

Lappeenrannan teknillinen yliopisto

Teknillinen tiedekunta

Energiatekniikan koulutusohjelma

BH10A0200 Energiatekniikan kandidaatintyö ja seminaari

Sulasuolareaktorien historia

The history of molten salt reactors

Työn ohjaaja ja tarkastaja: Ville Rintala

Lappeenranta 22.5.2014

Jarkko Ahokas

TIIVISTELMÄ

Tekijän nimi: Jarkko Ahokas

Opinnäytteen nimi: Sulasuolareaktorien historia

Teknillinen tiedekunta

Energiatekniikan koulutusohjelma

Kandidaatintyö 2014

35 sivua, 7 kuvaa, 2 taulukkoa

Hakusanat: kandidaatintyö, sulasuolareaktori, historia

Kandidaatintyössä esitellään sulasuolareaktorien historian lisäksi lyhyesti reaktoriyyppin toimintaperiaate ja sulasuolareaktoritutkimuksen nykytilanne.

Kandidaatintyöstä käy ilmi, että Oak Ridgen kansallinen laboratorio ORNL oli merkittävä tekijä sulasuolareaktoritutkimuksessa 1940-luvun lopulta aina 1980-luvun alkuun. Ainoat rakennetut sulasuolatekniikkaa käyttävät reaktorit olivat ORNL:n kehittämiä.

Oak Ridgen kansallisen laboratorion lopetettua sulasuolatekniikan tutkimusohjelmansa, laantui sulasuolareaktoritutkimus pitkäksi aikaa. 2000-luvun alussa kiinnostus tekniikkaa kohtaan virkosi ja kirjoitushetkellä sulasuolareaktoreita kehitetään useissa tutkimusohjelmissa.

SISÄLLYSLUETTELO

Tiivistelmä	2
Sisällysluettelo	3
Symboli- ja lyhenneluettelo	4
1 Johdanto	5
2 Sulasuolareaktorin toimintaperiaate	6
2.1 Sulasuolat	9
2.2 Sulasuolareaktorioiden taloudellisuus	10
2.3 Sulasuolareaktorioiden turvallisuus.....	10
2.4 Sulasuolareaktorioiden potentiaaliset ongelmat	12
2.4.1 Jalometallien kerääntyminen.....	12
2.4.2 Tritiumin kontrollointi	12
2.4.3 Sähkön tuottaminen.....	13
2.4.4 Komponentit.....	13
3 Sulasuolareaktorioiden historia	14
3.1 Lentokoneen työntövoiman kehittäminen ydinenergialla	14
3.1.1 Aircraft Reactor Experiment	15
3.2 Sulasuolatekniikalla toimiva tehoreaktori	19
3.3 Denaturoitu sulasuolareaktori.....	27
3.4 Tutkimus Oak Ridgen lopetettua MSR-ohjelmansa.....	28
4 Sulasuolareaktorioiden nykytutkimus	29
4.1 LFTR-reaktori	29
4.2 Kiina	30
4.3 Ranska	31
4.4 Tšekki	31
4.5 Venäjä.....	32
5 Sulasuolareaktorioiden tulevaisuuden näkymät	33
6 Yhteenveto	35
Lähdeluettelo	36

SYMBOLI- JA LYHENNELUETTELO

Lyhenteet

AEC	Atomic Energy Commission, Yhdysvaltojen atomienergiakomissio
ANP	Aircraft Nuclear Propulsion, tutkimusohjelma
ARE	Aircraft Reactor Experiment, tutkimusohjelma
MIT	Massachusetts Institute of Technology, Massachusettsin teknillinen korkeakoulu
MSR	Molten Salt Reactor, sulasuolareaktori
MSRE	Molten Salt Reactor Experiment, koereaktori
ORNL	Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridgen kansallinen laboratorio

1 JOHDANTO

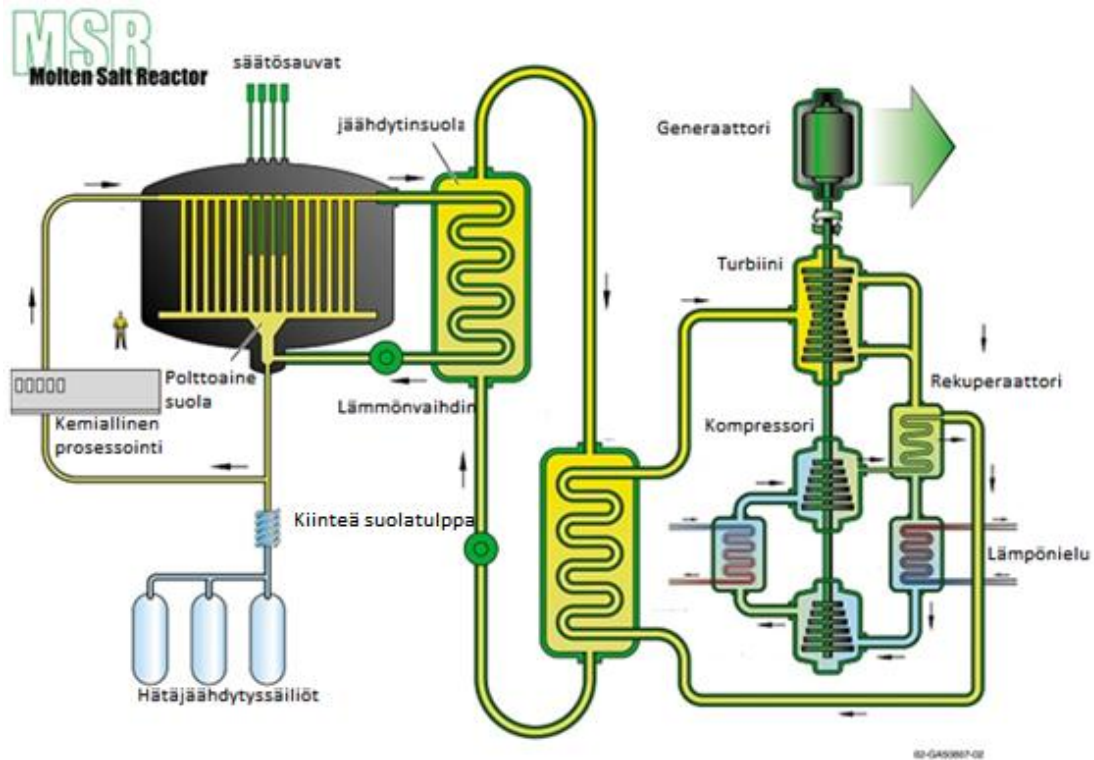
Tässä kandidaatintyössä esitetään sulasuolareaktorien kehitys- ja suunnitteluhistoriaa sekä kyseisen reaktorityypin toimintaperiaate. Kandidaatintyön pääpaino on sulasuolareaktorien historiassa. Erityisesti työssä pyritään selvittämään ja esittämään 1950-1970 -luvuilla Oak Ridgen kansallisessa laboratoriossa (ORNL) tehtyjä kokeita ja sulasuolareaktoritutkimusta. Lisäksi kandidaatintyössä esitellään lyhyesti sulasuolareaktorien tutkimus- ja kehitystyön nykytilanne.

Sulasuolareaktorien historiaa tutkimalla voidaan arvioida muun muassa sulasuolareaktorien soveltuvuutta tulevaisuuden reaktorityypinä. Sulasuolareaktorien parissa tehtyä kehitys- ja suunnittelutyötä voidaan hyödyntää esimerkiksi reaktorimateriaalien valinnassa ja tutkimusprojekteissa havaittujen ongelmien ratkaisemiseen. Kandidaatintyön tarkoituksena on historian esittelemisen lisäksi muodostaa mielipide sulasuolareaktorien soveltuvuudesta neljännen sukupolven reaktoriksi.

2 SULASUOLAREAKTORIN TOIMINTAPERIAATE

Sulasuolareaktorin englanninkielinen nimi on Molten Salt Reactor ja tästä johdettua lyhennettä MSR käytetään myös tässä kandidaatintyössä. Sulasuolareaktorissa ei ole kiinteää polttoainetta vaan fissiilien ja/tai fertiilien materiaalien fluoridit liuotetaan kuljettavaan suolaan. Fissiilinä materiaalina voi olla esimerkiksi uraanifluoridi UF_4 tai plutoniumfluoridi PuF_3 ja fertiilinä materiaalina puolestaan toriumfluoridi ThF_4 . Yhden suolan reaktorikonseptissa kuljettava suola sisältää sekä fertiilejä että fissiilejä fluorideja. Tällaisen reaktorin sydän on helpompi suunnitella, mutta ongelmaksi voi muodostua fissiotuotteiden poistaminen. Torium on kemiallisesti hyvin lähellä useita harvinaisia maametalleja, joita syntyy fissiotuotteina (LeBlanc 2010, 30). Kahden suolan konseptissa fertiileillä ja fissiileillä fluorideilla on omat suolat, joihin fluoridit sekoitetaan.

Sulasuolareaktorissa suola toimii sekä fissiilien ja fertiilien materiaalien kuljettajana että reaktorin jäähdytinaineena. Tämä polttoainepitoinen suola kiertää reaktorin primääripiirissä eli myös polttoaine kiertää reaktorin sydämen läpi. (LeBlanc 2009, 1) Kuvassa 1 on esitetty sulasuolareaktorin periaatekaavio.



Kuva 1. MSR periaatekaavio (muokattu lähteestä Gen IV IF 2014)

Sulasuolareaktori voidaan suunnitella termiselle tai nopealle neutronispektrille. Termisen spektrin reaktorissa ketjureaktion aiheuttavat neutronit hidastetaan pienille energiatasoille. Yleisesti puhutaan termisistä neutroneista, joiden energia on luokkaa alle 1 eV. Hidastimena reaktorissa on grafiittiblokkeja ja fissioita tapahtuu ainoastaan tässä osassa reaktoria eli polttoainepitoinen suola on kriittistä ainoastaan reaktorin sydämessä. Sama polttoainepitoinen suola kiertää alikriittisenä lämmönvaihtimeen. Tämä lämmönvaihdin on primääri- ja sekundääripiirin välillä ja reaktorin sydämessä kuumentunut polttoainesuola luovuttaa lämmönvaihtimen avulla lämpöä sekundääripiirissä kiertävälle kuljetinsuolalle. Sekundääripiirin suola luovuttaa lämpöä edelleen toisen lämmönvaihtimen kautta tertiääripiirille. Tertiääripiirissä on lämpöenergiaa hyödyntävä turbiini, jolla tuotetaan sähköä. MSR:n korkean toimintalämpötilan johdosta (yli 700 °C) lämpövoimakoneena voidaan käyttää myös kaasuturbiinia. (LeBlanc 2010, 29)

Nopean spektrin sulasuolareaktorilla (FS-MSR) on muutamia etuja verrattuna termisen spektrin sulasuolareaktoriin. Polttoaineen jälleenkäsittelyn pitäisi olla yksinkertaisempaa FS-MSR:llä, koska fissiotuotteet eivät kaappaa yhtä paljon ja yhtä usein neutroneja kuin termisen spektrin MSR. Tämä vähentää jälleenkäsitteltävän polttoaineen määrää, jolloin polttoaineen jälleenkäsittelylaitos voi olla paljon pienempi. Lisäksi FS-MSR ei tarvitse moderaattoria. Näistä eduista huolimatta yhtään nopean spektrin sulasuolareaktoria ei ole rakennettu. Torium voidaan täysin hyödyntää myös termisen spektrin sulasuolareaktorissa, joten pakottavaa tarvetta kehittää FS-MSR-konseptia ei ole. Tulevaisuudessa FS-MSR voi auttaa laajentamaan fissiilin materiaalin inventaariota mahdollistamalla kevytvesireaktorien käytetyn polttoaineen kierrättämisen sulasuolareaktorin polttoaineena. (Endicott 2013, 13)

Monet fissiotuotteet muodostavat nopeasti stabiileja fluoridiyhdisteitä ja nämä yhdisteet pysyvät suolassa onnettomuus- tai vuoto-tilanteissa. Helposti haihtuvat tai liukenemattomat fissiotuotteet poistetaan kierrosta. Reaktiivisuusmyrkkynä toimiva ksenon haihtuu suolasta ja voidaan varastoida reaktorin kiertopiirien ulkopuolella. (LeBlanc 2010, 30)

Sulasuolareaktorit voidaan jakaa kahteen pääkategoriaan. Hyötöreaktorit tuottavat tarvitsemansa fissiilin materiaalin itse, lukuun ottamatta reaktorin käynnistykseen tarvittavaa fissiiliä materiaalia. Tyypillinen suunnitelma sulasuolahyötöreaktorille on aloittaa toiminta käyttämällä fertiilinä materiaalina toriumia, joka ydinreaktioiden kautta muuntuu uraanin isotoopiksi ^{233}U . Tämä uraanin isotooppi on fissiili ja fissioissa syntyvät neutronit pommittavat reaktorin sydämessä jäljellä olevaa toriumia, joka jälleen muuntuu uraaniksi. Sulasuolareaktorien ei kuitenkaan tarvitse olla hyötöreaktoreita eikä toriumin käyttäminen ole välttämätöntä. Tällaiset sulasuolareaktorit tarvitsevat jokavuotista fissiilin materiaalin täydennystä, mutta niiden etuna on mahdollisuus käyttää pienen rikastusasteen uraania. Lisäksi nämä sulasuolareaktorit hyödyntävät uraanin energiasisällön erinomaisesti. (LeBlanc 2010, 30)

2.1 Sulasuolat

Sulasuolat ovat yleensä täysin ionisoituneita liuottimia, joiden nestemäisen olomuodon ominaisuudet ovat samankaltaisia kuin perinteisemmällä liuottimilla. Erona on sulasuolien huomattavasti suurempi ionikonsentraatio ja tästä johtuva parempi sähköjohtavuuskyky. Sulasuolat ovat termisesti stabiileja eivätkä ne kärsi radiolyysistä. Sulasuolat ovat myös hyviä liuottimia, joten fertiilit ja fissiilit materiaalit on helppo liuottaa sulasuolaan. (Getta V. et al., 2008, 523)

Kuljettavana suolana käytetään yleisesti litiumin, berylliumin, zirkoniumin ja natriumin fluorideja (LiF-BeF-ZrF-NaF) eri suhteissa halutuista ominaisuuksista riippuen. Eräs kuljetinsuolaseos on Flibe ($2\text{LiF}\text{-BeF}_2$), jonka sulamispiste on noin $460\text{ }^\circ\text{C}$ (LeBlanc 2010, 29).

Sulat fluoridisuolat ovat erinomaisia jäähdytinaineita. Niillä on noin 25 % suurempi tilavuuslämpökapasiteetti kuin paineistetulla vedellä ja noin viisinkertainen tilavuuslämpökapasiteetti verrattuna nestemäiseen natriumiin. Suuremman lämpökapasiteetin johdosta MSR:n primääripiirin komponentit, kuten pumput ja lämmönvaihtimet, voivat olla kooltaan pienempiä, kuin perinteisempien kevytvesireaktoreiden vastaavat komponentit. (LeBlanc 2010, 30)

Fluoridisuolat ovat hyvin säteilyä kestäviä ja kemiallisesti stabiileja. Lisäksi niillä on alhainen höyrynpaine korkeissa lämpötiloissa ts. niiden höyrystymislämpötilat ovat huomattavan korkeita. Tämän takia MSR voi toimia hieman ilmanpainetta korkeammassa paineessa, vaikka suolan lämpötila olisi $700\text{--}900\text{ }^\circ\text{C}$. Alhaisen paineen johdosta sulasuolareaktori ei vaadi paksuseinäisiä paineastioita. Reaktorin nesteet eivät sisällä vettä tai natriumia, joten höyryräjähdysen mahdollisuus reaktorin suojarakennuksessa on mitätön. (LeBlanc 2010, 30)

Sulasuolilla on myös joitain huonoja ominaisuuksia, jotka johtuvat pääosin niiden kemiallisesta reaktiivisuudesta ja korkeasta lämpötilasta. Sulasuolat reagoivat kemiallisesti veden kanssa, joten on tärkeää eristää sulasuolat avoimesta ilmakehästä. Sulasuolien korkea kemiallinen ja sähkökemiallinen kinetiikka voi aiheuttaa korroosio-ongelmia lämpötilagradienttien yhteydessä ja lisäksi sulasuolat voivat osittain liuottaa metalleja ja alkalimetalleja. Näistä ongelmista johtuen vain tietyt materiaalit soveltuvat

reaktorikomponentteihin, kuten erilaisiin säiliöihin ja kalvoihin. (Getta V. et al., 2008, 525)

2.2 Sulasuolareaktorien taloudellisuus

Sulasuolahyötöreaktorin pääomakustannuksia laskevat reaktorin korkea terminen hyötysuhde, matalat primääripiirin painetasot sekä vähäiset pumppaustarpeet. Näin myös kalliiden painetta kestävien komponenttien osuus jää pienemmäksi kuin nykyisissä 3. sukupolven tehoreaktoreissa. Sulasuolareaktorien etuna on myös se, että niiden käynnistämiseen voidaan käyttää ^{233}U , ^{235}U tai plutoniumia riippuen mikä näistä on kulloinkin halvinta ja parhaiten saatavilla. Polttoaineen prosessoinnin helppous ja pieni fissiilin materiaalin inventaario aikaansaavat matalat polttoainesyklikustannukset. Nämä tekijät kompensoivat niitä ylimääräisiä kustannuksia, joita syntyy radioaktiivisten nesteiden käsittelystä sekä aktivoituneiden laitteiden ylläpidosta. (Rosenthal et al 1969, 5)

Arvioitaessa reaktoreiden suorituskykyä on tärkeää ottaa huomioon huoltoseisokkien pituudet. Fissiotuotteiden aktiivisuudesta johtuen osa sulasuolareaktorin komponenteista aktivoituu vastaavien komponenttien jäädessä aktivoitumatta perinteisimmissä kevytvesireaktoreissa. Tämän takia näiden komponenttien huoltoon menee pitempi aika sulasuolareaktoreissa. Tätä kompensoi se, että sulasuolareaktori ei tarvitse latausseisokkia eli polttoainetta voidaan syöttää järjestelmään reaktorin ollessa toiminnassa. (Rosenthal et al 1969, 6)

2.3 Sulasuolareaktorien turvallisuus

Sulasuolareaktoreilla on vahvat negatiiviset reaktiivisuuden lämpötila- ja aukkokerroimet. Nämä parantavat reaktorikonseptin turvallisuutta ja mahdollistavat myös automaattisen kuormitusta seuraavan reaktorin käytön (LeBlanc 2010, 30). Vahvan negatiivisen lämpötilakertoimen johdosta MSR:n lämpötilan säätö on passiivinen. Sulasuola laajenee fissioreaktioista syntyvän lämmön johdosta ja tämä puolestaan hidastaa fissioreaktionopeutta. Fissioissa syntyvän lämmön vähentyessä sulasuola jäähtyy ja fissioreaktionopeus kiihtyy. Toisin sanoen reaktorin lämpötilan noustessa sen reaktiivisuus pienenee. Reaktorin ylikuumetessa sen aktiivisuus pienenee

automaattisesti. Tämä reaktio toimii myös käänteisesti; jos reaktorilta vaaditaan lisää tehoa poistetaan reaktorista lisää lämpöä. Reaktoriin palaava kylmempi sulasuola lisää reaktiivisuutta ja reaktorin tehoa. Sulasuolareaktori seuraa kuormitusta automaattisesti. (Endicott 2013, 6)

Sulasuolareaktori voi ylikuumentua ainoastaan, jos reaktorin sydäimestä lämpöä poistavan sulasuolan kierto reaktorissa häiriintyy tehonmenetyksen takia. Tällaisessa onnettomuustilanteessa reaktorijärjestelmään kertynyt ylimääräinen lämpö sulattaa reaktorin pohjalla olevat kiinteät suolatulpat ja syntyvien aukkojen kautta ylikuumentunut sulasuola valuu erillisiin säiliöihin. Näissä säiliöissä ketjureaktio pysähtyy ja nestemäinen polttoaine jäähtyy inertiksi kiinteäksi massaksi. Tämä turvallisuusjärjestelmä on täysin passiivinen eikä vaadi ulkoista tehonlähdettä. (Endicott 2013, 6)

Sulasuolareaktoreilla on alhainen käyttöpaine. Monet MSR-konseptit on suunniteltu toimimaan lämpötilavälillä 650 °C - 750 °C sulasuolien kiehumispisteen ollessa 1400 °C luokkaa. Reaktorissa kiertävä sulasuola on siis nestemäisessä muodossa ja reaktorin paine pysyy noin ilmakehän paineessa. Alhainen käyttöpaine eliminoi paineräjähdyksen mahdollisuuden. (Endicott 2013, 6)

Perinteisissä kevytvesireaktoreissa jäähdytteenmenetysonnettomuudessa keraamisten polttoainepellettien sulaminen vapauttaa kaasumaisia fissiotuotteita ympäristöön. Vaikka MSR:ssä sulasuola jostain syystä pääsisi vuotamaan pois reaktorista, alhaisen käyttöpaineen takia suola ainoastaan valuisi reaktorin lattialle, jossa se kiinteytyy inertiksi massaksi. Fissiili polttoaine säilyy massan sisällä. Useimmissa MSR-konsepteissa stabiileja fluorideja muodostavat fissiotuotteet säilyvät suolassa. Liukenemattomia ja haihtuvia fissiotuotteita poistetaan jatkuvasti reaktorin käynnin aikana. (Endicott 2013, 6)

2.4 Sulasuolareaktorioiden potentiaaliset ongelmat

2.4.1 Jalometallien kerääntyminen

Fission tuotteina syntyvät jalometallit eivät liukene sulasuolaan vaan kerrostuvat reaktorikomponenttien pinnoille. Nämä jalot fission tuotteen tuottavat suuria määriä jälkilämpöä, joka voi vahingoittaa lämmönvaihdinta. Jotta MSR toimisi onnistuneesti ja turvallisesti, jalometallit täytyy kerätä talteen sulasuolasta. Rakentamalla lämmönvaihdin uusista materiaaleista, kuten hiilikomposiittiyhdisteistä, voidaan mahdollisesti välttää haitallinen jalometallien kerrostuminen lämmönvaihtimen pinnoille. Jalometallien kerrostuminen voidaan yrittää saada aikaan reaktorin vähemmän ongelmallisille alueille käyttämällä esimerkiksi eräänlaisia hiilivaahtomatriiseja, jotka absorboivat jalometalleja. Jalometalliongelman tutkiminen on kuitenkin kallista, koska se vaatii testireaktorin tai radioaktiivisen suolakierroksen rakentamisen. (Endicott 2013, 21)

2.4.2 Tritiumin kontrollointi

Tritium on radioaktiivinen vedyn isotooppi, jota syntyy suuria merkittäviä määriä MSR:ssä fission tuotteena. Lisäksi tritiumia syntyy neutronien reagoitessa polttoainesuolassa olevan litiumin kanssa. Tritium voi olla terveydelle vaarallista, jos se pääsee ihmisen kehon sisään. (Endicott 2013, 21)

MSR toimii korkeissa lämpötiloissa, joissa tritiumin läpäisevyys muiden materiaalien läpi kasvaa ja tritium voi päätyä tehoa tuottavaan kiertoon. Tämä lisää hallitsemattoman vapautumisen riskiä ympäristöön. Sulasuolareaktoreissa tritium täytyy siksi kerätä talteen ja eristää kierrosta. Oak Ridgen MSR-konseptit olettivat, että reaktorissa syntyvä lämpö hyödynnetään tehon tuottamiseen Rankine-prosessissa höyryn avulla. Tritium reagoi höyryn kanssa muodostaen superraskasta vettä (tritiumoksidia) ja superraskaan veden erottaminen tavallisesta vedestä on monimutkaista. ORNL:n testit osoittivat, että tritium voidaan kaapata sekundäärijäähdytteeseen, jos tämä jäähdyte sisältää natriumfluoriboraattia. Myöhemmät analyysit ovat kuitenkin osoittaneet, että tämä ratkaisu tritiumongelmaan on kallis ja vaikea toteuttaa, varsinkin kun kyseessä on suuret määrät tritiumia. Tritiumongelman ratkaisu voi olla eri prosessin käyttäminen tehon

tuottamiseksi, esimerkiksi Brayton-prosessia käyttävä kaasuturbiini. Tritium voidaan poistaa kaasusta Brayton-prosessissa ja helium-jäähdytteisillä korkean lämpötilan reaktoreilla on osoitettu, että tritiumin poistaminen heliumkaasusta on taloudellista. (Endicott 2013, 21)

2.4.3 Sähkön tuottaminen

Oak Ridgen MSR-projektin aikaan Rankine-höyryprosessi oli ainut todistettavasti toimiva tapa muuntaa lämpöä sähköksi sulasuolareaktoreissa. Höyrykierto aiheutti useita ongelmia sulasuolareaktorin kehitystyölle. Näitä olivat mm. sulasuolan ja veden kemialliset reaktiot, suolajäähdytteen mahdollinen kiinteytyminen höyrykierron suhteellisen pienen lämpötilan johdosta ja edellisessä kappaleessa esitetty tritiumongelma. Brayton-prosessia hyödyntävä kaasuturbiini tarjoaa useita mahdollisia etuja verrattuna höyryturbiiniin MSR-sovelluksissa. Tritiumin helpomman poistamisen lisäksi Brayton-prosessissa ei ole riskinä jäähdytteenä toimivan sulasuolan jäätyminen. (Endicott 2013, 22)

2.4.4 Komponentit

Sulasuolareaktorit toimivat korkeissa lämpötiloissa ja reaktorin fyysiset ja kemialliset olosuhteet poikkeavat nykyisin käytössä olevista ydinreaktoreista. Tutkimusta vaaditaan muun muassa lämmönvaihdinten, pumppujen, venttiilien ja instrumentoinnin termisten ja kemiallisten soveltuvuuksien varmistamiseksi. Lämmönvaihtimien arvioidaan tuottavan suurimmat ongelmat. Lämmönvaihdin on järjestelmän kylmäpiste ja lämmönvaihtimessa on suuri lämpövirta. Molemmat tekijät voivat edesauttaa korroosion leviämistä ja korroosiotuotteiden kerääntymistä eri pinnoille. Lämmönvaihtimet täytyy suunnitella myös siten, että niitä voidaan huoltojen yhteydessä tutkia ja korjata. Haasteena on halu suunnitella lämmönvaihtimet siten, että saavutetaan paras mahdollinen terminen tehokkuus minimoimalla lämmönvaihtimen seinämäpaksuus ja maksimoimalla lämmönsiirtopinta-ala. (Serp J et al. 2014, 10)

3 SULASUOLAREAKTORIEN HISTORIA

Sulasuolareaktorien tutkimus- ja kehitystyö aloitettiin 1940-luvun lopussa Yhdysvalloissa. Sulasuolareaktorien kehityksestä vastasi pääosin Oak Ridge National Laboratory (ORNL). ORNL:n rahoittajina ovat toimineet mm. Yhdysvaltojen asevoimat, Yhdysvaltojen atomienergiakomissio (AEC) ja lopulta Yhdysvaltojen energiaministeriö. Sulasuolareaktorien kehitystyö aloitettiin Yhdysvaltojen ilmavoimien toimeksiantona. Myöhemmin päätettiin selvittää sulasuolan soveltuvuus kaupallisiin tehoreaktoreihin.

3.1 Lentokoneen työntövoiman kehittäminen ydinenergialla

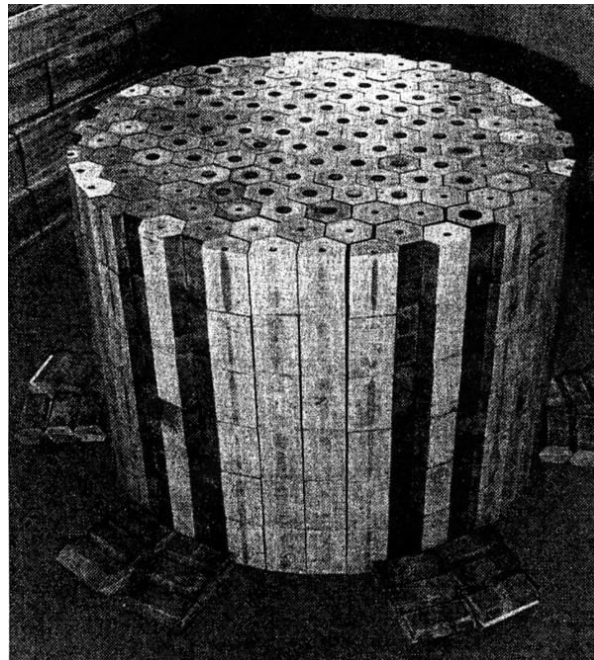
Vuonna 1946 Yhdysvaltojen ilmavoimat aloitti ohjelman, jonka tarkoituksena oli kehittää ydinvoimakäyttöinen lentokone. Armeija teki sopimuksen Fairchild Engine and Airplane -yhtiön kanssa. Fairchild:in tuli selvittää projektin toteutuskelpoisuus. Yhtiö keskitti tutkimustyön Oak Ridgeen lähelle uraanirikastuslaitosta. Oak Ridgen kansallinen laboratorio (ORNL) tarjosi apua. Projektin toteuttamiskelpoisuuteen suhtauduttiin skeptisesti ja tämän takia AEC pyysi myös Massachusettsin teknillisen korkeakoulun (MIT) henkilökuntaa tekemään arvion projektin toteuttamiskelpoisuudesta. MIT:n arvion mukaan ydinkäyttöisen lentokoneen kehitys maksaisi noin miljardi dollaria ja kestäisi 15 vuotta, mutta projekti olisi toteutettavissa. Arviosta rohkaistuneena Yhdysvaltain atomienergiakomissio ohjasi ORNL:ää aloittamaan ANP-tutkimusohjelman (Aircraft Nuclear Propulsion), jonka tarkoituksena oli tutkia lentokoneen työntövoiman kehittämistä ydinenergialla. General Electric (GE) korvasi Fairchild:in ja siirsi projektin kehitystyön Ohioon. Noin 180 Fairchildin projektissa mukana ollutta henkilöä jäi kuitenkin Oak Ridgeen ja liittyi ORNL:n tutkimusohjelmaan. (Rosenthal 2009, 24)

Ydinvoimakäyttöisen lentokoneen työntövoiman kehitykseen oli kaksi eri lähestymistapaa; suoran kierron menetelmä ja epäsuoran kierron menetelmä. Suorassa kierrossa suihkumoottorin tarvitsema ilma menisi suoraan reaktorin läpi jolloin se lämpenisi noin 930 °C -asteeseen. Epäsuorassa kierrossa sula metalli virtaisi reaktorin läpi ja lämmennyt sula metalli lämmittäisi suihkumoottorille virtaavaa ilmaa

lämmönvaihtimen avulla. GE tutki suoralla menetelmällä toteutettavaa ydinvoimakäyttöistä lentokonetta ja ORNL puolestaan epäsuoralla. ORNL:n tutkima epäsuora menetelmä oli pohjana myöhemmälle sulasuolatekniikkaan pohjautuvalle tehoreaktoriprojektille (MSRE). (Rosenthal 2009, 24.)

3.1.1 Aircraft Reactor Experiment

ORNL rakensi Yhdysvaltain atomienergiakomission rahoittamana pienen ydinreaktorin, jonka avulla ORNL tutki lentokoneen työntövoiman kehittämistä ydinenergialla. Tätä reaktoria kutsuttiin nimellä Aircraft Reactor Experiment eli ARE. Reaktorin moderaattoriksi valittiin berylliumoksidi BeO. Berylliumoksidi mahdollisti korkeat lämpötilat reaktorin sydämessä. Sydän suunniteltiin koostumaan kuusikulmaisista BeO lohkoista, joissa oli pystysuorat läpiviennit polttoaine-elementeille sekä sulalle natriumille, joka toimisi jäähdyttimenä. Polttoaine-elementtien oli tarkoitus olla pitkiä ja ohuita ruostumattomasta teräksestä valmistettuja putkia, joiden sisällä olisi uraanidioksidia. Kuvassa 2 on esitetty BeO moderaattorilohkoista koostuva ARE-reaktorin sydän. (Rosenthal 2009, 24)



Kuva 2. ARE-reaktorin päällekkäin pinotut BeO moderaattorilohkot. Kuvassa näkyy myös polttoaine-elementeille suunnitellut läpiviennit. (Rosenthal 2009, 25)

Erääksi ARE-projektin tärkeimmistä painopisteistä asetettiin lentokoneen miehistön, komponenttien ja sivullisten suojaaminen säteilyltä. ORNL tutkikin laajalti gamma- ja neutronisäteilyn läpäisykykyä sekä eri materiaalien suojauskykyä säteilyltä. (Rosenthal 2009, 24)

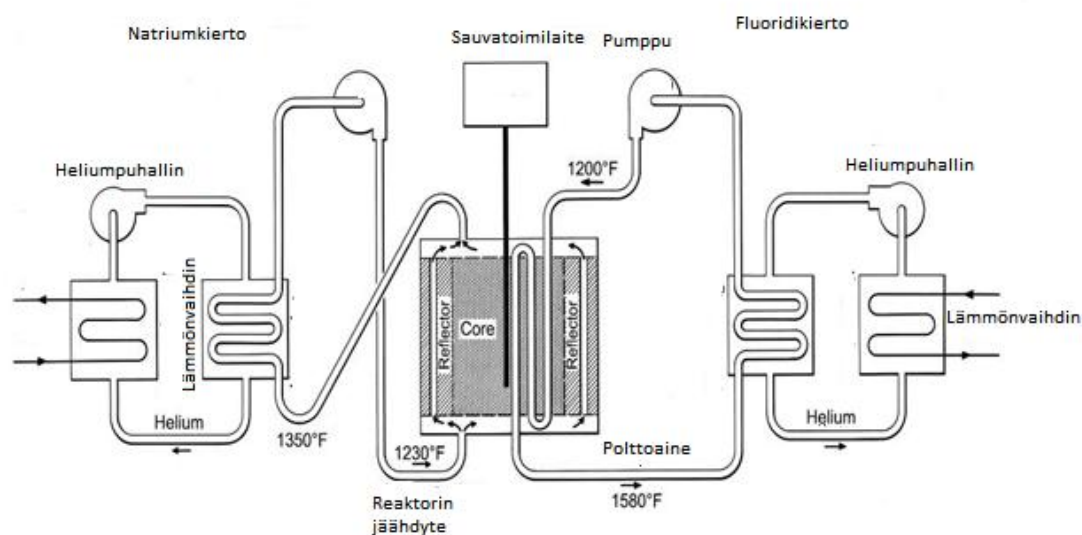
ORNL:n tutkimustyön edistyessä ilmeni kaksi huomattavaa ongelmaa. Ensinnäkin laskelmat osoittivat, että korkeammissa lämpötiloissa ksenon-135:n vaikutusala voi aiheuttaa reaktiivisuudelle positiivisen lämpötilakertoimen kun suuritehoisen reaktorin polttoaine on kiinteää. Lisäksi oli epäilyksiä kiinteiden polttoaine-elementtien luotettavuudesta tarvittavissa lämpötiloissa. (Rosenthal 2009, 24.)

Edellä mainittujen ongelmien johdosta ORNL aloitti tutkimukset mahdollisuudesta käyttää sulaa uraanipolttoainetta ARE-reaktorissa. Ideana oli, että uraani liuotettaisiin sulasuolan joukkoon jolloin ei tarvitsisi käyttää kiinteitä polttoaine-elementtejä. Uraania sisältävä sulasuola virtaisi reaktorin sydämen läpi. Lämpöä kehittävät fissiot tapahtuisivat reaktorin sydämessä ja lämmennyt polttoainesuola virtaisi lämmönvaihtimen läpi. Oletuksena oli, että muodostuva ksenonkaasu poistuisi polttoainesuolasta jolloin se voitaisiin poistaa myös järjestelmästä. Vaikka näin ei tapahtuisikaan, olisi suurin osa muodostuvasta ksenonista reaktorisydämen ulkopuolella jolloin myös sen vaikutus reaktorin reaktiivisuuteen pienenesi huomattavasti. ORNL päätti korvata kiinteät polttoaine-elementit sulasuolalla. (Rosenthal 2009, 24)

Fluorideilla tuntui olevan useita hyviä ominaisuuksia, joiden johdosta ne soveltuisivat sulasuolaksi reaktoriprojektiin. Fluorideilla on hyvä liukoisuus uraanille, ne ovat kemiallisesti hyvin stabiileja yhdisteitä, niillä on matalat höyrynpaineet kuumissakin lämpötiloissa, niiden lämmönsiirto-ominaisuudet ovat melko hyvät, ne eivät reagoi aggressiivisesti veden tai ilman kanssa ja ovat inerttejä eräille yleisille rakennusmateriaaleille. Alkalifluoridit eivät esimerkiksi aiheuta korroosiota ruostumattomassa teräksessä. Lisäksi fluoridit eivät vahingoitu säteilystä, mitä voidaan pitää välttämättömänä ominaisuutena arvioitaessa aineen soveltuvuutta kuljetussuolaksi ydinreaktoriin. (Rosenthal 2009, 24)

Natrium on huoneenlämmössä kiinteää. Ennen reaktorin järjestelmien ja putkien täyttöä täytyi reaktorin osat lämmittää vähintään natriumin sulamispistettä lämpimämmiksi. Koko järjestelmä lämmitettiin ensin noin 316 °C lämpötilaan ja natrium siirrettiin säiliöihin. Näistä säiliöistä natrium saatiin paineen avulla reaktorisysteemiin kiertoon. Kun natriumsysteemi saatiin toimintaan, lämmitettiin reaktori ja polttoainejärjestelmä noin 650° lämpötilaan. Lämmityksen jälkeen polttoainesäiliöt täytettiin sulalla natrium- ja zirkoniumfluoridisuolalla (NaF-ZrF_4). Tämä fluoridisuolaseos toimi reaktorin polttoaineen kuljetussuolana. (Bettis E.S et al 1957, 2)

Uraanifluoridi UF_4 liuotettiin kuljetussuolaan. Tämä polttoainesuola virtasi kiinteitä polttoaine-elementtejä varten tehtyjä kanavia pitkin ARE-reaktorin sydämen läpi. Polttoainesuola virtasi sydämen läpi useita kertoja. Polttoainesäiliön ja metallirakenteiden materiaalina käytettiin Inconel:ia. Heijastinta sekä niitä reaktorin osia joissa polttoaine ei kiertänyt jäähdytettiin natriumilla (Bettis E.S et al 1957, 1). Kuvassa 3 on esitetty ARE-reaktorin virtausmalli. (Rosenthal 2009, 25)



Kuva 3. ARE-reaktorin virtausmalli. (muokattu lähteestä Rosenthal 2009, 27.)

Sydäimestä ulos virtaava polttoainesuola pumpattiin lämmönvaihtimen läpi. Lämmönvaihtimessa suola luovutti lämpöä heliumkaasulle, jota puolestaan jäähdytettiin vedellä. ARE-reaktori suunniteltiin toimimaan lämpöteholla 1-3 MW ja

polttoainesuolan suunnittelulämpötila oli noin 816 °C. Taulukkoon 1 on koottu ARE-reaktorin keskeisimmät parametrit. (Rosenthal 2009, 25)

Taulukko 1. ARE -reaktorin keskeisimpiä tietoja. (tiedot Rosenthal 2009, 25)

Lämpöteho	2,5 MW
Polttoainesuola	53 % NaF, , 41 % ZrF ₄ , 6 % UF ₄ (93% rikastettua)
Polttoaineen sulamispiste	532 °C
Polttoaineen sisääntulolämpötila	663 °C
Polttoaineen ulostulolämpötila	860 °C
Polttoaineen tilavuusvirtaus	170 l/min
Moderaattori	Berylliumoksidi
Reaktoriastian materiaali	Inconel
Kriittinen	3.11.1954
Alasajo	12.11.1954

ARE-reaktori saavutti kriittisyyden 3.11.1954 ja teho saavutti megawattiluokan noin kuusi päivää myöhemmin (Bettis E.S et al 1957, 1). Reaktoria lämmitettiin sähköisillä lämmittimillä, jonka jälkeen virtauskanavat täytettiin kuljetussuolalla. Lopulta kuljetussuolan sekaan lisättiin polttoainesuolaa. Ongelmaksi muodostui polttoainesuolan kuljetussuolaa korkeampi sulamispiste. Polttoainesuola jäättyi polttoaineensyöttöjärjestelmässä ja syöttöjärjestelmän lämmitys muodostuikin pääongelmaksi. Syöttöjärjestelmää lämmitettiin hitsauspillillä, mikä aiheutti pienen reiän syöttöputkeen. Myöhemmin tästä reiästä vapautui pieniä määriä radioaktiivista kaasua reaktoriosastolle. Kaasu imettiin kompressorilla ja vapautettiin kauempana testilaitoksesta asumattomalle alueelle. (Rosenthal 2009, 26)

ARE-reaktorille suoritettiin testejä pienellä teholla useita päiviä. Reaktori toimi hyvin ja tasaisesti. Reaktiivisuuden lämpötilakerroin oli negatiivinen ja reaktorin tehotasoa voitiin muuttaa säätämällä lämmönvaihdinta jäähdyttävän heliumpuhaltimen kierrosnopeutta. Polttoainesuolasta vapautuva lämpöteho saavutti 2,5 MW polttoaineen lämpötilan ollessa 860 °C. Transienteissa polttoaineen lämpötila ylitti 880 °C ja lämpötilan nousu sydämessä vakaisissa olosuhteissa oli noin 180 °C. Reaktoria käytettiin myös 25 tuntia täydellä teholla ja samalla mitattiin ksenonin kertymistä järjestelmässä. Tämän testin perusteella ksenonia ei jäänyt polttoainesuolaan. (Rosenthal 2009, 26)

ARE-reaktoria oli tarkoitus ajaa 100 MWh. Tähän tavoitteeseen päästiin yhdeksän päivän toimintajakson jälkeen. Reaktori ajettiin alas aikataulun mukaisesti. Toiminnan jatkamista harkittiin, mutta huolena oli heikentynyt täyttölinja. Viisi päivää alasajon jälkeen heikentynyt täyttölinja hajosi ja vapautti radioaktiivista kaasua reaktoriosastolle. (Rosenthal 2009, 27)

Yhdysvaltojen ilmavoimat oli tyytyväinen ARE -reaktorin suorituskykyyn ja sillä tehtyihin testeihin. Pratt & Whitney lentokoneyhtiö liittyi mukaan epäsuoran kierron menetelmän kehitystyöhön. ARE -ohjelma oli käynnissä maaliskuuhun 1961 asti. Osasyynä ohjelman lopettamiseen oli mannertenvälisten ohjusten kehittyminen; armeijalla ei enää ollut tarvetta ydinkäyttöiselle lentokoneelle. (Rosenthal 2009, 28)

3.2 Sulasuolatekniikalla toimiva tehoreaktori

ARE-reaktori osoitti, että sulasuola soveltuu ydinreaktorin polttoaineeksi. ANP-tutkimusohjelman alkuvaiheissa todettiin sulasuolareaktoreiden potentiaali toimia siviilitehoreaktoreina. Vuonna 1956 H.G MacPherson muodosti tutkimusryhmän arvioimaan sulasuolareaktoreiden teknistä toteutusta (Rosenthal et al 1969, 1). Oak Ridgen kansallinen laboratorio suostutteli Yhdysvaltain Atomienergiakomission (AEC) rahoittamaan tutkimustyötä (Rosenthal 2009, 29). MacPhersonin tutkimusryhmän mukaan grafiittimoderoitu toriumsyklillä toimiva terminen reaktori olisi paras vaihtoehto sulasuolareaktorille. Tutkimusryhmän havaitsi, että toriumsykli antaisi paremman suorituskyvyn sulasuolareaktorissa kuin uraanipolttoainesykli, jossa fertiilinä materiaalina toimisi ²³⁸U. (Rosenthal et al 1969, 2)

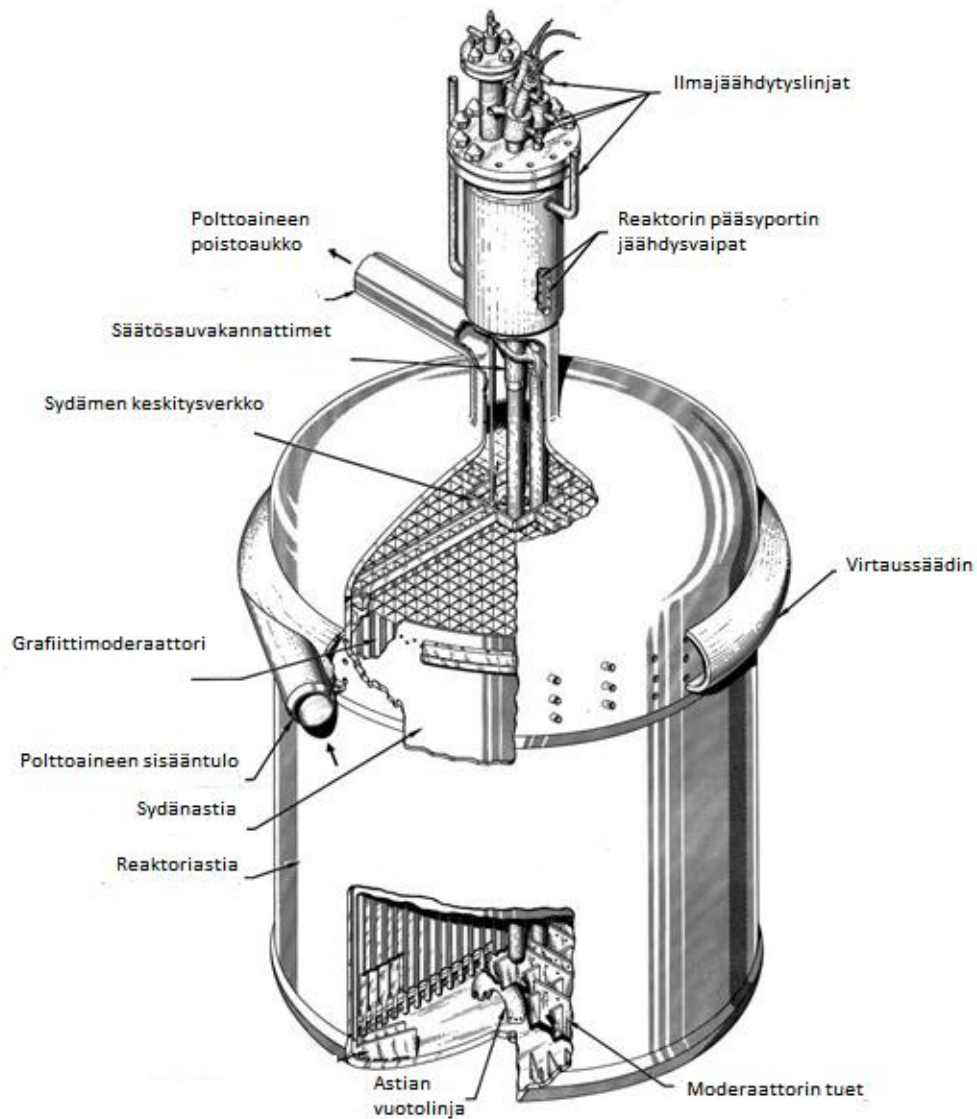
Homogeeninen reaktorikonsepti, missä koko reaktorin sydän on sulasuolaa, hylättiin, koska suolan moderointiominaisuudet termisessä reaktorissa eivät ole yhtä hyvät kuin grafiitin. Keskinopeiden reaktoreiden hyötösuhdet eivät arvioiden mukaan olleet riittävät kompensoimaan suurempaa polttoaineen tarvetta. Tutkimukset nopeiden sulasuolahyötöreaktoreiden parissa osoittivat, että niillä voitaisiin saavuttaa hyviä hyötösuhteita, mutta ne vaatisivat hyvin suuret tehotiheydet, jotta vältettäisiin kohtuuttoman suuret fissiilien materiaalien inventaariot. Sopivien tehotiheyksien saavuttaminen vaikutti hankalalta ilman uusien ja testaamattomien lämmönpoistomenetelmien käyttöä. (Rosenthal et al 1969, 2)

ORNL arvioi tutkimuksissaan kahta eri grafiittihidasteista reaktorikonseptia; toisessa konseptissa torium ja uraani olivat samassa polttoainesuolassa ja toisessa toriumia sisältävä fertiilisuola pidettäisiin erillään fissiilistä polttoainesuolasta grafiittiseinämän avulla. Molemmat konseptit perustuivat ^{233}U -Th polttoainekierto. Kahden erillisen suolan konseptin etuna oli se, että se toimisi hyötöreaktorina. Yhden suolan konsepti oli puolestaan yksinkertaisempi toteuttaa ja se näytti tutkimusten perusteella olevan alhainen käyttökustannuksiltaan, vaikka sen hyötösuhde olisi 50-luvun tekniikalla alle 1.0 (Rosenthal et al 1969, 2). (Rosenthal 2009, 29)

AEC:n työryhmä arvioi ORNL:n tutkimustuloksia vuonna 1959 ja työryhmän yhtenä loppupäätelmänä oli, että huolimatta sulasuolareaktorin rajoittuneesta potentiaalista hyötöreaktorina sillä oli suuret mahdolliset saavuttaa tekninen toteutettavuus. (Rosenthal et al 1969, 2)

Sulasuolareaktorin tutkimustyö edistyi hyvin. Pääpaino tutkimuksissa annettiin kahden suolan konseptille sen paremman suorituskyvyn johdosta, mutta myös yhden suolan konseptia tutkittiin. ORNL:n mukaan kumpikin konsepti mahdollistaisi jatkamisen hyötöreaktoriin, jolla saavutettaisiin hyvät polttoaineen säästömahdollisuudet (Rosenthal et al 1969, 2). Vuonna 1959 ORNL ehdotti pienen tutkimusreaktorin rakentamista. Ehdotettu tutkimusreaktori noudatti yhden suolan konseptia. Tämän reaktorin avulla tutkittaisiin tehoreaktorin vaatimaa teknologiaa. Kooreaktorin polttoainesuola ei sisältänyt ollenkaan toriumia ja siinä mielessä polttoainesuola oli samanlaista kuin kahden suolan hyötöreaktorin polttoainesuola olisi ollut. Ehdotettu kooreaktori oli nimeltään Molten-Salt Reactor Experiment (MSRE). AEC hyväksyi

suunnitelmat reaktorin rakentamisesta. MSRE:n suunnittelu alkoi vuonna 1960 ja rakentaminen alkoi vuoden 1962 alussa. Kuvassa 4 on esitetty MSRE:n luonnos. (Rosenthal 2009, 29)



Kuva 4. Luonnos MSRE -reaktorista. (Muokattu lähteestä Rosenthal 2009, 30.)

Taulukkoon 2 on koottu MSRE -reaktorin keskeisimmät parametrit.

Taulukko 2. MSRE-reaktorin keskeisimpiä tietoja. (tiedot Rosenthal 2009, 29)

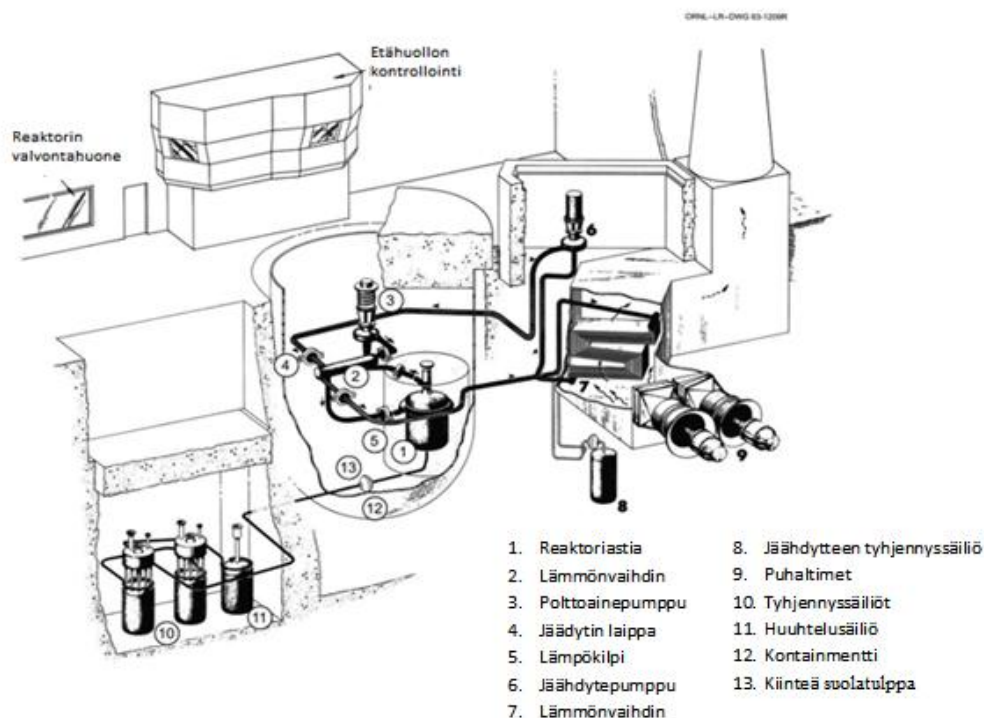
Lämpöteho	7,4 MW
Polttoainesuola	65 % Li ₇ F, 29,1 % BeF ₄ , 5 % ZrF ₄ , 0,9 % UF ₄
Polttoaineen sulamispiste	434 °C
Polttoaineen sisääntulolämpötila	635 °C
Polttoaineen ulostulolämpötila	663 °C
Polttoaineen tilavuusvirtaus	1514 l/min
Jäähdytesuola	66 % Li ₇ F, 34 % BeF ₄
Moderaattori	Grafiitti
Reaktoriastian materiaali	Hastelloy-N (68 % Ni, 17 % Mo, 7 % Cr, 5 % Fe)
Kriittinen (polttoaineena ²³⁵ U)	1.6.1965
Kriittinen (polttoaineena ²³³ U)	2.10.1968
Alasajo	Joulukuussa 1969

MSRE:n polttoainesuola sisälsi litium-, beryllium- ja zirkoniumfluorideja sekä tehon tuottamiseen uraanifluoridia. Näillä fluorideilla on hyvät fysikaaliset ja ydintekniset ominaisuudet. Polttoainesuolan sulamispiste oli 449 °C. Fluoridisuola ei kostuta grafiittia, joten MSRE-reaktorin sydän oli paljas grafiittisydän. Halkaisijaltaan sydän oli 54 tuumaa (~137 cm) ja se koostui 2 tuuman (~5 cm) neliöpalkeista. Palkit olivat vähähuokoista grafiittia. Palkkien pintaan työstettiin tasaiset kanavat suolalle. Kuvassa 5 on MSRE-reaktorin grafiittisydän. (Rosenthal 2009, 29)



Kuva 5. MSRE:n grafiittisydän. Sydän koostui grafiittipalkeista ja kuvasta on nähtävissä myös palkkien pintaan työstetyt sulasuolakanavat. (Rosenthal 2009, 31)

Polttoainesuola virtasi reaktorin sydäimestä lämmönvaihtimeen. Lämmönvaihtimessa polttoainesuola luovutti lämpöä sekundääripiirissä virtaavalle fluoridisuolalle ja tämä fluoridisuola luovutti lämpöä edelleen ilmajäähdytteiselle lämmönvaihtimelle, jonka avulla lämpö poistettiin reaktorijärjestelmästä ulkoilmaan. Kaupallisessa tehoreaktorissa tämä lämmönvaihdin olisi yhteydessä turbiiniin. Reaktoria ympäröi noin 41 cm paksu kilpi, joka vähensi komponenttien aktivoitumista. MSRE-reaktorin kaaviokuva on esitetty kuvassa 6. (Rosenthal 2009, 29)



Kuva 6. MSRE reaktorin kaaviokuva. (muokattu lähteestä Rosenthal 2009, 32.)

Reaktorin käyttämiä suoloja säilytettiin reaktorin alapuolella sijaitsevilla lämmitetyissä astioissa. Säiliöt ovat nähtävissä kuvassa 6. Suolat voitiin pakottaa reaktorin eri systeemeihin kaasunpaineen avulla. Suolat pidettiin reaktorissa kiinteiden suolatulppien avulla. Nämä venttiilit muodostettiin jäähdyttämällä litteitä putkenosia ilmalla jolloin näissä putkenosissa lämpötila oli alle suolojen sulamispisteen. (Rosenthal 2009, 29)

Kaikki reaktorin osat, jotka olivat tekemisissä suolan kanssa tehtiin INOR-8 materiaalista. INOR-8 on nikkeli pohjainen metalliseos, joka kehitettiin sulasuolareaktoreita varten. Kehitystyöstä vastasi ORNL yhteistyössä INCO:n (International Nickel Company, nykyään Vale:n omistuksessa) kanssa. Myöhemmin tuote kaupallistettiin nimellä Hastelloy-N ja seos on käytössä nykyäänkin. Kaikki suolaputket ja astiat olivat sähköisesti lämmitettyjä, jotta suola pysyisi sulana. (Rosenthal 2009, 30)

MSRE valmistui vuonna 1964 ja ensimmäisen kerran se oli kriittinen vuonna 1965 (Rosenthal et 1969, 2). Kriittisiä kokeita tehtiin vuoden 1965 puoliväliin asti. Reaktori

saatettiin kriittiseksi lisäämällä rikastettua uraania (muodossa UF_4-LiF) kuljetinsuolaan. Hienosäätö tehtiin lisäämällä uraania 88 gramman erissä. Vuoden 1966 alussa reaktori lähestyi täyttä tehoa, mutta ongelmaksi tuli tulppien muodostuminen polttoaineen kaasunpoistojärjestelmässä. Öljykaasut vuotivat pumpun tiivisteiden ohi ja polymerisoituivat lämmön ja säteilyn yhteisvaikutuksesta. Polymerisoitunut öljy kerääntyi poikkipinnaltaan pieniin putkistoihin ja kulkuväyliin. Ongelman selvittämiseen meni kolme kuukautta. (Rosenthal 2009, 31)

Täyden tehon käyttöä jatkettiin ja reaktori toimi hyvin, kunnes yhdestä ilmajäähdytteistä lämmönvaihdistinta jäähdyttävästä puhaltimesta hajosi siipi. Puhaltimet suunniteltiin uudestaan, mutta reaktorin käytössä esiintyi muita ongelmia. Joulukuussa 1966 reaktoria pystyttiin käyttämään 30 päivää ilman keskeytyksiä. Tämän käyttöjakson aikana reaktorin huomattiin olevan stabiili johtuen vahvasta negatiivisesta lämpökertoimesta. (Rosenthal 2009, 31)

Tätä 30 päivän käyttöjaksoa seurasi pitempiä käyttöjaksoja. Vuoden 1968 maaliskuussa päättyi kuusi kuukautta kestänyt keskeytymätön käyttöjakso, jonka aikana tutkittiin muun muassa fissiotuotteiden käyttäytymistä. Ksenon-135 -myrkyttymisen huomattiin olevan alhaisempaa kuin tilanteessa jossa kaikki reaktorissa muodostuva ksenon pysyi sydämessä (Rosenthal 2009, 31). Sula fluoridisuola oli useita kuukausia yli $650\text{ }^{\circ}\text{C}$ lämpötiloissa, mutta se ei silti aiheuttanut korroosiota reaktorin metallimateriaaleissa tai grafiitissa. Reaktorilaitteisto toimi luotettavasti ja radioaktiiviset nesteet sekä kaasut säilyivät järjestelmässä turvallisesti. Polttoaine oli täysin stabiilista ja muodostuva ksenon poistettiin nopeasti suolasta. (Rosenthal et al 1969, 2).

MSRE-koereaktorin alkuongelmista huolimatta ORNL pystyi osoittamaan, että reaktori pystyy toimimaan luotettavasti. Elokuussa 1968 reaktorin yhteyteen liitettiin pieni käsittelylaitos, jossa polttoainesuolasta poistettiin uraani fluorikäsittelyn avulla. Käsittelyn avulla syntynyt UF_6 kuljetettiin natriumfluoridipellettien läpi, jolloin siinä olleet kaasumaiset epäpuhtaudet jäivät pelletteihin. Polttoainesuolan fluorikäsittely kesti 47 h ja tämän käsittelyn jälkeen UF_6 oli riittävän puhdasta, jotta UF_6 kanistereita voitiin käsitellä ilman ylimääräistä suojausta. (Rosenthal 2009, 32)

Seuraavaksi MSRE-reaktoria ajettiin lisäämällä samaan kuljetussuolaan ^{233}U -isotooppia. Kriittiseksi reaktori saatettiin 2.10.1968 ja kuusi päivää myöhemmin sen teho nostettiin 100 kW:iin. Näin siitä tuli ensimmäinen reaktori, joka toimi uraanin isotoopilla ^{233}U . Vaikka ^{233}U -isotoopilla on pienempi viivästyneiden neutroneiden osuus kuin ^{235}U -isotoopilla, reaktori oli kuitenkin toiminnaltaan kuitenkin vakaa ja sen dynaaminen käyttäytyminen lähellä arvioita. Myöhemmin osoitettiin vielä sulasuolareaktorin monipuolisuus polttoaineen suhteen lisäämällä pieni määrä plutoniumia polttoainesuolaan. (Rosenthal 2009, 32)

Oak Ridgen National Laboratory oli tyytyväinen MSRE-reaktorin tuloksiin ja halusi jatkaa sulasuolakonseptin kehittämistä. Erityisesti ORNL halusi jatkaa kehitystyötä sulasuolaa käyttävän hyötöreaktorin parissa. ORNL:n budjetti oli kuitenkin rajoittunut joten MSRE -reaktori suljettiin vuonna 1969 ja siihen varatut varat ohjattiin hyötöreaktorin tutkimustyöhön. ORNL keskittyi erityisesti kehittämään prosessointisysteemiä, jota tarvittaisiin hyötämiseen reaktorissa. (Rosenthal 2009, 32). Jotta hyötöprosessi toimisi, täytyy polttoainesuolaa jatkuvasti prosessoida ja poistaa siitä neutronimyrkkyinä toimivia fissiotuotteita. Lisäksi hyötöprosessissa syntyvä uraanin isotooppi ^{233}U täytyy erotella fertiiliä toriumia sisältävästä kuljetinsuolasta ja siirtää fissiiliin polttoainesuolaan. Jatkuva polttoaineen prosessointi oli eräs tärkeimmistä tutkimuskohteista tulevia MSR-reaktorikonsepteja ajatellen. ORNL teki ainoastaan pienen mittakaavan kokeita ja komponenttien kehitystyö oli vasta aluillaan, mutta ORNL ei ollut löytänyt ylitsepääsemättömiä esteitä jatkokehitystä ajatellen. (Endicott 2013, 18)

Lisäksi ORNL tutki kahta MSRE-projektissa havaittua ongelmaa. MSRE:n toimiessa huomattiin, että polttoainesuolassa litiumin ja neutronien väliset reaktiot muodostivat tritiumia, joka kulkeutui lämmönsiirrinputkien läpi. Tämä täytyisi tulevissa reaktoreissa estää (Rosenthal 2009, 32). Toinen ongelma liittyi Hastelloy-N -metalliseokseen, jota käytettiin reaktorikomponenteissa. MSRE:n toiminta osoitti, että fissiotuote telluuri aiheutti pieniä halkeamia Hastelloy-N -seoksen pinnoilla. ORNL havaitsi myöhemmissä testeissä, että pehmeän niobium-metallin lisääminen Hastelloy-N seokseen vähensi telluurikorroosiota. Testejä ei kuitenkaan jatkettu riittävän kauan, jotta olisi voitu olla varmoja korroosio-ongelman ratkaisusta. Hastelloy-N kärsi myös säteilyvaurioista.

Neutronit reagoivat metalliseoksessa olevan boorin ja nikkelin kanssa muodostaen heliumkaasua. Kaasun kerääntyessä seokseen se aiheutti kuormitusta ja haurastutti Hastelloy-N -metalliseosta. Myöhemmin Oak Ridgessä osoitettiin, että lisäämällä titaania seokseen, sen säteilykestävyys lisääntyi huomattavasti. Uuden metalliseoksen tutkimus kuitenkin lopetettiin rahoituksen loppuessa vuonna 1973. ORNL:ssä tehdyt materiaalitutkimukset antoivat kuitenkin syytä uskoa, että Hastelloy-N:ään liittyvät korroosio-ongelmat olivat ratkaistavissa. (Endicott 2013, 19).

Vuonna 1972 ORNL ehdotti tutkimus- ja kehitysohjelmaa, jonka tarkoituksena oli lopulta rakentaa MSBR-reaktori (Molten Salt Breeder Reactor). Ohjelman kustannuksiksi arvioitiin 350 miljoonaa dollaria ja kestoksi 11 vuotta. MSBR-reaktorin oli tarkoitus olla sähköteholtaan 1000MW_e suuruinen hyötöreaktori. Tässä reaktorissa sulasuola kiertäisi grafiittimatriisin läpi ja polttoainesuolana toimisi $\text{LiF-BeF}_2\text{-ThF}_4\text{-UF}_4$ seos (72-16-12-0,4 mol.%) ja jäähdytinsuolana NaF-NaBF_4 seos (8-92 mol.%). (Serp J et al. 2014, 4)

AEC teki oman arvion projektin toteutettavuudesta ja rahoituksen lopettamispäätöksen syiksi mainittiin muun muassa materiaalien korroosio-ongelmat ja tritiumin kontrolloinnin. Lisäksi AEC oli jo aiemmin aloittanut LMFR-reaktorin rahoittamisen. (Serp J et al. 2014, 4)

ORNL:n ja sen kehittämän MSRE reaktorin menestyksestä huolimatta Yhdysvaltain atomienergiakomissio käski vuonna 1973 laboratoriota sulkemaan sulasuolareaktorin tutkimusohjelmansa. Tämä johtui Atomienergiakomission sitoutumisesta natriumjäähdytteisten nopeiden hyötöreaktoreiden kehitystyöhön (LMFR), AEC:lla ei ollut varaa tai halua kahden rinnakkaisen ohjelman ylläpitämiseen. Näin ollen AEC:n rahoittama sulasuolaohjelma Oak Ridgessä keskeytyi 20 vuotta sen aloittamisen jälkeen. (Rosenthal 2009, 33)

3.3 Denaturoitu sulasuolareaktori

Vaikka AEC lopetti Oak Ridgen kansallisen laboratorion sulasuolatutkimuksen rahoittamisen, jatkoi laboratorio vaatimatonta tutkimusohjelmaa 1980-luvun alkupuolelle asti. Tämän ohjelman puitteissa ORNL tutki reaktorin käyttöä denaturoiduilla sykleillä, joissa kaikki reaktorissa oleva uraani pysyisi määrältään alle

seuraavien painotettujen keskiarvojen: 12% ^{233}U ja/tai 20% ^{235}U . ORNL tutki kahta eri vaihtoehtoa denaturoituihin sykleihin liittyen ja tutkimustulokset olivat onnistuneita. Molempia vaihtoehtoja kutsuttiin nimeltä DMSR (Denatured Molten Salt Reactor) eli denaturoitu sulasuolareaktori. (LeBlanc 2009, 4)

Ensimmäistä DMSR-konseptia kutsuttiin nimeltä ”DMSR break even –design”. Tällä konseptilla voitiin näyttää, että hyötämisessä voidaan päästä omilleen vaikka käytettäisiin denaturoitua sykliä ja polttoaineena käytettäisiin köyhdytettyä uraania (^{238}U) ja torium toimisi fertiilinä täydentävänä materiaalina. (LeBlanc 2009, 4)

Toinen DMSR-konsepti oli nimeltään ”30 Year Once Through Design”, joka oli periaatteeltaan todella yksinkertaistettu konversioreaktori. Tässä konseptissa ei ollut mitään polttoaineen prosessointia 30 vuoteen lukuun ottamatta polttoaineen kemiallista kontrollointia. Polttoaineen prosessoinnin puutteesta huolimatta tämä DMSR-konsepti säilytti todella korkean konversiosuhteen ja loistavan uraaniresurssien käyttöasteen. Molemmat DMSR-konseptit sisälsivät suuren, matalan tehotiheyden omaavan sydämen, joka mahdollisti moderaattorina käytettävälle grafiitille 30 vuoden eliniän. (LeBlanc 2009, 4)

3.4 Tutkimus Oak Ridgen lopetettua MSR-ohjelmansa

Oak Ridgen kansallinen laboratorio oli pitkään ainoa sulasuolareaktoreita tutkiva taho. ORNL:n lopetettua sulasuolaohjelmansa lopullisesti 1980-luvun alussa, laantui sulasuolareaktoritutkimus käytännössä kokonaan.

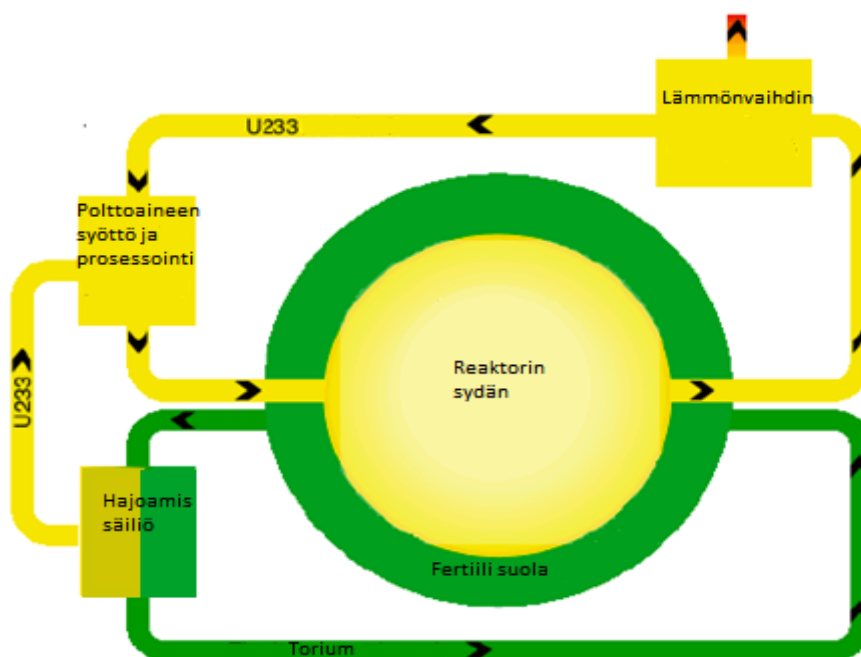
2000 -luvun alussa Generation IV International Forum valitsi sulasuolareaktorit yhdeksi 4. sukupolven reaktorikonsepteistaan ja tämä auttoi osaltaan lisäämään kiinnostusta sulasuolareaktoritutkimusta kohtaan. Nopeasti sulasuolareaktoreista tuli suosittu tutkimuskoohde. Sulasuolareaktoreihin kohdistuvaa tutkimusta tehdään muun muassa Ranskassa, Venäjällä, Kiinassa sekä Yhdysvalloissa. Yhdysvalloissa Flibe Energy -yhtiö on ollut yksi äänekkäimmistä LFTR-reaktorikonseptin puolestapuhujista ja yhtiö kehittää kyseiseen tekniikkaan perustuvaa pientä modulaarista reaktoria. (LeBlanc 2009, 4)

4 SULASUOLAREAKTORIEN NYKYTUTKIMUS

Sulasuolareaktori on houkutteleva 4. sukupolven reaktorikonsepti. Sulasuolareaktoreita kohtaan on virinnyt uutta mielenkiintoa ja maailmalla on käynnissä useita tutkimus- ja kehitysprojekteja.

4.1 LFTR-reaktori

LFTR-reaktori (Liquid Fluoride Thorium Reactor) on sulasuolareaktorikonsepti, jonka fissiilinä polttoainemateriaalina käytetään isotooppeja ^{233}U , ^{235}U tai ^{239}Pu . Polttoainemateriaali on grafiittisäiliön sisällä ja grafiitti toimii myös reaktorin moderaattorina. Sydäntä ympäröi sulasuola, joka koostuu litium- ja berylliumfluoridiseoksesta johon on liuotettu isotooppia ^{232}Th . Sydämessä fissioituva polttoaine vapauttaa neutroneja, jotka läpäisevät sydämen seinämät ja pommittavat sydäntä ympäröivää sulasuolaa. Sulasuolaan liuotettu torium muuntuu ydinreaktioiden kautta uraanin isotoopiksi ^{233}U . Syntyvä uraani siirretään reaktorin sydämeen ja sulasuolaan lisätään toriumia. Kuvassa 7 on esitetty kaaviokuva LFTR-reaktorin polttoainesyklistä. (Endicott 2013, 8)



Kuva 7. LFTR-reaktorin polttoainesykli. (muokattu lähteestä Endicott 2013, 9)

LFTR-reaktorissa on kaksi erillistä putkistosilmukkaa. Nämä silmukat ovat nähtävissä kuvassa 2. Vihreällä merkityssä silmukassa säteilytetty nestemäinen torium viedään säiliöön, josta se voidaan siirtää reaktorin sydämen sisäosiin. Toisessa putkistosilmukassa kuumentunut, uraanin isotooppia ^{233}U sisältävä sulasuola siirretään sydämen sisäosista lämmönvaihtimeen. Lämmönvaihdin on kytketty sähköä tuottavaan turbiiniin ja generaattoriin. Lämmönvaihtimen jälkeen tämä sulasuola siirretään takaisin reaktorin sydämeen. Reaktorin sydäntä ympäröivän sulasuolan toriumkonsentraatiota voidaan säätää ja näin myös vaikuttaa reaktorin sydämen reaktiivisuuteen. (Endicott 2013, 8)

LFTR-reaktorista voidaan poistaa fissiotuotteita reaktorin ollessa käynnissä. Poistettaviin fissiotuotteisiin kuuluu mm. ksenon, joka toimii reaktorissa reaktiivisuusmyrkkynä. Tämän takia LFTR-reaktorilla voidaan fissioida sen käyttämä polttoaine lähes kokonaan ja LFTR-reaktori ei juurikaan tuota pitkän aikavälin jätettä ja hyvin vähän lyhytaikaista jätettä. Eräiden arvioiden mukaan LFTR-reaktorilla voidaan tuottaa yhdellä tonnilla toriumia yhtä paljon energiaa kuin mitä tuotetaan perinteisellä kevytvesireaktorilla käyttämällä 250 tonnia uraania. (Endicott 2013, 9)

4.2 Kiina

Vuoden 2011 tammikuussa Kiinan tiedeakatemia julkisti valtion rahoittaman tutkimusohjelman, jonka tarkoituksena on tutkia ja kehittää toriumia käyttäviä sulasuolareaktoreja. Ohjelmaan osallistuu eri yliopistot Kiinassa. Ohjelman tarkoituksena on kehittää kahta eri sulasuolareaktoryyppiä yhtä aikaa. Pääpaino on fluoridisuolajähdytteisen korkean lämpötilan reaktorin kehittämisessä (FHR). Tämän reaktorikonseptin rinnalla Kiinassa kehitetään toriumsulasuolareaktoria TMSR. FHR on tutkimusohjelman pääosassa, koska sen tekniikka koetaan Kiinassa helpommaksi kehittää.

2 MW:n FHR -tutkimusreaktorin on tarkoitus valmistua vuonna 2017 ja 2 MW:n TMSR -tutkimusreaktorin puolestaan 2020. Näiden tutkimusreaktorien jälkeen on aikomuksena tehdä 10 MW:n pilottireaktorit ja lopulta 100 MW:n mallireaktorit. Isompien reaktorien rahoitus riippuu tämän viisivuotisen tutkimusohjelman menestyksestä. Lopullisena tavoitteena tutkimusohjelmalla on 1000 MW:n FHR- ja TMSR -reaktorien

rakentaminen 2030 -luvulla. Kiinan MSR -tutkimusohjelman parissa työskentelee noin 350 henkilöä, mutta määrän uskotaan nousevan 1500 henkeen vuoteen 2020 mennessä. (Endicott 2013, 14)

4.3 Ranska

Ranskassa valtion rahoittama tutkimusorganisaatio CNRS (Centre national de la recherche scientifique) on rahoittanut LPSC laboratorion sulasuolareaktoriohjelmaa vuodesta 1997 lähtien. LPSC on kehittänyt konseptin termiseltä teholtaan 3000MW_{th} nopean spektrin sulasuolareaktorista. Tämä reaktorikonsepti tunnetaan lyhenteellä MSFR (Molten Salt Fast Reactor). Vuonna 2008 Generation IV International Forum (GIF) valitsi MSFR:n oletuskonseptiksi neljännen sukupolven sulasuolareaktorille. MSFR on saanut rahoitusta myös Euroopan Unionilta EVOL -ohjelman kautta. (Endicott 2013, 15-16)

4.4 Tšekki

Tšekin valtio on rahoittanut sulasuolareaktoritutkimusta NRI Rez -tutkimuslaitoksessa vuodesta 1997 lähtien. Vuosien 1997 ja 2003 välillä SPHINX -projekti (SPent Hot fuel Incinerator by Neutron fluX) keskittyi sulasuolaa käyttävään hyötöreaktorikonseptiin. Tässä konseptissa sulasuolareaktori käyttäisi polttoaineenaan plutoniumia ja aktinideja (ei uraani), joita saataisiin kevytvesireaktorien käytetystä polttoaineesta.

Vuosien 2004 ja 2008 välillä SPHINX -projekti keskittyi nopean spektrin toriumia polttoaineenaan käyttävään MSR -konseptiin. Tutkimuksessa paneuduttiin esimerkiksi sulasuolan termohydrauliikkaan ja materiaalitutkimukseen. Hastelloy-N reaktorimateriaalin tilalle kehitettiin uusi nikkelseos nimeltään SKODA-MONICR.

Vuoden 2011 syyskuussa Yhdysvaltain energiaministeriö (DOE) julkisti Yhdysvaltain ja Tšekin välisen ydinvoimatekniikan tutkimus- ja kehitysohjelman. Tähän yhteistyöohjelmaan kuuluu myös sulasuolajäähdytteen tutkimustyö. ORNL:stä saatua jäähdytesuolaa testataan NRI Rez:ssä. (Endicott 2013, 16)

4.5 Venäjä

Venäjän kansallisella tutkimuskeskuksella, Kurtšatov-instituutilla, on käynnissä MARS -projekti (Minor Actinides Recycling in Salts). Projektin on määrä päättyä vuoden 2014 lopussa. Projektin työryhmä on kehittänyt MOSART -konseptin (Molten Salt Actinide Recycler and Transmuter). MOSART on nopean neutronispektrin reaktorikonsepti, jossa on tarkoitus käyttää kevytvesireaktorien käytetystä polttoaineesta saatavaa plutoniumia ja aktinideja tehon tuottamiseen. MOSART käyttää natrium-litium-beryllium-fluoridisuolaa, koska tämä suolaseos liuottaa hyvin aktinideja.

Venäjällä tutkitaan myös toista reaktorikonseptia, jossa polttoaineena käytettäisiin toriumia. Tämä hybridi MOSART on nopean spektrin reaktori, joka hyötäisi toriumista uraanin isotooppia ^{233}U . Uraani voitaisiin käyttää MOSART-reaktorissa suoraan sähköntuotantoon tai uraani voitaisiin käyttää polttoaineena MSFR-reaktorissa.

MOSART-projektin työryhmä on kehittänyt nikkeli-molybdeeni-seoksen HN80MTY. Tämä seos kestää telluurikorroosiota aina 740 °C lämpötilaan asti ja työryhmä uskoo, että he ovat ratkaisseet Hastelloy-N yhdisteeseen liitetyt korroosio-ongelmat. (Endicott 2013, 16-17)

5 SULASUOLAREAKTORIEN TULEVAISUUDEN NÄKYMÄT

Kuten tästä kandidaatintyöstä käy ilmi, sulasuolareaktoritutkimusta tehtiin pääosin Yhdysvalloissa 1940-1970 -luvuilla. Tärkeimpänä ja menestyneimpänä projektina voidaan pitää ORNL:ssä vuosina 1965-1969 toiminnassa ollutta MSRE -reaktoria. MSRE -reaktori osoitti, että sulasuolatekniikalla toimiva kaupallinen tehoreaktori on mahdollista kehittää.

Sulasuolareaktorit soveltuvat hyvin neljännen sukupolven reaktorikonseptiksi myös monipuolisuutensa johdosta. MSR voidaan suunnitella toimimaan termisellä tai nopealla neutronispektrillä. Lisäksi MSR:n polttoainetalous on monipuolinen. MSR voi olla hyötöreaktori, jolloin se voi käyttää fertiilinä polttoainemateriaalina toriumia. MSR:ää voidaan ajaa myös perinteisimmillä uraanin isotoopeilla tai polttoaineena voidaan käyttää perinteisten kevytvesireaktoreiden käytettyä polttoainetta.

Sulasuolareaktoreita voidaan pitää myös turvallisina reaktoreina mm. niiden vahvojen negatiivisten lämpötila- ja aukkokertoimien johdosta. Myöskään polttoaineen sulaminen ei ole ongelma MSR:ssä ja ylikuumentunut suola voidaan passiivisilla turvallisuusjärjestelmillä kerätä erillisiin säiliöihin jäähtymään. Nykyiset turvallisuusanalyysimenetelmät eivät sovellu nestemäisellä polttoaineella toimiviin sulasuolareaktoreihin. Tämä johtuu nimenomaan polttoaineen nestemäisestä luonteesta ja polttoaineen suojakuoren puuttumisesta. Sulasuolareaktorien jatkokehityksen kannalta on tärkeää, että nestemäiselle polttoaineelle kehitetään uusia turvallisuusanalyysimenetelmiä. Näiden turvallisuusmenetelmien tulee perustua yleisesti hyväksytyihin periaatteisiin kuten syvyysperiaatteeseen ja peräkkäisiin esteisiin radioaktiivisen materiaalin leviämisen estämiseksi.

ORNL:n sulasuolaohjelman aikana havaitut ongelmat ovat ratkaistavissa ja osaan niistä on jo kehitetty ratkaisut. Esimerkiksi reaktorimateriaalina käytettyyn Hastelloy-N seokseen yhdistetyt ongelmat (mm. korroosio) ovat hyvin tiedossa ja esimerkiksi Venäjällä MOSART-projektin työryhmä on kehittänyt reaktorimateriaaliksi soveltuvan metalliseoksen, jolla on vähemmän telluurikorroosio-ongelmia. Myös muita ratkaisuja on kehitetty korvaamaan Hastelloy-N metalliseosta sulasuolareaktorien materiaalina. Hiilikuiduilla vahvistettu grafiitti (tunnetaan nimellä C/C) on eräs komposiitti, joka

voisi soveltua materiaaliksi korkeisiin lämpötiloihin. Tätä komposiittia voitaisiin käyttää MSR:n lämmönvaihtimisissa, pumpuissa ja putkistoissa.

Tällä hetkellä käynnissä olevilla erilaisilla MSR -projekteilla on yhteisiä aihealueita tutkimus- ja kehitystyöhön liittyen. Näitä ovat mm. materiaalitutkimus, polttoainekemia ja simulointimenetelmät. Kansainvälinen yhteistyö mahdollistaa MSR -tekniikan nopeamman ja halvemman kehityksen.

6 YHTEENVETO

Sulasuolareaktorien kehitystyö alkoi Yhdysvalloissa 1940-luvun lopussa. Sulasuolatekniikkaa kehitettiin ensin Yhdysvaltain armeijan toimeksiantona; armeija halusi selvittää ydinkäyttöisen lentokoneen toteuttamiskelpoisuuden. Oak Ridgen kansallinen laboratorio (ORNL) kehitti ARE-reaktorin 1950-luvulla. Tämä reaktori osoitti sulasuolatekniikan potentiaalin myös siviilipuolen tehoreaktoreissa.

ANP-projektin päätyttyä ORNL aloitti tutkimukset suolasuolatekniikalla toimivan tehoreaktorin parissa. 1960-luvulla ORNL sai valmiiksi MSRE-reaktorin ja aloitti testit tämän reaktorin parissa. Sulasuolatekniikka osoittautui lupaavaksi ja ORNL halusi jatkaa sulasuolatekniikan kehittämistä. Yhdysvaltain atomienergiakomissio käski vuonna 1973 laboratoriota sulkemaan sulasuolareaktorin tutkimusohjelmansa. Komissiolla ei ollut varaa useiden eri tekniikkaa käyttävien ydinreaktoriohjelmien rahoittamiseen yhtä aikaa.

Historiallisesti Oak Ridgen kansallinen laboratorio ja sen kehittämät ARE- sekä MSRE-reaktorit ovat olleet merkittävimmät tekijät sulasuolareaktoritutkimuksessa. ORNL:n sulasuolatekniikan tutkimustyö loppui 1970 -luvulla. Usean vuosikymmenen tauon jälkeen on sulasuolatekniikkaa alettu tutkia ja kehittää uudestaan. Tutkimustyötä on tehty mm. Venäjällä, Kiinassa sekä eri Euroopan maissa. Myös Yhdysvalloissa tutkitaan toriumsyklillä toimivaa sulasuolareaktoria.

LÄHDELUETTELO

Bettis E.S et al, 1957. The Aircraft Reactor Experiment-Operation. Nuclear Science and Engineering, 1957/2: numero 6. s. 841-853 Saatavissa:

http://moltensalt.org/references/static/downloads/pdf/NSE_ARE_Operation.pdf

Endicott Neil, 2013. Thorium-Fuelled Molten Salt Reactors. Lontoo: Weinberg Foundation. 23s. [viitattu 5.2.2014] Saatavissa: www.the-weinberg-foundation.org/wp-content/uploads/2013/06/Thorium-Fuelled-Molten-Salt-Reactors-Weinberg-Foundation.pdf

Generation IV International Forum, 2014. Molten Salt Reactor. [verkkojulkaisu]. [viitattu 26.2.2014] Saatavissa: https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_42150/molten-salt-reactor-msr?hlText=Molten+salt+reactor

Getta V et al., 2008. Materials Issues for Generation IV Systems. The NATO Science for Peace and Security Programme. Springer. 586s.

LeBlanc David, 2009. Molten salt reactors: A new beginning for an old idea. Ottawa: Carleton University, Physics Department. 13s. [viitattu 26.2.2014] Saatavissa: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0029549310000191>

LeBlanc David, 2010. Too good to leave on the shelf. Mechanical Engineering, 2010/132, numero 5. s. 28-33

Rosenthal M.W. et al., 1969. Molten-Salt Reactors – history, status and potential. Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory. 12s. [viitattu 5.2.2014] Saatavissa: http://moltensalt.org.s3-website-us-east-1.amazonaws.com/references/static/downloads/pdf/NAT_MSRIintro.pdf

Rosenthal Murray W, 2009. An account of Oak Ridge National Laboratory's thirteen nuclear reactors. Oak Ridge: Oak Ridge National Laboratory. 80s. ORNL/TM-2009/181. [verkkojulkaisu, viitattu 5.2.2014] Saatavissa: <http://info.ornl.gov/sites/publications/files/Pub20808.pdf>

Serp J et al., 2014. The molten salt reactor (MSR) in generation IV: Overview and perspectives, Progress in Nuclear Energy 2014. 12s. [viitattu 14.4.2014] Saatavissa: dx.doi.org/10.1016/j.pnucene.2014.02.014