

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

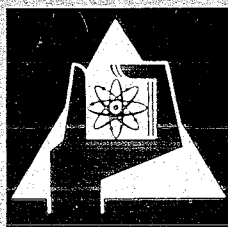
August 1969

KFK 1048
EUR 4312 d

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Abschalten eines schnellen natriumgekühlten Reaktors mit
neutronenabsorbierenden Zusätzen zum Kühlmittel

S. Dorner, K. Schroeter



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

August 1969

KFK-1048
EUR-4312d

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Abschalten eines schnellen natriumgekühlten Reaktors mit neutronenabsorbierenden Zusätzen zum Kühlmittel *

von

Stefan Dorner

Klaus Schroeter

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

* Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe, auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.

Inhalt

1. Einleitung
2. Auswahl der Zusätze
3. Eigenschaften der Natrium-Lithium-Legierung
 - 3.1 Na-Li-Zustandsdiagramm
 - 3.2 Korrosives Verhalten
 - 3.3 Trennungsmöglichkeiten
4. Berechnung der Abschaltreaktivitäten bei Li 6-Zusätzen zum Natrium

5. Schlußfolgerungen

1. Einleitung

Bei dem Betrieb eines Reaktors können Umstände eintreten, bei denen das Abschalten eines Reaktors mit festen Abschaltstäben unmöglich wird. Ein plötzlicher Druckaufbau, z.B. durch Verdampfen von Kühlmittel, kann dazu führen, daß die sechseckigen Subassemblykästen (Referenzstudie Na1 / 1_7) sozusagen aufgeblasen werden. Wenn sich dieser Vorgang in der Nachbarschaft von Abschaltkanälen ereignet, kann es geschehen, daß sich die festen Abschaltstäbe nicht mehr in die "Abschaltkanäle" einführen lassen, weil sich deren Querschnitte erheblich verengt haben.

Aber auch ein durch andere Ursachen bedingtes gleichzeitiges Verklemmen oder Nichtfunktionieren aller Abschaltstäbe muß bei Sicherheitsüberlegungen beachtet werden.

Für solche Fälle, bei denen also schon mit einer Verformung des Cores zu rechnen ist, sind sicherlich Abschaltvorrichtungen von großem Nutzen, die an keine festen geometrischen Formen gebunden sind.

Man müßte also absorbierende Substanzen in Form von Gasen, Aerosolen, Flüssigkeiten oder Suspensionen benutzen. Es scheint zweckmäßig, diese Zusätze zusammen mit dem Kühlmittel in die Corezone des Reaktors zu bringen.

Für schnelle Brutreaktoren ist flüssiges Natrium ein mögliches bzw. vielversprechendes Kühlmittel. Aufgabe der folgenden Betrachtungen wird es sein, ein oder auch mehrere mögliche Zusätze zum Natrium aufzufinden, die die Eigenschaft haben, den Reaktor abzuschalten. Ein großer Teil der Überlegungen kann natürlich, wie schon angedeutet, auch auf andere Reaktor-Kühlsysteme übertragen werden.

2. Auswahl der Zusätze

Folgende Absorberzusätze zum Natrium sind denkbar:

- a) Im Natrium nicht lösliche Substanzen in Form von feinverteilten Suspensionen
- b) In Natrium lösliche Salze
- c) Mit Natrium mischbare Metalle

Für die Punkte a) und b) lassen sich unmittelbar keine brauchbaren Substanzen angeben. Deshalb soll hier zunächst nur Punkt c) betrachtet werden.

An ein mit Natrium mischbares Metall, daß den Multiplikationsfaktor des Reaktorsystems verkleinern soll, werden folgende Forderungen gestellt:

1. Hoher Neutronenabsorptionsquerschnitt
2. Niedriger Schmelzpunkt - hoher Siedepunkt
3. Hohe spezifische Wärme
4. Nicht korrosiv gegen Kreislaufwerkstoffe
5. Geringe Kosten
6. Leicht mischbar mit Natrium
7. Leichte Entfernung aus dem Kreislauf.

Metalle mit einem Schmelzpunkt höher als 650°C scheiden von vornherein aus, da sie vom Gesichtspunkt der technischen Anwendung wenig zweckmäßig erscheinen.

Von den Metallen mit niedrigem Schmelzpunkt haben folgende Metalle einen bedeutend höheren Absorptionsquerschnitt als Natrium.

| Metall | σ_{th} [μbarn] | $\sigma(100 \text{ keV})$ [μmb] | Schmelzpunkt [$^{\circ}\text{C}$] | Siedepunkt [$^{\circ}\text{C}$] |
|--------|---------------------------------------|---|--|--------------------------------------|
| Li | 71 | 1000 | 179 | 1317 |
| Rb | 0,73 | 50 ⁺ | 38,5 | 700 |
| Cs | 29,0 | 220 ⁺ | 28,5 | 670 |
| Ga | 2,8 | 96 | 29,9 | 1983 |
| In | 196 | 380 | 156,4 | 2000 \pm 10 |
| Tl | 3,4 | 24 | 303 | 1457 |
| Sn | 0,625 | 45 | 231 | 2270 |
| Sb | 5,7 | 180 | 630,5 | 1380 |
| Hg | 380 | 60 | -38,9 | 357 |
| Na | 0,536 | 1,1 | 97,8 | 881 |

Tab.1 Absorptionsquerschnitte einiger Metalle mit niedrigem Schmelzpunkt (+ bei 400 keV) [3]

Der steile Anstieg der Liquidskurve (infolge intermetallischer Verbindungen) macht die Verwendung von Ga, In (?), Sn und Sb unmöglich, Abbildung 1, Übersichtsbild der Zustandsdiagramme [27].

Das stark korrosive Verhalten der Metalle Sn, Ga und In legt einem nahe, diese Metalle nicht zu verwenden. Hg scheidet wegen seines niedrigen Siedepunktes und das Tl wegen seiner relativ schwachen Neutronenabsorption aus.

Die Alkalimetalle Li, Rb und Cs scheinen für unsere Zwecke besonders geeignet, Abb. 2,3 und 4. Jedoch sind die Metalle Rb und Cs sehr teuer (16.000 DM/kg) und in größeren Mengen nicht zu erhalten, so daß für unsere Betrachtung nur das Lithium übrig bleibt.

3. Eigenschaften der Natrium-Lithium-Legierung

Tabelle 2 enthält einige physikalische Daten des Lithiums und des Natriums [3,4,7].

| Physikalische Eigenschaft | Lithium | Natrium |
|--|---------|---------|
| Atomgewicht | 6,94 | 22,991 |
| Schmelzpunkt, °C | 186,0 | 97,5 |
| Siedepunkt, °C | 1336±5 | 880,0 |
| Verdampfungswärme, cal/g | 4680 | 1005 |
| Dichte, g/cm ³ , bei 20°C | 0,534 | 0,97 |
| 100°C | | 0,886 |
| 200°C | 0,507 | |
| 250°C | | 0,850 |
| 400°C | 0,490 | 0,814 |
| 600°C | 0,474 | |
| 700°C | | 0,742 |
| 1000°C | 0,441 | |
| Spez. Wärme, $\frac{\text{cal}}{\text{g} \cdot ^\circ\text{C}}$ bei 100° | | 0,3305 |
| 200° | 1,0 | 0,3200 |
| 600° | 1,0 | 0,2998 |
| Wärmeleitfähigkeit, $\frac{\text{cal}}{\text{sec} \cdot \text{cm} \cdot ^\circ\text{C}}$ bei 200°C | 0,09 | 0,1947 |
| Oberflächenspannung, dyn/cm ² bei 250°C | | 199,5 |
| Volumänderung beim Schmelzen % d. fest. Phase | 1,5 | 2,5 |

Tab. 2 Einige physikalische Daten des Lithiums und Natriums

Hervorzuheben ist der hohe Siedepunkt, die hohe Verdampfungswärme und die hohe spez. Wärme des Lithiums im Vergleich mit Natrium.

Physikalische Daten von Natrium-Lithium-Legierungen sind in der Literatur nicht zu finden, jedoch an Hand einfacher Formeln, in die nur die Eigenschaften der reinen Materialien eingehen, lassen sich die Größen

| Material | Teilchenzahlkonzentrationen / 10^{-24} cm^{-3} | | | |
|----------|--|------------|---------------|---------------|
| | Corezone 1 | Corezone 2 | Blanketzone 1 | Blanketzone 2 |
| C | 5.3874/-5 | 5.3874/-5 | 6.4869/-5 | 6.7617/-5 |
| Cr | 3.8035/-3 | 3.8035/-3 | 4.5798/-3 | 4.7738/-3 |
| Fe | 7.4531/-3 | 7.4531/-3 | 8.9742/-3 | 9.3544/-3 |
| Ni | 5.1380/-3 | 5.1380/-3 | 6.1866/-3 | 6.4487/-3 |
| Na | 1.0960/-2 | 1.0960/-2 | 6.5762/-3 | 5.4801/-3 |
| O 16 | 1.3443/-2 | 1.3468/-2 | 2.0426/-2 | 0. |
| Pu 239 | 6.6697/-4 | 9.5141/-4 | 0. | 0. |
| Pu 240 | 3.1760/-4 | 4.5305/-4 | 0. | 0. |
| Pu 241 | 5.2934/-5 | 7.5509/-5 | 0. | 0. |
| Pu 242 | 2.1174/-5 | 3.0204/-5 | 0. | 0. |
| U 238 | 5.6626/-3 | 5.2239/-3 | 1.0213/-2 | 2.4037/-2 |

Tab. 3 Teilchenzahlkonzentrationen der einzelnen Zonen des betrachteten Reaktors



Dampfdruck, Dichte und spez. Wärme als Funktion der Temperatur berechnen. Die Eigenschaften der Legierungen liegen jedoch immer echt zwischen denen der reinen Materialien.

3.1 Na-Li-Zustandsdiagramm

Aus dem Na-Li-Zustandsdiagramm (abb. 4) ist zu ersehen, daß selbst im ungünstigsten Fall (70 - 60 At.% Li) schon eine Temperatur von 380°C genügt, um eine homogene Lösung zu gewährleisten. Wie aus Abschnitt 4. folgen wird, liefern bereits 10 At.% Li eine hinreichend große Abschaltreaktivität. In diesem Konzentrationsbereich erreicht man schon bei 150°C eine vollständige Vermischung. Diese Temperatur ist verglichen mit den Auslegungstemperaturen der Referenzstudie "Na1" (430°C Eintritts- und 580°C Austrittstemperatur) bei weitem ausreichend.

3.2 Korrosives Verhalten

Das korrosive Verhalten des Lithium gegenüber Strukturmaterialien spielt für den hier betrachteten Verwendungszweck nur eine untergeordnete Rolle, da die Verweilzeit des Lithiums im eigentlichen Reaktorsystem nur klein ist.

Darüber hinaus ist bekannt, daß reines Lithium als Kühlmittel in Reaktoren Verwendung findet, was bedeutet, daß Korrosionsprobleme nicht gravierend sind. Aus der Literatur [3,7] ist zu ersehen, daß reines Lithium in seinen Korrosionseigenschaften dem Natrium und dem Kalium sehr ähnlich ist, nur bei manchen Materialien zeigt sich eine größere Aggressivität [5,6,7,7].

Natrium-Lithium-Legierungen mit derart geringem Lithium-Prozentsatz werden vermutlich ein Korrosionsverhalten haben, das hauptsächlich durch die Eigenschaften des Natriums bestimmt ist.

3.3 Trennungsmöglichkeiten

Nach einem Notabschalten sollte man das neutronenabsorbierende Li aus dem Kühlmittel Na wieder entfernen können.

Das Zustandsdiagramm gibt einen Hinweis für ein mögliches Trennungsvorgehen einer Na-Li-Legierung in ihre Bestandteile. Bei langsamer

Abkühlung der Na-Li-Schmelze müßte sich das höher schmelzende und spezifisch leichtere Li über der Na-Schmelze ansammeln und erstarren und sich demzufolge leicht abfiltern lassen. Um Li-Reste aus der Na-Schmelze (siehe Zustandsdiagramm, Abb. 4) zu entfernen, bedarf es chemischer Prozesse. In der Literatur finden sich bereits Hinweise für die Trennung des K von Lithium [7]. Dabei wird die Schmelze bei 700 bis 800°C mit Wasserstoff behandelt. Bei dieser Temperatur reagiert Lithium mit H₂, dagegen destilliert K ohne Reaktion ab. Das zurückbleibende Lithiumhydrid kann bei 1000°C zersetzt werden [8].

Ein ähnlicher Prozeß bietet sich für die Trennung des Li vom Na an, wobei eine Behandlung der Schmelze mit Stickstoff erfolgen müßte. Stickstoff reagiert bekanntlich mit Lithium, dagegen nicht mit Natrium. Zur Trennung des Lithiumnitrides (Li₃N) vom Natrium könnten die in jedem natriumgekühlten Reaktor vorhandenen Kühlfallen benutzt werden.

4. Berechnung der Abschaltreaktivitäten bei Li 6-Zusätzen zum Natrium

Diesen Berechnungen wurde ein kugelförmiger Zweizonencore-Reaktor zugrunde gelegt, der in seiner Zusammensetzung und Größe dem Referenz-Reaktor "Na1" nahekommt.

Hier einige Daten dieses Kugelförmigen Zweizonencore-Reaktors

| | |
|---|---------|
| Äußerer Radius der Corezone 1: | 80,6 cm |
| Äußerer Radius der Corezone 2: | 98,6 cm |
| Dicke des gesamten Blankets: | 40 cm |
| davon innen 10 cm mit U ²³⁸ O ₂ -Brutstoff | |
| und außen 30 cm mit U ²³⁸ -Metall-Brutstoff | |
| Kühlmittelanteil $\alpha_{\text{Core}} = 0,5$, $\alpha_{\text{Blanket}} = 0,3$ | |

Eine Zusammenstellung aller Teilchenzahlkonzentrationen findet man in Tabelle 3.

Für die Rechnung wurde das Multigruppendiffusions-Programm von Sanitz [9] und der effektive 26-Gruppensatz von Abagian, Bondarenko et al. [10] verwendet.

Tabelle 4 und Abb. 5 zeigen die Ergebnisse.

| Vol. % | | Teilchenzahlen (Core) / 10^{-24} cm^{-3} | | k_{eff} | Δk_{eff} | $\rho\%$ |
|--------|-----|---|-----------|------------------|-------------------------|----------|
| Na | Li6 | Na | Li6 | | | |
| 100 | 0 | 1.0960/-2 | 0. | 1.0118 | | |
| 95 | 5 | 1.0412/-2 | 0.1202/-2 | 0.8538 | - 0.158 | - 15.62 |
| 90 | 10 | 0.9864/-2 | 0.2403/-2 | 0.7536 | - 0.2582 | - 25.52 |

Tab. 4 k_{eff} in Abhängigkeit von der Menge des dem Natrium zugefügten Li 6

Diese Ergebnisse zeigen, daß schon ein einprozentiger Volumenanteil Li 6 am Kühlmittel Natrium die beachtliche Abschaltreaktivität von ca. 3% liefert.

Der Primärkreislauf der Referenzstudie "Na1" nimmt ca. 400 m³ Natrium auf. Um den Reaktor sicher abzuschalten, benötigt man also nur 4 m³ Li 6 (1,92 to).

5. Schlußfolgerungen

- 1.) Es sind Umstände denkbar, bei denen ein neutronenabsorbierender Zusatz zum Kühlmittel die einzige Möglichkeit darstellt, einen schnellen Reaktor abzuschalten.
Von dieser Möglichkeit sollte man nur in Notfällen Gebrauch machen.
- 2.) Bei schnellen Reaktoren mit Natriumkühlung erscheint Li im hohen Maße brauchbar.
- 3.) Die technische Anwendung bzw. Ausführung scheint wenig problematisch.
- 4.) Besonders hohe Absorptionsquerschnitte hat nur das Li 6, das zu 7,4% in natürlichem Li enthalten ist. Um bei kleinen Li-Volumenanteilen große Abschaltreaktivitäten zu erhalten, mußte man Li 6-angereichertes Lithium benutzen.

5.) Für definierte Aussagen über das Verhalten von Natrium-Lithium-Legierungen werden noch experimentelle Untersuchungen angestellt, wie die Ermittlung

- a) der Durchmischungsgeschwindigkeit,
- b) des Korrosionsverhaltens und
- c) der Trennung von Na und Li.

Literatur

1_7

W. Häfele, D. Smidt, K. Wirtz

"The Karlsruhe Reference Design of a 1000 MWe Sodium-Cooled Fast Breeder Reactor", ANL-7120, Argonne, 1965

und

D. Smidt, A. Müller, et al.

"Referenzstudie für den 1000 MWe natriumgekühlten schnellen Brutreaktor (Na1)", KFK-299, Dez. 1964

2_7

M. Hansen und K. Anderko

"Constitution of binary alloys", McGraw-Hill Book Company, Inc., 1958

3_7

K. Kummerer

"Selection of liquid metals in reactor technology", Atomkernenergie 9 (1964) 159

4_7

K.-H. Spiller

"Physikalisch-thermische Eigenschaften von Na-, K- und NaK-Legierungen im Temperaturbereich zwischen Siedepunkt und etwa 1300°C", EUR 357d, 1963

5_7

V.S. Liashenko, V.V. Zotov, V.E. Andrew, M.D. Abramovitch und V.J. Ivanov

"On the corrosion resistance of some materials in sodium and lithium," A/Conference 15/P/2194 - USSR - Genf 24.7.1958

6_7

J.R. DiStefano und E.E. Hoffmann

"Relation between oxygen distribution and corrosion in some refractory metal-lithium systems", CN 13123, International Conference on the Corrosion of Reactor Materials, IAEA - Salzburg - 4.-9. Juni 1962

7_7

C.R. Tripton Jr.,

"Reactor Handbook - Materials-", Interscience Publishers, Inc. New York, 1960, S. 1005

78_7

N.V. Sidgwick

"The Chemical Elements and their Compounds", Oxford University Press, London 1950

79_7

W. Höbel, H. Kraetsch, D. Sanitz

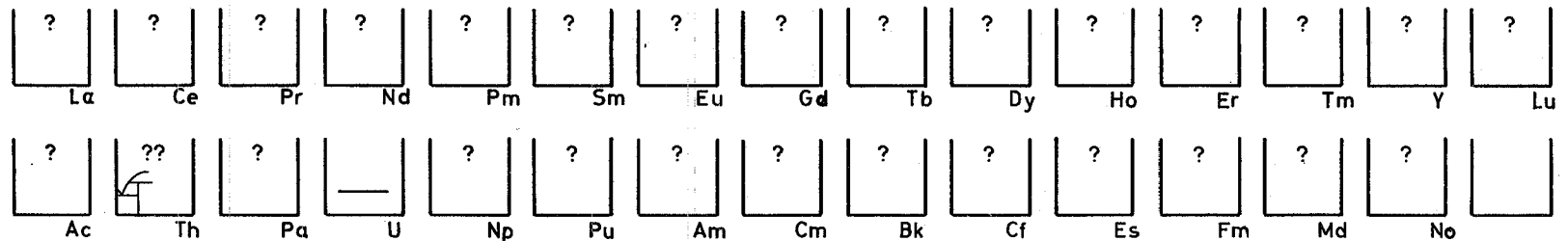
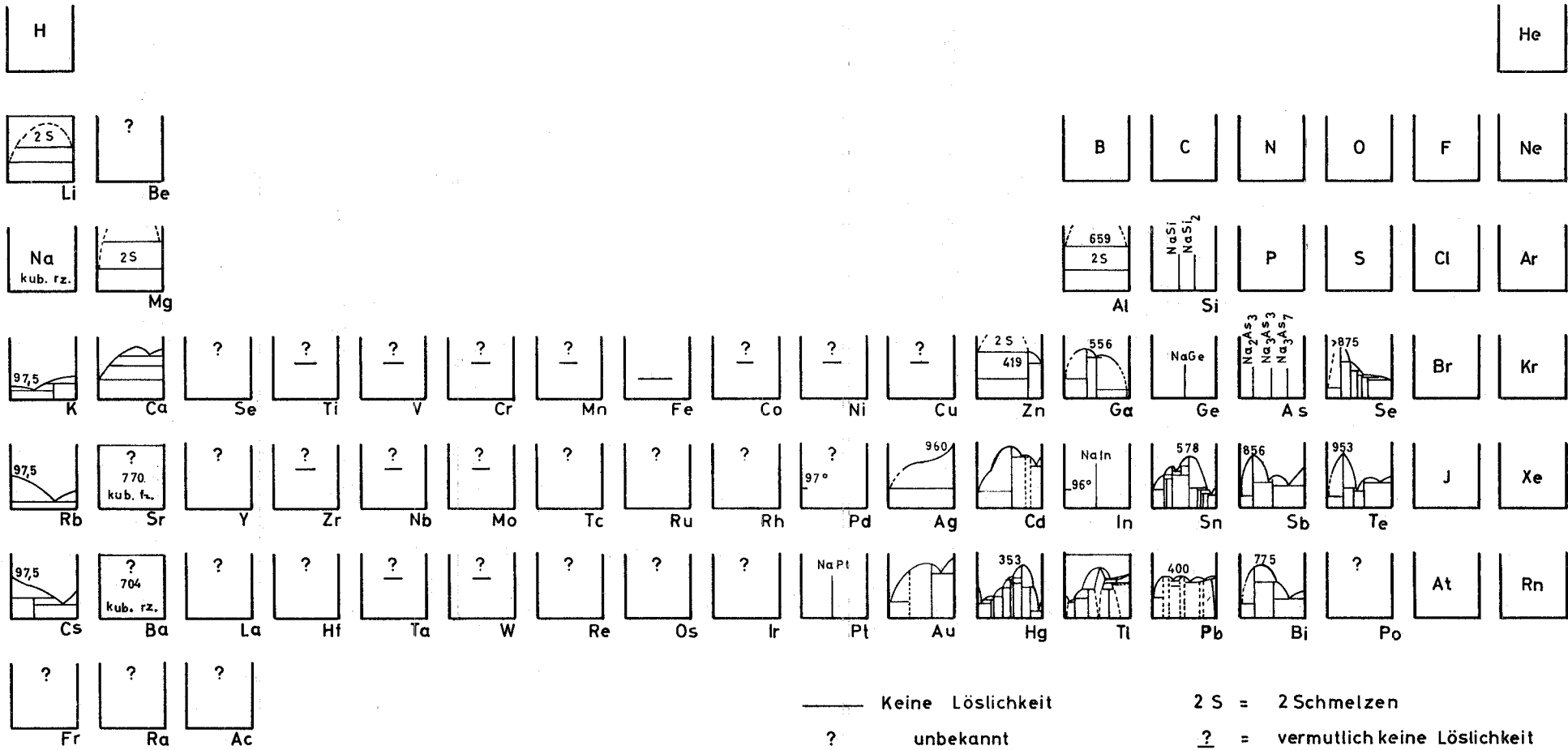
"Das Karlsruher Nuklear-Programm-System NUSYS", interner Bericht, 1966

710_7

L.P. Abagjan, N.D. Banazjanc, I.I. Bondarenko, M.N. Nikolaev,

"Gruppenkonstanten schneller und intermediärer Neutronen für die Berechnung von Kernreaktoren", Moskau 1964 und KFK-tr-144

Abbildung 1 Zweistoffsysteme mit Natrium



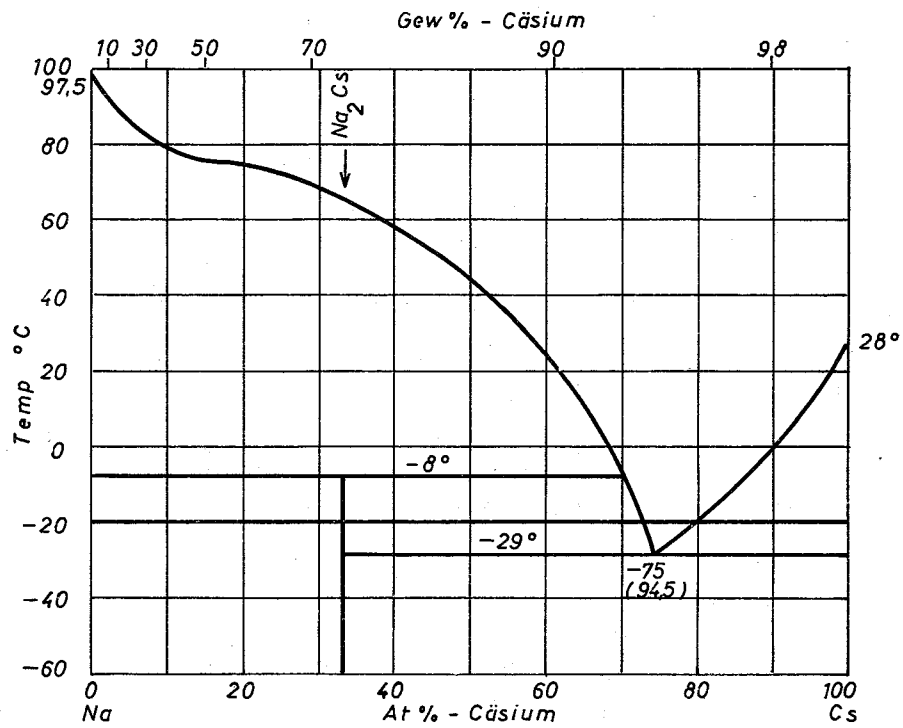


Abbildung 2 Zustandsdiagramm Cäsium - Natrium

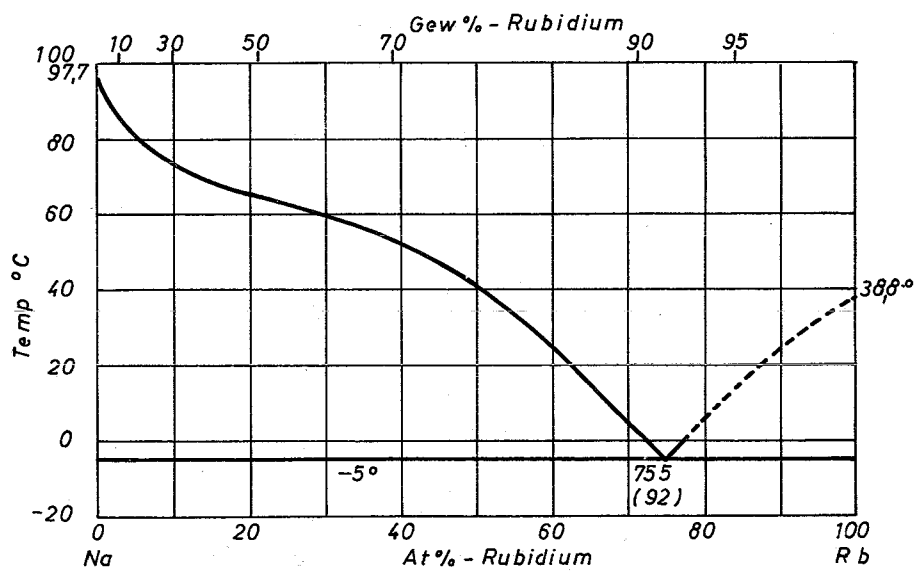


Abbildung 3 Zustandsdiagramm Rubidium - Natrium

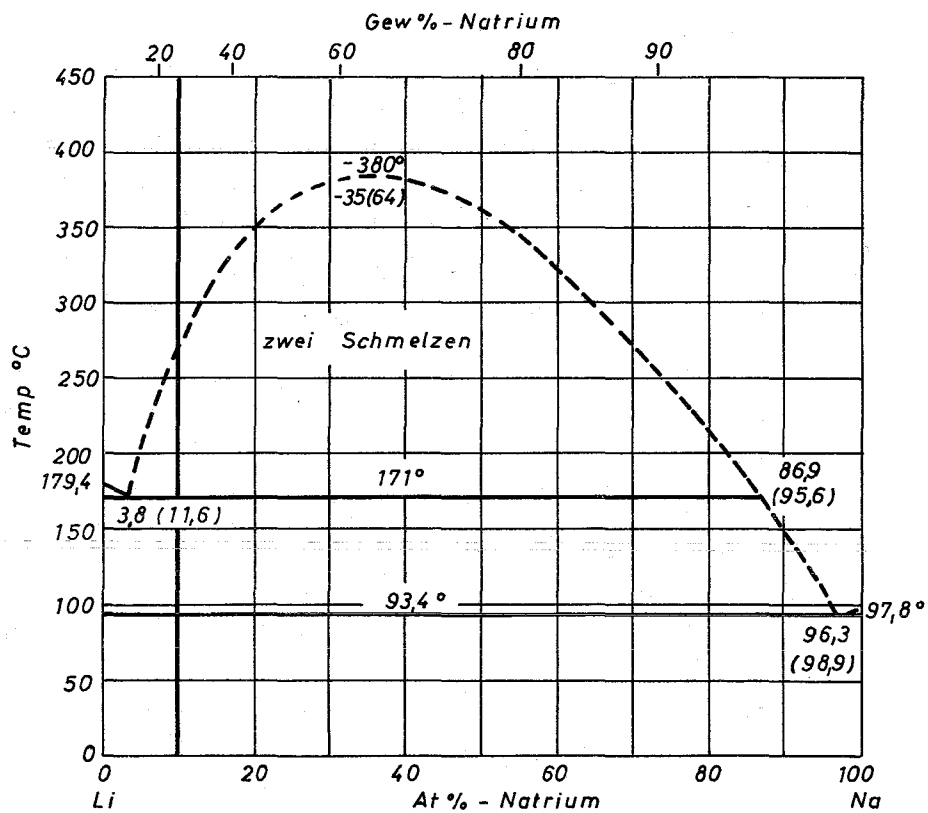


Abbildung 4 Zustandsdiagramm Lithium-Natrium

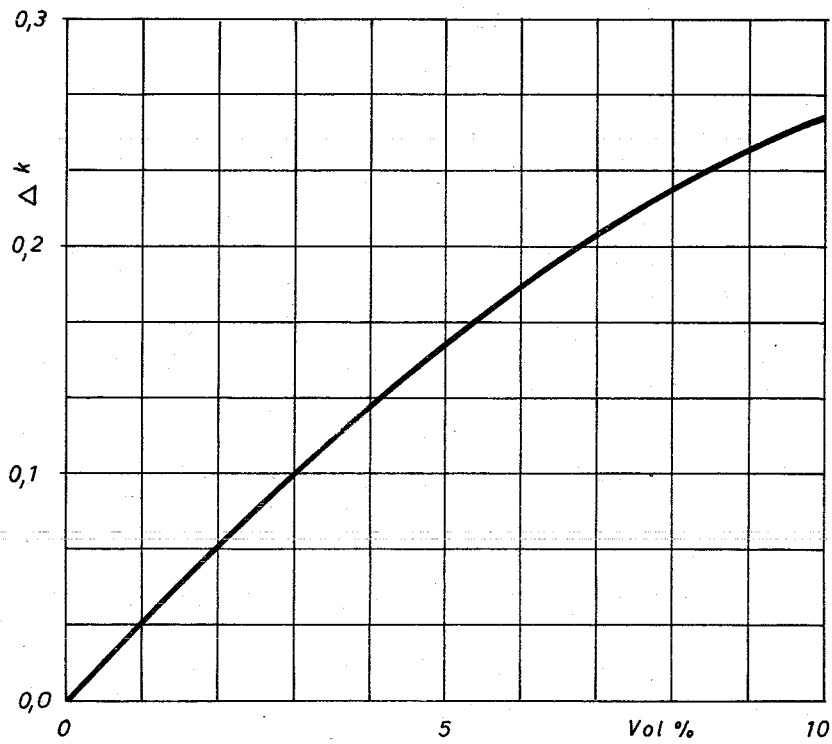


Abbildung 5 Δk in Abhängigkeit vom
 Li-6 Anteil vom Natrium