

Messung der radialen Spaltproduktverteilung an LWR-Brennstäben

mittels der γ -Computer-Tomographie

von

J. Müllauer

M. Behrens

(Institut für Werkstofftechnologie)

Vorgetragen auf dem 24. Treffen der Arbeitsgruppe "Heiße Laboratorien und Fernbedienung" der Europäischen Gemeinschaft (EG) in CADARACHE, Frankreich
26. bis 28. Juni 1985

GKSS-Forschungszentrum Geesthacht GmbH
Max-Planck-Straße, Postfach 1160
2054 Geesthacht
Telefon (04152)12-1, Telex 02 187 12 gkssg

Zusammenfassung

Nach einer Einführung in die wesentlichen Besonderheiten des Bildaufbauprinzips bei der γ -CT (γ -Computer-Tomographie) wird der experimentelle Aufbau der Apparatur in der Heißen Zelle beschrieben.

An einigen Anwendungsbeispielen wird die Einsatzmöglichkeit dieser Methode bei Brennstabuntersuchungen für Fragestellungen hinsichtlich der Spaltprodukt-Transportphänomene in Kernbrennstoffen dargestellt.

Inhalt

	Seite
1. Einleitung	2
2. Computer-Tomographie	2
2.1 Prinzip	2
2.2 Bildrekonstruktion	4
2.3 Technische Ausführung	4
3. Anwendungsbeispiele	6
Abbildungen	8
Literaturverzeichnis	15

1. Einleitung

Im Rahmen eines Forschungsprogrammes werden beim GKSS-Forschungszentrum Brennstäbe mit künstlichen und durch Leistungsrampen erzeugten Defekten in einer geeigneten Bestrahlungseinrichtung /1/ unter DWR-Bedingungen und kontinuierlicher Messung der Spaltproduktfreisetzung im FRG-2 (Forschungsreaktor, Geesthacht) bestrahlt.

Zwischen den Bestrahlungszyklen werden die Testbrennstäbe in den Heißen Zellen zerstörungsfrei untersucht.

Zur Ergänzung vorhandener Untersuchungsmethoden wurde eine Gamma-Computer-Tomographie (γ -CT)-Einrichtung entwickelt und in der Betonzelle 4 der Heißen Zellen installiert. Die γ -CT-Methode ermöglicht die zerstörungsfreie Bestimmung γ -emittierender Spaltprodukt-Konzentrationen und deren räumlicher Verteilung im Kernbrennstoff.

2. Computer-Tomographie (CT)

2.1 Prinzip

Neben seiner häufigsten Anwendung im Bereich der medizinischen Diagnostik erlangte die CT-Technik auch in anderen Anwendungsgebieten, so u.a. auch in der Kerntechnik /2-8/ zunehmend an Bedeutung. Trotz der aufgabenbedingten Vielfalt der experimentellen Anordnungen, eingesetzten Datentechniken und Rekonstruktionsprinzipien wird bei allen Verfahren unter Nutzung der Röntgen- bzw. γ -Transmissionseigenschaften des Objekts, entweder eine Überlagerungsfreie Dichteverteilung (Transmissions-Computer-Tomographie, TCT) oder die Konzentrationsverteilung eines gammastrahlenden Isotops im Objekt (Emissions-Computer-Tomographie, ECT) rekonstruiert. Bei beiden Verfahren werden Transversalprojektionen einer ausgewählten, senkrecht zur Objektachse liegenden Ebene unter verschiedenen Winkelpositionen gemessen (Abb. 1) und aus der Gesamtheit aller Meßwerte ein Verteilungsbild berechnet und graphisch (3D-Plot, Farb- oder Grauwertbild) dargestellt.

Bei der γ -CT an Brennstäben wird der Rekonstruktionsbereich (10 x 10 mm) in 2500 (50 x 50) kleine quadratische Bildelemente (Pixel = picture element) mit 0,2 mm Kantenlänge (Kollimatorspaltbreite) unterteilt (Abb. 2). Innerhalb eines Pixels wird eine homogene Aktivitätsverteilung angenommen.

Der γ -Meßkanal (Kollimatoren, Detektor) liegt in einer Ebene, die den Brennstab schneidet und senkrecht zur Brennstabachse steht. Bei stationärer Anordnung des γ -Meßkanals wird der Brennstab senkrecht zum Abtaststrahl schrittweise in fest vorgegebenen Intervallen (0,2 mm) über den gesamten Querschnitt verfahren. Gleichzeitig wird die im jeweiligen Intervall emittierte γ -Intensität der Spaltprodukte gemessen. Der Ordinatenwert $p_{K(\varphi)}$ einer Parallelprojektion kann durch die folgende Summenformel dargestellt werden:

$$p_{K(\varphi)} = \sum_{i,j \in R_{K(\varphi)}} \frac{Q(i,j)}{\mu(i,j)} w(i,j) \left(1 - \exp(-\mu(i,j) \Delta(i,j)) \right) \cdot \exp \left(- \sum_{\substack{i',j' \in R_{K(\varphi)} \\ i,j \neq i',j'}} \mu(i',j') \cdot \Delta l_{K(\varphi)}(i',j') \right) \quad (Gl. 1)$$

$\Delta l(i',j')$ = Entfernung von dem betrachteten Pixel (i,j) benachbarten Pixel (i',j') zum Objektrand in Richtung der Projektion

$\mu(i,j)$ = Schwächungskoeffizient vom Pixel (i,j)

$\Delta(i,j)$ = Pixellänge in Abtaststrahlrichtung

Der Meßwert der Projektion $p_{K(\varphi)}$ ist die Summe über alle γ -Quellenpixel $Q(i,j)$ im Bereich des Abtaststrahls $R_{K(\varphi)}$ unter Berücksichtigung der Absorption im jeweils betrachteten Quellenpixel (i,j) und verringert um den Betrag des Schwächungsterms $a_{K(\varphi)}$, der die Absorption zwischen dem betrachteten Pixel und dem Objektrand beinhaltet. Mit $w(i,j)$ wird die Festlegung getroffen, daß nur diejenigen Pixel berücksichtigt werden, deren

Zentren im Bereich des jeweiligen Abtaststrahls $K(\varphi)$ liegen. Bei dieser Behandlung wird eine über den Brennstoffquerschnitt homogene Schwächungsverteilung angenommen. Änderungen der Dichte- bzw. Schwächungsverteilung sind nur bei Brennstoffverlusten durch Auswaschung im Bereich extremer Defekte zu erwarten. Bei homogener Verteilung ist die Emissions-Rekonstruktion direkt möglich, anderenfalls ist es erforderlich, daß eine Absorptionskorrektur über eine vorher durchgeführte Transmissions-Rekonstruktion erfolgt.

2.2 Bildrekonstruktion (algebraisch) /9/ /10/

Ausgehend von einem imaginären Verteilungsbild $Q^q(x,y)$ werden die Projektionswerte des imaginären Verteilungsbildes $p^*_{K(\varphi)}$ mit den gemessenen Projektionswerten $p_{K(\varphi)}$ (Gl. 1) verglichen und die Differenz $(p_{K(\varphi)} - p^*_{K(\varphi)})$ wird auf das ursprüngliche Verteilungsbild rückprojiziert (1. Approximation):

$$Q^{q+1}(i,j) = (Q^q(i,j) + (p_{K(\varphi)} - p^*_{K(\varphi)})/N_{K(\varphi)}) \quad (\text{Gl. 2})$$

Die Projektionswerte $p^*_{K(\varphi_1)}$ des erzeugten Verteilungsbildes Q^{q+1} werden wiederum mit gemessenen Werten $p_{K(\varphi_1)}$ verglichen und rückprojiziert. Diese Prozedur wird solange fortgesetzt, bis alle gemessenen Projektionen in den Bildraum projiziert sind und damit die 1. Iteration beendet ist. Ausgangsbasis weiterer Iterationen mit den jeweiligen Approximationen ist immer das Verteilungsbild der vorhergehenden Iteration. Diese Rechnungen werden solange fortgesetzt, bis die Bildwerte zwischen zwei Iterationen sich nur noch unwesentlich verändern.

2.3 Technische Ausführung

Die γ -CT-Anlage besteht im wesentlichen aus vier Elementen (Abb. 3a und 3b)

- a) einer Positionier-Einrichtung zur Ausführung der Translations- und Drehbewegungen des Brennstabes,

- b) dem Kollimatorsystem zwischen Brennstab und Detektor zur Ausblendung eines bestimmten Brennstabvolumens,
- c) dem Detektorsystem einschließlich der elektronischen Einrichtungen zur Aufnahme, Auswertung und Speicherung der γ -Spektren,
- d) dem Computer, der die Steuerung des automatisierten Meßablaufs und die Bilderzeugung und Weiterverarbeitung übernimmt.

Die γ -CT-Anlage arbeitet nach dem Translations-Rotations-Verfahren, wobei für jede Projektion das Strahlprofil Schritt für Schritt mit einem Meßstrahl und Detektor erzeugt wird. Das Detektor- und Kollimatorsystem ist ortsfest montiert, und der Brennstab wird mit einer Positioniereinrichtung gegenüber dem von den Kollimatoren vorgegebenen Koordinatensystem bewegt.

Alle mechanischen Führungs- und Antriebselemente der Positioniereinrichtung sind durch Kugelbuchsenlagerung spielfrei. Die exakte und reproduzierbare Positionierung des Brennstabes wird durch den Einsatz rechnergesteuerter Schrittmotoren für alle Antriebe erreicht. Die kleinste reproduzierbare Schrittweite beträgt transversal 0,02 mm und radial 0,2 Winkelgrad.

Das Kollimatorsystem besteht aus drei Einzelkollimatoren die das Objektmeßfeld in eine endliche Anzahl kleinerer Einzelmeßfelder unterteilen. Unter Berücksichtigung der erforderlichen hohen Ortsauflösung in Transversalrichtung werden zwei Kollimatoren eingesetzt, wobei der eine unmittelbar über den Brennstab und der andere in ca. 4 m Entfernung direkt vor dem HPGe-Detektor montiert ist. Das Objektmeßfeld längs der Brennstabachse wird durch die Spaltbreite des dritten Kollimators (Achskollimator) vorgegeben.

Die Wahl der Kollimatorspaltöffnungen erfolgte zum einen unter dem Gesichtspunkt einer guten Auflösung, die kleine Spalte der Transversalkollimatoren fordert, und zum anderen, daß trotzdem eine ausreichende Anzahl der in einer vorgegebenen Zeit erfaßbaren Gammaquanten gegeben ist. Im Grundsatz wurde davon ausgegangen, daß bei Brennstäben der achsiale Temperaturgradient gegenüber dem radialen vernachlässigbar klein ist ($\sim 1:500$),

und somit Spaltprodukttransportvorgänge im Brennstoff im wesentlichen in Radialrichtung zu erwarten sind. Deshalb wurde bei der Achsialkollimation zugunsten einer ausreichenden γ -Intensität auf eine höhere Auflösung verzichtet und der Spalt 8 mm weit geöffnet. Bei beiden Transversalkollimatoren wurde hingegen eine Spaltbreite von nur 0,2 mm bei einer Meßzeit von 1000 s pro Einzelmessung (quantitative Auswertung) bzw. 500 s (qualitative Auswertung) gewählt. Die Meßzeit, während der die zur Bilderzeugung erforderlichen Meßwerte erfaßt werden, beträgt bei 56 Einzelmessungen für eine Projektion und insgesamt 8 Projektionen ca. 125 h (1000 s/Spektrum) bzw. 62,5 h (500 s/Spektrum).

3. Anwendungsbeispiele

Die γ -CT-Erprobung erfolgte an DWR-Testbrennstäben (Länge 390 mm) der Standard-Auslegung. Die Testbrennstäbe wurden im Kernkraftwerk Obrigheim bei mittleren Stablängenleistungen von 270 Wcm^{-1} bis zu einem Abbrand über 23 GWd/t(u) vorbestrahlt. Zwei vorbestrahlte Testbrennstäbe wurden im Petten-Reaktor einer Leistungsrampe mit 475 Wcm^{-1} (7 min) bzw. 480 Wcm^{-1} (8 min) unterworfen. Nach einem 30- bis 80-tägigen Bestrahlungseinsatz /1/ im FRG wurden im Rahmen einer Zwischenuntersuchung in den Heißen Zellen γ -CT-Messungen durchgeführt.

Von 3 Testbrennstäben mit folgenden unterschiedlichen Bestrahlungsgeschichten

D386, ohne Leistungsrampe

D377, mit Leistungsrampe

D385, ohne Leistungsrampe, jedoch Fortsetzung der Bestrahlung (~ 40 h) nach dem Auftreten eines großen Hüllrohrdefektes ($\text{H}_2\text{O}/\text{UO}_2$ -Kontakt)

wird in den Abbildungen 4, 5 und 6 die gemessene Konzentrationsverteilung des Cs-137 Isotopes in Form dreidimensionaler Plots dargestellt. Der aus dem Tomogramm berechnete relative Verlauf der Cs-137-Konzentration (Maximalwert auf 1 normiert) an vier verschiedenen Winkelpositionen in Abhängigkeit vom relativen Pelletradius (r/r_0) ist in den Abbildungen 7, 8 und 9 aufgetragen. Die Abbildung 10 zeigt als Beispiel die Cs-137-Konzentrationsverteilung in der UO_2 -Tablette im Bereich des Hüllrohrdefektes in Farbdarstellung.

Schlußfolgerungen aus den Messungen (qualitativ)

D386, ohne Leistungsrampe

- Nennenswerte Cs-Wanderungen (Zentraltemperatur $T_z < 1000^\circ\text{C}$) sind nicht erkennbar.
- Die Erhöhung der Cs-Konzentration in der Randzone der UO_2 -Tablette resultiert aus der bekannten Pu-Aufkonzentration und der damit verbundenen erhöhten Spaltproduktbildung durch die zusätzliche Pu-Spaltung in diesem Bereich.

D377, mit Leistungsrampe

- Die mit der Leistungsrampe verbundene Temperaturerhöhung ($T_z \sim 1500^\circ\text{C}$) führt zu erheblichen Cs-Freisetzungen im Zentralbereich der Pellets (Quantitative Auswertungen der Tomogramme zeigen, daß das Cs innerhalb des Pellets vom "heißen" Zentralbereich zum "kalten" Randbereich der UO_2 -Tablette umgelagert wird. Nur geringe Mengen werden in die Dishings und den Restspalt freigesetzt).

D385, ohne Leistungsrampe, mit Defekt

- Der Wasser- bzw. Wasserdampfkontakt mit dem Brennstoff während des Betriebes hat zur Folge, daß die Cs-Austragung trotz der niedrigen Temperaturen ($T_z < 1000^\circ\text{C}$) sehr intensiv abläuft.
- Die relative Unbeweglichkeit des Zr im UO_2 wird durch die Einwirkung des Wasserdampfes nicht nachweisbar beeinflusst (Abb. 6b).

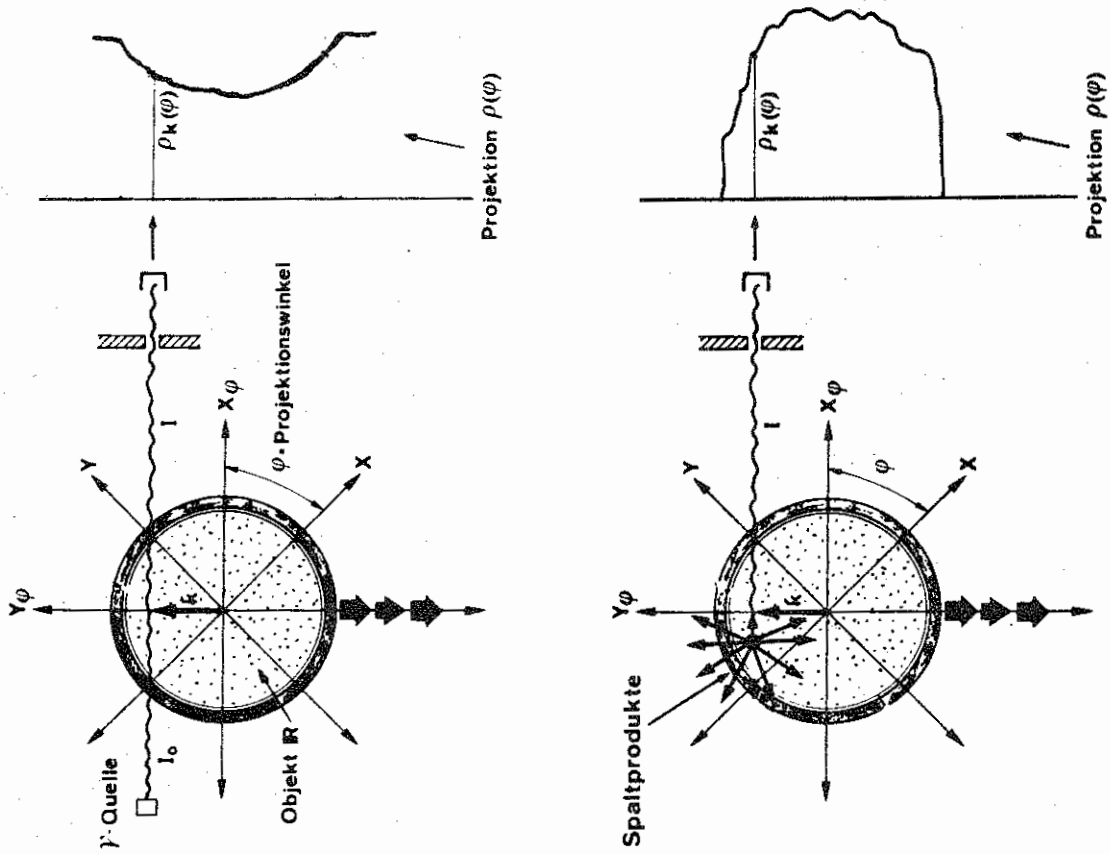


Abb. 1: Abtastprinzip bei der TCT und ECT (schematisch)

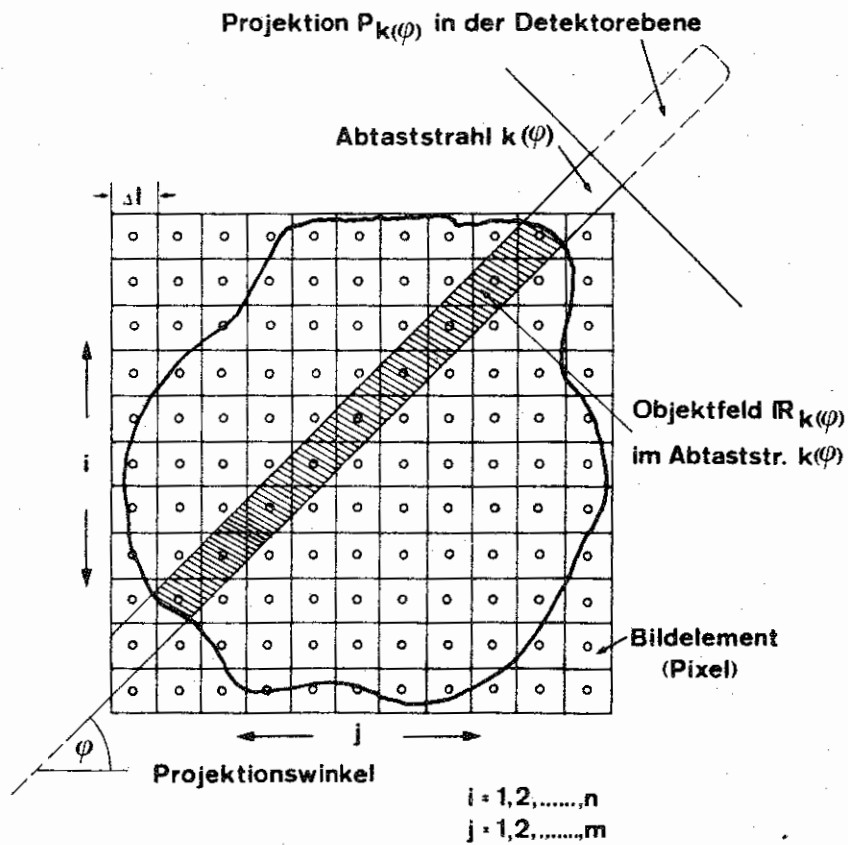


Abb. 2: Bilddiskretisierung am Beispiel einer 11 x 11 Bildmatrix in 121 kleinere quadratische Bildelemente (schematisch)

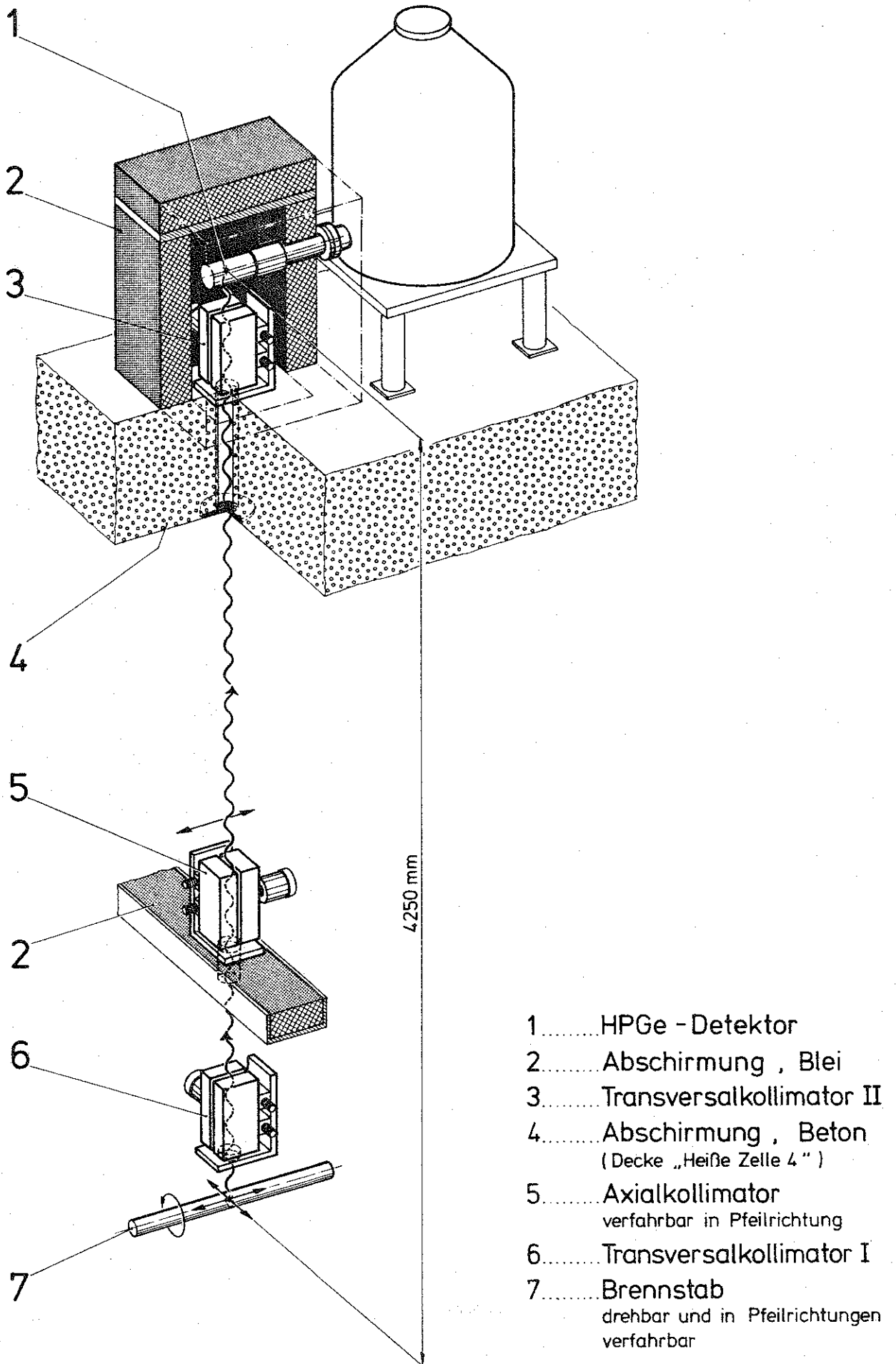


Abb. 3a: Mechanischer Aufbau der γ -CT-Anlage (schematisch)

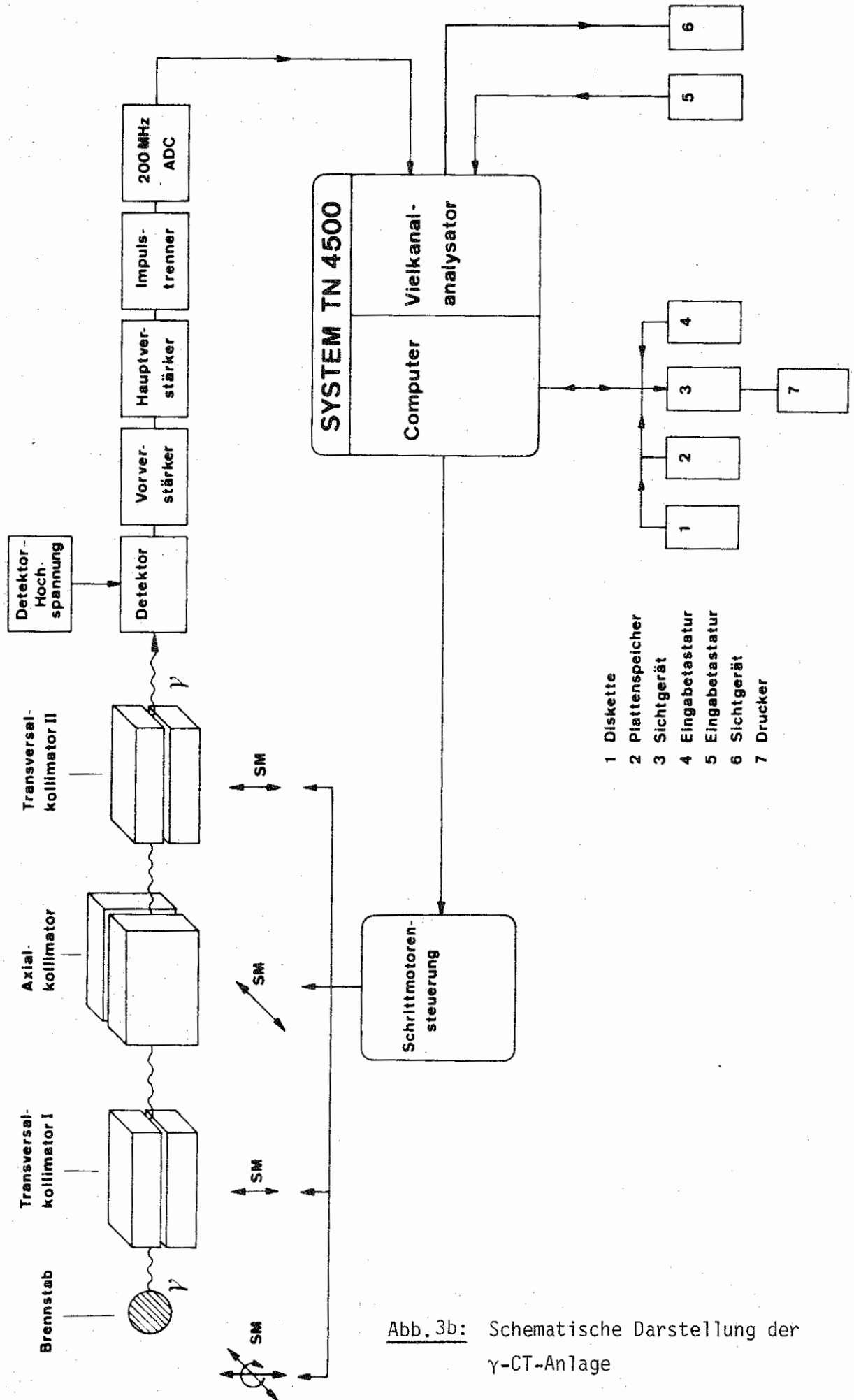


Abb. 3b: Schematische Darstellung der γ -CT-Anlage

CS137
D386 224MM

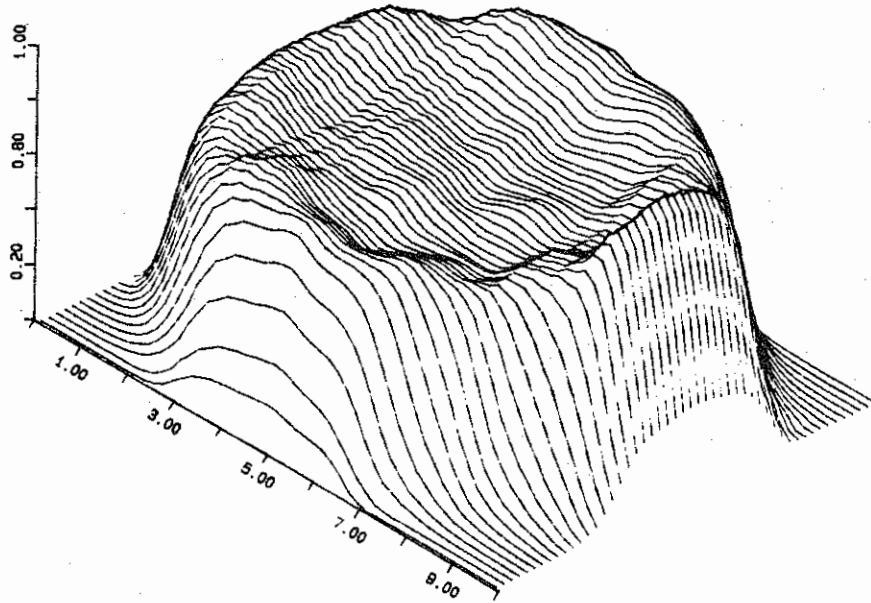


Abb. 4: D386, ohne Leistungsrampe

CS137
D377 224MM

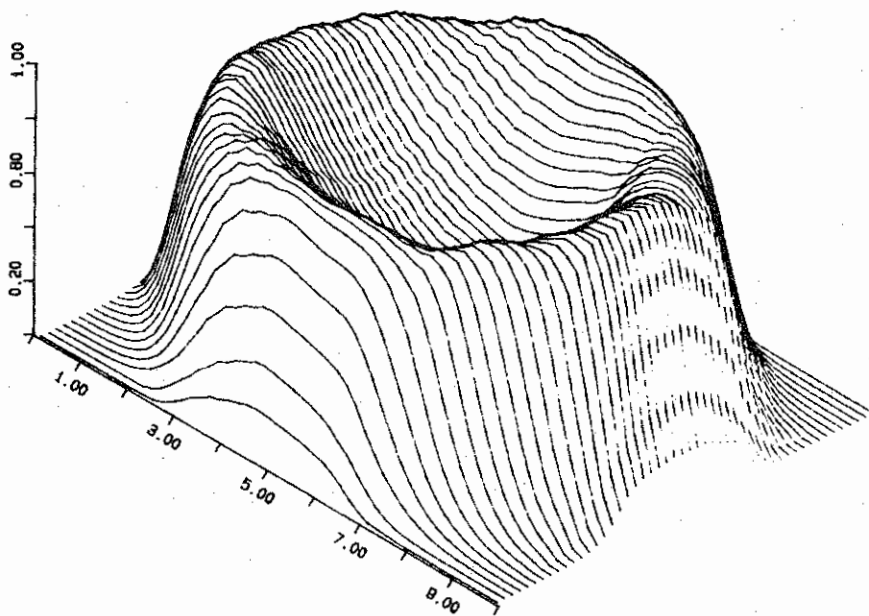
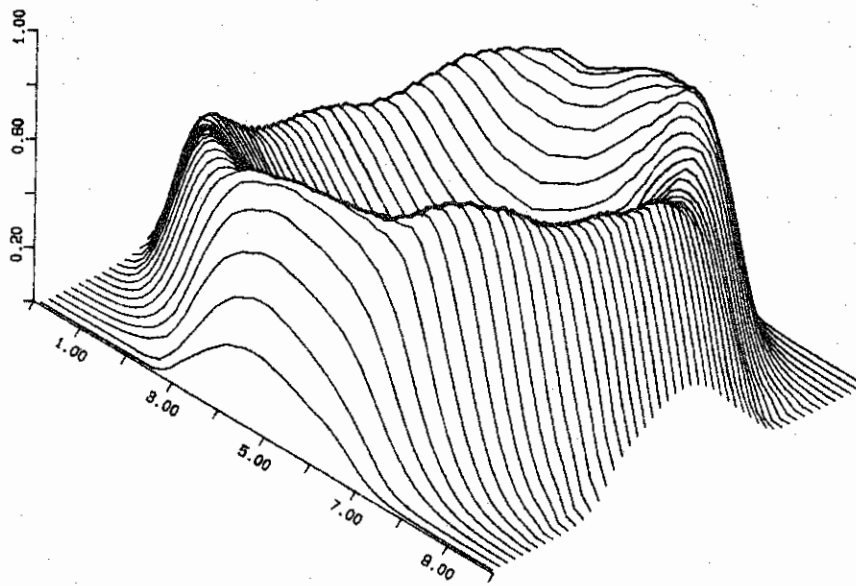


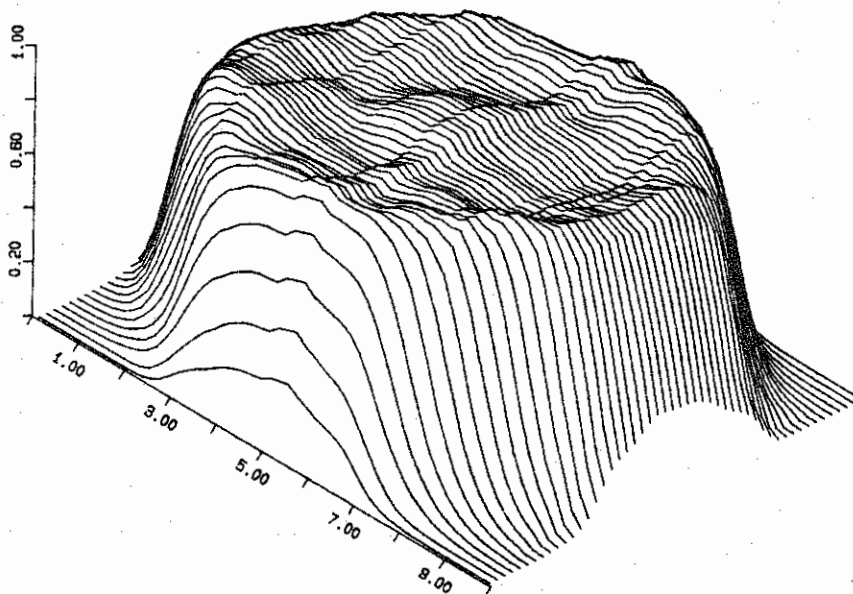
Abb. 5: D377, mit Leistungsrampe

CS137
0385 224MM



a)

ZR95
0385 224MM



b)

Abb. 6: D385, ohne Leistungsrampe, mit Defekt
a) Cs-Verteilung, b) Zr-Verteilung

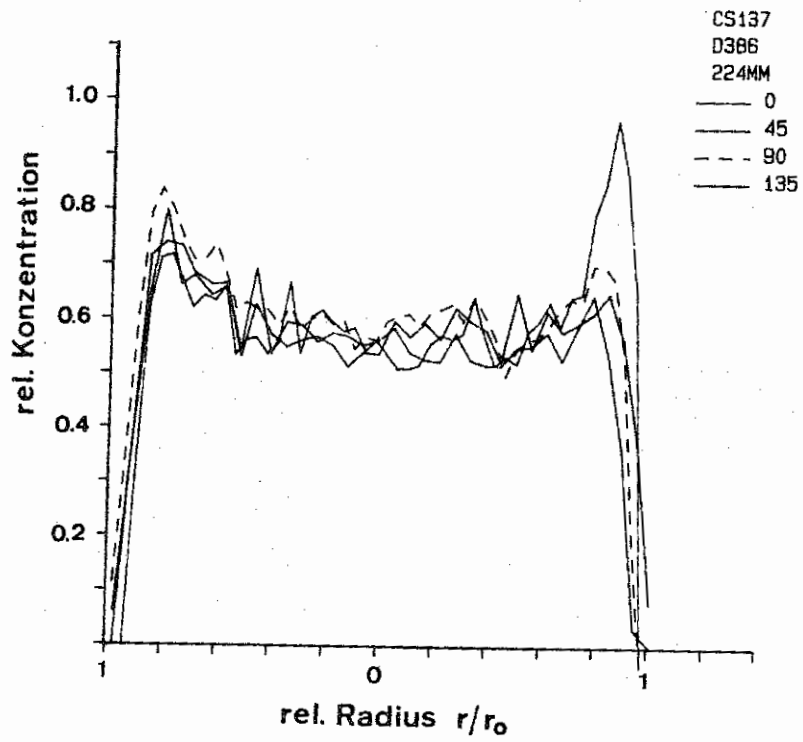


Abb. 7: D386, ohne Leistungsrampe

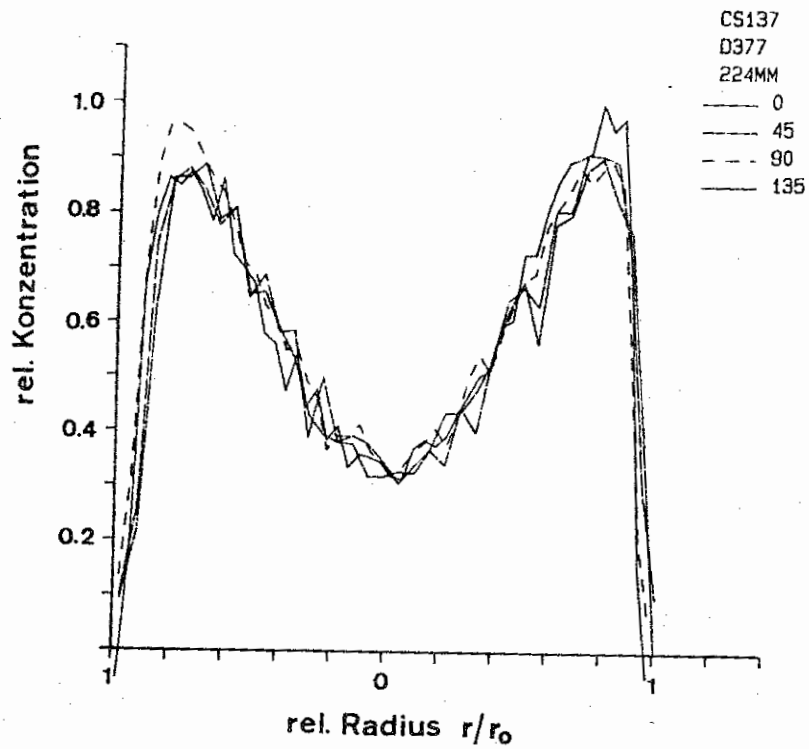


Abb. 8: D377, mit Leistungsrampe

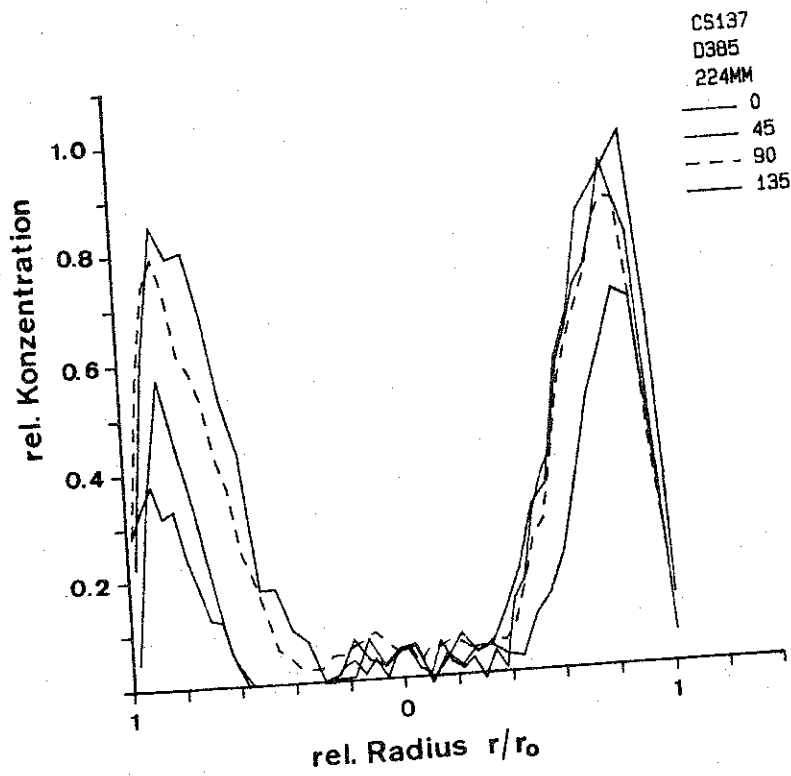


Abb. 9: D385, ohne Leistungsrampe, mit Defekt

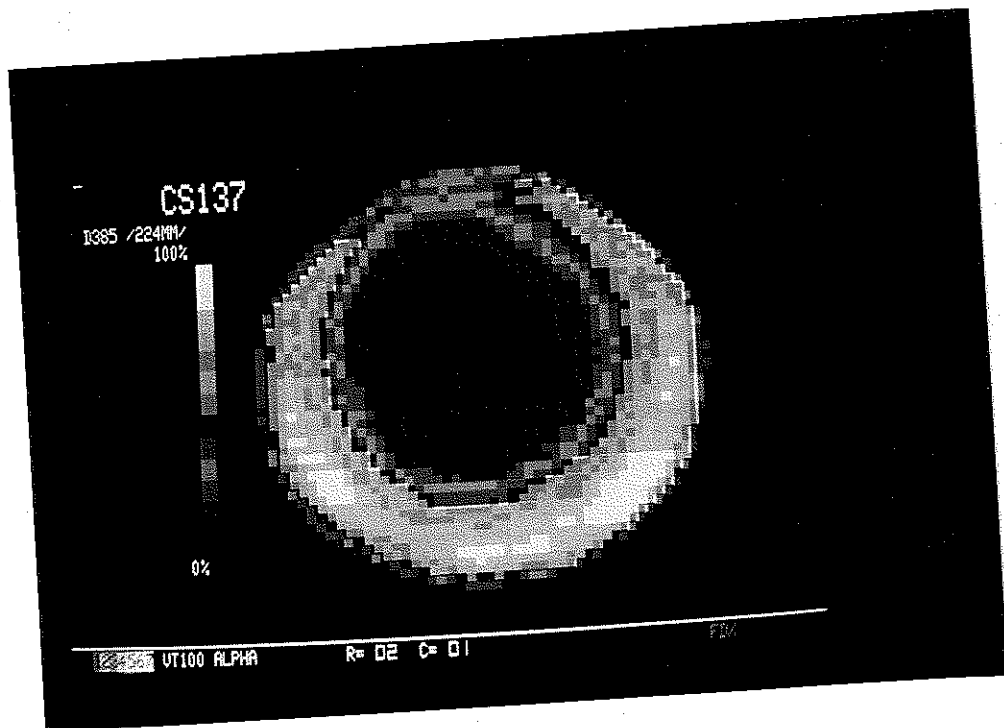


Abb. 10: D385, ohne Leistungsrampe, mit Defekt
(Cs-137 Konzentrationsverteilung in Farbdarstellung)

Literaturverzeichnis

- /1/ A. Reymann, J. Ahlf, D. Bellmann, K.-H. Blom; In: P. von der Hart u. H. Röttger (eds) Irradiation Technology, 103-115; Brüssel 1983
- /2/ B.K. Barnes, J.R. Phillips; Los Alamos Scientific Laboratory; LA-4676 (1971)
- /3/ J.R. Phillips; Nucl. Technology, Vol. 28(1976)282-290
- /4/ F. Michel; Nucl. Instrum. Methods, 154(1978)
- /5/ B.K. Barnes, J.R. Phillips, G.R. Waterbury, J.N. Quintana, J.R. Netuschil, A.S. Murray; J. Nucl. Mat. 81(1979)177-184
- /6/ B.K. Barnes, J.R. Phillips, M.L. Barnes; J. Nucl. Mat. 106(1982)147-156
- /7/ J.G. Ducros, F. Michel; In: P. von der Hart u. H. Röttger (eds) Irradiation Technology, 605-614, Brüssel 1983
- /8/ G. Ducros; Nuclear Technology, Vol. 68 (1985)370-384
- /9/ R.N. Bracewell; Aust. J. Phys. 9(1976)198-217
- /10/ R. Gordon, R. Bender, G.T. Herman; J. Theor. Biol. 29(1970) 471-481.