

# 低碳钢表面氧化效应对加热面朝下 CHF 的影响\*

叶伟杰<sup>1</sup>, 李松蔚<sup>2</sup>, 王来顺<sup>1</sup>, 吴帅<sup>1</sup>, 李孝佳<sup>1</sup>, 鄢炳火<sup>1</sup>

1. 中山大学中法核工程与技术学院, 广东 珠海 519082

2. 中国核动力研究设计院, 四川 成都 610213

**摘要:** 先进压水堆压力容器下封头采用材料为低碳钢 SA508, 其表面容易氧化, 可能对堆内熔融物滞留 (IVR, in-vessel retention) 策略临界热流密度 (CHF, critical heat flux) 产生显著影响, 从而影响该策略安全余量。针对这一问题, 本文首先研究了低碳钢 SA508 不同程度表面氧化对加热面朝下 CHF 的影响, 其次研究了在低碳钢表面氧化情况下纳米流体强化 CHF 效果。结果发现, 低碳钢 SA508 表面氧化对加热面朝下池式沸腾 CHF 具有显著影响, 随着氧化程度的加深, CHF 快速增长并最终达到稳定, 表面完全氧化情况下 CHF 稳定值是表面轻微氧化情况下的 2 倍左右; 将完全氧化低碳钢表面放入纳米流体中进行沸腾实验, 发现纳米流体可以继续提高完全氧化表面 CHF 但效果大幅减弱, CHF 增强原因在于表面纳米颗粒沉积层具有很强的吸水性。

**关键词:** IVR (in-vessel retention) 策略; 表面氧化; 纳米流体; CHF (critical heat flux) 增强效应

**中图分类号:** TL334 **文献标志码:** A **文章编号:** 2097-0137 (2023) 04-0102-06

## The influence of surface oxidation effect of low-carbon steel on downward-facing CHF

YE Weijie<sup>1</sup>, LI Songwei<sup>2</sup>, WANG Laishun<sup>1</sup>, WU Shuai<sup>1</sup>, LI Xiaojia<sup>1</sup>, YAN Binghuo<sup>1</sup>

1. Sino-French Institute of Nuclear Engineering and Technology, Sun Yat-sen University, Zhuhai 519082, China

2. Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610213, China

**Abstract:** The material used for the lower head of the advanced pressurized water reactor pressure vessel is low-carbon steel SA508. The surface of SA508 is easy to oxidize, which may have a significant impact on the Critical Heat Flux (CHF) of the In-Vessel Retention (IVR) strategy, thus affecting the safety margin of the strategy. In this study, the influence of the different degrees of surface oxidation on CHF of low-carbon steel SA508 was first investigated through experiments. Then the CHF enhancement effect of nanofluid was studied under the condition of surface oxidation of low-carbon steel. It was found that the surface oxidation of low-carbon steel SA508 significantly affected the CHF in downward-facing pool boiling. With the deepening of the oxidation degree, CHF increased rapidly and finally reached stability. The stability value of CHF under complete surface oxidation was about two times that under slight surface oxidation. Boiling experiments were carried out on the surface of fully oxidized low-carbon steel in a nanofluid. It was found that the nanofluid could continue to increase the CHF of the fully oxidized surface, but the effect was significantly reduced. The increase in CHF was due to the water absorption ability of the surface nano-particle deposition layer. The results may

\* 收稿日期: 2022-09-07

录用日期: 2022-12-13

网络首发日期: 2023-01-30

基金项目: 国防基础科研计划项目 (HT-WDZC-02-2020003)

作者简介: 叶伟杰 (1997 年生), 男; 研究方向: 核反应堆热工水力; E-mail: yewj9@mail2.sysu.edu.cn

通信作者: 王来顺 (1990 年生), 男; 研究方向: 核反应堆热工水力; E-mail: wanglaish@mail.sysu.edu.cn

help determine the actual safety margin of IVR and which is the effective enhancement method.

**Key words:** IVR(in-vessel retention) strategy; surface oxidation; nanofluids; CHF(critical heat flux) enhancement effect

为防止出现堆芯熔融物泄露事故, 第3代核电厂 AP1000 等采用堆芯熔融物滞留(IVR, in-vessel retention)策略建立自然循环的方式来冷却压力容器下封头, 使堆芯在熔毁事故下保持完整性。当高温的堆芯熔融物滞留在压力容器下封头内时, 其外表面热流密度会迅速提升, 当热流密度达到临界热流密度(CHF, critical heat flux)时, 沸腾现象会从核态沸腾变为膜态沸腾, 表面的温度会迅速升高 1 000 °C 左右, 从而导致压力容器烧毁。为提升 CHF, 国内外学者进行了许多研究, 发现使用纳米流体是最有效的方式之一。许多研究发现, 纳米颗粒会在金属表面沉积和粘附, 这改善了表面的润湿性(Kim et al., 2007; Ciloglu et al., 2015; Kamel et al., 2018; Fang et al., 2016)。在纳米颗粒的大表面积、小体积效应和其他独特性质的帮助下, 表面的传热系数(HTC, heat transfer coefficient)和 CHF 有望显著提高(Sheikholeslami et al., 2014; Rao et al., 2014; Sheikholeslami et al., 2017; Christensen et al., 2019)。

然而, 大多数关于纳米流体增强 CHF 的相关研究所使用的金属表面为铜或不锈钢, 而反应堆压力容器使用的金属材料为低碳钢 SA508, 这是一种易氧化材料。Lee et al.(2012)发现, 低碳钢表面在水中池沸腾时会形成一层  $Fe_3O_4$  氧化层, 改善了表面的润湿性, 增强了 CHF。随着沸腾时间增加, 氧化程度随之增加。Mei et al.(2018)在实验中发现 SA508 的 CHF 值随着表面氧化而逐渐增加, 由于氧化作用, 低碳钢表面的 CHF 要高于 Cu 表面。一些学者还发现, 在流动沸腾时, 低碳钢表面会发生氧化, 形成  $Fe_3O_4$  氧化层, 氧化层改善表面润湿性, 增加 CHF(Chang et al., 2017; Trojer et al., 2018)。

目前对低碳钢表面氧化对加热面朝下情况 CHF 影响研究较少, 有必要深入研究低碳钢表面不同程度表面氧化对加热面朝下 CHF 的影响。此外, 国内外学者主要单独研究低碳钢表面的氧化效应或者纳米流体增强 CHF 效应, 并没有将两者结合起来。由于表面氧化也会改变表面润湿性等特性, 因此在表面氧化情况下, 纳米流体增强 CHF 的效果可能会发生改变。

针对以上问题, 本文首先研究了低碳钢 SA508 表面在不同沸腾时间下, 表面不同氧化程度对加热面朝下情况 CHF 影响。此外, 通过使用带有氧化层的低碳钢表面在纳米流体进行沸腾实验, 与无氧化表面情况进行对比, 探究纳米流体对已经完全氧化低碳钢表面的 CHF 增强效果。

## 1 实验设备

在 IVR 策略实施时, 冷却水是在压力容器下封头外部流动, 处于常压状态, 采用自然循环冷却, 因此流速很低, 在下封头底部接近池沸腾。本研究采用常压下池沸腾实验工况, 与 IVR 策略实际情况较为接近。设计并加工了一个加热面朝下池沸腾实验装置, 如图 1 所示。主要包括带 2 个加热棒的透明水箱、实验头、变压器数据采集系统等。水箱由外水箱和内水箱组成, 低碳钢表面位于内部水箱的底部, 水箱底部加热棒使水维持在饱和沸腾温度; 压力容器下封头外表面为  $0^\circ \sim 90^\circ$  朝下倾角的连续面, 完全模拟所有角度较为困难, 因此本实验通过调整水箱支架一端的高度, 使加热面向下并与水平面倾角为  $15^\circ$ , 研究在  $15^\circ$  倾斜角下的表面氧化等因素对 CHF 影响。

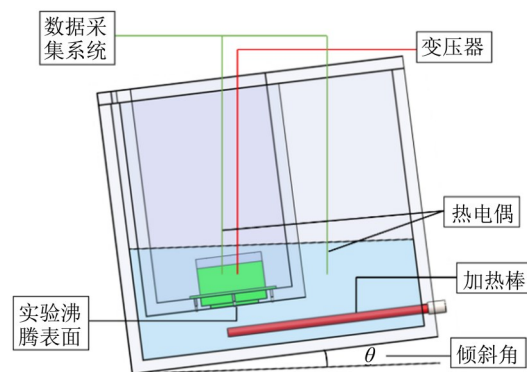


图 1 池沸腾实验装置示意图

Fig. 1 Diagram of pool boiling experimental device

图 2 显示了实验头的结构。由于低碳钢的导热系数为  $40 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$  左右, 如果加热块全为低碳钢, 温度会超过  $350^\circ\text{C}$ , 如此高温会导致实验头密封胶熔化。铜具有良好的导热性能, 因此通过银焊将低碳钢 SA508 板焊接到铜块上, 避免实验头温度过高。沸腾面为  $25 \text{ mm}\times 25 \text{ mm}$ 。在铜块上钻了 9

个孔并插入小电加热棒用于加热实验头,使低碳钢表面在水中沸腾。沿铜块下部中心线安装3根精度为0.75%的K型热电偶,热电偶直径为0.8 mm。每个热电偶之间的距离为3 mm。底部热电偶与铜块底面距离1 mm,银焊层厚度0.2 mm,低碳钢SA508层厚度1 mm。保温层采用耐高温的聚醚醚酮(PEEK)材料,该材料的导热率为0.25 W/(m·K),绝热效果好,在实验过程中,3根热电偶温度线性分布,符合单向导热规律,横向散热量很少,因此可以忽略横向导热。

实验使用了阶梯式的加热方式预测CHF发生。每次升高功率后,待热电偶温度稳定一段时间后,再次提高功率。根据每种材料的导热系数和厚度,低碳钢表面的热流密度 $q$ (MW/m<sup>2</sup>)和壁面温度 $T_{\text{wall}}$ (温度范围为110~135℃)可以通过傅里叶导热定律进行计算,计算公式如下

$$q = \frac{(T_3 - T_1)}{\left(\frac{\delta_{1-3}}{k_{\text{Cu}}}\right)}, \quad (1)$$

$$T_{\text{wall}} = T_1 - q \left( \frac{\delta_{\text{Cu}}}{k_{\text{Cu}}} + \frac{\delta_{\text{Ag}}}{k_{\text{Ag}}} + \frac{\delta_{\text{Fe}}}{k_{\text{Fe}}} \right), \quad (2)$$

式中 $T_1$ ,  $T_3$ 是铜块上的热电偶的温度, K;  $\delta_{1-3}$ 是从热电偶1到热电偶3之间的距离, m;  $\delta_{\text{Cu}}$ 是从铜块中选定热电偶 $T_1$ 到银焊料的距离, m;  $k_{\text{Cu}}$ 是铜块的导热系数, W/(m·K);  $\delta_{\text{Fe}}$ 为低碳钢层的厚度, m;  $k_{\text{Fe}}$ 是低碳钢SA508的导热系数, W/(m·K);  $\delta_{\text{Ag}}$ 为银焊层厚度, m;  $k_{\text{Ag}}$ 是银的导热系数, W/(m·K)。

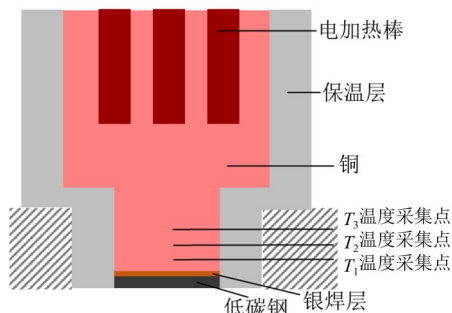


图2 实验头结构示意图

Fig. 2 Diagram of the experimental head structure

实验时,首先将水槽中的水加热至饱和温度。之后,用砂纸和丙酮清洁低碳钢表面实验头并安装在水箱上。通过调整变压器加热电压,实验头的加热功率将阶梯式逐步增加,每一步都让热电偶的温度维持稳定一段时间。通过调整每个步骤

的稳定时间,可以控制达到CHF的时间。当加热功率较大时,功率增幅会减小,确保实验数据越贴近真实的CHF值。当3个热电偶的温度突然骤升时,说明此时表面到达了CHF,此时最后一个热电偶温度稳定阶段所计算的热流密度则为临界热流密度值 $q_{\text{CHF}}$ 。

## 2 低碳钢表面氧化对CHF影响

使用相同的实验头,在15°倾斜角下,进行了低碳钢表面在去离子水中开始加热到CHF发生时间分别为20、30、60、180和300 min的沸腾实验,探究低碳钢表面不同的沸腾时间对氧化效果及CHF的影响。每次实验后,采用砂纸、丙酮等清洗干净实验表面后,进行下一次实验。图3显示了CHF值随沸腾时间的增加而变化。随着沸腾时间增加,CHF值一开始会迅速增大,之后趋于稳定,到180 min后基本不再变化。沸腾的时间为20 min时,CHF值为0.358 MW/m<sup>2</sup>,当沸腾时间增加为30 min时,CHF值相比20 min的结果增加了36%;沸腾时间为180和300 min的CHF值相比20 min均增加了120%左右。

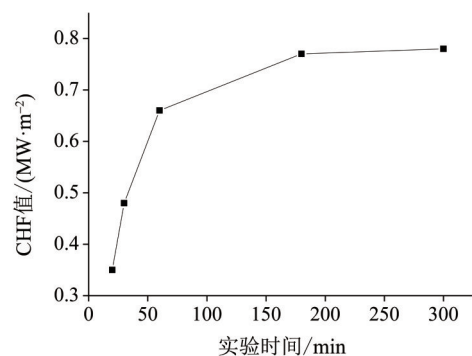


图3 CHF值随沸腾时间变化图

Fig. 3 CHF changes with boiling time

图4为4个不同沸腾时间的表面,可以看出随着沸腾时间增加,低碳钢表面快速氧化,沸腾时间180 min的表面与沸腾时间为300 min的表面类似,均被 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 氧化层完全覆盖,此时,CHF值随着沸腾时间的继续增加不再增加。

相关研究发现金属表面润湿性是影响金属表面吸水性的的重要因素。金属表面的润湿性可以通过液滴接触角来表示。接触角越小,润湿性越强,池式沸腾CHF越高(Wang et al., 2022a)。图5为5个不同沸腾时间后的低碳钢表面和干净低碳钢表面接触角测量结果。随着沸腾时间增加,接触角逐渐减小,并且在180 min后基本不再变化。

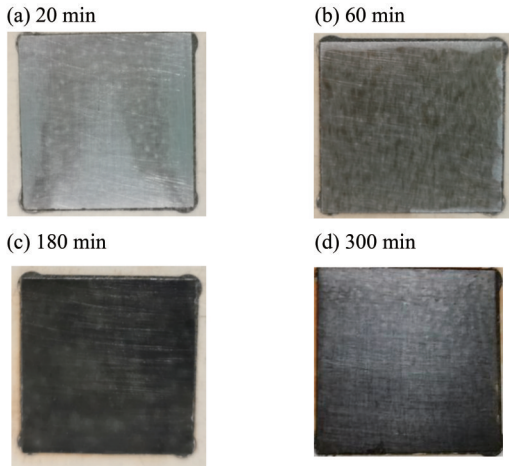


图 4 不同沸腾时间实验后低碳钢表面图  
Fig. 4 Surface diagram of low-carbon steel after different boiling time test

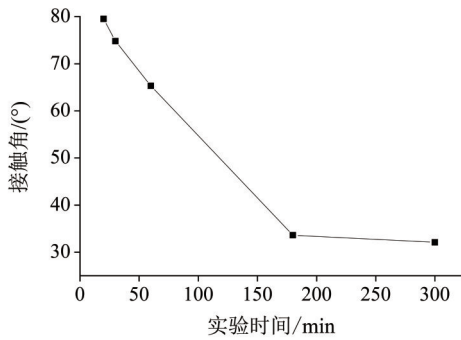
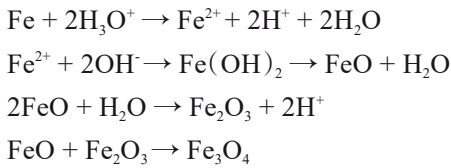


图 5 不同沸腾时间的表面接触角  
Fig. 5 Surface contact angle at different boiling time

低碳钢表面在水中的氧化方程式如下:



随着氧化时间的增加, 低碳钢表面会形成 FeO 和 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 氧化层, 并且在这两者中间会形成 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 层。随着沸腾时间的增加, 外层的 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 会脱落, 使 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 层与水接触。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 是一层磁铁矿纳米颗粒, 可以增强表面的润湿性。

Liao et al.(2008)根据实验结果提出了金属表面的 CHF 与表面润湿性和倾斜角之间的关系式

$$\begin{aligned} q_{\text{CHF}}'' &= 0.131 \left[ -0.73 + \frac{1.73}{1 + 10^{-0.021 \times (185.4 - \theta)}} \right] \\ &\times \left[ 1 + \frac{55 - \alpha}{100} (0.56 - 0.0013\theta) \right] \\ &\times h_{\text{fg}} \rho_g \left[ \sigma g (\rho_l - \rho_g) / \rho_g^2 \right]^{0.25}, \end{aligned} \quad (3)$$

式中  $q_{\text{CHF}}''$  是热流密度 (W/m<sup>2</sup>),  $h_{\text{fg}}$  是液体的蒸汽潜

热 (J/kg),  $\rho_g$  是气体密度 (kg/m<sup>3</sup>),  $\rho_l$  是液体密度 (kg/m<sup>3</sup>),  $g$  是重力加速度 (m/s<sup>2</sup>),  $\alpha$  是接触角 (°),  $\theta$  是加热角度 (°),  $\sigma$  是液体蒸汽表面张力 (N/m)。

该公式是在铜表面分别采用不同的涂层改变表面的接触角, 开展不同表面倾斜角和接触角的 CHF 实验。图 6 为实验值与公式计算值的 CHF 对比图。与本文实验结果相比, 该公式的计算 CHF 值随接触角变化的趋势比较平缓。在高表面润湿性情况下计算值比本实验值要低, 在低表面润湿性情况下计算值比本实验值要高。

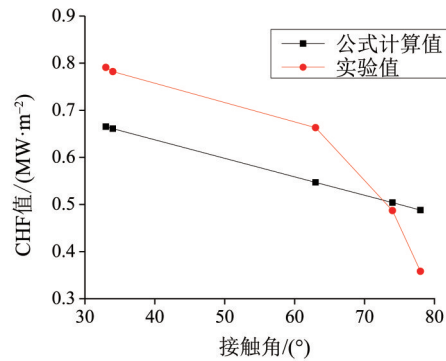


图 6 实验 CHF 值与公式计算 CHF 值对比图  
Fig. 6 Comparison diagram of experimental CHF value and formula calculated CHF value

### 3 纳米流体对氧化后表面 CHF 影响

为探究纳米流体对完全氧化的低碳钢表面的 CHF 增强效果, 采用相同实验头, 分别使用经过 180 min 沸腾氧化的低碳钢表面和干净低碳钢表面在纳米流体中, 开展了 15° 倾斜角的 CHF 实验。由 Wang et al.(2022b) 的实验结果可得, 低碳钢表面在纳米流体中沸腾时, 无论沸腾时间长或短, CHF 值都十分稳定。因此, 两次实验沸腾时间均选择为 30 min。本次实验所使用的纳米颗粒为 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 直径为 30 nm, 密度为 3.5 g/cm<sup>3</sup>。实验使用的是质量分数为 0.5% 的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米流体溶液。实验前先将去离子水加热至饱和状态, 然后将纳米颗粒倒入水中搅拌均匀, 最后把低碳钢表面放入纳米流体中开始沸腾实验。

图 7 为 15° 倾斜角下的干净表面和完全氧化表面的沸腾曲线。可以看出, 干净表面在纳米流体中的 CHF 值为 0.925 MW/m<sup>2</sup>, 而氧化后的表面在纳米流体中的 CHF 值为 0.945 MW/m<sup>2</sup>, 两者仅相差 2.16%。说明在纳米流体中, 无论低碳钢表面是否氧化, 最终 CHF 值接近。低碳钢表面在水中沸腾 180 min 时的 CHF 值为 0.782 MW/m<sup>2</sup>, 在纳米流

体中 CHF 值比其在水中高了 20% 左右, 说明虽然低碳钢氧化可以提高 CHF, 但是纳米流体对氧化后的低碳钢表面依然具有 CHF 增强效果, 只是增强效果大幅减弱。

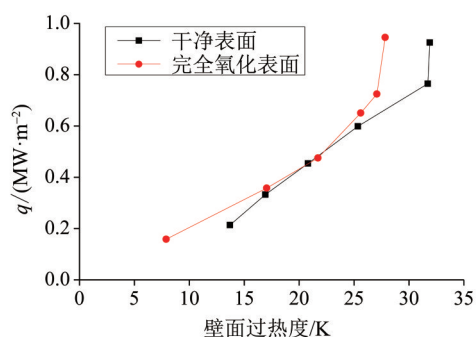


图7 干净表面与氧化后表面在纳米流体中的沸腾曲线

Fig. 7 Boiling curve of clean surface and oxidized surface in nanofluids

图8为干净表面和氧化后表面在纳米流体中进行沸腾实验后的表面。可看出表面均覆盖着一层纳米颗粒堆积层, 具有多孔特性。用光学显微镜对两个表面进行观察, 发现两者的纳米颗粒分布和厚度十分接近。图9为干净表面在纳米流体进行沸腾实验后在光学显微镜下放大2 000倍后的表面图, 可以看到表面纳米颗粒层的厚度约为6~8  $\mu\text{m}$  带有  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  氧化层表面在纳米流体进行沸腾实验后的表面与之相似。

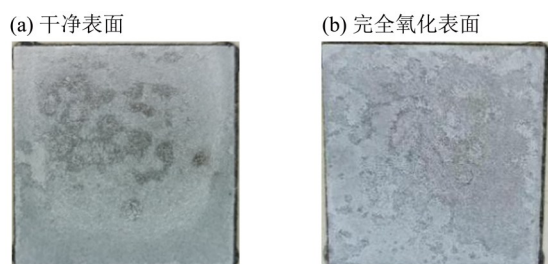


图8 纳米流体沸腾后的低碳钢表面图

Fig. 8 Surface of low-carbon steel after nanofluids boiling

对两个沉积有纳米颗粒的表面分别进行润湿角测量, 发现水滴在表面迅速摊平, 无法进行测量。图10为带有纳米颗粒表面在不同时刻的吸水图, 水滴在5 ms以内迅速被吸收摊平, 在150 ms后几乎不再变化。这证明纳米颗粒沉积后的表面具有强烈吸水效应。

由以上可以看出, 纳米颗粒会较均匀地沉积附着在干净的低碳钢表面和带有  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  氧化层的表面上, 形成具有多孔特性表面。多孔表面具有的

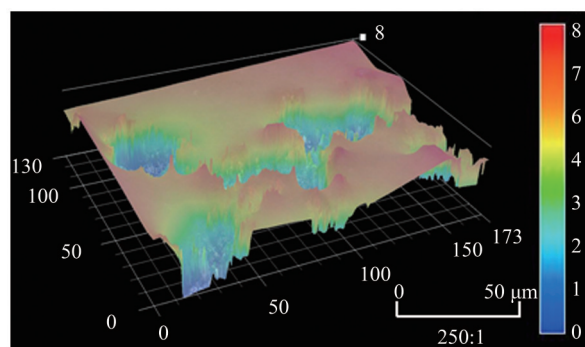


图9 干净表面放大后纳米颗粒分布图

Fig. 9 Distribution map of nanoparticles on clean surface after magnification

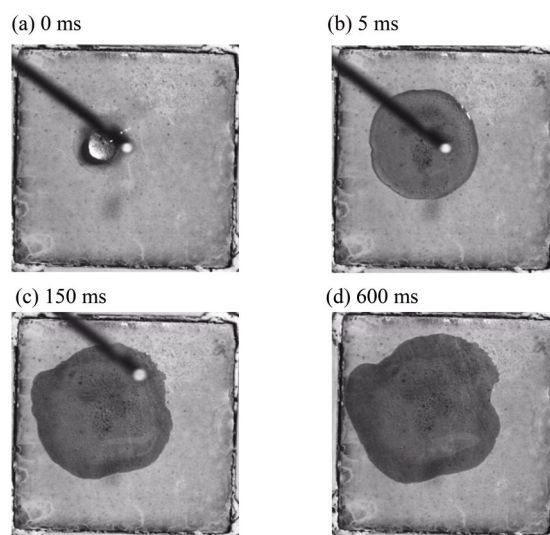


图10 带有纳米颗粒沉积表面不同时刻吸水图

Fig. 10 Water absorption diagram of the surface with nano particles at different times

毛细芯吸作用可以帮助液体补充到拥挤气泡下的区域, 增加 CHF (Kim et al., 2007)。使用公式(3)进行 CHF 计算, 可以得出在表面接触角为  $0^\circ$  时 CHF 值为  $0.741 \text{ MW/m}^2$ , 比低碳钢表面在纳米流体中 CHF 实验结果低 19.8%。原因是纳米流体具有很强的吸水作用, 因此润湿效果高于  $0^\circ$  接触角时。纳米颗粒沉积层对润湿性的增强程度大于  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  氧化层, 原因是纳米流体对 CHF 的增强程度大于氧化低碳钢表面。

## 4 结 论

本文研究了压力容器下封头材料低碳钢 SA508 表面不同氧化程度对加热面朝下情况 CHF 的影响及在表面氧化情况下纳米流体增强 CHF 的效果。并通过表面特性改变分析影响 CHF 原因。得出以下结论:

1) 在去离子水进行不同的沸腾时间实验中,随着沸腾时间增加,CHF值先增大后趋于稳定,180 min的表面CHF值比20 min提高118.4%。

2) 在去离子水实验中,随着沸腾时间增大,低碳钢SA508表面的氧化程度先迅速增加,之后趋于稳定,表面的接触角变化趋势相同。表面氧化增强了润湿性,从而提高了CHF。

3) 已经完全氧化的低碳钢表面和干净的低碳

钢表面在纳米流体中进行较短时间沸腾实验时,CHF结果非常接近,但比在去离子水中表面完全氧化情况下的CHF高20%左右。纳米流体对完全氧化的低碳钢表面CHF依然有增强效果,但增强效果大幅减弱。

4) 纳米颗粒的沉积使得低碳钢表面具有吸水性,可以帮助液体补充到加热表面,从而提高加热面朝下时的CHF。

#### 参考文献:

- CHANG H, HU T, LU W, et al, 2017. Experimental study on CHF using a full scale 2-D curved test section with additives and SA508 heater for IVR-ERVC strategy [J]. *Exp Therm Fluid Sci*, 84: 1-9.
- CHRISTENSEN G, YOUNES H, HONG H, et al, 2019. Nanofluids as media for high capacity anodes of lithium-ion battery—a review[J]. *J Nanofluids*, 8(4): 657-670.
- CILOGLU D, BOLUKBASI A, et al, 2015. A comprehensive review on pool boiling of nanofluids [J]. *Appl Therm Eng*, 84: 45-63.
- FANG X, CHEN Y, ZHANG H, et al, 2016. Heat transfer and critical heat flux of nanofluid boiling: A comprehensive review [J]. *Renew Sustain Energy Rev*, 62: 924-940.
- KAMEL M S, LEZSOVITS F, HUSSEIN A M, et al, 2018. Latest developments in boiling critical heat flux using nanofluids: A concise review[J]. *Int Commun Heat Mass Transf*, 98: 59-66.
- KIM S J, BANG I C, BUONGIORNO J, et al, 2007. Surface wettability change during pool boiling of nanofluids and its effect on critical heat flux[J]. *Int J Heat Mass Transf*, 50(19/20): 4105-4116.
- LEE J, CHANG S H, 2012. An experimental study on CHF in pool boiling system with SA508 test heater under atmospheric pressure[J]. *Nucl Eng Des*, 250: 720-724.
- LIAO L, BAO R, LIU Z, 2008. Compositive effects of orientation and contact angle on critical heat flux in pool boiling of water [J]. *Heat Mass Transfer*, 44 (12) : 1447-1453.
- MEI Y, SHAO Y, GONG S, et al, 2018. Effects of surface orientation and heater material on heat transfer coefficient and critical heat flux of nucleate boiling [J]. *Int J Heat Mass Transf*, 121: 632-640.
- SHEIKHOLESAMI M, ROKNI HB., 2017. Nanofluid two phase model analysis in existence of induced magnetic field [J]. *Int J Heat Mass Transf*, 107: 288-299.
- SHEIKHOLESAMI M, HATAMI M, GANJI D D, 2014. Nanofluid flow and heat transfer in a rotating system in the presence of a magnetic field [J]. *J Mol Liq*, 190: 112-120.
- RAO S S, SRIVASTAVA A, 2014. Interferometry-based whole field investigation of heat transfer characteristics of dilute nanofluids [J]. *Int J Heat Mass Transf*, 79: 166-175.
- TROJER M, AZIZIAN R, PARAS J, et al, 2018. A margin missed: The effect of surface oxidation on CHF enhancement in IVR accident scenarios [J]. *Nucl Eng Des*, 335: 140-150.
- WANG X, DANI F, JUAN G, et al, 2022a. Effect of wettability on pool boiling heat transfer with copper microporous coated surface [J]. *Int J Heat Mass Transf*, 194:388-398.
- WANG L, YE W, HE X, et al, 2022b. Experimental study on the CHF enhancement effect of nanofluids on the oxidized low carbon steel surface [J]. *Appl Therm Eng*, 204: 117968.

(责任编辑 张冰)