho_p$  – плотность частицы;  $\Lambda_{ox-m}$  – коэффициент массообмена примеси с частицей;  $S_m = \pi d^2$  – площадь поверхности одной частицы. Для предельной концентрации растворенного оксида в теплоносителе  $M_{ox}^{sat}(T_{Pb})$  указана зависимость от температуры свинца  $T_{Pb}$ .

В диффузионном приближении для случая, когда число Шервуда  $Sh \approx 2$ , коэффициент массообмена определяется простым соотношением

$$\Lambda_{ox-m} = \frac{2D_f}{d},$$

где  $D_f$  – коэффициент диффузии примеси растворенного оксида в свинце, рассчитываемый по формуле Эйнштейна – Стокса.

В общем случае для частиц в потоке, в особенности при турбулентном течении, коэффициент массообмена вычисляется по формулам для расчета числа Шервуда, полученным в результате обработки соответствующих экспериментальных данных [7]:

$$Sh = \frac{d\Lambda_{ox-m}}{D_f} = 2 + \varepsilon Re^{1/3} Sc^{1/3},$$

где  $\varepsilon$  – корректирующий параметр;  $Re = \frac{ud}{\nu}$  – число Рейнольдса для частиц;  $u, \nu$  – скорость и кинематический коэффициент вязкости теплоносителя;  $Sc$  – число Шмидта для несущей среды.

Кристаллизация растворенного в свинце оксида на поверхности твердых частиц и обратное растворение частиц вызывают перераспределение массы оксида в дисперсной фазе между соответствующими фракциями. Например, кристаллизация оксида свинца с массой молекулы  $m$  на поверхности частиц  $i$ -й фракции с массой частиц  $m_i$  приводит к появлению частиц с массой  $m_i + m$ , которые в расчетном алгоритме должны перераспределяться между фракциями с ближайшими по массе частицами  $m_i$  и  $m_{i+1}$  (структура размерных фракций такова, что выполняются следующие условия для массы частиц во фракциях:  $m < m_i$  и  $m_{i+1}/m_i = \alpha > 1$ ).

С учетом введенных определений система уравнений для изменения массы частиц  $i$ -й фракции  $M_i$

в объеме расчетной ячейки вследствие кристаллизации растворенного оксида на частицах или растворения частиц в приближении метода фракций имеет вид:

$M_{ox} > M_{ox}^{sat}$  – кристаллизация растворенного оксида на частицах:

при  $i = 1$

$$\frac{dM_1}{dt} = -H_1 N_1 \frac{1}{\alpha - 1} (M_{ox} - M_{ox}^{sat});$$

при  $i = 2, \dots, N_{bin} - 1$

$$\frac{dM_i}{dt} = (\alpha H_{i-1} N_{i-1} - H_i N_i) \frac{1}{\alpha - 1} (M_{ox} - M_{ox}^{sat});$$

при  $i = N_{bin}$

$$\frac{dM_{N_{bin}}}{dt} = H_{N_{bin}-1} N_{N_{bin}-1} \frac{\alpha}{\alpha - 1} (M_{ox} - M_{ox}^{sat});$$

$$\frac{dM_{ox}}{dt} = -(M_{ox} - M_{ox}^{sat}) \sum_{i=1}^{N_{bin}-1} H_i N_i;$$

$M_{ox} < M_{ox}^{sat}$  – растворение частиц:

при  $i = 1$

$$\frac{dM_1}{dt} = [H_2 N_2 - (\alpha - 1) H_1 N_1] \frac{1}{\alpha - 1} (M_{ox}^{sat} - M_{ox});$$

при  $i = 2, \dots, N_{bin} - 1$

$$\frac{dM_i}{dt} = (H_{i+1} N_{i+1} - \alpha H_i N_i) \frac{1}{\alpha - 1} (M_{ox}^{sat} - M_{ox});$$

при  $i = N_{bin}$

$$\frac{dM_{N_{bin}}}{dt} = -H_i N_i \frac{\alpha}{\alpha - 1} (M_{ox}^{sat} - M_{ox});$$

$$\frac{dM_{ox}}{dt} = (M_{ox}^{sat} - M_{ox}) \sum_{i=1}^{N_{bin}} H_i N_i,$$

где  $M_i = m_i N_i V_c$  – масса всех частиц  $i$ -й фракции в объеме расчетной ячейки;  $H_i$  – скорость кристаллизации растворенной примеси оксида свинца на поверхности частиц  $i$ -й фракции,  $m^3/c$ , зависящая в общем случае от коэффициента массообмена  $\Lambda_{b,i}$  “примесь–частица” и площади поверхности частицы:

$$H_i = \Lambda_{b,i} S_i = 2\pi D_{Pb} d_i |_{Sh=2}.$$

Здесь  $D_{Pb}$  – коэффициент диффузии оксида в свинце,  $m^2/c$ ;  $d_i$  – диаметр частиц  $i$ -й фракции.

Для верификации указанных подходов рассчитывали рост частиц оксида свинца из пересыщенного раствора в замкнутом объеме  $V = 1 m^3$  при температуре  $T_{Pb} = 823 K$ . Равновесная масса оксидов в расплаве свинца при этой температуре

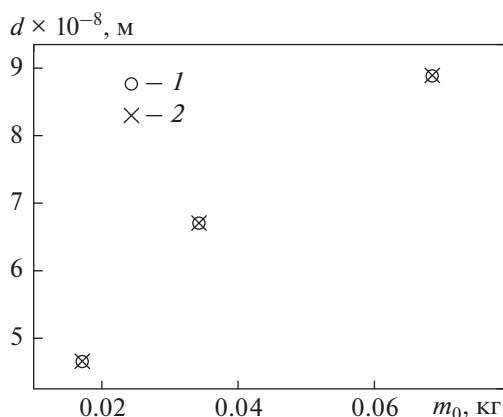


Рис. 5. Зависимость среднего диаметра частиц после достижения стационарного решения от начальной массы растворенных примесей оксидов. Обозначения см. рис. 3

составляла  $M_{ox}^{sat} = 8.53 \times 10^{-3}$  кг. Было проведено три варианта расчетов с различными начальными массами растворенных в свинце оксидов  $M_{ox}^0$  и частиц оксидов во взвешенном состоянии  $M_p^0$ :

первый вариант  $M_{ox}^0 = 2M_{ox}^{sat}$ ,  $M_p^0 = 0.01M_{ox}^{sat}$ ;

второй вариант  $M_{ox}^0 = 4M_{ox}^{sat}$ ,  $M_p^0 = 0.01M_{ox}^{sat}$ ;

третий вариант  $M_{ox}^0 = 8M_{ox}^{sat}$ ,  $M_p^0 = 0.01M_{ox}^{sat}$ .

Стационарное значение диаметра частиц взвешенных оксидов определяли по формуле

$$d = \sqrt[3]{\frac{6}{\pi N_0 V_c \rho_p} (M_p^0 + M_{ox}^0 - M_{ox}^{sat})},$$

где  $\rho_p^0$  – плотность частиц оксида, равная  $9630 \text{ кг/м}^3$ ;  $N_0 = M_p^0 / (m_0 V_c)$  – начальная концентрация частиц оксидов свинца;  $m_0 = 3.02 \times 10^{-20}$  кг – начальная масса частицы оксида.

Результаты расчета в сравнении с аналитическим решением приведены на рис. 5. Средняя относительная погрешность расчетов для среднего диаметра частиц в сравнении с аналитическим решением составила менее 1.0%.

## ВЫВОДЫ

1. Валидация модели изменения толщины оксидного слоя, образующегося на стали ЭП823, на экспериментальных данных, полученных в АО ГНЦ РФ-ФЭИ, показала, что среднеарифметическая погрешность расчета толщины оксидной пленки составляет 30%.

2. Интегральный код ЕВКЛИД/V2 с модулем OXID позволяет моделировать с удовлетворительной точностью физико-химические процессы, происходящие в свинцовом теплоносителе.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Physical–chemical principles of lead–bismuth coolant technology** / B.F. Gromov, Yu.I. Orlov, P.N. Martynov, K.D. Ivanov, V.A. Gulevsky // *Liquid Metal Systems*, N.Y.: Springer, 1995. P. 339–343. [https://doi.org/10.1007/978-1-4615-1977-5\\_37](https://doi.org/10.1007/978-1-4615-1977-5_37)
2. **Физические модели для расчета разрушений твэла и активной зоны реактора с жидкометаллическим теплоносителем, реализованные в коде ЕВКЛИД/V2** / А.А. Бутов, В.С. Жданов, И.А. Климонов, И.Г. Кудашов, А.Э. Кутлиметов, Н.А. Мосунова, А.А. Сорокин, В.Ф. Стрижов, С.А. Фролов, Э.В. Усов, В.И. Чухно // *Теплоэнергетика*. 2019. № 5. С. 5–15. <https://doi.org/10.1134/S0040363619050023>
3. **Моделирование образования оксидного слоя, коагуляции и переноса продуктов коррозии в свинцовом теплоносителе с помощью модуля OXID кода HYDRA-IBRAE/LM** / Э.В. Усов, А.А. Сорокин, В.И. Чухно, Н.А. Мосунова // *Атомная энергия*. 2017. Т. 122. Вып. 3. С. 145–149.
4. **Kumaev V., Lebezov A., Alexeev V.** Development and application of MASKA-LM code for calculation of thermal hydraulics and mass transfer of lead cooled fast reactors // *Proc. of the 11th Intern. Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics (NURETH-11)*. Avignon, France, 2–6 Oct. 2005. Paper 191. Rep. INIS-FR-3654.
5. **Experimental investigation on the oxygen cold trapping mechanism in LBE-cooled systems** / K. Gladinez, K. Rosseel, J. Lim, G. Heynderickx, A. Aerts // *Nucl. Eng. Des.* 2020. V. 364. P. 110664. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2020.110664>
6. **Zhang J., Hosemann P., Maloy S.** Models of liquid metal corrosion // *J. Nucl. Mater.* 2010. V. 404. Is. 1. P. 82–96. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.05.024>
7. **Time dependence of corrosion in steels for use in lead-alloy cooled reactors** / M. Machut, K. Sridharan, N. Li, S. Ukai, T.J. Allen // *J. Nucl. Mater.* 2007. V. 371. Is. 1–3. P. 134–144. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2007.05.009>
8. **Corrosion kinetics of steel T91 in flowing oxygen-containing lead–bismuth eutectic at 450°C** / C. Schroer, O. Wedemeyer, A. Skrypnik, J. Novotny, J. Konys // *J. Nucl. Mater.* 2012. V. 431. Is. 1–3. P. 105–112. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.11.014>
9. **Результаты исследования коррозионной стойкости оболочек твэлов из стали ЭП823 после испытаний в потоке Pb теплоносителя** / А.Е. Русанов, Г.А. Биржевой, О.Э. Левин, Г.В. Лысова, В.Н. Сугомяев, С.В. Шулепин // *Сб. докл. МНТК НИКИЭТ*. 2014. Т. 1. С. 421–432.

## Results of Verification and Validation of the Oxid Module of the EUCLID/V2 Integral Code in Part of Physicochemical Models of Processes in a Lead Coolant

V. I. Chukhno<sup>a</sup>, D. A. Nazarov<sup>a</sup>, A. A. Sorokin<sup>a</sup>, T. V. Sycheva<sup>a</sup>, E. V. Usov<sup>a, \*</sup>, and N. A. Mosunova<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Institute for Problems of Safe Development of Nuclear Power Engineering, Russian Academy of Sciences, Moscow, 115191 Russia

\*e-mail: usovev@gmail.com

**Abstract**—Models of physicochemical processes in a lead coolant, which can be used as part of the CFD code to justify the coolant technology, and as part of an integral code to describe the state of the reactor plant at the time of the start of the simulated dynamic regime are presented. The described models are integrated into the OXID module of the EUCLID/V2 integral code developed at the Institute for Problems of Safe Development of Nuclear Power Engineering, Russian Academy of Sciences. The OXID module makes it possible to calculate, on the basis of a two-layer model, the growth of an oxide film in a lead coolant on the surface of a metal that is in contact with liquid lead, the crystallization of dissolved oxides on the channel walls, the formation of lead oxide particles (nucleation) in a coolant flow, the coagulation of solid oxide particles in a lead coolant, the deposition of oxide particles on the channel walls, the crystallization of dissolved oxides on particles and dissolution of oxide particles in the lead coolant, and the transfer of formed impurities in the coolant. A system of relationships and equations is given that allows modeling of these processes as part of a software module. By integrating this module into the EUCLID/V2 code, it is possible to carry out connected calculations of physical and chemical processes in a lead coolant, which are typical for various operating conditions of a BREST-OD-300 reactor plant. To demonstrate the performance of the implemented models, the results of verification based on analytical tests and validation based on experimental data on the growth of an oxide film on the surface of stainless steel at different concentrations of oxygen in lead, obtained at the AO SRC RF-IPPE on the CM-2 circulation stand, are presented. The validation made it possible to estimate the errors in the calculation of individual parameters important for safety.

*Keywords:* reactor plant, lead coolant, oxide film, OXID module, integral code EUCLID/V2