

Een paradigmaverschuiving in reactorveiligheid: de gesmolten-zoutreactor

Inleiding. Jan Leen Kloosterman

Principe van Kernsplijting

Bij kernsplijting van uranium-235 wordt energie vrijgemaakt uit het massadefect dat bestaat tussen het uraniumatoom en de twee lichtere splijtingsproducten die worden gevormd. Per massa-eenheid komt op deze wijze drie miljoen maal meer energie vrij dan bij verbranding van steenkool. Doordat lichtere atoomkernen minder neutronen nodig hebben voor stabiliteit, komt bij kernsplijting ook een aantal neutronen vrij die vervolgens een andere atoomkern kunnen doen splijten. Door het overschot aan neutronen weg te vangen kan een constante kettingreactie worden verkregen.

Om de kettingreactie mogelijk te ma-

ken is het wel noodzakelijk de kans op absorptie van neutronen in uranium-235 te vergroten. Dit kan worden bereikt door moderatie (afremming) van neutronen en/of verrijking van de splijtstof. Moderatie van neutronen leidt tot een zachter (laagenergetisch) spectrum, waardoor de kans op absorptie in uranium-235 sterk wordt verhoogd (zie figuur 1). Door middel van verrijking kan de fractie splijtbaar uranium-235 worden vergroot van 0,7% in natuurlijk uranium tot circa 5% in de splijtstof van kernenergiecentrales.

De twee mechanismen, moderatie en verrijking, zijn in zekere mate uitwisselbaar. Een reactor zonder moderator behoeft een hogere verrijking, terwijl een reactor met natuurlijk uranium een heel goede moderator nodig heeft, zoals zuiver (reactor-grade) grafiet of zwaar water. In zekere zin kan zwaar water als verrijkt water worden beschouwd, zodat bij het ontwerp van een kernreactor de keuze bestaat tussen verrijking van de splijtstof óf verrijking van de moderator.

Reactorveiligheid van licht watergekoelde reactoren (LWR)

Het water in een LWR combineert twee functies: de moderatie van

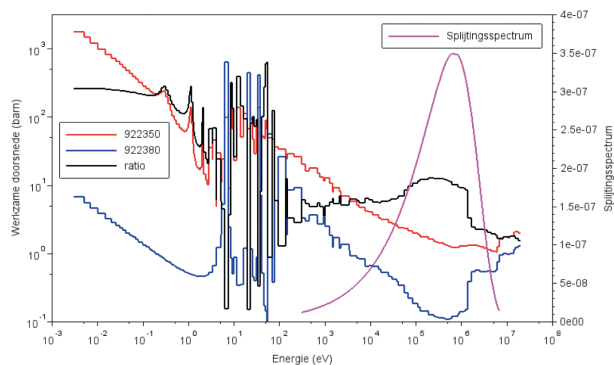
neutronen en de afvoer van warmte. Hierdoor ontstaat een sterk negatieve terugkoppeling, doordat bij hogere temperatuur de uitzetting van het koelmiddel de moderatiewerking verslechtert en de kettingreactie zal doven. Reactoren waarbij de moderatie en warmteafvoer is ontkoppeld, ontberen dit effect. Dit is bijvoorbeeld het geval in de beruchte Russische RBMK-reactoren, waarin grafiet dient als moderator en water als koelmiddel. In dat geval wordt zelfs een positieve terugkoppeling verkregen omdat het water wel zwak neutronen absorbeert maar niet bijdraagt aan de moderatie van neutronen. Bij afnemende dichtheid van het koelwater leidt dit tot minder absorptie van neutronen en een toenemende kettingreactie.

Er bestaat nog een ander terugkoppel-effect: het nucleaire dopplereffect. Dit vindt zijn oorsprong in de resonantiestructuur van de absorptiekans voor neutronen in zware nucliden zoals uranium. Bij toenemende temperatuur zullen de splijtstofatomen sterker trillen, waarbij de effectieve breedte van de resonanties toeneemt. Dit komt doordat de relatieve snelheid tussen het neutron en de atoomkern toeneemt als de atoomkern in de richting van het neutron beweegt en afneemt als de atoomkern van het neutron af beweegt, met als gevolg

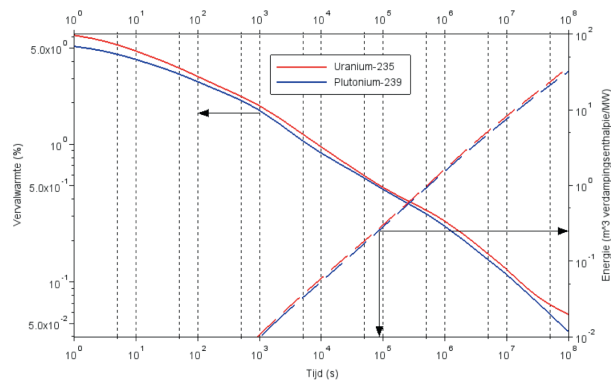
Jan Leen Kloosterman (1964) studeerde Technische Natuurkunde in Delft. In 1992 promoveerde hij aan dezelfde universiteit, waarna hij ging werken als onderzoeker bij ECN-Nucleaire Energie in Petten. Sinds 1998 werkt hij als UHD bij de sectie NERA (Nuclear Energy and Radiation Applications) van de TU Delft aan nieuwe inherent veilige kernreactoren met een duurzame splijtstofcyclus.



J.L.Kloosterman@tudelft.nl



Figuur 1 Absorptie werkzame doorsnede als functie van de energie van het inkomend neutron voor uranium-235 (rode lijn), uranium-238 (blauwe lijn) en de verhouding tussen deze twee (zwarte lijn). Duidelijk is dat bij lagere neutronenergie de verhouding verschuift naar meer absorptie in uranium-235. De cyanlijn geeft het spectrum van de splitsingsneutronen (rechter as).



Figuur 2 Vervalwarmte als functie van de tijd (linker as) en de integrale energie (rechter as) voor zowel uranium als plutonium.

dat ook neutronen met iets lagere of iets hogere energie dan de resonantie-energie sneller worden ingevangen. Omdat absorptie van neutronen in het niet-splijtbare uranium-238 vooral in resonanties plaatsvindt, zal bij voldoende uranium-238 in de splijfstof de kettingreactie doven bij toenemende temperatuur.

Bij een goed ontworpen reactor zal altijd een van deze twee effecten de bovenhand hebben en zorgen voor een negatieve terugkoppeling, dat wil zeggen dat de kettingreactie dooft bij toenemende temperatuur. Er is echter een ander risico op beschadiging van de splijfstof dat tot nu toe veel groter is gebleken. Dit vindt zijn oorsprong in het feit dat de splitsingsproducten radioactief zijn en vervallen naar de grondtoestand onder uitzending van straling, waardoor een deel van de splitsingsenergie vertraagd vrijkomt. Figuur 2 geeft de vervalwarmte als functie van de tijd. Initieel bedraagt de vervalwarmte van splitsingsproducten 6% van de totale splitsingsenergie. Hoewel na één dag de vervalwarmteproductie al met een factor tien is gereduceerd, komt de vrijgekomen energie overeen met de verdampingsenthalpie van 0,25 m³ water per MW thermisch geïnstalleerd vermogen. Dit betekent dat altijd een grote hoeveelheid koelwater beschikbaar moet zijn wil de reactorkern niet beschadigd raken.

De warmteoverdracht van de splijfstof naar het koelwater in een LWR is niet erg effectief. De splijfstof bestaat uit tabletten van uraniumdioxide met een diameter van circa 8-12 mm ingekapseld in een gasdichte buis gemaakt

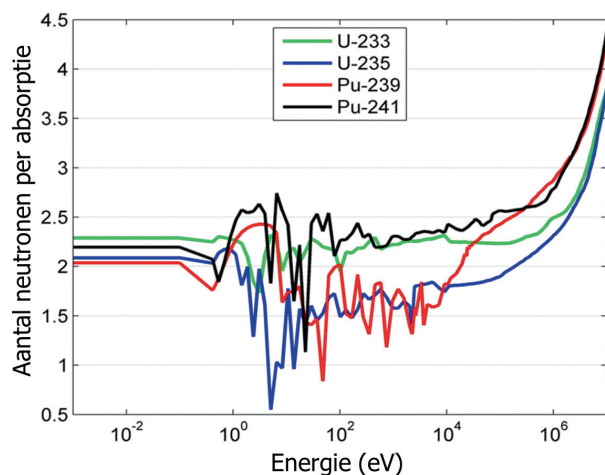
van Zircaloy (een zirconiumlegering). Tussen de splijstoftablet en de binnenkant van de splijstofhuls zit een kleine spleet met een grote temperatuursprong als gevolg. De spleet kan zich wel tijdens de bestraling sluiten door uitzetting van de splijstoftablet. Ook is uraniumdioxide een slechte warmtegeleider met als gevolg een sterke temperatuurgradiënt in de tablet. Het resultaat is dat de temperatuur in het centrum van de splijstoftablet wel 1300 graden hoger is dan de temperatuur van het koelwater (circa 300 °C).

De temperatuurverdeling van het water in het koelkanaal is wel homogeen, doordat de warmte vooral wordt opgenomen via kookprocessen. In *pressurized water reactors* (PWR) vindt dit plaats via kiemkoken (*nucleate boiling*): de productie van kleine dampbelletjes aan de buitenkant van de splijstofhuls die door het water worden meegevoerd en vervolgens condenseren. Indien zich een afwijking van de koelmiddelstroom of warmteproductie voordoet, kan er een damp laag ontstaan tussen de splijstofhuls en het koelwater waardoor een extra warmteweerstand wordt gecreëerd en de temperatuur van de splijstof sterk toeneemt. Dit is het zogenoemde *departure from nucleate boiling* (DNB) punt. Omdat bij een temperatuur van 1200 °C de Zircaloyhuls begint te oxideren en bij 2700 °C de splijstof begint te smelten, moet het koelkanaal altijd gevuld blijven met water, ook als de splitsingsreactie is gestopt.

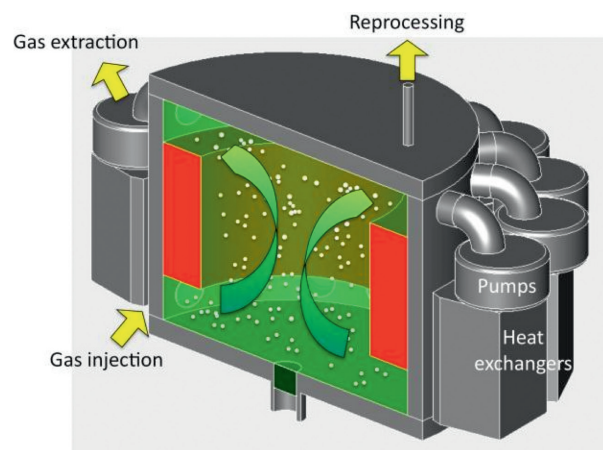
Snelle metaalgekoelde reactoren

Binnen Generatie-IV, het wereldwijd gecoördineerde onderzoek naar nieuwe kernreactoren, domineren de kernreactoren zonder moderator en dus werkend met snelle neutronen. Om de kettingreactie mogelijk te maken moet in deze reactoren een hogere uraniumverrijking worden toegepast van 20% (de maximaal toegestane waarde). Nog beter is het om plutonium te gebruiken omdat bij snelle splijting van plutonium meer neutronen vrijkomen dan bij uranium. Het resultaat is dat in snelle reactoren extra neutronen beschikbaar zijn voor neven doeleinden zoals de conversie en splijting van americium of het kweken van nieuwe splijstof uit uranium-238.

In snelle reactoren kan geen water worden gebruikt als koelmiddel omdat dit zou leiden tot moderatie van neutronen. Daarom richt het onderzoek zich op natrium, lood en loodbismuth. Deze metalen zijn excellente koelmiddelen doordat ze een grote warmtecapaciteit en geleidingscoëfficiënt hebben en ook de warmteoverdrachtscoëfficiënt van de splijstofhuls naar het koelmiddel groot is. Het warmtetransport in het koelmiddel verloopt via geleiding. Door de verbeterde warmteafvoer kan de vermogensdichtheid in de reactorkern groter zijn dan in LWR's. Bovendien is de kans op een kernsmeltongeval zeer klein door de grote warmtecapaciteit van het koelmiddel en het feit dat via natuurlijk circulatie en geleiding de warmte snel over het primaire circuit kan worden verdeeld en via extra kringlopen naar de omgeving kan worden afgevoerd. De bestaande



Figuur 3 Aantal splijtingsneutronen per neutronabsorptie als functie van de energie van het inkomend neutron voor verschillende splijtbare nucliden. Duidelijk is dat plutonium meer neutronen geeft in het snelle energiegebied, terwijl uranium-233 de meeste neutronen geeft in het thermische gebied. Voor kweken zijn minimaal twee neutronen vereist: één om de kettingreactie in stand te houden en één om de kweekstof te converteren.



Figuur 4 Reactorkern van de molten salt fast reactor (MSFR). Het zout wordt door zestien pompen door evenzoveel warmtewisselaars gepompt waarna het aan de onderzijde in de reactorkern stroomt. Het reactorvat heeft een hoogte en diameter van 2,25 meter. De temperatuur van het zout in de reactorkern neemt toe van 700 °C aan de onderzijde tot 800 °C aan de bovenzijde.

metaalgekoelde reactoren werken met splijtstof in oxidevorm, maar veel onderzoek richt zich op nieuwe splijtstoffen met een betere warmtegeleiding en hogere actinidendichtheid, zoals metallische splijtstof en nitriden.

Toch kleeft er nog een aantal nadelen aan het gebruik van metaal als koelmiddel. Natrium kan in contact met lucht of water ontbranden en lood is corrosief en geeft aanleiding tot productie van het giftige polonium. Een ander risico is dat een snelle reactor zo veel plutonium bevat dat een verdichting van de reactorkern, door compressie of door de vorming van dampbellen in het koelmiddel, kan leiden tot een toename van de kettingreactie. Weliswaar is in een metaalgekoelde reactor de kans op een kernsmeltongeval zeer klein, de mogelijke gevolgen ervan zijn niet wezenlijk anders dan in LWR's. De reactorkern bevat door de hoge splijtstofopbrand zelfs meer radioactieve splijtingsproducten dan in LWR's. Lood en loodbismuth hebben trouwens wel een aardig ontwerpvoordeel in vergelijking met natrium doordat de splijtstof lichter is dan het koelmiddel. Dit betekent dat in geval van een ernstig kernsmeltongeval de splijtstof drijft op het koelmiddel en een zogenaamde *core catcher*, waarin de gesmolten splijtstof kan worden opgevangen, overbodig is.

Gesmolten-zoutreactoren

Een oplossing van veel van boven-

genoemde risico's vereist een totaal nieuwe aanpak, waarin de splijtstof in vloeibare vorm wordt toegepast. In een gesmolten-zoutreactor (molten salt reactor - MSR) vormen het koelmiddel en splijtstof één medium onder atmosferische druk. Hiervoor wordt meestal een gesmolten fluoridezout gebruikt, zoals lithiumfluoride of lithiumberylliumfluoride (FLIBE), maar zijn ook wel chloridezouten voorgesteld. Het lithium is in deze zouten hoogverrijkt in lithium-7 (99,995%), omdat deze isotoop met natuurlijk voorkomen van 92,4% vrijwel geen neutronen absorbeert.

Net als bij de andere reactortypen kan een MSR met een thermisch of een snel spectrum worden ontworpen. Als thorium wordt gebruikt, kan óók in een thermische MSR worden gekweekt, dat wil zeggen dat er meer splijtstof wordt geproduceerd dan verbruikt. Na neutronvangst in thorium-232 ontstaat namelijk uranium-233 wat bij splijting door een langzaam neutron gemiddeld meer dan twee neutronen geeft, terwijl dit voor plutonium minder dan twee is (zie figuur 3). De snelle versie van de gesmolten-zoutreactor kan bovendien ook het plutonium en americium uit andere reactoren versplijten.

In de zestiger jaren van de vorige eeuw heeft gedurende vijf jaar een kleine MSR gedraaid, het zogenaamde molten salt reactor experiment (MSRE), waarin is aangetoond dat een MSR kan werken met uranium-233, uranium-235

en plutonium als splijtstof. De MSRE had een moderator van grafiet en een vermogen van 8 MW.

Binnen Generatie-IV ligt de nadruk echter op de snelle variant van de MSR, ook wel de molten salt fast reactor (MSFR) genoemd (zie figuur 4). De redenen hiervoor zijn dat in een thermische reactor, om te kunnen kweken, meer zout moet worden gezuiverd omdat de splijtingsproducten in het zout een negatief effect hebben op de neutronenbalans. Waar dit 4 m³/dag betreft voor een thermische reactor is dit slechts 40 liter/dag voor een snelle reactor. Ook krimpt en zwelt het grafiet onder invloed van straling en moet het, afhankelijk van bepaalde ontwerpparameters, na vijf tot tien jaar worden gewisseld. Bovendien kan een snelle reactor ook worden ingezet voor de transmutatie van plutonium en americium, wat een van de speerpunten is in het Europese onderzoeksprogramma. In de MSFR wordt lithiumfluoride gebruikt omdat dit zout een grotere fractie actiniden (22,5%) kan opnemen.

Zoals hierboven vermeld moet het zout worden gezuiverd. Hiertoe is een aantal processen ontwikkeld. De eerste stap is uiterst simpel. Door in de zoutpompen heliumbelletjes te injecteren worden de gasvormige splijtingsproducten en niet-oplosbare producten zoals de edelmetalen met het helium meegevoerd. Dit principe is al in de MSRE getest. In de volgende stap worden door verdere fluorinatie

van het zout het uranium en neptunium en enkele splijtingsproducten afgesplitst. Vervolgens kunnen door reductieve extractie in een bismuthlithiumbad de andere actiniden aan het zout worden onttrokken, waarna via hetzelfde proces de lanthaniden kunnen worden afgescheiden. Na deze stap resulteert schoon zout dat na toevoeging van de afgescheiden actiniden weer kan worden teruggevoerd. In vergelijking met andere snelle reactoren met vaste splijtstof heeft de MSFR een aantal sterke voordelen:

1. Door expansie van het zout wordt een sterke terugkoppeling verkregen waardoor de kettingreactie vanzelf dooft bij toenemende temperatuur. Dit effect blijft ook bestaan bij een kernbelading met plutonium en americium, terwijl in een snelle reactor met vaste splijtstof de toevoeging van americium leidt tot kleinere veiligheidsmarges.
2. Door de continue zuivering van het zout via *helium bubbling* worden de gasvormige en niet oplosbare splijtingsproducten continu afgescheiden. De rest is via ionbinding sterk gebonden aan het zout en kan zelfs in abnormale omstandigheden niet ontsnappen. In reactoren met een vaste splijtstof daarentegen hopen de gasvormige splijtingsproducten zich op in de gasdichte huls en de vluchtige splijtingsproducten zoals jodium, cesium en tellu- rium in de splijtstof. Beide groepen splijtingsproducten kunnen gemakkelijk vrijkomen bij een kernsmeltongeval.
3. Onderin het reactorvat zitten uitlaatspijpen die elk zijn afgesloten met een prop gestold zout (*freeze plug*) die actief wordt gekoeld. Valt de stroomvoorziening uit of wordt het zout in het reactorvat te warm, dan zullen deze proppen smelten en zal het zout wegstromen in passief gekoelde opslagtanks onderin het reactorgebouw.
4. De continue zuivering en aanmaak van zout levert de mogelijkheid om tijdens reactorbedrijf de splijtstofsamenstelling aan te passen. Theoretisch kan zelfs tussen de uranium- en thoriumcyclus worden gewisseld. De thoriumcyclus biedt als voordeel dat

veel minder plutonium en americium wordt gevormd.

5. De MSFR is een uitstekende reactor voor de recycling van plutonium en americium uit de gebruikte splijtstof van andere reactoren. Dit komt doordat het zout bij de reactor zelf wordt gezuiverd en de actiniden direct kunnen worden teruggevoerd naar de reactorkern. In een snelle reactor met vaste splijtstof zouden actiniden meerdere keren moeten worden hergebruikt alvorens ze splijten, hetgeen betekent dat de splijtstof evenzoveel keren moet worden getransporteerd, opgewerkt en in nieuwe vaste splijtstof moet worden verwerkt. Een omslachtig en duur proces.

Toekomstig MSR-onderzoek

Wereldwijd is de belangstelling voor de MSR sterk groeiende. Naast serieuze onderzoeksprogramma's in China, Europa, Rusland en de Verenigde Staten, zijn er ook veel (semi-)commerciële initiatieven. Het onderzoek richt zich voornamelijk op de zoutchemie, afscheidingstechnologie, materiaalontwikkeling en reactorveiligheid. Voor een snelle voortgang moet het onderzoek op (minimaal) Europese schaal worden uitgevoerd, maar Nederland kan hierin wel een belangrijke rol spelen. Het Reactor Instituut Delft van de TU Delft heeft sinds kort een laboratorium operationeel waarin met thorium en uranium kan worden gewerkt (het zogenaamde TU-LAB) en werkt nauw samen met het Transurane Instituut van het Gemeenschappelijke Onderzoekscentrum van de Europese Commissie in Karlsruhe waar met sterkere radioactieve zouten kan worden gewerkt. TU Delft heeft veel ervaring met numeriek onderzoek aan kernreactoren en met experimenteel onderzoek aan warmteoverdracht in extreme omstandigheden en met kringlopen onder natuurlijke circulatie. In de hoge-fluxreactor in Petten kunnen proefbestralingen worden uitgevoerd om de lange-termijneffecten van zout en straling op constructiematerialen te onderzoeken.

Een belangrijke eerste mijlpaal zou het ontwerp en de bouw van een testreactor kunnen zijn zoals eerder heeft gedraaid in de Verenigde Staten. Nadat hiermee ervaring is opgedaan kan een demonstratiemodel van de gesmol-

ten-zoutreactor worden gebouwd. Deze route wordt gevolgd door China, waar met honderden wetenschappers en technici en met een budget van een paar honderd miljoen euro een testreactor zoals de MSRE wordt gebouwd. Het zou daarom verstandig zijn als Europa de gesmolten-zoutreactor optie ook nadrukkelijker zou volgen, bijvoorbeeld door een *research thorium reactor* met een vermogen van een paar MegaWatt te bouwen, om de kennis en technologie hier verder te kunnen ontwikkelen. Gezien de bestaande expertise kunnen Nederland en de TU Delft hierbij een belangrijke rol spelen en de drijvende kracht worden achter een nieuwe vorm van kernenergie, waarmee op veilige en duurzame wijze gedurende tienduizenden jaren schone stroom kan worden opgewekt.