

1.8

Jod 131-Freisetzung aus defekten LWR-Testbrennstäben

von

E. Groos

A. Dombrowa

Interner Bericht IRW - IB - 8 / 83

aus dem

Institut für Reaktorwerkstoffe der
Kernforschungsanlage Jülich GmbH

HEISSE ZELLEN

Mai 1983

Vorgetragen auf dem 22. Treffen der Arbeitsgruppe
"Heiße Laboratorien und Fernbedienung" der EG in PETTEN, NL.

8. bis 10. Juni 1983

Jod 131-Freisetzung
aus defekten LWR-Testbrennstäben

Vorgang . 1635
F+E-Vorhaben 10.95.0

von

E. Groos
A. Dombrowa

Zusammenfassung

In den HEISSEN ZELLEN der KFA Jülich wurden Untersuchungen durchgeführt, um unter möglichst realistischen Bedingungen die Freisetzung von J 131 aus defekten LWR-Brennstäben zu bestimmen.

Dazu wurden in Leistungsreaktoren bestrahlte Teststäbe in einer Wasserdampf-atmosphäre bis zu 1100°C aufgeheizt. Die Stäbe waren entweder vor dem Heizen durch Ansägen oder während des Heizens durch Aufplatzen beschädigt worden. Die J 131-Freisetzungen lagen bei Heizdauern von mehreren Stunden bei 800°C bei maximal $3 \cdot 10^{-5}$ des Inventars; beim Aufheizen auf 1100°C und 1stündigem Halten bei dieser Temperatur wurden maximal $1,2 \cdot 10^{-4}$ des Inventars freigesetzt. Diese Werte liegen erheblich niedriger als die 3% bei 1100°C der RSK-Leitlinien. Die J 131-Emission aus dem Kamin stieg während der Ausheiztests von praktisch Null auf 7 bis 10 μCi pro 14 Tage (Meßfilterwechselfrequenz), das ist weniger als 1% der genehmigten Aktivitätsableitung von 100 μCi pro Tag (1/100 der genehmigten Ableitung pro Jahr).

Zu einer Überschreitung der genehmigten Ableitung pro Tag kam es beim Schneiden von Metallographieproben aus einem frischen Stab; dabei wurden an fünf aufeinanderfolgenden Tagen jeweils zwischen 100 und 180 μCi emittiert.

Verteiler: IRW-Archiv
Krawczynski ZBB
Pott ZBB
Reichardt ZBB
Förthmann IRW
Müller HZ

nur Titelblatt
IRW-Standard

Jod 131-Freisetzung aus defekten LWR-Testbrennstäben

Einleitung

In der KFA Jülich läuft zur Zeit ein Programm zur Untersuchung der Jod 131-Freisetzung aus LWR-Brennstäben, die bei Reaktorstörfällen (speziell Kühlmittelverlust nach einem 2F-Bruch der Hauptkühlmitteleitung) schadhaft geworden sind. Die Arbeiten stehen in Zusammenhang mit den in der deutschen Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) geforderten technischen Vorkehrungen zur Verhinderung von erhöhter J 131-Ingestion nach Reaktorstörfällen die einen erheblichen Aufwand erfordern würden. Es ist daher notwendig geworden, die Störfallplanungsdaten einer sorgfältigen experimentellen Prüfung zu unterziehen um ggf. bei entsprechenden Ergebnissen zu einer realistischen, niedrigeren Abschätzung der möglichen J 131-Freisetzung zu kommen.

Die Untersuchungen werden in enger Zusammenarbeit mit der GRS und der KFA, sowie der reaktorbauenden und -betreibenden Industrie durchgeführt, wobei auch eine Aufgabenteilung erfolgt.

Die KFA hat dabei die Messung der "Gapfreisetzung" übernommen, d.h. die Freisetzung der bei Auftreten eines Lecks in einem Brennstab in dem Spalt (Gap) zwischen Hülle und Brennstoffpellets vorhandenen Menge Jod.

Versuchsdurchführung, Ergebnisse

In drei Serien - Oktober, Dezember 1982 und März 1983 - wurden insgesamt 10 Rampenteststäbe der KWU auf J 131-Freisetzung untersucht. Dazu waren die über längere Zeit abgeklungenen Stäbe (Abbrand 7500 bzw. 32100 MWd/t) im HFR Petten bis etwa zur Erreichung des J 131-Bildungs-Zerfallsgleichgewichts bestrahlt worden. Der Transport zur KFA Jülich erfolgte sobald wie möglich, dennoch vergingen zwischen Bestrahlungsende und Anlieferung sieben bzw. zehn Tage, so daß die früheste Messung zehn Tage nach Bestrahlungsende erfolgen konnte.

800°C - Versuche

Hydrodynamische Berechnungen der KWU hatten ergeben, daß als Folge eines 2F-Bruchs einer Hauptkühlmittelleitung im Core eines LWR ein Druck von 5 bar und für die überwiegende Mehrzahl der Brennstäbe eine Temperatur von 800°C als kritische Werte erwartet werden müssen. Entsprechend wurden die ersten sechs Brennstäbe folgendermaßen behandelt:

Nach Anbohren des Brennstabes in einer Punktierapparatur wurde das gewünschte Leck mit einer kleinen Kreissäge als 30 mm x 2 mm großer Längsschnitt in der Zirkaloyhülle des Brennstabes angebracht (siehe Abb. 1) und der Stab danach im Druckgefäß (1) des Ofens (2) aufgeheizt. (Die Apparatur ist in Abb. 2 schematisch dargestellt; die Zahlen in Klammern beziehen sich auf diese Darstellung.)

Nach Erreichen von 200°C wurde mittels der Dosierpumpe (10) Wasser in kleinen Mengen in den heißen Ofen injiziert, so daß das Druckgefäß sich mit Dampf füllte. Der Dampf spült freigesetztes J 131 in die gekühlte Kondensatfalle (6); Jod, das nicht mit dem Kondensat zurückgehalten wird, bleibt in den nachgeschalteten Filtern (7).

Der Druck in der Apparatur kann durch drei Regelmöglichkeiten eingestellt werden:

- Stellung des Auslaßdosierventils (9),
- injizierte Wassermenge pro Zeit (10, 4) und
- Inertgasgegendruck (13).

Die Probenahme erfolgt durch das Ventil (12), bei dessen Öffnen das Kondensat vom Dampf in ein Probengefäß gedrückt wird. Durch Auftragen der J 131-Aktivität in den Proben über der Probenahmezeit ergeben sich Freisetzungskurven, von denen drei typische in Abb. 3 dargestellt sind.

Nach Abschluß des Heizversuchs und Entnahme des Stabes aus dem Druckgefäß wird dieses bei Temperaturen zwischen 200 und 300°C durch Spülen mit Salpetersäuredampf (Injizieren von 0,5% HNO₃ mittels der Dosierpumpe) gereinigt.

Die Untersuchung des ersten Stabes verlief in unbeabsichtigter Weise. Nach Messung des zeitlichen Ablaufs der Freisetzung während des Arbeitstages wurde das dampfgefüllte Druckrohr mit Kondensatfalle mittels der Ventile abgeschlossen und über Nacht bei 800°C belassen. Dabei wurde ca. 2/3 des Brennstabhüllrohres völlig desintegriert. Die Pellets verklemmten im Druckrohr und konnten nur durch Zertrümmern entfernt werden, was zu einer erheblichen Kontamination der Apparatur führte. Bei den drei danach ausgeheizten Stäben muß mit einem gewissen, abschätzbaren Kontaminationsanteil bei der J 131-Freisetzung gerechnet werden (Ab. 4, 5).

Bei diesen Manipulationen wurden nur unwesentlich erhöhte J 131-Emissionen aus dem Kamin beobachtet (siehe später: J 131-Ableitung aus dem Kamin).

Die aus den Abb. 3 und 5 ersichtlichen J 131-Gesamtfreisetzungen innerhalb von 7 bis 9 Stunden liegen bei max. $3 \cdot 10^{-5}$ des J 131-Inventars und liegen damit sehr niedrig und weit unter den in den Leitlinien der deutschen Reaktorsicherheitskommission angenommenen Werten.

1100°C - Versuche

Zwei Parameter bei den bisher geschilderten Versuchen müssen als kritisch angesehen werden:

- Die Maximaltemperatur von 800°C, die zwar nach den Modellrechnungen von der überwiegenden Zahl der Brennstäbe nicht, von einigen wenigen jedoch um einige hundert Grad überschritten werden kann und
- das Anbohren und Ansägen des Brennstabes bei Raumtemperatur, wobei zwar das freiwerdende J 131 neben den Spaltgasen aufgefangen und gemessen wurde, jedoch keine Sicherheit bestand, ob beim Aufplatzen der Hülle bei höherer Temperatur nicht andere Mechanismen zu höheren Freisetzungen führen könnten.

Die Versuchsführung wurde bei den nächsten Stäben deshalb folgendermaßen abgeändert:

- Statt das Hüllrohr anzusägen, wurde durch Auffräsen eine Sollbruchstelle angebracht;

- Die Temperatur im Druckrohr wurde von 25°C auf 1100°C hochgefahren (im Normalfall in 1,5 Stunden), nur 1 Stunde bei 1100°C gehalten um extensive Korrosion zu vermeiden und durch Abschalten des Ofens heruntergefahren (ca. 2 Stunden bis 500°C); jedoch nicht bei 5 bar sondern bei etwa 1 bar Druck.
- Zum Auffangen der Spaltgase wurden zwei zusätzliche Aktivkohlefallen mit je 200 cm³ Volumen angekuppelt; eine davon konnte bei Bedarf gekühlt werden; (15) in Abb. 2.

In Abb. 6 sind die Ergebnisse der drei auf diese Art untersuchten Stäbe dargestellt, zusammen mit den Temperatur/Zeit-Kurven. Alle Stäbe platzten bei etwa 700°C (Abb. 7a und 7b).

Ob die Abweichungen auf den Abbrandunterschieden oder den etwas abweichenden Temperaturverläufen beruhen, kann bei der kleinen Probenzahl nicht gesagt werden. Schließlich liegen die Freisetzungen in dem sehr niedrigen Bereich von $6 \cdot 10^{-5}$ bis $1,2 \cdot 10^{-4}$ des Inventars, das ist maximal 4mal höher als bei 800°C. Und ganz sicher zeigen dieser Ergebnisse, daß zwischen der Freisetzung aus bei 700°C geplatzten und bei Raumtemperatur angesägten Stäben kein signifikanter Unterschied besteht.

Es erscheint sicher, daß auf Grund dieser Ergebnisse die Störfallplanungsdaten neu überdacht werden müssen, insbesondere als aus den USA übereinstimmende Ergebnisse vorliegen /1/.

J 131-Ableitung aus dem Kamin

Während des normalen Versuchsbetriebes blieb die Aktivitätsableitung aus dem Kamin des BZL weit unterhalb der pro Tag genehmigten Ableitung von 100 µCi J 131.

Bei sehr kurz abgeklungenen Teststäben - 10 bis 20 Tage Abklingzeit - wurde während der ersten 2 bis 3 Stunden Heizdauer bei jeder Probenahme ein kleiner Aktivitätspeak im Abluftkamin beobachtet. Dieser wurde von Xe 133 verursacht, das mit kleinen Dampfmenen aus der Kondensatfalle entwich, wenn alles Kondensat herausgedrückt war (Abb. 2).

Der zeitliche Verlauf der gemessenen J 131-Ableitung aus dem Kamin ist in Abb.8 dargestellt. Durch die 800°C-Heizversuche, einschließlich des Versuchs bei dem der Teststab völlig zerstört wurde, stieg die J 131-Emission zwar an, jedoch nicht über 1% des pro Tag genehmigten Wertes.

Beim ersten 1100°C-Test (3. März 1983) wurden 5 Tage lang 10% des für einen Tag genehmigten Wertes erreicht. Der hohe Emissionspeak am 8. und 9.3.1983, bei dem die genehmigte tägliche Ableitung deutlich überschritten wurde, stammt nicht von einem Heizexperiment, sondern von dem unbedacht für Probenahme zerschnittenen frischen Brennstab, der am 3. März geheizt worden war. Dabei kam es zu einer feinen Pulverisierung von etwa 0,3% des Brennstoffes, mit einem J 131-Inventar von 300 mCi.

Eine Abschätzung ergab, daß davon etwa 1/3 die Zelle verlassen hat und zu 99% im Zellenfilter zurückgehalten wurde (Tab. 1).

Zusammenfassung

Die bei Freisetzungsmessungen an frischbestrahlten, schadhafte Testbrennstäben bei 800 und 1100°C bei mehreren Stunden Heizdauer ermittelten J 131-Werte liegen bei 1 bis $3 \cdot 10^{-5}$ bzw. $0,6$ bis $1,2 \cdot 10^{-4}$ des J 131-Inventars. Diese Werte sind mehr als zwei Größenordnungen niedriger als in den entsprechenden Störfallplanungsdaten angenommen.

Die J 131-Ableitung blieb bei diesen Versuchen in den genehmigten Grenzen. Zu einer erhöhten Ableitung aus dem Kamin kam es beim unbedachten Zerschneiden eines zu kurz abgeklungenen Brennstabes.

Literatur

- / 1 / B.A. Lorenz Fission Product Release from Highly Irradiated
 J.L. Collins LWR Fuel.
 Ä.P. Malinauskas
 O.L. Kirkland Report NUREG/CR (ORNL/NUREC/TM-287/R1) (1980)
 R.L. Towns

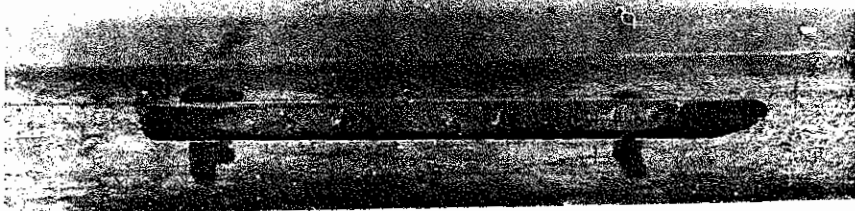


Abb. 1a

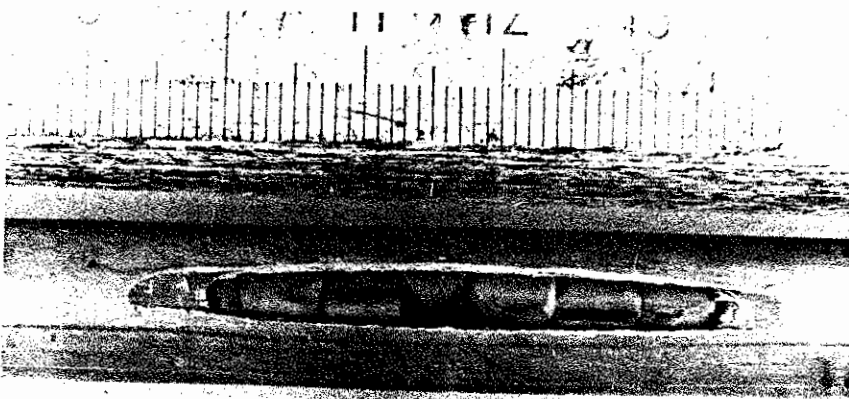


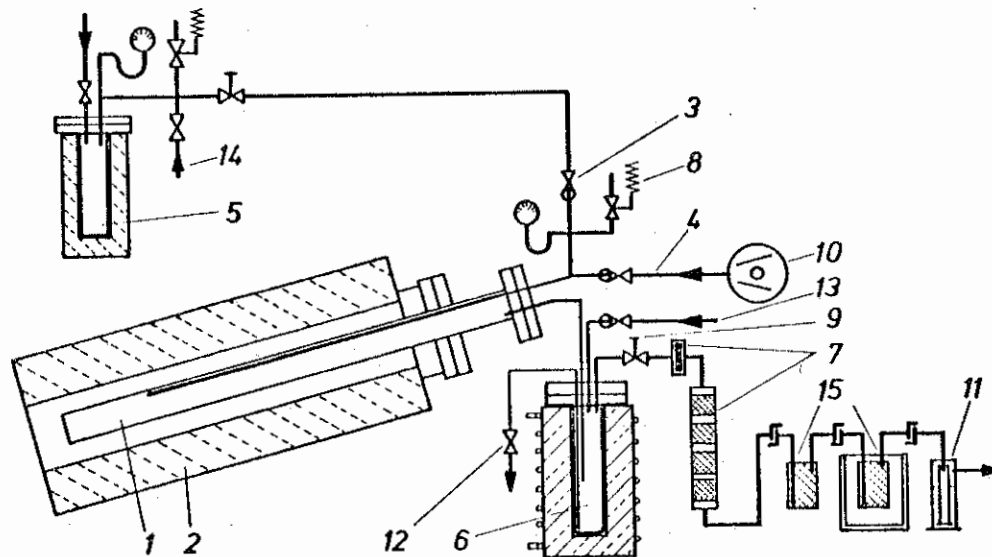
Abb. 1b

Abb. 1:

Brennstab-Leck, 30 mm x 2 mm, mit Kreissäge hergestellt

1a: Brennstab D 74 v o r dem Ausheizen

1b: Brennstab D 81 n a c h dem Ausheizen



- (1) Druckgefäß
- (2) Ofen
- (3) Dampfeinlaßrohr
- (4) Wassereinlaßrohr
- (5) Dampferzeuger
- (6) Kondensatfalle
- (7) Jodfilter
- (8) Sicherheitsventil
- (9) Auslaß-Dosierventil
- (10) Dosierpumpe
- (11) Waschflasche mit NaOH
- (12) Probennahme-Ventil
- (13) Inertgasgegendruck
- (14) Spülgasrohr
- (15) Aktivkohlefallen

Abb. 2:

Schematische Darstellung der Ausheizapparatur im BZL der KFA Jülich

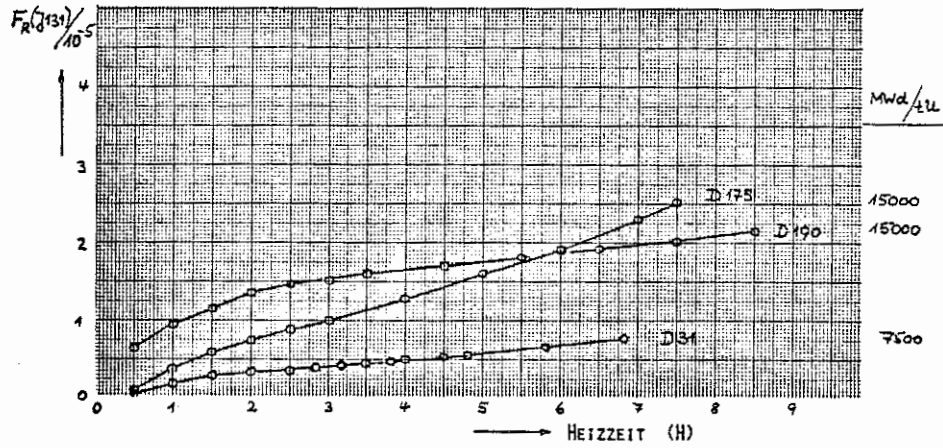


Abb. 3:
Drei typische Freisetzungskurven für J 131 bei 800°C
für Stäbe mit verschiedenem Abbrand, bezogen auf Gesamtinventar

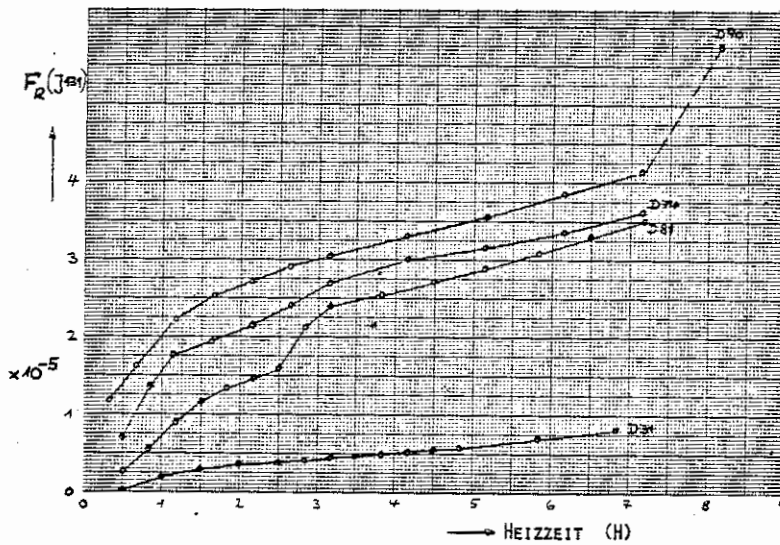


Abb. 4:
Freisetzungskurven für J 131 bei 800°C aus kontaminiertem Ofen

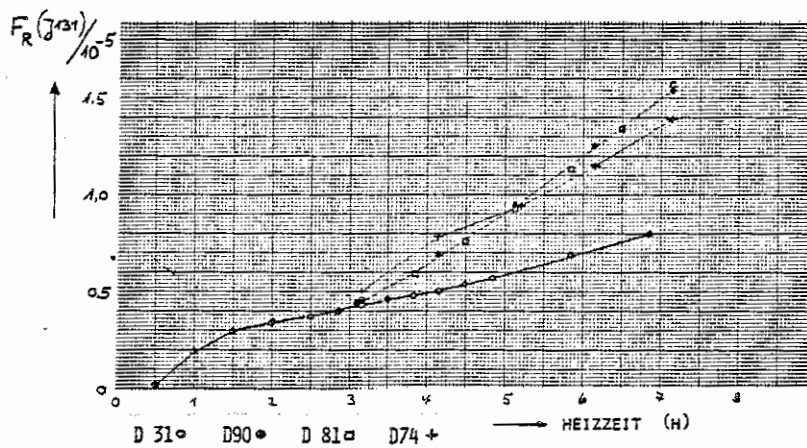


Abb. 5:
Kontaminationskorrigierte Freisetzungskurven für J 131 bei 800°C

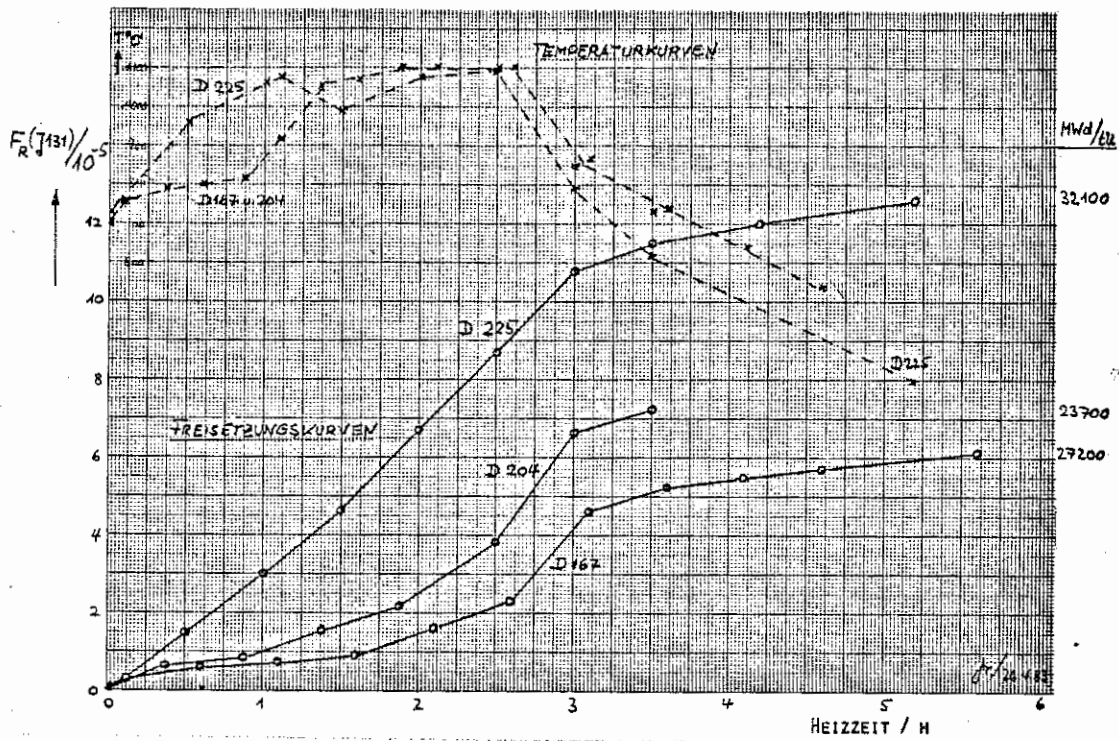


Abb. 6:

Freisetzungskurven für J 131 bei max. 1100°C

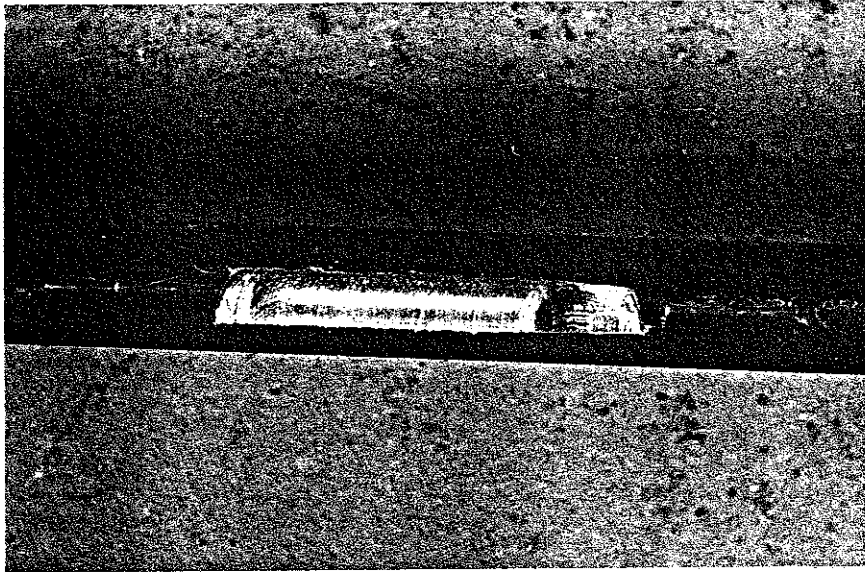


Abb. 7a

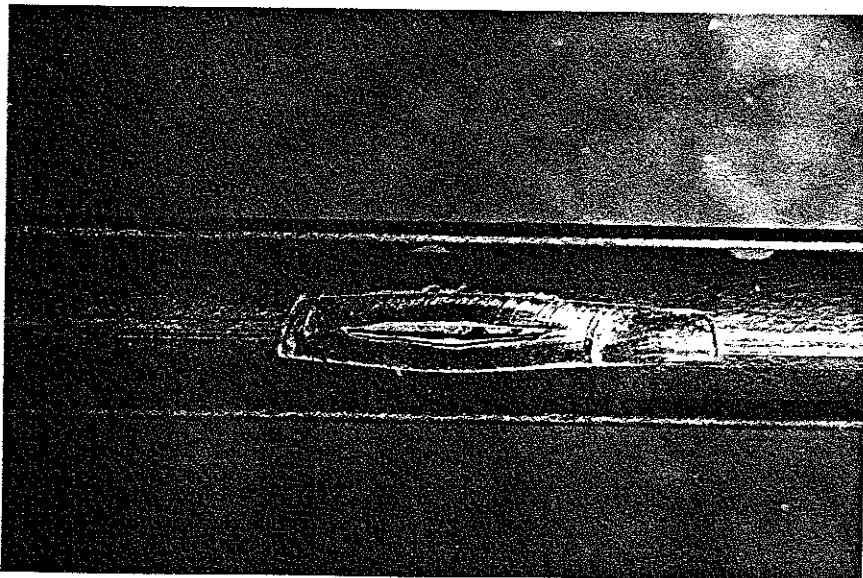


Abb. 7b

Abb. 7:

Sollbruchstelle vor und Brennstabschaden nach dem Ausheizen

7a: Brennstab D 221 v o r dem Ausheizen

7b: Brennstab D 221 n a c h dem Ausheizen

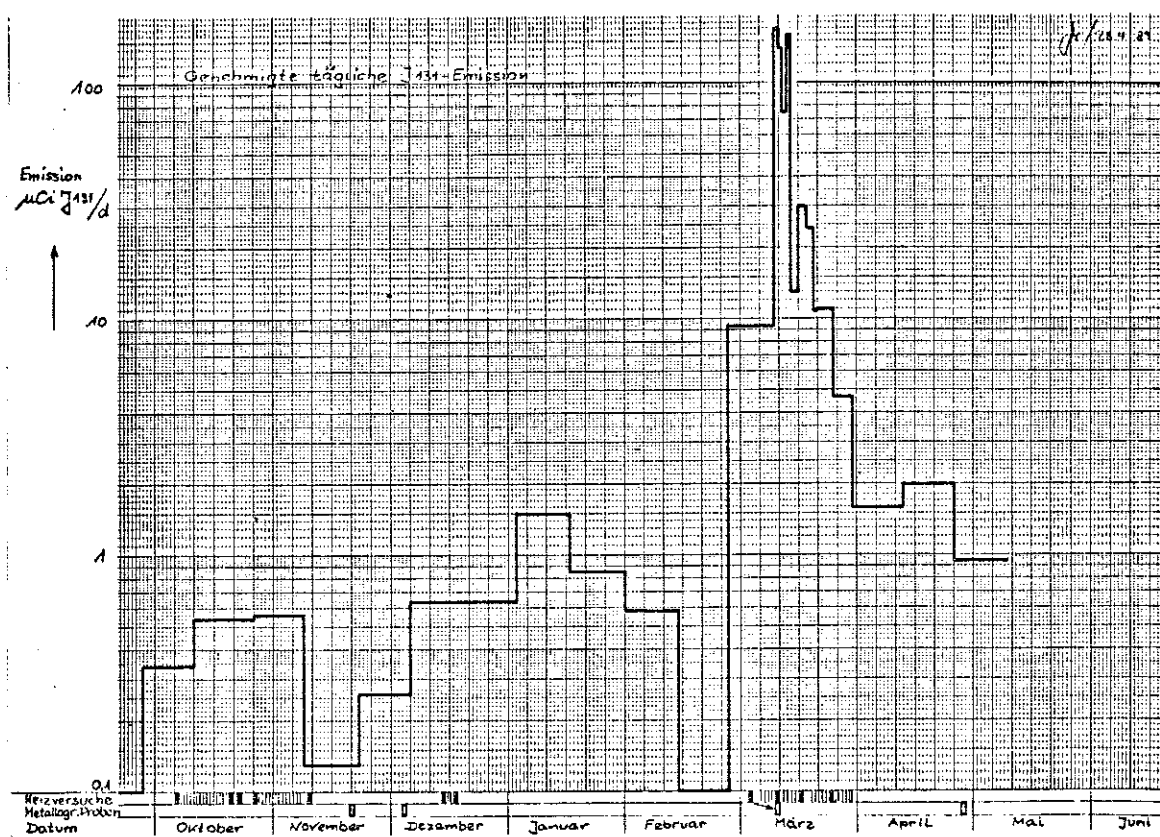


Abb. 8:

Zeitlicher Verlauf der Versuche und der J 131-Ableitung aus dem Kamin des BZL.

Die horizontalen Abschnitte stellen jeweils die Standzeit des Meßfilters dar. Es sind die Mittelwerte über die Filter-Standzeit aufgetragen.

Sägeblattdicke	0.34 mm
Anzahl der Schnitte	6
Länge Brennstoff pulverisiert	~ 2 mm
Gesamtlänge Brennstoff	300 mm
pulverisierter Anteil	$6,7 \cdot 10^{-3}$
<hr/>	
<u>Stab D 204</u>	
Inventar J 131, (22.03.1983)	152 Ci
Inventar J 131, (09.03.1983)	42 Ci
(15 Tage Abklingzeit)	
davon pulverisiert	280 mCi
<hr/>	
davon hinter Zellenfilter gemessen (09.03.1983 bis 23.03.1983)	~ 900 µCi
Freisetzung aus der Zelle (99 % Rückhaltung Jodfilter)	~ 90 mCi
Anteil am Pulverisierten	~ 1/3
<hr/>	

Tabelle 1:

Abschätzung der freigesetzten Menge J 131
bei der Probenahme am 9. März 1983