

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

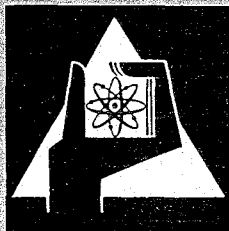
Juni 1966

KFK 461

Abteilung Reaktorbetrieb

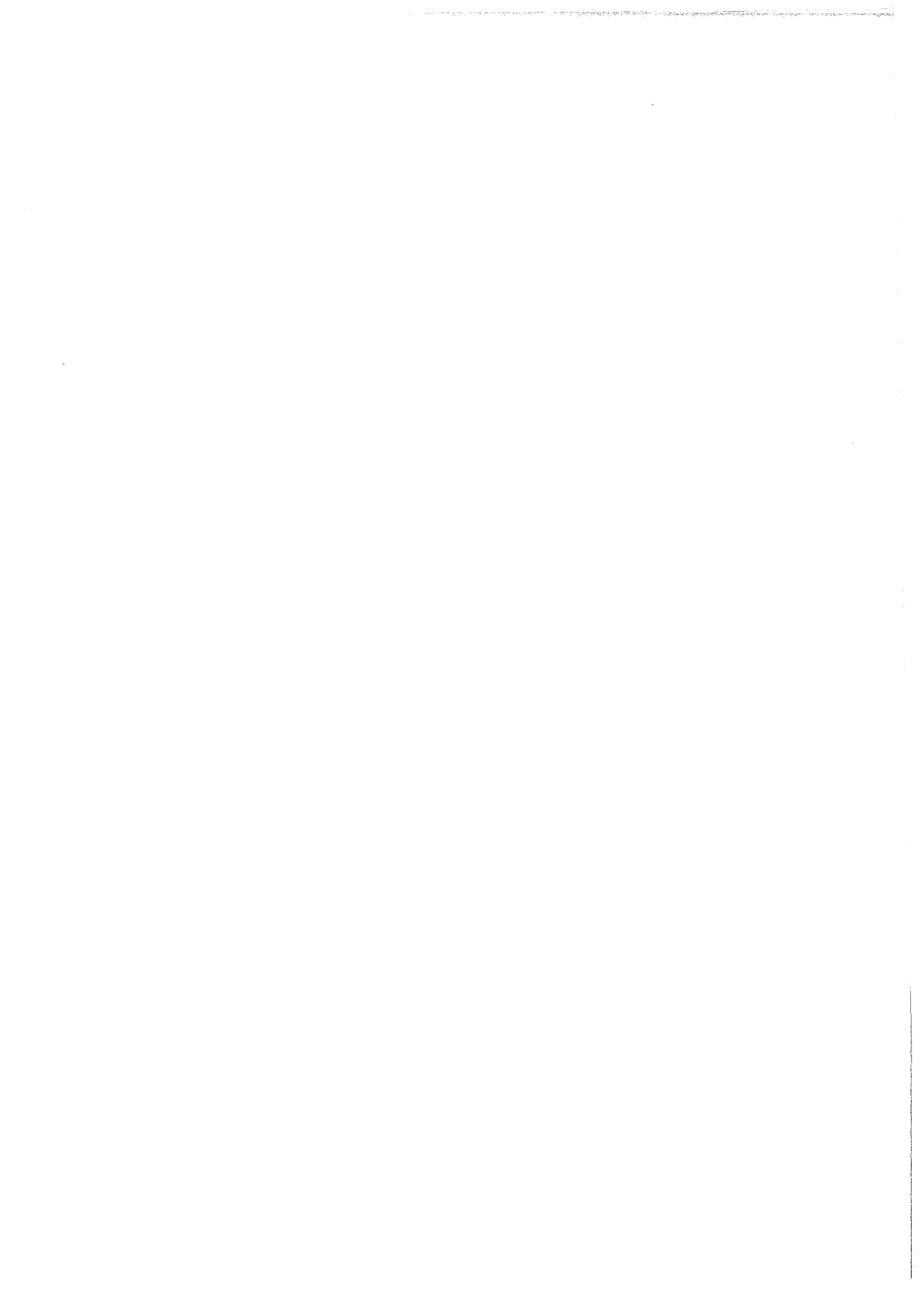
Bestrahlung eines Thermionic-Emitters im FR 2

V. Merges, H. Winkenbach



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



Bestrahlung eines Thermionic-Emitters im FR 2

Irradiation of a thermionic emitter in the Reactor FR 2

Von V. Merges¹ und H. Winkenbach²

¹ Kernforschungszentrum Karlsruhe, Abteilung Reaktorbetrieb; ² Zentrales Forschungslabor Heidelberg der Brown, Boveri & Cie. AG, Mannheim

1. Einleitung

Im vorliegenden Bericht wird ein Bestrahlungsversuch beschrieben, der zur Entwicklung nuklear beheizter thermionischer Konverter beitragen soll [1].

Thermionische Konverter (auch Thermionic-Elemente genannt) sind Elemente, die direkt aus Wärme Strom erzeugen. Sie sind im Prinzip wie eine Diode aufgebaut, deren meist zylindrischer Emitter zur Erreichung eines höheren Wirkungsgrades auf ca. 2000 °K geheizt werden muß [1]. Nukleare Konverter enthalten im Emitter Kernbrennstoff, der diesen durch die Spaltungsenergie aufheizt. Solche mit Kernbrennstoff arbeitenden Thermionic-Elemente lassen sich zu Reaktoren zusammenfügen [2–4], die z. B. für die Raumfahrt wegen ihres günstigen Leistungsgewichtes interessant sind. Der Bau solcher Reaktoren wird in verschiedenen Ländern angestrebt, jedoch ist der Stand ihrer Entwicklung wegen Geheimhaltungsvorschriften meist nicht bekannt. Vermutlich ist man z. Z. bestrebt, für einzelne oder in Reihe geschaltete Elemente im Reaktor eine ausreichende Betriebsdauer zu erzielen.

Heute wird der Bau einzelner, elektrisch beheizter Elemente, die über mehrere tausend Stunden betriebsfähig sind, weitgehend beherrscht. Die durch Kernenergie beheizten Thermionic-Elemente erreichen jedoch, soweit bekannt, nur eine Lebensdauer von einigen hundert Stunden [5–8]. Eine wesentliche Voraussetzung für den Langzeitbetrieb eines nuklear beheizten Thermionic-Elementes ist die erfolgreiche Entwicklung eines geeigneten Emitters.

An einen solchen Emitter werden die grundsätzlichen Forderungen gestellt, daß die Austrittsarbeit seiner stromemittierenden Oberfläche während der gewünschten Betriebszeit unverändert bleibt und Dimensionsänderungen am Emitter nur klein gegenüber dem geringen Emitter-Kollektor-Abstand (0,2 mm) sind.

Eine Änderung der Austrittsarbeit kann durch chemische Nichtverträglichkeit zwischen Emittermaterial und Brennstoff sowie durch Diffusion des Brennstoffs und der Spaltprodukte durch das Emittermaterial eintreten. Untersuchungen an verschiedenen Emittermaterialien und Brennstoffarten

zeigen [9, 10], daß das neutronenphysikalisch günstige Molybdän mit Urandioxyd bei hohen Temperaturen außerhalb des Reaktors verträglich ist, wenn der Brennstoff in möglichst stöchiometrischer Form vorliegt [11]. Über das Verhalten zwischen Molybdän und Urandioxyd im Reaktor liegen dagegen keine Literaturangaben vor. Das Diffusionsverhalten von Brennstoff und Spaltprodukten im Emittermaterial hängt weitgehend vom Zustand des Brennstoffs und Emittermaterials ab. Versuche über die Diffusion von Urandioxyd in Molybdän bei hohen Temperaturen außerhalb des Reaktors liegen bereits vor [12]. Reaktorversuche dieser Art sind nicht bekannt.

Dimensionsänderungen des Emitters sind vor allem wegen des inneren Spaltgasdruckes zu befürchten. Bei den hohen Brennstofftemperaturen ist ein großer Teil der Spaltprodukte gasförmig, entweicht dem Brennstoff und übt somit Druck auf die Emitterwand aus. Andererseits besitzt Molybdän bei 2000 °K nur geringe Festigkeit. In jüngster Zeit sind Werte veröffentlicht worden [13], die das Verhalten von Molybdän bei hohen Temperaturen beschreiben; diese sind jedoch noch zu lückenhaft, um über die mechanische Beständigkeit eines vorgegebenen Emitters aussagen zu können.

Der nachstehend beschriebene Bestrahlungsversuch soll zur Klärung der aufgeworfenen Fragen beitragen. Zu diesem Zweck wurde ein Emitter, der zum Einsatz in einem thermionischen Konverter vorgesehen ist, bei 2000 °K relativ kurzzeitig im Reaktor bestrahlt. Die beabsichtigte Untersuchung in den heißen Zellen steht noch aus.

2. Die Versuchseinrichtung

Der im Bestrahlungsversuch eingesetzte Emitter ist in Fig. 1 dargestellt. Er besteht aus gesintertem Molybdän und besitzt in seinem zylindrischen Mantel 15 Bohrungen, die den Kernbrennstoff aufnehmen sollen. Der Brennstoff ist pulverförmiges Urandioxyd der Zusammensetzung $UO_{2,005}$, welches auf 90% U 235 angereichert ist. Er ist auf 35% der theoretischen Dichte einvibriert.

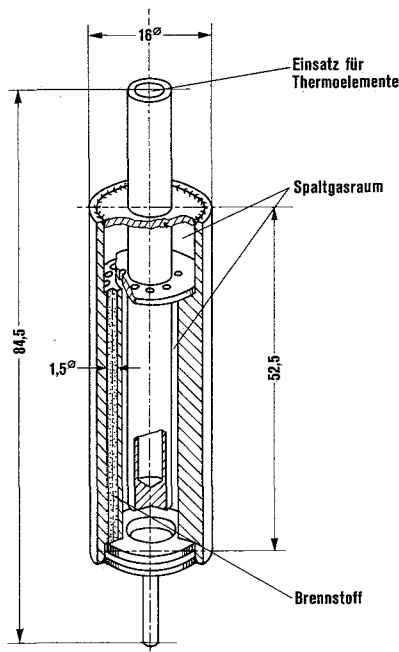


Fig. 1: Nuklear beheizter Thermionic-Emitter der Fa. BBC

Fig. 1: Thermionic emitter heated by nuclear energy (Brown, Boveri and Cie. AG)

Beim späteren Betrieb eines Thermionic-Elementes soll der Emitter eine Leistung von 1500 W abgeben. In der hier gewählten Anordnung können bei einer Emittertemperatur von 2000 °K jedoch nur 500 W abgeführt werden. Deshalb sind nur 5 der 15 Mantelbohrungen mit insgesamt 1,5 g Brennstoff gefüllt. Um mit dieser Brennstoffmenge die gewünschte Leistung zu erzeugen, ist eine thermische Neutronenflußdichte von $1,5 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ erforderlich.

Der Versuchseinsatz, in dem sich der Emitter zur Bestrahlung befindet, ist so ausgelegt, daß die Emittlerleistung überwiegend durch Wärmestrahlung abgegeben wird. Deshalb und um den Emitter vor Korrosion zu schützen, muß sich dieser während der Bestrahlung in Hochvakuum befinden. Wegen des zu erwartenden Gasanfalles kann dieses Hochvakuum nur durch ständiges Abpumpen aufrechterhalten werden. Andererseits ist zu gewährleisten, daß keine radioaktiven Gase (z. B. Spaltprodukte) nach außen gelangen.

Folglich wurde ein Versuchseinsatz gebaut, wie ihn Fig. 2 schematisch darstellt. Er besteht aus einem ca. 5 m langen Vakuumrohr aus Aluminium, an dessen oberen Ende eine Ionengetterpumpe (Sauggeschwindigkeit 50 l/h) angeflanscht ist. In dem Vakuumrohr befindet sich am unteren Ende der eigentliche Bestrahlungseinsatz. Dieser besteht aus dem Emitter, einem Graphitkäfig und einem Haltegerüst aus Molybdän. Der Graphitkäfig hat folgende Aufgaben: die Halterung des Emitters unter weitgehender Vermeidung von Wärmeleitstrecken, den Schutz des Vakuumrohres vor evtl. sich ablösenden Emitterteilen, Bildung eines Wärmeschildes, Bestimmung der abgegebenen Wärmeleistung und der Temperatur des Emitters durch Messen der Graphittemperatur. Der Graphitkäfig ist im Haltegerüst mit dünnen Molybdändrähten verspannt. Der gesamte Bestrahlungseinsatz hängt an einem dünnen Edelstahlstab am Abschirmstopfen. In der Wand des Graphitkäfigs und in der zentralen Sackbohrung des Emitters sitzen je zwei Thermolemente. Die Thermolemente im Graphitkäfig sind aus Einzeldrähten (Pt/Pt 10 Rh) hergestellt und in Zweilochkapillaren aus Al_2O_3

isoliert, während die Thermolemente im Emitter (W3Re/W25Re) mit ThO_2 -Isolierung und einer Tantalhülle umgeben sind. Zur Getterung von Spaltgasen im Fall eines Emittlerbruchs sind über dem Graphitkäfig mehrere Titanbleche angebracht.

Der Versuchseinsatz kann entsprechend der gewünschten Betriebstemperatur des Emitters auf verschiedene Isotopenkanalpositionen [14] von oben in die Spaltzone des FR2 abgesenkt werden. Die an das Vakuumrohr übertragene Emittlerleistung wird von dort konvektiv an den ca. 40 °C warmen Moderator abgeführt.

Aus experimentellen, reaktorbetrieblichen und sicherheitstechnischen Gründen wurde ein Betriebsüberwachungssystem benötigt, dessen Aufbau und Wirkungsweise aus Tab. 1 hervorgeht. Der Druck in der Ionengetterpumpe wurde über deren Ionenstrom gemessen, die Aktivität mit einem Zählrohr in der Nähe der Pumpe. Alle Meßwerte mit Ausnahme der Anzeige der Luftaktivität im Deckelzwischenraum wurden auf einem 12-Punkt-Schreiber registriert. Die Überwachung derjenigen Meßwerte, welche Reaktorschluß auslösen konnten, war unterbrechungslos und ausfallsicher (fail-to-safe) [15]. Ein Undichtwerden des Vakuumsystems bei gleichzeitigem Aufplatzen des Emitters wurde als unwahrscheinlich erachtet, da kein ursächlicher Zusammenhang denkbar war.

3. Vorversuche

Um möglichst große Sicherheit beim Versuchsbetrieb zu gewährleisten, wurden einige Vorversuche durchgeführt. So wurde die Funktionstüchtigkeit des Bestrahlungseinsatzes durch einen im Aufbau ähnlichen, elektrisch beheizten Versuch, der über 500 h bei konstanten Wärmeübergängen stabil lief, bewiesen. Dieser Versuch diente zugleich zur Bestimmung der Abhängigkeiten der Emittler- und Graphittemperaturen von der Emittlerleistung. Dadurch sollte es möglich sein, bei Ausfall der Emittlerthermolemente während der Bestrahlung die Emittlerleistung und -temperatur aus der Graphittemperatur zu bestimmen. In einem weiteren Vorversuch wurde die Auswirkung von Lageveränderungen der Bauteile des Bestrahlungseinsatzes untersucht. Alle denkbaren Veränderungen erwiesen sich als ungefährlich. Besondere Schwierigkeiten bereitete eine zuverlässige Voraussage über das Festigkeitsverhalten des Emitters. Festigkeitskennwerte für Molybdän bei 2000 °K sind nur teilweise bekannt [13], außerdem ist aufgrund der Geometrie des Emitters nur eine grobe Festigkeitsberechnung möglich. Deshalb wurden zwei Versuche durchgeführt, bei welchen Emittler durch elektrische Heizungen von innen bzw. außen auf 2100 °K gehalten wurden. Der Spaltgasdruckaufbau wurde durch einen über eine Kapillare aufgetragenen Edelgasdruck simuliert. Der gewählte Druckanstieg von 0,25 at/d ist der höchstmögliche Wert; er wurde unter der Annahme errechnet, alle Spaltprodukte seien gasförmig und würden vollständig dem Brennstoff entgegenweichen. Aufbauchungen des Emitters und das Auftreten von Leckstellen erwiesen, daß ein sicherer Betrieb des Emitters unter den angenommenen Voraussetzungen nur über eine Dauer von wenig mehr als 200 h möglich sein wird. Die Bestrahlungsdauer wurde deshalb auf 200 h festgesetzt.

4. Durchführung des Bestrahlungsversuches

Vor dem Einsetzen des Versuchseinsatzes in den Reaktor wurden an ihm und an der elektronischen Meßdatenverarbeitung zahlreiche Funktionsprüfungen durchgeführt.

Dichtheitsprüfungen am Emitter und am endgültig montierten Vakuumsystem ergaben Leckraten von weniger als 10^{-9} Torr l/s. Elektrische Messungen an den Thermolementen bestätigten die ordnungsgemäße Montage. Der Enddruck im Vakuumsystem betrug 10^{-7} Torr. Alle in der Spaltzone befindlichen Bauteile waren vor der Montage auf Betriebstemperatur und nach der Montage bis 200 °C ausgeheizt. Die Funktionstüchtigkeit des Betriebsüberwachungssystems wurde in Anwesenheit des Technischen Überwachungs-Vereins durch Simulieren aller aufgeführten Störfälle überprüft. Alle vor und nach der Bestrahlung durchzuführenden Handhabungen des Versuchseinsatzes wurden vor Bestrahlungsbeginn erprobt. Dies waren im wesentlichen: Einsetzen des Versuchseinsatzes auf Isotopenkanalpositionen des FR2 bei abgeschalteter Ionengetterpumpe, mechanische Verkopplung des Versuchseinsatzes mit dem Reaktor und Anschluß der elektrischen Leitungen von Hand, fernbedientes Lösen der mechanischen Verkopplung und der elektrischen Leitungen mit einem Bowdenzug, Ziehen des Versuchs-

Tab. 1: Aufbau und Wirkungsweise des Betriebsüberwachungssystems

Meßwert	detektiert Störfall	mögliche Folgen der Störung	Gegenmaßnahmen	Anzahl d. Meßstellen	Aufschaltung auf Reaktorsicherheits-system	obere Grenzwerte	untere Grenzwerte
Temperatur im Zentrum des Emitters	Überhitzung des Emitters	Undichtwerden des Emitters, Spaltgasaustritt aus Emittter	Reaktorschnellschluß	2	1 von 2	2100 °K	500 °K
Temperatur des Graphitkäfigs	Überhitzung des Emitters	Undichtwerden des Emitters, Spaltgasaustritt aus Emittter	keine	2	-	-	-
Druck in der Ionengetterpumpe	Undichtwerden des Emitters, Undichtwerden des Vakuumsystems, Versagen der Ionengetterpumpe	Druckanstieg, Ansammeln von Spaltgasen in der Ionengetterpumpe, Eindringen von Luft, He oder D ₂ O	Reaktorschnellschluß, Abschalten der Ionengetterpumpe	1	1 von 1	10 ⁻⁴ Torr	10 ⁻⁸ Torr
Aktivität an der Ionengetterpumpe	Spaltgasaustritt aus Emittter	Ansammeln von Spaltgasen in der Ionengetterpumpe, Druckanstieg	Reaktorschnellschluß, Abschalten der Ionengetterpumpe	1	1 von 1	je nach Versuchsablauf	
Luftaktivitätskonzentration im Deckelzwischenraum des Reaktors	Undichtwerden des Vakuumsystems	Auftreten von Spaltgasen im Deckelzwischenraum des Reaktors	Warnsignal	1	-	4 · 10 ⁻⁴ µCi/cm ³	-

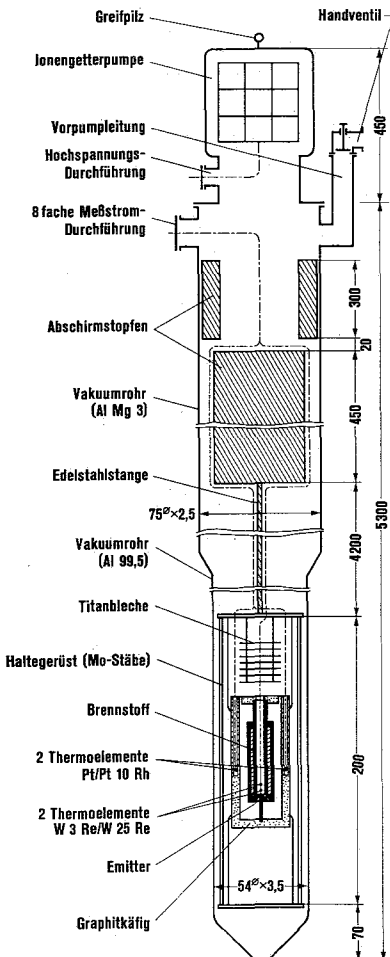


Fig. 2: Schematische Darstellung des Versuchseinsatzes zur Bestrahlung eines Thermionic-Emitters im FR 2

Fig. 2: Schematic drawing of the irradiation rig of a thermionic emitter in the reactor FR 2

einsatzes in einen Abschirmbehälter, Absenken des Versuchseinsatzes in eine gasdichte, mit H₂O zu flutende Lagerposition und in die heiße Zelle des FR 2.

Die Durchführung des Versuches gelang über die geplante Dauer von 200 h bei den gewünschten Betriebswerten. Am Anfang traten Schwierigkeiten wegen der starken Gasfrei-

setzung beim ersten Anfahren des Reaktors auf. Sie konnten jedoch durch zeitweiligen Anschluß einer Diffusionspumpe an der Vorpumpleitung des Versuchseinsatzes (Fig. 2) während der ersten 20 Betriebsstunden überwunden werden. Dabei sammelten sich in der Ionengetterpumpe aktivierte Gase an (Dosisleistungsäquivalent maximal 20 rem/h an der Oberfläche), deren Aktivität sich jedoch mit zunehmender Versuchsdauer verringerte.

Das gleichzeitige Absinken von Druck und Aktivität im Vakuumraum mit fortschreitender Bestrahlung bewies, daß der Emittter während der gesamten Bestrahlungszeit dicht blieb. Bei konstanter Reaktorleistung von 12 MW zeigten beide Thermolemente im Graphitkäfig eine Temperatur von (1340 ± 5) °K an. Dieser Wert entsprach nach den Vorversuchen einer Emitttertemperatur von (2100 ± 100) °K und einer Emittterleistung von (500 ± 10%) W.

Die beiden W 3 Re/W 25 Re-Thermolemente versagten während der Bestrahlung. Ihre Anzeigen waren nicht einheitlich und stimmten mit den auf den Graphitkäfig bezogenen Temperaturen nicht überein. Außerdem verhielten sich die Anzeigen dieser Thermolemente nicht sinngemäß zur Reaktorleistung, waren jedoch über die gesamte Versuchsdauer stabil.

Einen Tag nach Bestrahlungsende wurde der Versuchseinsatz mit einem Abschirmbehälter aus dem Reaktor gezogen und in die Lagerposition abgesetzt.

5. Untersuchung des bestrahlten Einsatzes

Zwei Wochen nach Beendigung der Bestrahlung wurden die Restgase im Vakuumrohr untersucht. Es konnte eine Xe-133-Aktivitätskonzentration von 0,04 µCi/cm³ festgestellt werden, welche wahrscheinlich von einer Spaltgasdiffusion aus dem Emittter herrührte. Anschließend wurde in der heißen Zelle des FR 2 die untere Hälfte des Vakuumrohres abgetrennt, so daß das Haltegerüst mit dem Graphitkäfig sichtbar wurde (Fig. 3). Es konnten an ihm keine Veränderungen gegenüber dem Zustand vor der Bestrahlung festgestellt werden. Durch weitere Demontage in der heißen Zelle wurde der Emittter freigelegt (wie aus Fig. 4 ersichtlich, war der untere Molybdänstift am Emittter ver-

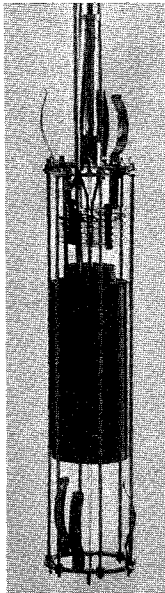


Fig. 3: Haltegerüst mit Graphitkäfig nach der Bestrahlung

Fig. 3: Holding-frame and graphite-cage after irradiation

mutlich während der Demontage abgebrochen). Eine Maßkontrolle ergab, daß sich der Emitterdurchmesser in Höhe der Brennstoffbohrungen um 0,08 mm verringert hatte, während der darüber liegende Teil im Durchmesser unverändert war. Es kann daraus geschlossen werden, daß der Spaltgasdruck bei weitem nicht den errechneten Wert erreichte und daß meßbare Mengen des Molybdänmantels abgedampft sind. Die Oberfläche des Emitters zeigte ebenso wie die Tantalhülle der zentralen Thermolemente ein grobkörniges Gefüge. Weil es gelang, diese Thermolemente unbeschädigt zu demon-

tieren, besteht Aussicht, durch Nachuntersuchungen Gründe für ihr Versagen zu finden.

Weitere Untersuchungen am bestrahlten Emittter in den heißen Zellen werden vorbereitet. Im wesentlichen sind vorgesehen: Messung des Spaltgasdruckes, Untersuchung der Verträglichkeit von UO_2 mit Molybdän sowie des Diffusionsverhaltens von Brennstoff und Spaltprodukten in Molybdän.

Der beschriebene Bestrahlungsversuch stellte den ersten Schritt in der Entwicklung eines Emittter-Brennstoff-Systems dar. Es sind weitere Versuche mit verbessertem Emittter und Brennstoff vorgesehen. Außerdem ist für längere Bestrahlungszeiten die Weiterentwicklung des Versuchseinsatzes beabsichtigt.

Die Verfasser danken den beteiligten Herren des Zentralen Forschungslabors der Fa. BBC, Heidelberg, und der Abteilung Reaktorbetrieb des Kernforschungszentrums Karlsruhe für ihre Mitarbeit bei der Vorbereitung und Ausführung des Experimentes. Diese Arbeit wurde teilweise vom Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung finanziert.

(Eingegangen am 20. 1. 1966)

Literatur

- [1] Bohdanský, J., und R. Langpape: Kerntechnik 5, 361 (1963)
- [2] Perry, L. W., and W. G. Homeyer: Synthesis of thermionic power conversion to nuclear reactors for space power applications. Proc. International Conference on Thermionic Electrical Power Generation. IEE-OECD, London 1965

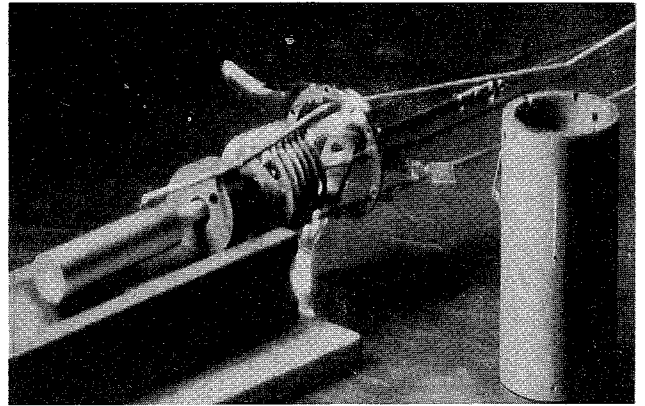


Fig. 4: Thermionic-Emitter nach der Bestrahlung. Haltegerüst und Graphitkäfig (rechts im Bild) sind demontiert

Fig. 4: Thermionic emitter after irradiation. Holding-frame and graphite-cage (right) are disassembled

- [3] Wright, W. B.: Bericht AD-289 540, GA-3540 (1962)
- [4] Haug, W., R. Fritz, R. Pruscek und E. Wolf: Atomenergie 10, 363 (1965)
- [5] Block, F. G., G. Y. Eastman and W. E. Harbough: The design, development and in-pile-testing of a nuclear-fueled thermionic energy converter. Proc. Thermionic Conversion Specialist Conference. Gatlinburg, USA, 1963, S. 323
- [6] Busse, C. A., R. Caron and E. W. Salmi: In-pile test of a thermionic converter, Proc. Thermionic Conversion Specialist Conference. Gatlinburg, USA, 1963, S. 314
- [7] Devin, B., et J. Blioux: Expérience de conversion thermionique nucléaire SIRENE 56. Proc. Intern. Conference on Thermionic Electrical Power Generation. IEE-OECD, London 1965
- [8] Dunn, P. D., J. Myah, G. Rice and L. G. Sanders: Operation and performance of in-core thermionic converter. Proc. Thermionic Conversion Specialist Conference. Gatlinburg, USA, 1963
- [9] Horner, M. H., A. F. Weinberg and L. Yang: Compatibility of uranium-bearing nuclear fuels and refractory metal thermionic emitters. Proc. Thermionic Conversion Specialist Conference. Gatlinburg, USA, 1963
- [10] Sanderson, M. J., L. N. Grossmann, H. W. Hill and A. I. Kaznoff: Compatibility of nuclear thermionic emitter materials. Proc. Thermionic Conversion Specialist Conference. Gatlinburg, USA, 1963
- [11] Grossmann, L. N., R. A. Ekvall and H. W. Hill: Uranium oxide fuel for nuclear thermionic converter. Proc. International Conference on Thermionic Electrical Power Generation, IEE-OECD, London 1965
- [12] Kaznoff, H. I., and M. J. Sanderson: Diffusion and interactions in the uranium-tungsten and uranium-molybdenum systems. Proc. International Conference on Thermionic Electrical Power Generation, London 1965
- [13] Tietz, T. E., and J. W. Wilson: Behaviour and Properties of Refractory Metals. Stanford, California, Stanford University Press, 1965
- [14] Oehme, H., und W. Marth: Kerntechnik 8, 253 (1966)
- [15] Maucher, E.: Beschreibung der elektrischen Einheiten an Projekt FR-2-48. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Interner Bericht 1965