

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

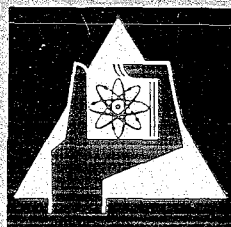
Mai 1970

KFK 1192

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

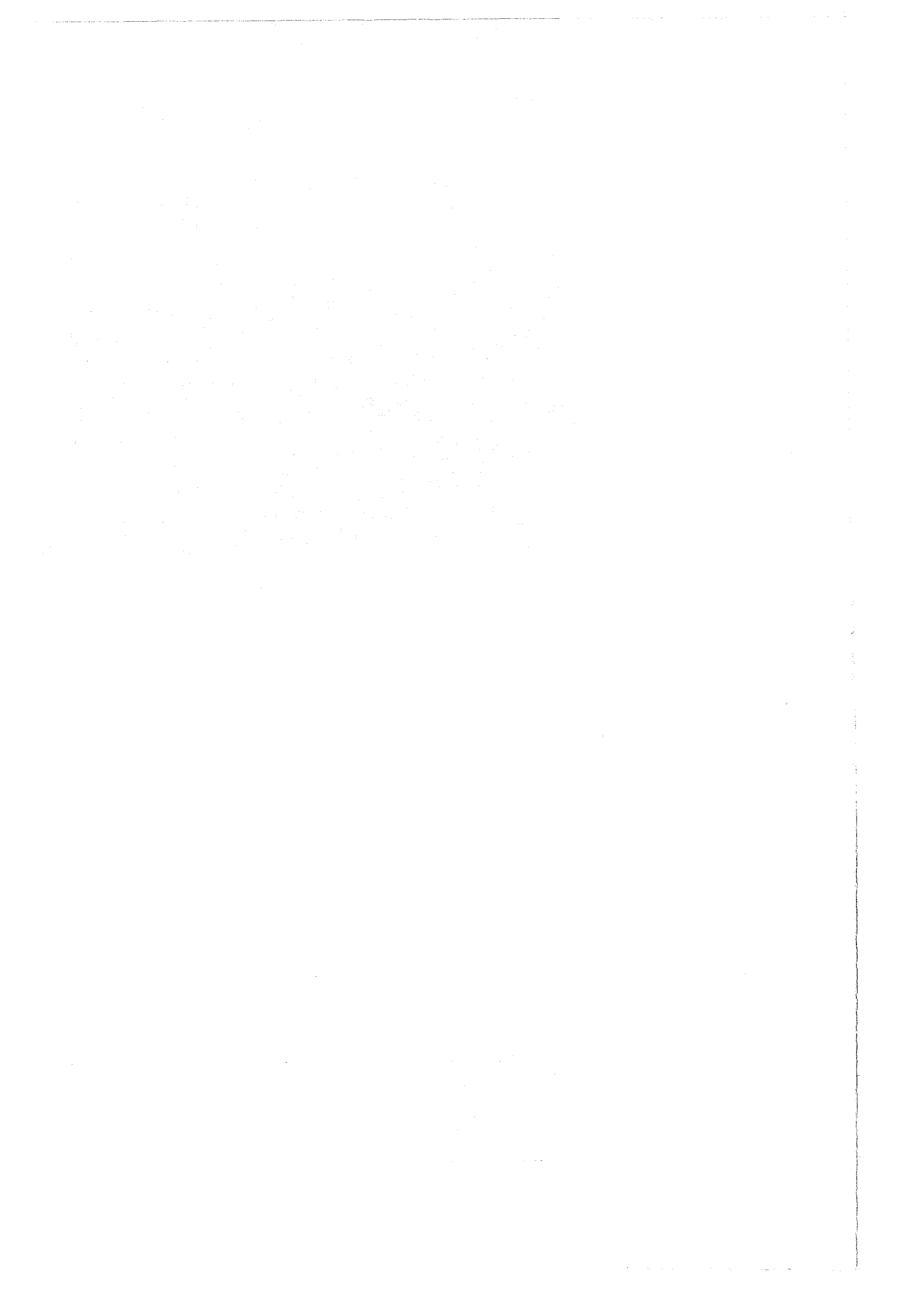
Kritische und sichere Abmessungen von Behältern
zur Lagerung und Mischung plutoniumhaltiger Kernbrennstoffe

H.-W. Wiese



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Mai 1970

KFK-1192

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Kritische und sichere Abmessungen von Behältern
zur Lagerung und Mischung plutoniumhaltiger Kernbrennstoffe

Hans-W. Wiese

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung:

Bei der Herstellung von Brennstoffen für Brutreaktoren stellt sich das Problem der Lagerung und Mischung plutoniumhaltiger Kernbrennstoffe in Behältern unter der Bedingung der Sicherheit gegen Kritikalität. Als kritikalitätssicher wird dabei eine Anordnung angesehen, deren Brennstoffvolumen bei Einschließen der Anordnung in einen Nominalwasserreflektor von 2.54 cm = 1 inch Stärke [1] höchstens 80% des kritischen Brennstoffvolumens bei festgehaltenen Teilchenzahldichten und festgehaltener geometrischer Form der Anordnung enthält [2].

Es wurden kritische und sichere Abmessungen für einen Lager- und zwei Mischbehälter bestimmt.

Die Streuung an Wasserstoff wird in Transportnäherung und in P_1 -Näherung des Streukerns behandelt.

Abstract:

Production of fuels for breeder reactors involves the problem of storage and mixing of plutonium-containing nuclear fuel in containers under the condition of safety against criticality. An assembly is considered safe against criticality when its fuel volume is at most 80 per cent of the fuel volume of the critical assembly with the same atomic densities, the same geometrical form, and an additional 1-inch-water-reflector [1,2].

Critical and safe dimensions are calculated for one storage and two mixing containers.

Neutron-hydrogen scattering is treated in Transport- and in P_1 -Approximation.

1. Gegebene geometrische Form und gegebene Abmessungen / 3 7

Als geometrische Form für den Lagerbehälter (Bild 1: PULA) ist ein Zylinder vorgesehen, dessen Höhe groß gegen dessen Durchmesser ist. Als Mischbehälter sind ein Hohlzylinder der Höhe $H=150$ cm mit einem verdünnten (s. 3.) Stahlkern von 30 cm Durchmesser (Bild 2: PUMIX 1) und ein Hohlzylinder der Höhe $H=150$ cm mit einem Polyäthylenkern vom Durchmesser 29.4 cm, der von einem 0.3 cm starken Borstahlmantel eingeschlossen ist (Bild 3: PUMIX 2), geplant.

2. Gegebene Brennstoffmischungen / 3 7

Als zu lagernde und zu mischende Kernbrennstoffe sind Plutoniumoxid, Uran-Plutonium-Mischoxid und Plutoniumoxalat vorgesehen (Tabelle 1). Zur Ermittlung der Abhängigkeit der sicheren Behälterabmessungen von der Brennstoffdichte und dem Wasserstoffgehalt sind diese drei Brennstoffe durch Vorgabe verschiedener Dichten und H/Pu-Verhältnisse parametrisiert. Tabelle 2 enthält die Teilchenzahldichten der insgesamt vierzehn Brennstoffmischungen.

3. Gegebenes Kern- und Reflektormaterial / 3 7

Der Kern von PUMIX 1 ist eine Stahlkonstruktion, deren Schmierdichte $1/5$ der theoretischen Normaldichte ausmacht. Der Mantel des Kerns von PUMIX 2 ist Borstahl mit einem Naturborgehalt von 3%, während der Kern selbst aus Polyäthylen besteht.

Manuskript zum Druck eingereicht am 6. Mai 1970

Bild:1 Pula

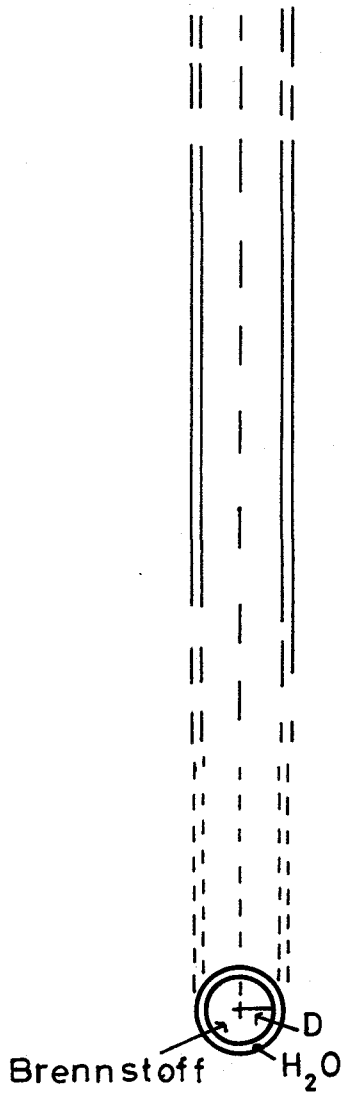


Bild: 2 Pumix 1

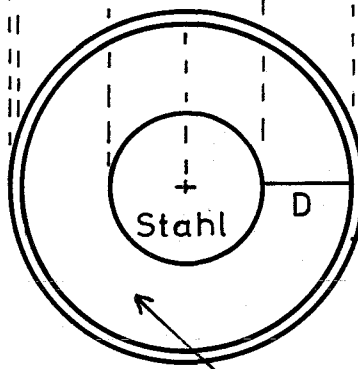
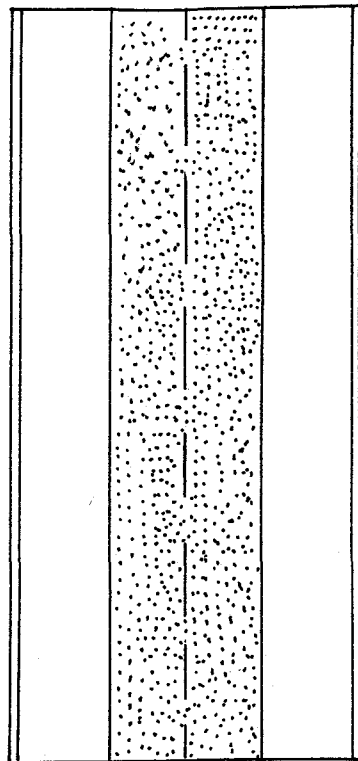


Bild:3 Pumix 2

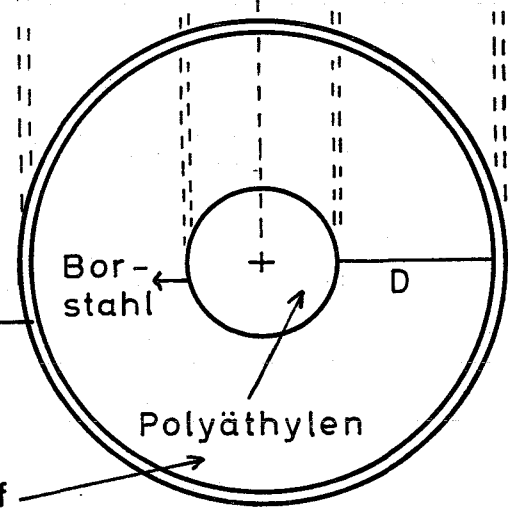
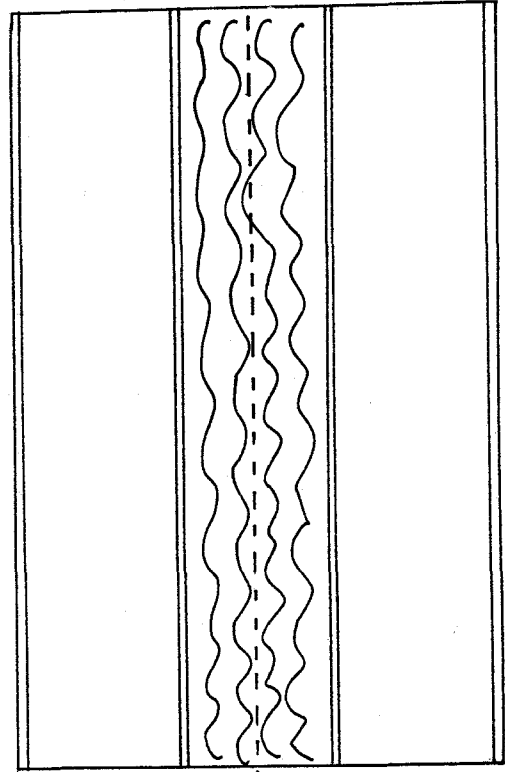


Tabelle 1: Zu lagernde und zu mischende Brennstoffe

Misch.	Brennstoff	Dichte [$\frac{g}{cm^3}$]	H/Pu	Pu-Anreicherung
1	PuO_2	3.0	0	100
2	PuO_2	3.4	0	100
3	PuO_2	4.0	0	100
4	PuO_2	3.0	2	100
5	PuO_2	3.4	2	100
6	PuO_2	4.0	2	100
7	UO_2PuO_2	3.4	0	30
8	UO_2PuO_2	4.0	0	30
9	UO_2PuO_2	4.8	0	30
10	UO_2PuO_2	3.4	2	30
11	UO_2PuO_2	4.0	2	30
12	UO_2PuO_2	4.8	2	30
13	$Pu(C_2O_4)_2$	3.0	2	100
14	$Pu(C_2O_4)_2$	3.4	2	100

Tabelle 2: Teilchenzahlendichten für die Brennstoffmischungen
1, ..., 14 (Atome/cm³ · 10⁻²⁴)

Misch.	Pu239	Pu240	H	O	U238	U235	C
1	6.46751-3	1.99189-4		1.33949-2			
2	7.32984-3	2.25747-4		1.51129-2			
3	8.62334-3	2.65585-4		1.77798-2			
4	6.46751-3	1.99189-4	1.29350-2	1.33349-2			
5	7.32984-3	2.25747-4	1.46497-2	1.51129-2			
6	8.62334-3	2.65585-4	1.72467-2	1.77798-2			
7	2.19895-3	6.77255-5		1.51409-2	5.27199-3	3.76385-5	
8	2.58700-3	7.96770-5		1.78129-2	6.20235-3	4.42806-5	
9	3.10440-3	9.56124-5		2.13755-2	7.44282-3	5.31368-5	
10	2.19895-3	6.77255-5	4.39781-3	1.51409-2	5.27199-3	3.76385-5	
11	2.58700-3	7.96770-5	5.17401-3	1.78129-2	6.20235-3	4.42806-5	
12	3.10440-3	9.56124-5	6.20881-3	2.13755-2	7.44282-3	5.31368-5	
13	4.22333-3	1.30619-4	8.44666-3	3.48318-2			1.74159-2
14	4.78644-3	1.48035-4	9.57288-3	3.94760-2			1.97380-2

Tabelle 3: Teilchenzahlendichten für Kern und Reflektor
(Atome/cm³ · 10⁻²⁴)

	O	H	C	Fe	B10	B11
Wasser	3.34611-2	6.69222-2				
Polyäthylen		8.17407-2	4.08703-2			
Stahl (0.3%C, 1/5 Normald.)			2.36402-4	1.68352-2		
Borstahl (0.3%C, 3% Bor (natur))			1.18201-3	8.41762-2	2.55812-3	1.04869-2

4. Berechnungsmethode

Die Rechnung läßt sich in zwei Schritten ausführen:

1. Bestimmung der Brennstoffzonenstärke D_{krit} (vgl. Bild 1,2,3), bei der die Anordnung kritisch ist,
2. Bestimmung der Brennstoffzonenstärke D_{sicher} , bei der die Anordnung sicher gegen Kritikalität ist.

Bei Kritikalität wird das Neutronenfeld der Anordnung durch die Lösung der zugehörigen homogenen Boltzmann-Gleichung beschrieben. Die Anwendung der Diffusionsnäherung dieser Gleichung ist hier nicht erlaubt, weil diese nur einen schwach anisotropen Fluß beschreiben kann und außerdem den Neutronenausfluß überschätzt. Da einige Zonenstärken nur wenige mittlere freie Weglängen betragen und da die Leckage wegen der großen Oberfläche/Volumen-Verhältnisse der Anordnungen einen wesentlichen Anteil an den Neutronenverlusten hat, ist der Fluß teilweise stark anisotrop bzw. geht die Genauigkeit des Ausflusses stark in die Genauigkeit von

$$(4.1) \quad k_{\text{eff}} = \text{Produktionsrate/Verlustrate}$$

ein. Es ergibt sich also die Notwendigkeit, eine höhere Näherung der Boltzmann-Gleichung, die die Flußanisotropie und die Leckage besser beschreibt, zu benutzen.

Da es aufgrund der großen H/D-Verhältnisse genügt, eindimensional radial zu rechnen, wird die Karlsruher Version des DTF-IV-Code [4] in S_4 -Transportnäherung [5] und S_4 - P_1 -Näherung (nur für Wasserstoff) angewendet.

Bei den zylindrischen Anordnungen mit endlicher Höhe wird der axiale Ausfluß durch ein geeignetes Buckling beschrieben, das mit der eingegebenen Höhe im DTF-IV berechnet wird.

Da die untersuchten Systeme schnell bis epithermisch sind, ist als Multigruppensatz der 26-Gruppen-KFK-SNEAK-Satz [6] geeignet.

Die sicheren Abmessungen ergeben sich aus der Forderung [2], daß das sichere Brennstoffvolumen höchstens 80% des kritischen Brennstoffvolumens bei gleicher Zusammensetzung und Konfiguration ausmachen darf:

$$(4.2) \quad v_{\max}^{\text{sicher}} = 0.8 v^{\text{krit}},$$

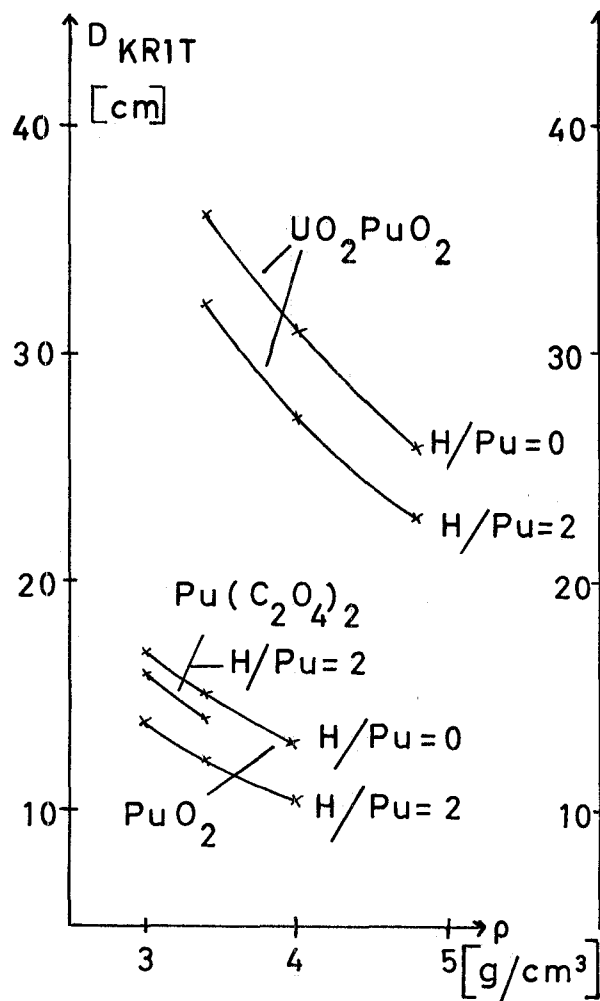
wobei V das Volumen der Brennstoffzone ist.

Bei festem Innenradius R_i der Brennstoffzone ergibt sich damit der größte sichere Außenradius R_a^{sicher} aus dem kritischen Außenradius R_a^{krit} aus der Beziehung

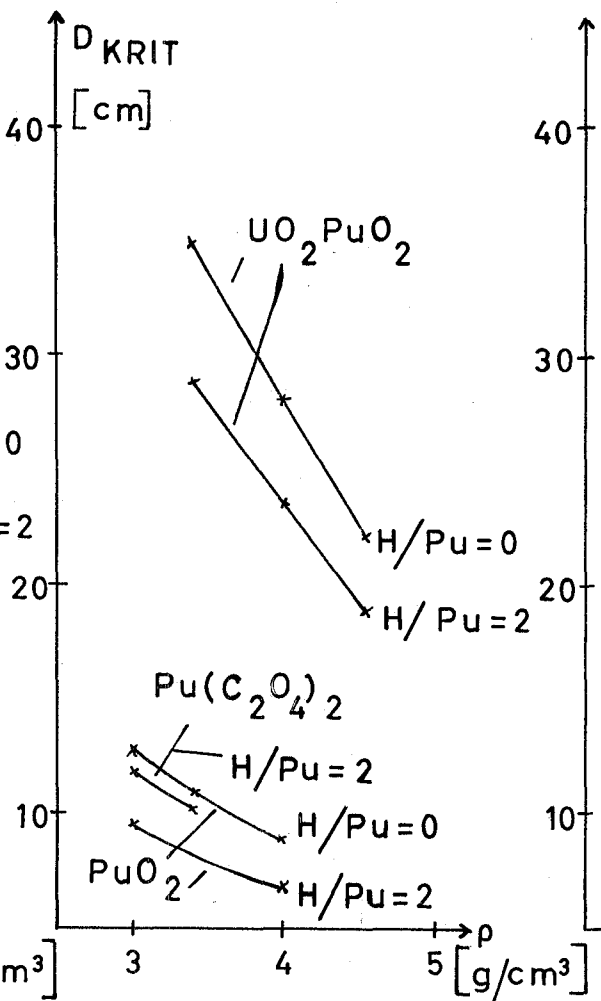
$$(4.3) \quad (R_a^{\text{sicher}})^2 - R_i^2 = 0.8((R_a^{\text{krit}})^2 - R_i^2)$$

R_a^{krit} wird der Rechnung, die die Streuung in Wasserstoff in P_1 -Näherung beschreibt, entnommen.

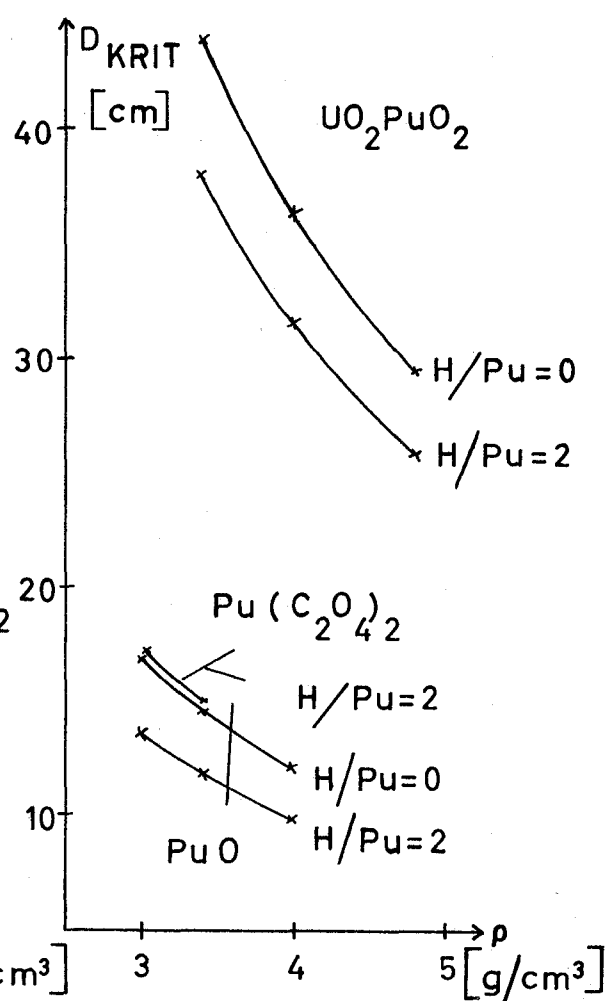
Kritische Brennstoffzonenstärke D_{KRIT} über der Brennstoffdichte ρ



PULA



PUMIX 1



PUMIX 2

5. Tabellierte Ergebnisse

Tabelle 4: Berechnete kritische Brennstoffzonenstärken D [$\bar{\text{cm}}$] in Transportnäherung und in P_1 -Näherung des Streukerns für Wasserstoff

Misch.	PULA		PUMIX 1		PUMIX 2	
	Transport	P_1	Transport	P_1	Transport	P_1
1	17.06	16.94	12.88	12.63	17.09	16.71
2	15.11	15.01	11.02	10.80	14.85	14.51
3	12.91	12.83	9.05	8.86	12.41	12.12
4	13.65	13.72	9.61	9.52	13.53	13.47
5	12.10	12.16	8.28	8.20	11.82	11.77
6	10.34	10.41	6.85	6.78	9.94	9.89
7	36.66	36.40	35.15	34.97	44.55	44.17
8	31.21	31.01	28.26	28.11	36.67	36.35
9	26.06	25.88	22.38	22.26	29.79	29.52
10	32.38	32.14	29.47	29.23	38.43	38.16
11	27.57	27.38	23.86	23.66	31.86	31.63
12	23.03	22.88	19.00	18.83	26.04	25.84
13	15.87	15.81	11.82	11.73	17.08	17.00
14	14.04	13.99	10.22	10.14	14.99	14.92

Tabelle 5: Berechnete sichere Brennstoffzonenstärken D [cm]

Misch.	PULA	PUMIX 1	PUMIX 2
1	15.15	10.61	14.14
2	13.42	9.03	12.24
3	11.47	7.37	10.17
4	12.27	7.93	11.33
5	10.88	6.81	9.86
6	9.30	5.61	8.25
7	32.56	30.20	38.35
8	27.72	24.14	31.41
9	23.14	18.99	25.38
10	28.75	25.13	33.02
11	24.48	20.22	27.24
12	20.45	16.00	22.14
13	14.14	9.83	14.40
14	12.51	8.47	12.59

6. Diskussion der Ergebnisse

Anhand der berechneten kritischen Abmessungen (Tabelle 5) und der Brennstoffeigenschaften (Tabelle 1 und 2) läßt sich folgendes feststellen und diskutieren:

- (a) Bei alleiniger Änderung der Brennstoffdichte nimmt die kritische Behältergröße mit zunehmender Brennstoffdichte ab (vgl. z.B. PULA: Mischung 1 → Mischung 2). Der Grund hierfür ist folgender: Der effektive Multiplikationsfaktor ist

$$\begin{aligned} k_{\text{eff}} &= \frac{\text{Produktionsrate}}{\text{Absorptionsrate} + \text{Leckagerate}} \\ (6.1) \quad &= \frac{\overline{\nu \Sigma_f \phi} \cdot V}{\overline{\Sigma_a \phi} V + R_L} \end{aligned}$$

$$(6.2) \quad = k_{\infty} \frac{1}{1 + R_L / \overline{\Sigma_a \phi} \cdot V}$$

Dabei ist V das Volumen des Behälters, Σ_a bzw. Σ_f der makroskopische Absorptions- bzw. Spaltquerschnitt, ν die Zahl der Sekundärneutronen pro Spaltung, ϕ der skalare Neutronenfluß und R_L die Zahl der Neutronen, die pro Sekunde den Behälter verlassen.

Da Σ_a und Σ_f der Dichte proportional sind, hängt $k_{\infty} = \overline{\nu \Sigma_f \phi} / \overline{\Sigma_a \phi}$ nur schwach über ϕ von der Dichte ab.

Nach 6.2 bleibt daher das System kritisch, wenn die Leckagerate R_L gemessen an der Absorptionsrate $\overline{\Sigma_a \phi} V$ ungeändert bleibt, d.h. wenn das Vergrößern der Dichte durch ein Verkleinern des Volumens kompensiert wird.

- (b) Bei alleiniger Änderung des H/Pu-Verhältnisses nimmt die kritische Behältergröße mit steigendem H/Pu-Verhältnis ab (vgl. z.B. PULA: Mischung 2 → Mischung 5).

Dieses Verhalten erklärt sich aus der Erweichung des Spektrums durch stark degradierende Streuung der Neutronen an Wasserstoff.

Die sich daraus ergebende geringere Leckage wird durch ein Verkleinern des Behälters kompensiert. Gegenläufig hierzu wirkt das Abfallen von $k_{\infty} = \frac{\overline{v\Sigma_f\phi}}{\Sigma_a\phi}$ durch das in die Mittelwertbildung über ϕ eingehende weichere Spektrum. Wegen der großen H/D-Verhältnisse ist der Leckageeffekt hier jedoch dominant.

- (c) Bei alleiniger Änderung der Brennstoffzusammensetzung und der Plutoniumanreicherung: $\text{PuO}_2 \rightarrow \text{UO}_2 + \text{PuO}_2$ mit 100% Pu \rightarrow 70% Natururan + 30% Pu, nimmt die kritische Behältergröße erheblich zu (vgl. z.B. PULA: Mischung 2 \rightarrow Mischung 7).

Dieses Verhalten ist durch die Absorption in U238 bedingt und läßt sich mit Hilfe von Gleichung (6.2) verstehen. Durch Ersetzen eines Teiles des Plutoniums durch Natururan wird $\overline{v\Sigma_f\phi}$ kleiner und $\Sigma_a\phi$ größer, aber k_{∞} kleiner. Kompensiert wird dies durch ein Verkleinern der Leckagerate gemessen an der Absorptionsrate durch Vergrößern des Behälters. Die starke Änderung der Behältergröße erklärt sich aus der starken Verkleinerung der Plutoniumanreicherung und damit von k_{∞} , dem durch Verkleinern einer additiven Größe im Nenner entgegengewirkt werden muß.

- (d) Bei alleiniger Änderung der Brennstoffzusammensetzung: $\text{PuO}_2 \rightarrow \text{Pu}(\text{C}_2\text{O}_4)_2$, nimmt die kritische Behältergröße zu (vgl. z.B. PULA: Mischung 4 \rightarrow Mischung 13).

Ausschlaggebend für diese Zunahme der kritischen Behältergröße ist die Abnahme der Plutoniumkonzentration. Ausgehend von Gl. (6.2) sieht man, da k_{∞} näherungsweise ungeändert bleibt - Sauerstoff und Kohlenstoff sind praktisch nur elastische Streuer - daß die Abnahme der Absorptionsrate durch ein Abnehmen der Leckagerate ausgeglichen werden muß. Das bedeutet jedoch eine Zunahme der kritischen Behältergröße.

- (e) Beim Übergang von PUMIX 1 auf PUMIX 2 bei festgehaltener Brennstoffzusammensetzung und -dichte, H/Pu-Verhältnis und Plutoniumanreicherung nimmt die kritische Behältergröße zu (vgl. z.B. PUMIX 1, Mischung 4 \rightarrow PUMIX 2, Mischung 4).

PUMIX 1 hat einen verdünnten Eisenkern, PUMIX 2 einen Polyäthylenkern, der von einem Borstahlmantel eingeschlossen ist. Damit ist der

von PUMIX 1 bis auf schwache elastische Degradation transparent, während der Kern von PUMIX 2 die einfallenden Neutronen thermalisiert, durch Einfang im Bor an der Rückkehr in die Brennstoffzone hindert und damit als Neutronenfalle wirkt. Es zählt daher anders als bei PUMIX 1 bei PUMIX 2 die Brennstoffzoneninnenfläche zur Brennstoffzonenoberfläche. Da die Produktions- und Absorptionsrate und damit k_{∞} sich beim Übergang von PUMIX 1 auf PUMIX 2 nicht ändern, darf sich auch die Leckagerate gemessen an der Absorptionsrate nicht ändern. Dies wird erreicht, indem das Anwachsen der Oberfläche durch ein entsprechendes Anwachsen des Volumens der Brennstoffzone kompensiert wird.

- (f) Der Übergang im Streukern von der Transportnäherung für Wasserstoff zur P_1 -Näherung für Wasserstoff liefert für alle Systeme eine Abnahme der kritischen Zonenstärke. Ausnahme: PULA mit PuO_2 -Brennstoff und $H/\text{Pu}=2$.

Die verwendete Transportnäherung ist die "verbesserte Transportnäherung mit isotropen Übergängen" [5,7]. Diese Transportnäherung zeigt zur P_1 -Näherung folgenden charakteristischen Unterschied:

Ein Fluß mit Vorzugsrichtung erfährt durch den Streukern der Transportnäherung eine stärkere Ausprägung dieser Vorzugsrichtung als durch den Streukern der P_1 -Näherung [7].

Für Systeme, bei denen der Neutronenstrom in allen Energiegruppen - evtl. mit Ausnahme der thermischen Gruppe - aus der Brennstoffzone hinausweist, bedeutet damit der Übergang im Streukern von der Transportnäherung zur P_1 -Näherung bei zunächst festgehaltener Zonenstärke eine Abnahme der Leckagerate gemessen an der Absorptionsrate. Dies muß, soll das System kritisch bleiben, durch ein Verkleinern der Brennstoffzonenstärke kompensiert werden. Dies erklärt das Verhalten aller betrachteten Systeme mit Ausnahme von PULA, Mischung 4, 5 und 6.

In einer zylindrischen, reflektierten Brennstoffzone, deren Durchmesser wenige mittlere freie Weglängen beträgt, gelangen mehr Spaltneutronen nach wenigen Stößen im Brennstoff tief genug in den Reflek-

tor, um dort weiter abgebremst zu werden, als Neutronen im Brennstoff bleiben und dort moderiert werden. Daraus ergibt sich bei niederen Energien eine Überbevölkerung im Reflektor gemessen an der Bevölkerung im Brennstoff, so daß von diesen Neutronen mehr vom Reflektor in den Brennstoff als vom Brennstoff in den Reflektor wandern. Der Neutronenstrom bei niederen Energien ist also nach innen gewichtet. Dieses Verhalten ist umso ausgeprägter je kleiner der Durchmesser des Zylinders ist. Für diese Systeme ergibt sich damit beim Übergang von der Transportnäherung zur P_1 -Näherung eine Zunahme der Leckagerate gemessen an der Absorptionsrate in der Umgebung der Pu-239-Spaltresonanz in der 20. Gruppe bei zunächst festgehaltener Brennstoffzonenstärke. Bei Erhaltung der Kritikalität muß dies durch ein Vergrößern dieser Zonenstärke ausgeglichen werden.

Quellenangaben

- [1] Nuclear Safety 1961, TID-7016 Rev. 1
- [2] IAEA-Safety-Series No. 6 (1967)
Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials
- [3] H. Beißwenger, private Mitteilungen, 28.10.68
- [4] K.D. Lathrop, DTF-IV, A Fortran IV Program for Solving the Multigroup Transport Equation with Anisotropic Scattering, LA-3373 (1965)
- [5] L.P. Abagjan u.a., Gruppenkonstanten schneller und intermediärer Neutronen für die Berechnung von Kernreaktoren, (ABN-Satz), KFK-tr-144 (1964)
- [6] H. Huschke, Gruppenkonstanten für dampf- und natriumgekühlte schnelle Reaktoren in einer 26-Gruppendarstellung, KFK-770 (1968)
- [7] H.W. Wiese, Boltzmann-Gleichung in Transportnäherung und in P_1 -Näherung des Streukerns für Wasserstoff, (unveröffentlicht)