



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH
Institut für Reaktorwerkstoffe / Heiße Zellen

EINRICHTUNGEN ZUR SIMULATION VON LAGERVERSUCHEN
VON BRENNSTOFFHALTIGEN ABFALLEN
VORNEHMLICH HTR BRENNELEMENTEN

G. POTT
R. DUWE

vorgelegt
bei der EURATOM-Arbeitsgruppe

"Hot Cell and Remote Handling Technology"

in

Ispra, 23-24 September 1987

Einrichtungen zur Simulation des Lagerverhaltens von
brennstoffhaltigen Abfällen, vornehmlich HTR-Brennelementen

G. Pott

R. Duwe

Zusammenfassung

Beim Betrieb der Hochtemperaturreaktoren AVR und THTR fallen jährlich größere Mengen kugelförmiger Brennelemente als Abfall an. Das Verhalten dieser Elemente unter Zwischen- und Endlagerbedingungen ist zu untersuchen. Gemessen wird die Kr 85- und H 3-Gasfreisetzung im Temperaturbereich bis 400 °C über längere Zeit in speziell gefertigten Versuchsbehältern und in Original-Lagerbehältern (950 Elemente je Behälter). Quinäre Salzlauge bei Temperaturen bis 200 °C und maximal 300 bar sind die Bedingungen für weitere Experimente zur Prüfung des Brennelementverhaltens im Endlager im Falle eines Laugenzuflusses. Die notwendigen Einrichtungen wurden in den Heißen Zellen der KFA entwickelt und mehrfach erprobt.

1. Einleitung

Beim Betrieb der Hochtemperaturreaktoren AVR und THTR fallen jährlich größere Mengen kugelförmiger Brennelemente (Abb. 1) als Abfall an. Da zur Zeit eine Wiederaufarbeitung dieser Elemente nicht möglich und auch eine endgültige Endlagerung noch nicht genehmigt ist, müssen diese zwischengelagert werden. Abb. 2 zeigt dies schematisch für die Brennelemente des AVR. Diese werden für die Lagerung in Edelstahlbehälter von etwa 600 mm \emptyset und 1 m Länge (950 Kugeln von 6 cm \emptyset) abgefüllt und 2 solcher Kannen in einen abgeschirmten Behälter verpackt. Die Behälter werden dann zwischengelagert. Für die Endlagerung ist ein Salzstock in Norddeutschland vorgesehen. Im Hinblick auf eine größtmögliche Sicherheit wird daher das Verhalten des Brennstoffs unter simulierten Lagerbedingungen geprüft.

2. Versuche unter Zwischenlagerbedingungen

Es interessiert vornehmlich die Spaltgas (Kr 85) und Tritiumfreisetzung bei Raum-, Betriebs- und Störfalltemperatur (400 °C). Hierzu werden Laborversuche an einer kleinen Brennelementzahl (maximal 12) und an "Original-Behältern" (950 Elemente) durchgeführt.

2.1 Laboruntersuchungen

Um für verschiedene Brennelement-Typen Daten über das Langzeitlagerverhalten zu erstellen, wurden 8 heizbare Stahlbehälter installiert, in die jeweils maximal 12 Brennelemente eingesetzt werden können (Abb. 3). Diese Behälter werden fernbedient in den Zellen beladen und verschlossen. Da die Spaltgasfreisetzung der Brennelemente sehr niedrig ist, die Versuchszeit mehr als 1 Jahr beträgt und die Versuchstemperatur bis 200 °C betragen kann, werden extreme Anforderungen an die Dichtigkeit der Behälter gestellt. Ursprünglich verwendet wurden Metalldichtungen, die zu Versuchsbeginn dicht waren, bei Temperaturschwankungen (z.B. Stromausfall) diese Eigenschaft verloren. Später wurden Kunststoffdichtungen eingesetzt, die diesen Nachteil ausglich. Die Behälter werden nach Befüllen mit Brennelementen in ein abgeschirmtes Lagergestell, das in einer Isolierzelle steht, als Einschub eingesetzt und an Spülgasleitungen angeschlossen. Über diese Lei-

tungen wird dann mittels Umwälzpumpe eine Gasprobe für Analysenzwecke entnommen. Da die Behälter hinter einer Abschirmung stehen, kann der Operateur die Zelle begehen und die Gasprobenentnahme relativ leicht vornehmen. In einem zweiten Verfahrensschritt wird mit einem NaJ-Detektor und angeschlossenen Vielkanalanalysator das Kr 85 (514 keV) direkt bestimmt. Da der Gasprobenbehälter zusätzlich als Ionisationskammer benutzt werden kann, läßt sich bei Kenntnis des Kr 85-Gehaltes der Anteil des Ionisationsstromes ermitteln, der durch die H3-Aktivitäten in der Kammer verursacht wird. Anschließend wird der Gasprobenbehälter über eine Waschflasche leergespült und das aufgefangene HTO stichprobenweise mit einem Flüssigszintillationszähler gemessen. Inzwischen wurde die Meßmethode vereinfacht, indem die Gasprobe mit einem 3-Kammer-Proportionalzählrohr analysiert wird. Das HTO wird dabei mit P_2O_5 ausgefiltert, HT und Kr 85 durch Reichweiten der Diskriminierung getrennt erfaßt.

Bei längeren Versuchsstandzeiten ($> 0,5$ a) und höheren Lagertemperaturen (> 200 °C) wird das Freisetzungsverhalten von Brennelementen in geschlossenen Behältern zunehmend durch Verluste aufgrund von Leckage und H3-Permeation bestimmt. Aus diesem Grund wurden doppelwandige Behälter mit Doppel-dichtungssystem und separater Spülmöglichkeit von Innen- und Außenbehälter gebaut. Für die Doppelwandbehälter werden Heizapparaturen benutzt, in denen Temperaturen bis 400 °C eingestellt werden können. Die Behälter sind mit bis zu 6 Kugeln beladbar. Die Messung der Gaskonzentration im Innenbehälter und im Außenbehälter erfolgt über Gasprobenentnahme und wird mittels Proportionalzählrohr überwacht.

2.2 Demonstrationsversuche an Kannen

Zur Zeit werden in der KFA kugelförmige Brennelemente aus dem AVR-Reaktor in Behältern (AVR-TL-Kannen) mit 950 Elementen abgefüllt und teilweise in einem sogenannten "Trockenlager" aufbewahrt. Ziel von Demonstrationsversuchen an Behältern in diesem Lager ist es, belastbare Werte über Temperaturentwicklung, Dosisleistung und Aktivitätsfreisetzung meßtechnisch zu erfassen und mit Voraussagen zu vergleichen. Für die Messung der H3- und Kr 85-Freisetzung wurden zwei Kannen (Ventilkannen) mit entsprechenden Gasanschlüssen vorbereitet (Abb. 4). Es handelt sich um Originalkannen aus Edelstahl, in die im oberen Bereich in einer Einbuchtung zwei Faltenbalg-

ventile so eingesetzt wurden, daß die äußere Kontur nicht beeinträchtigt wurde und somit eine Handhabung mit den Belade- und Transportgeräten gegeben war. Die Lagertemperatur betrug ca. 30 °C, je nach Position im Kannenverband. Sie können fernbedient an ein Spülgassystem angeschlossen werden, mit dem Gasproben entnommen werden können. Dazu werden die Kannen aus dem Lagergestell in den Manipulatorbereich gebracht, wo zwei Stahlschläuche mit Steckkupplungen aufgesetzt werden. Die Gasprobennahme erfolgt, nachdem das Gas im geschlossenen Kreislauf mehrmals umgewälzt wurde. Den etwa 100 Litern Kannenleervolumen wird dabei 0,3 l entnommen. Die Gasanalyse wird mit einem Proportionalzählrohr in einem zweiten Verfahrensschritt durchgeführt (Abb. 5).

Zusätzlich besteht die Forderung, aus jeder Kanne des Lagers eine Gasprobe entnehmen zu können. Hierzu wird eine Gasentnahmeglocke über die verschlossene AVR-Kanne gestülpt und festgeklemmt, wobei mittels O-Ring-Dichtung ein gasdichter Verschuß hergestellt wird. Mit einer Spindel kann dann der Verschußstopfen in die Gasglocke gezogen und damit die Kanne geöffnet werden. An die Gasglocke sind Gaszu- und ein Gasableitungsschlauch angeschlossen, mit denen ein Gasstrom (vorgetrocknete Luft) über der geöffneten Kanne eingestellt werden kann (Abb. 6). Aus der Kannenöffnung austretende Gasaktivität wird so mit dem Spülgasstrom zu einer Meßstation transportiert, wo Gasfeuchte sowie Gasaktivität (H3 und Kr 85) mittels Proportionalzählrohr gemessen wird. Möglich ist aber auch eine Gasprobenentnahme über Evakuieren der Kanne.

2.3 Demonstrationsversuch mit Lagerbehälter

Darüberhinaus wurden 2 Prototyp-Sphärogußlagerbehälter, die je 2 Kannen mit 950 Brennelemente enthielten, als Demonstrationstest aufgestellt (Abb. 7, 8). Ziel des Meßprogramms ist es, experimentelle Daten zur Verifizierung von Auslegungsdaten für Behälter zur Lagerung von AVR- und THTR-Brennelementen sowie für ein späteres Genehmigungsverfahren eines Behälterlagers zu ermitteln und bereitzustellen.

Die Behälter bestehen aus einem dickwandigen, hohlzylindrischen Behälterkörper aus Gußeisen mit Kugelgraphit (Werkstoff: GG 40) mit angegossenem Boden und einem aus dem gleichen Werkstoff hergestellten Abschirmdeckel. Die Dichte des Materials beträgt $7,2 \text{ g/cm}^3$. Der Innenraum eines Behälters, in den 2 AVR-Trockenlagerkannen übereinanderstehend eingebracht werden können, wird durch einen abgestuften, eingelassenen Abschirmdeckel verschlossen. Dieser Deckel wird mittels 24 Schrauben fest mit dem Behälterkörper verschraubt. Der Abschirmdeckel und der Behälterkörper haben die Funktion der Strahlenabschirmung und -zusätzlich zur Trockenlagerkanne- des sicheren Aktivitätseinschlusses.

Zur Messung der Temperatur sind die Behälter mit jeweils 16 Thermoelementen und zwar 8 an der Innenseite und 8 an der gegenüberliegenden Außenseite befestigt. Sie sind teilweise in Nuten verlegt und mit der Oberfläche fest verbunden. Ferner wird die Umgebungstemperatur ständig registriert.

Die Gammadosisleistung außerhalb der Behälter wurde mit einem handelsüblichen geeichten Gerät in regelmäßigen Zeitabständen vermessen. Wie in Abb. 9 dargestellt, verringert sich die Oberflächendosisleistung etwa um den Faktor 6 zwischen dem 1. und 5. Jahr nach der Brennelemententnahme. Die Gußlagerbehälter sind dicht verschlossen (Leckrate $< 10^{-7} \text{ mbar l/s}$) und wurden mit einer Gasprobenentnahmevorrichtung versehen, die es gestattet, den Aktivitätsaufbau im Behälterleervolumen zu messen, der durch Leckageverlust aus den Kannen erfolgt. Ziel dieser Messungen ist, den sicheren Einschluß von HTR-BE in AVR-TL-Kannen zu zeigen und das Freisetzungsverhalten des Gesamtsystems zu bestimmen. Probenentnahme und Auswertung erfolgte wie schon in den vorab beschriebenen Versuchen.

In einem weiteren Versuch werden die vorab beschriebenen Gußlagerbehälter zuerst auf 50 und später auf 100 °C aufgeheizt. Dazu wurden die Behälter mit Heizmatten umwickelt (elektrische Leistung 4 KW) und gegen Abstrahlverluste isoliert.

3. Versuche zur Endlagerung

In der Einleitung wurde darauf hingewiesen, daß eine Einlagerung der abgebrannten Elemente in einem Salzstock geplant wird. Für die Sicherheitsanalyse der Lagerung im geologischen Endlager muß das Freisetungsverhalten von Radionukliden während der Nachbetriebsphase des Endlagers bekannt sein. Da nicht ausgeschlossen werden kann, daß in verbliebene Resthohlräume des verschlossenen Lagers Lauge in begrenztem Umfang eindringt, können die dort eingelagerten BE-Behälter korrodieren und somit Brennelemente mit gesättigter Salzlösung in Kontakt kommen. Die nicht in intakten Brennstoffteilchen eingeschlossenen löslichen Spaltprodukte und Aktiniden (weniger als 1 %) könnten dann ausgelaugt werden.

Die Einlagerung im Endlager soll in Bohrlochtechnik erfolgen, wobei aus heutiger Sicht als Lagerort der MAW-Bereich mit einer Temperaturbegrenzung auf 90 °C, aber auch der Bereich für verglaste Abfälle mit einer Maximaltemperatur von 200 °C infrage kommt. Aufgrund des plastischen Verhaltens des Salzgebirges schließen sich die Resthohlräume, wobei auf eingeschlossene Laugenmengen und Lagergebände mit Brennelementen hohe Drucke (bis zu 300 bar) theoretisch einwirken können.

Entsprechende Versuche werden unter den vorabgenannten Temperatur- und Druckbedingungen in sogenannter quinäarer Lauge durchgeführt. Zusammensetzung: NaCl, KCl, MgCl₂, MgSO₄, H₂O (gesättigt bei 55 °C mit NaCl-Überschuss).

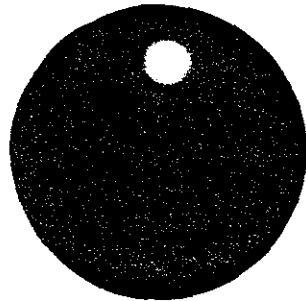
Um die genannten Bedingungen einstellen zu können, wurden handelsüblich Autoklaven gekauft und für die gestellten Anforderungen modifiziert. Abb. 10 zeigt den prinzipiellen Aufbau der Apparatur einschließlich des Kreislaufes. Das Brennelement liegt in einem Becherglas und ist mit ca. 2 cm gesättigter Lauge bedeckt.

Der Druck wird entweder über Druckflaschen eingestellt oder im Falle des 300 bar-Tests durch einen Druckumformer hergestellt. Zur Probennahme muß der Autoklav fernbedient geöffnet werden. Das Becherglas wird herausgehoben und die Lauge mittels Trichter in einen Probenbehälter gefüllt. Der Bodensatz wird mit zugegebenem Wasser gelöst und ergibt eine zweite Probe. Das Brennelement bleibt im Trichter und kann in ein neues vorbereitetes Becherglas mit frischer gesättigter Lauge gelegt werden.

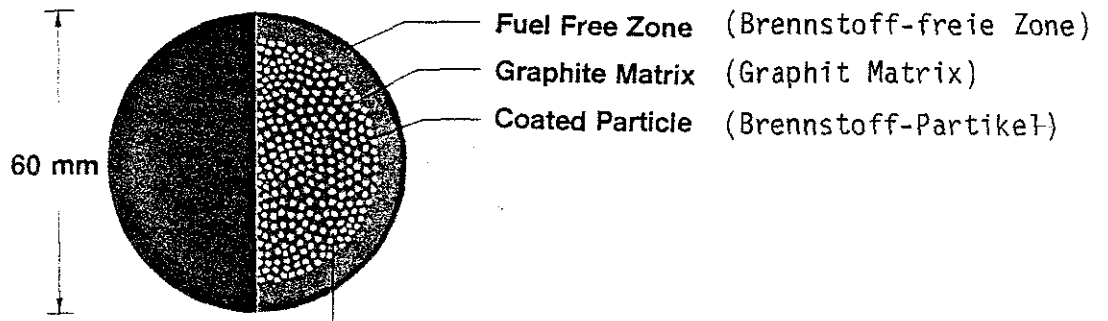
Die ursprünglich ausgewählten Autoklaven aus Edelstahl waren den Anforderungen nicht gewachsen und aufgrund von Spannungsrißkorrosion traten Defekte auf (Abb. 11). Für die zweite Generation wurde als Behältermaterial Hastelloy ausgewählt, daß diese Nachteile nicht hatte.

Während die vorab beschriebene Apparatur in einer abgeschirmten Zelle aufgestellt werden muß und die Probenentnahme fernbedient erfolgt, wurde für die Auslaugversuche bei 90 °C und 130 bar eine Einrichtung konzipiert, die außerhalb einer abgeschirmten Zelle im Kontrollbereich installiert werden kann (Abb. 12). Die zu untersuchende Kugel wird fernbedient in einer Zelle in einen Druckbehälter eingefüllt und dieser in eine Abschirmung mit Heizung eingesetzt. Nach Aufsetzen eines Stopfens können elektrische Meß- und Versorgungsleitungen sowie das Probenentnahmesystem angeschlossen werden. Der Befüllvorgang mit Lauge geschieht wie folgt: Erwärmte Lauge wird in den Vorratsbehälter gefüllt, Autoklav und Vorratsbehälter mit 130 bar He-Druck beaufschlagt und die Lauge mit geringem Differenzdruck eingefüllt.

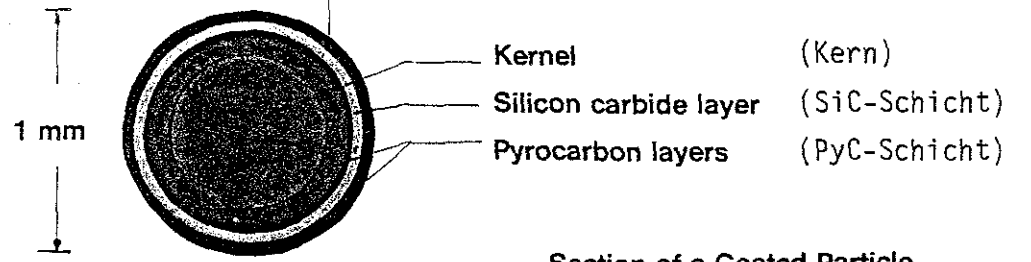
Die Probenentnahme kann unter Betriebsbedingungen erfolgen. Es wird ein geringer Unterdruck im Vorratsbehälter hergestellt und Lauge kann in den erwärmten Vorratsbehälter einströmen lassen. Nach Schließen der Verbindung zum Autoklaven kann dann die Probe für die weitere Analyse entnommen werden. Bestimmt wird die Auslaugrate von Cs 134, Cs 137, Sr 90, Ce 144 sowie in geringerem Umfang Tc 99 und J 129.



SPHERICAL FUEL ELEMENT
(Brennelementkugel)



Fuel Free Zone (Brennstoff-freie Zone)
Graphite Matrix (Graphit Matrix)
Coated Particle (Brennstoff-Partikel)

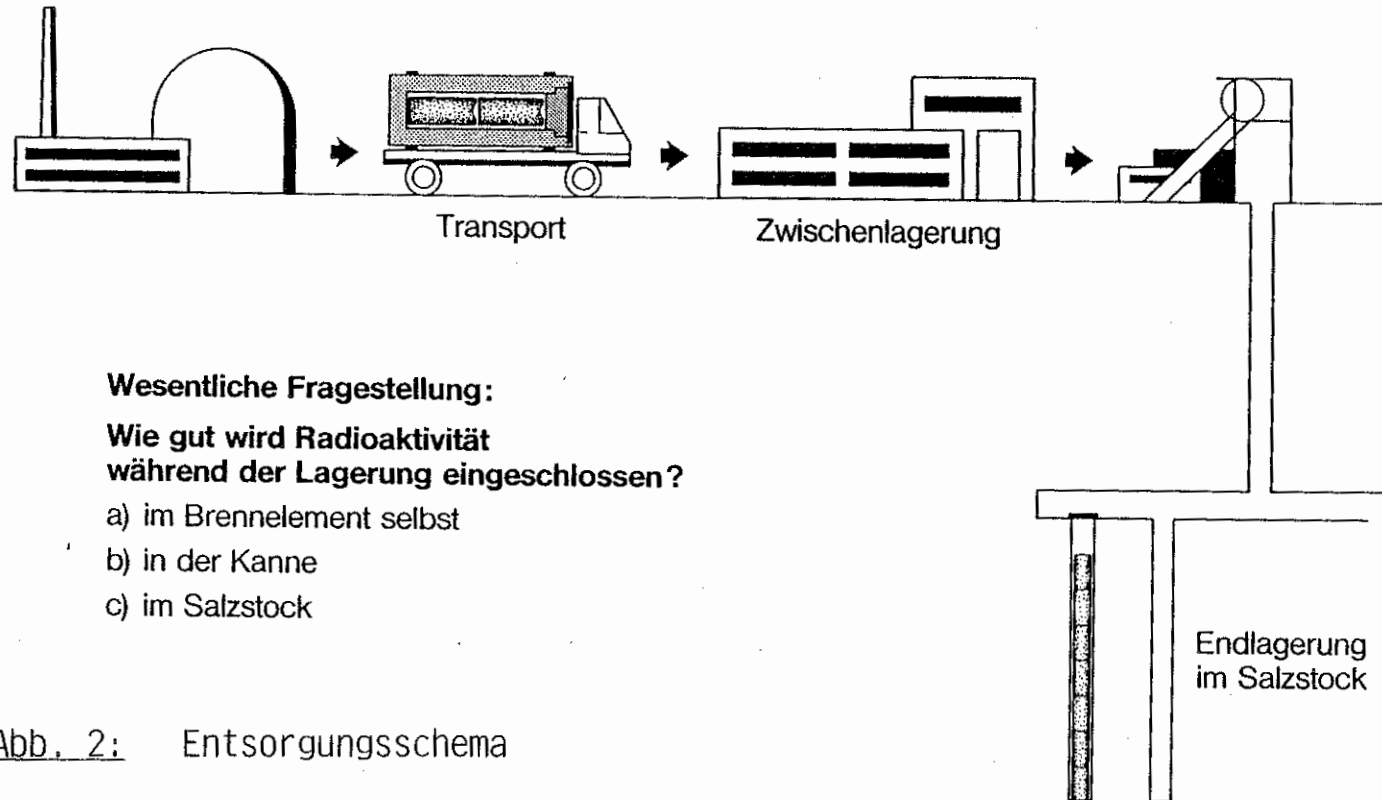


Kernel (Kern)
Silicon carbide layer (SiC-Schicht)
Pyrocarbon layers (PyC-Schicht)

Section of a Coated Particle
(Schliffbild eines Partikels)

Abb. 1: HTR-Brennelement

Untersuchungen in den Heißen Zellen zum Lagerverhalten von Brennelementen



Wesentliche Fragestellung:

**Wie gut wird Radioaktivität
während der Lagerung eingeschlossen?**

- a) im Brennelement selbst
- b) in der Kanne
- c) im Salzstock

Abb. 2: Entsorgungsschema

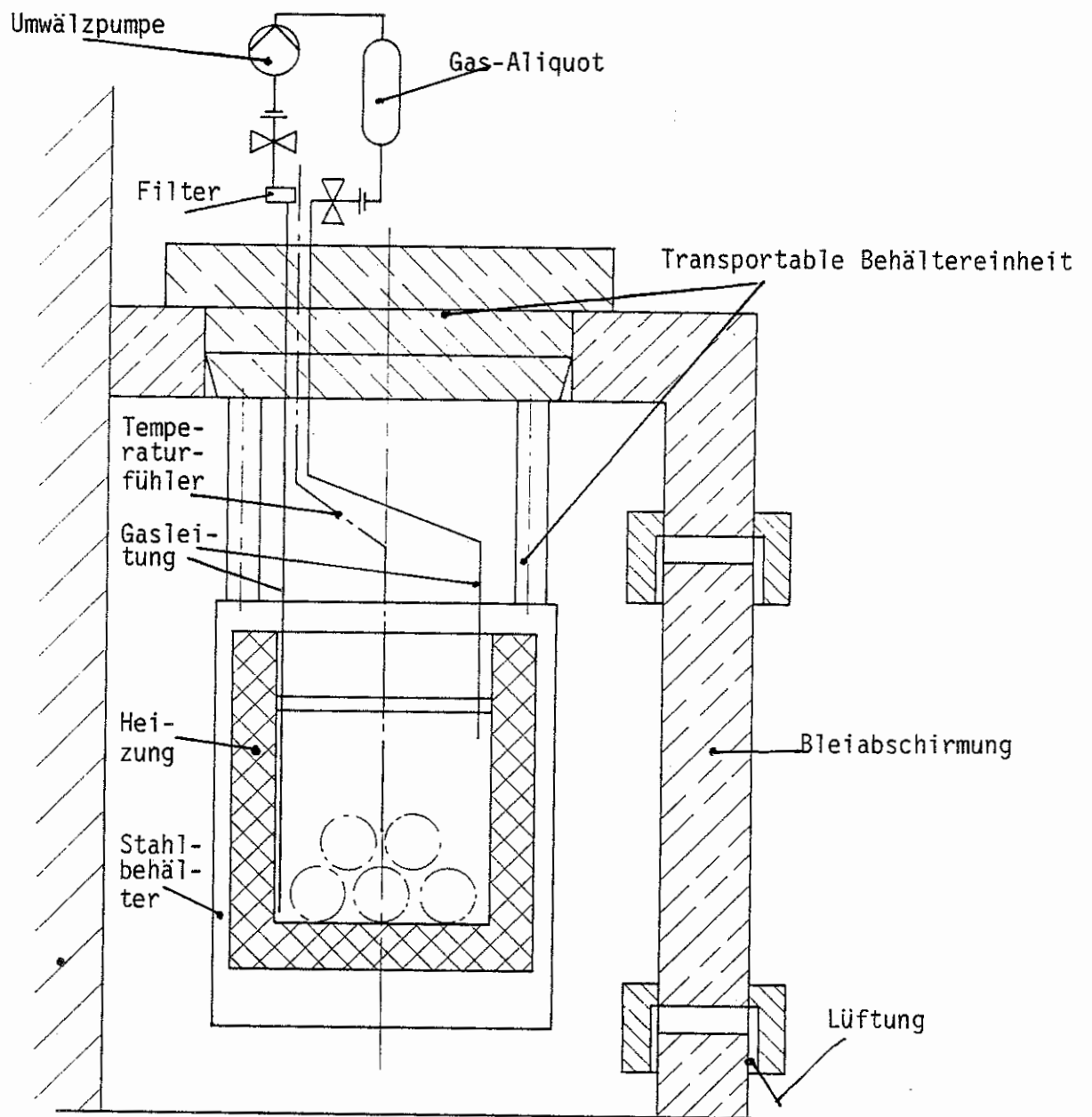


Abb. 3: Einrichtung zur Messung der Gasfreisetzung von HTR-Brennelementen

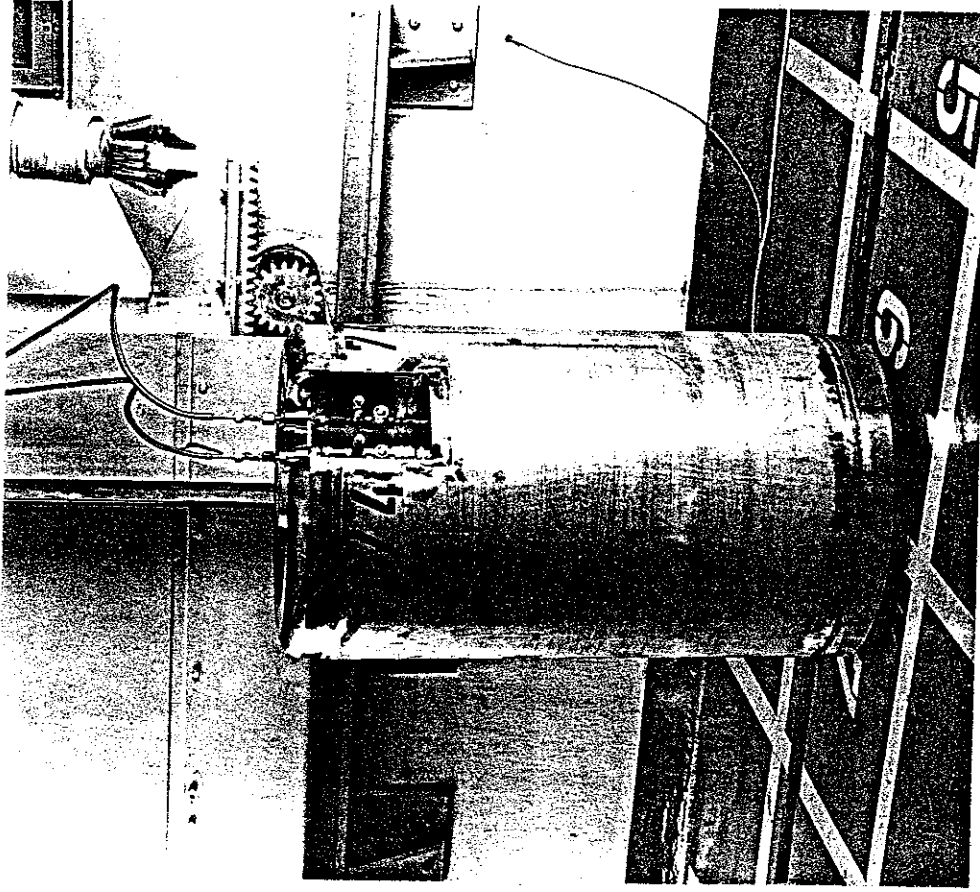
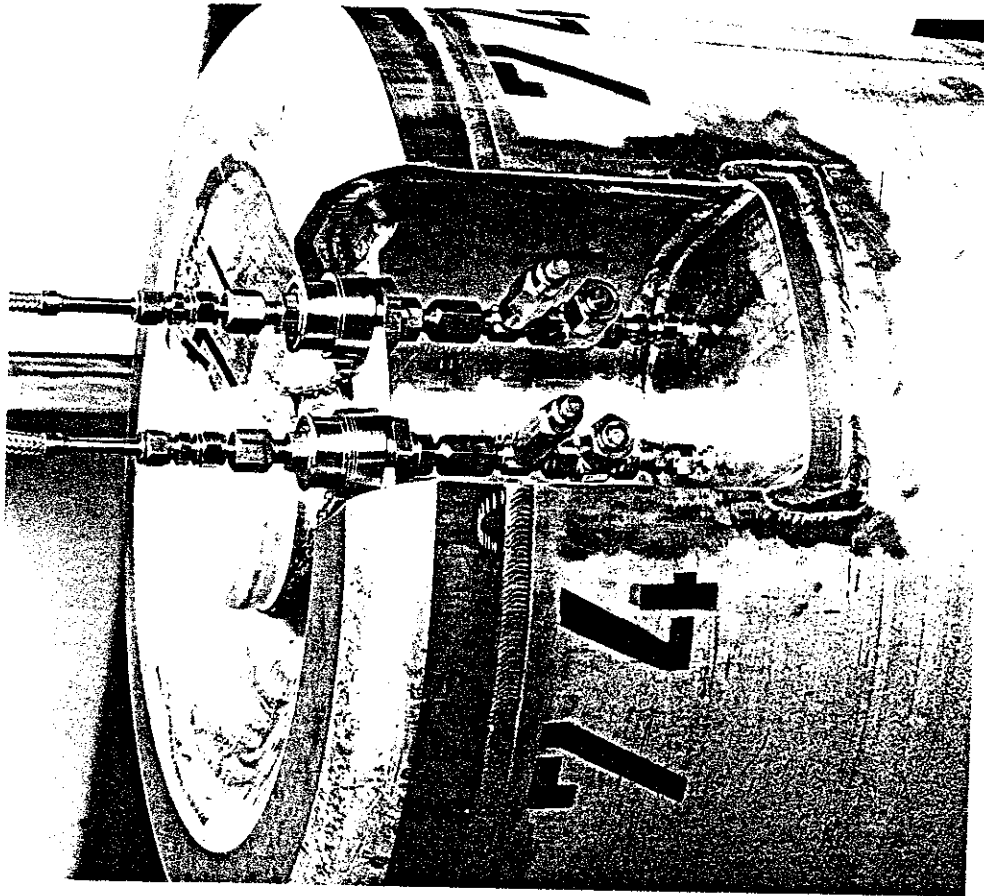


Abb. 4: Trockenlagerkanne für 950 Brennelemente, speziell für Gasprobenentnahme vorbereitet

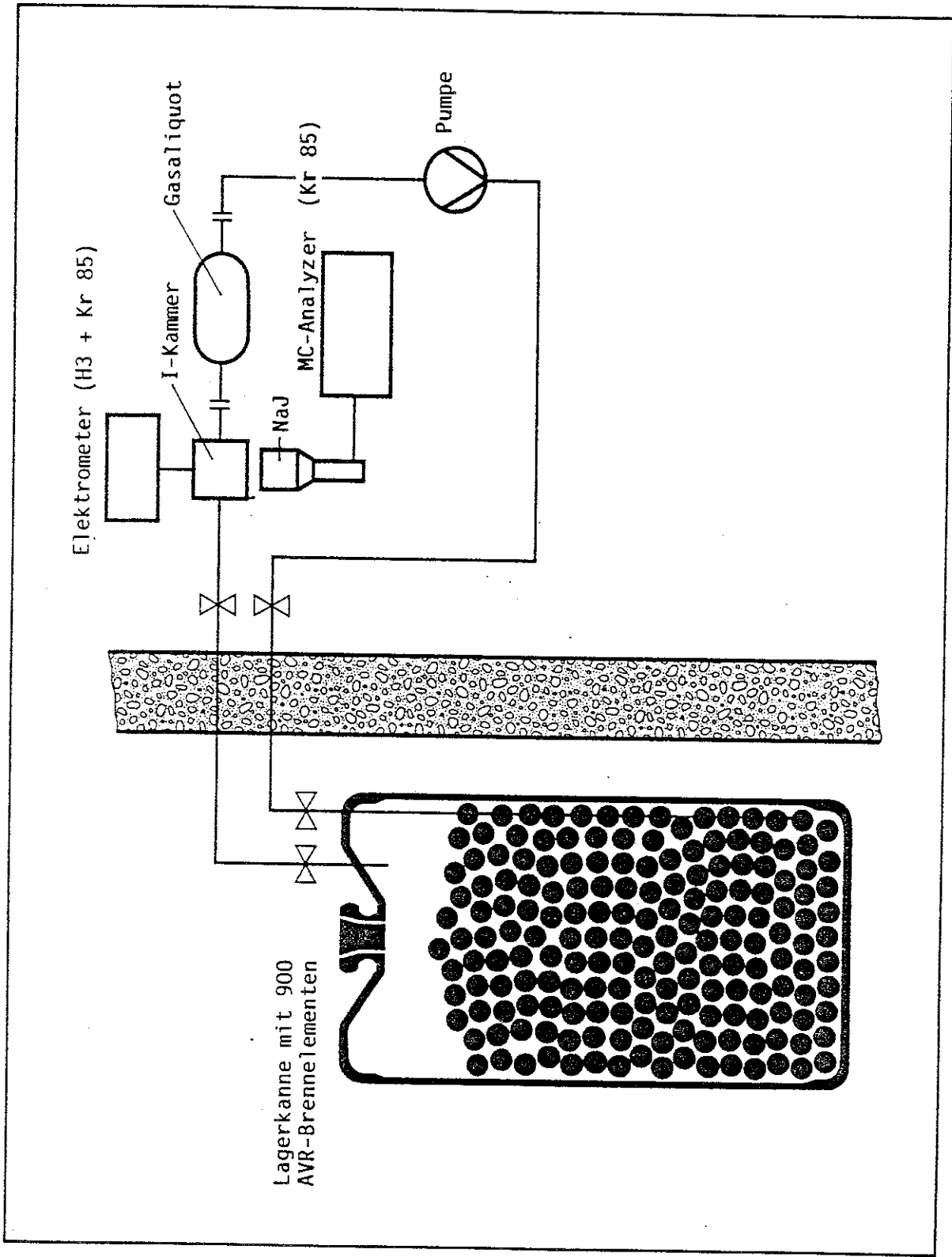


Abb. 5: Anordnung zur Messung gasförmiger Radionuklide im Gasraum einer Lagerkanne für AVR - Brennelemente

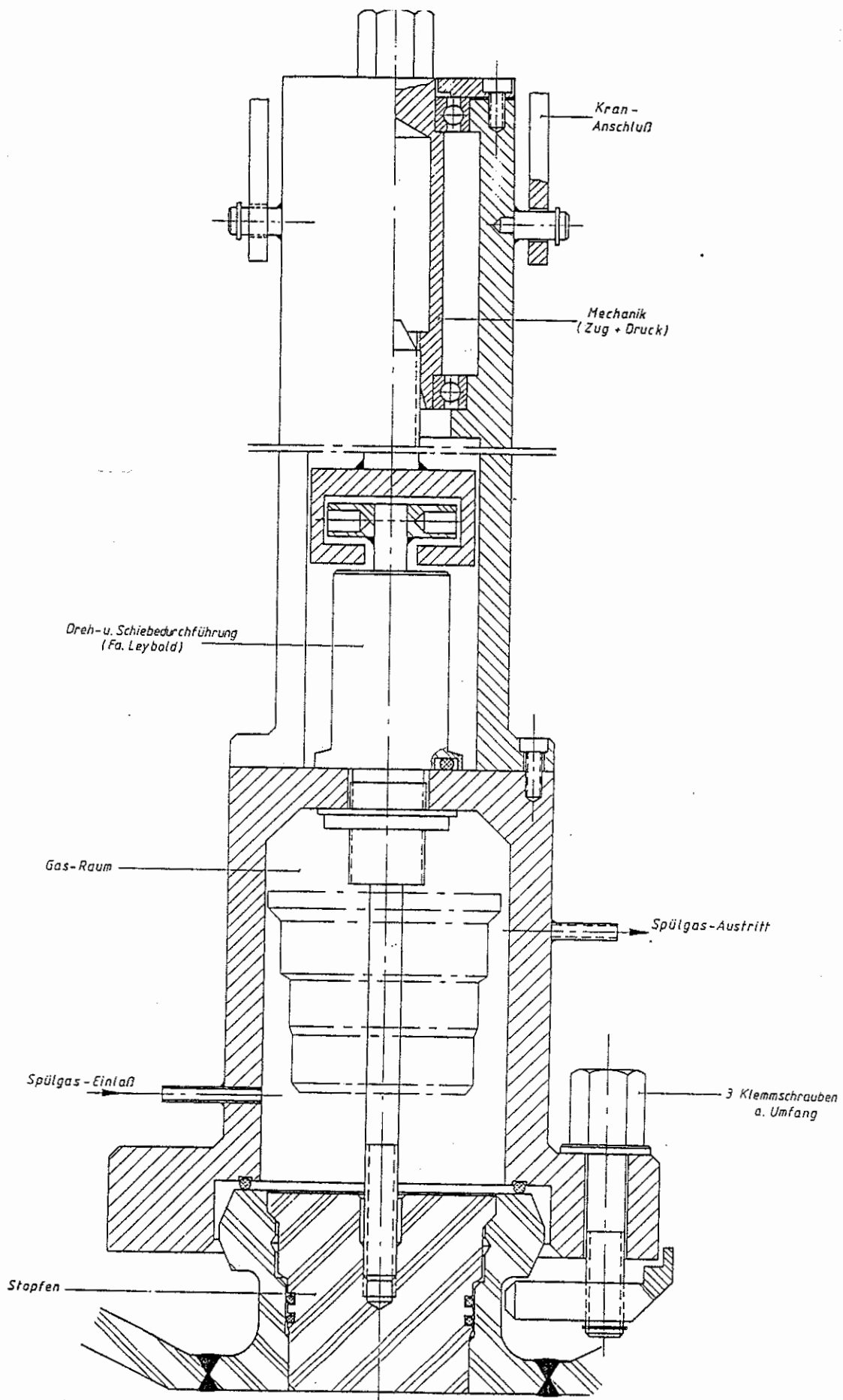


Abb. 6: Stopfenziehvorrichtung und Gasentnahmeglocke für AVR-Kannen

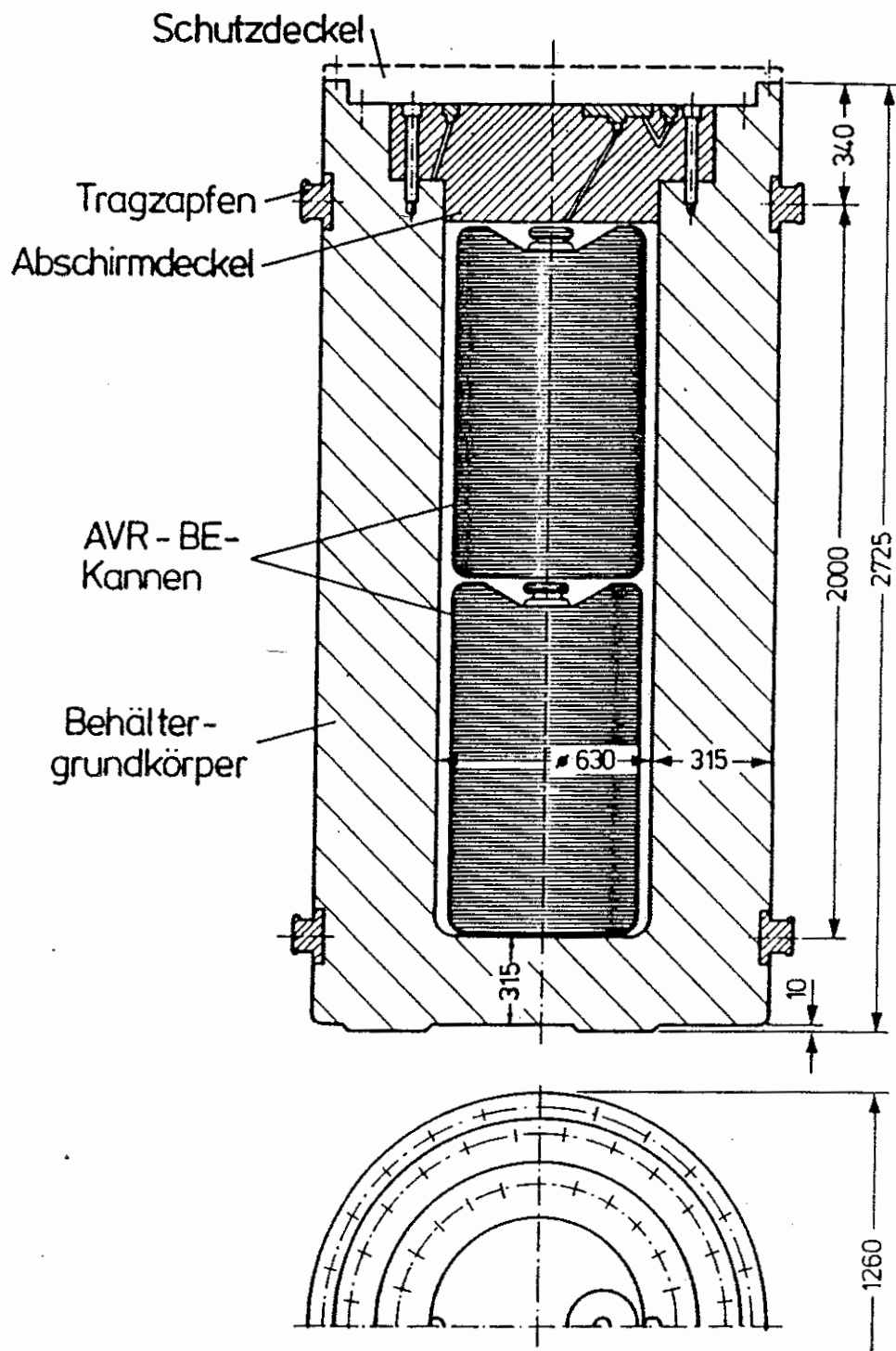


Abb. 7: Lager- und Transportbehälter für abge-
 brannte HTR-Brennelemente

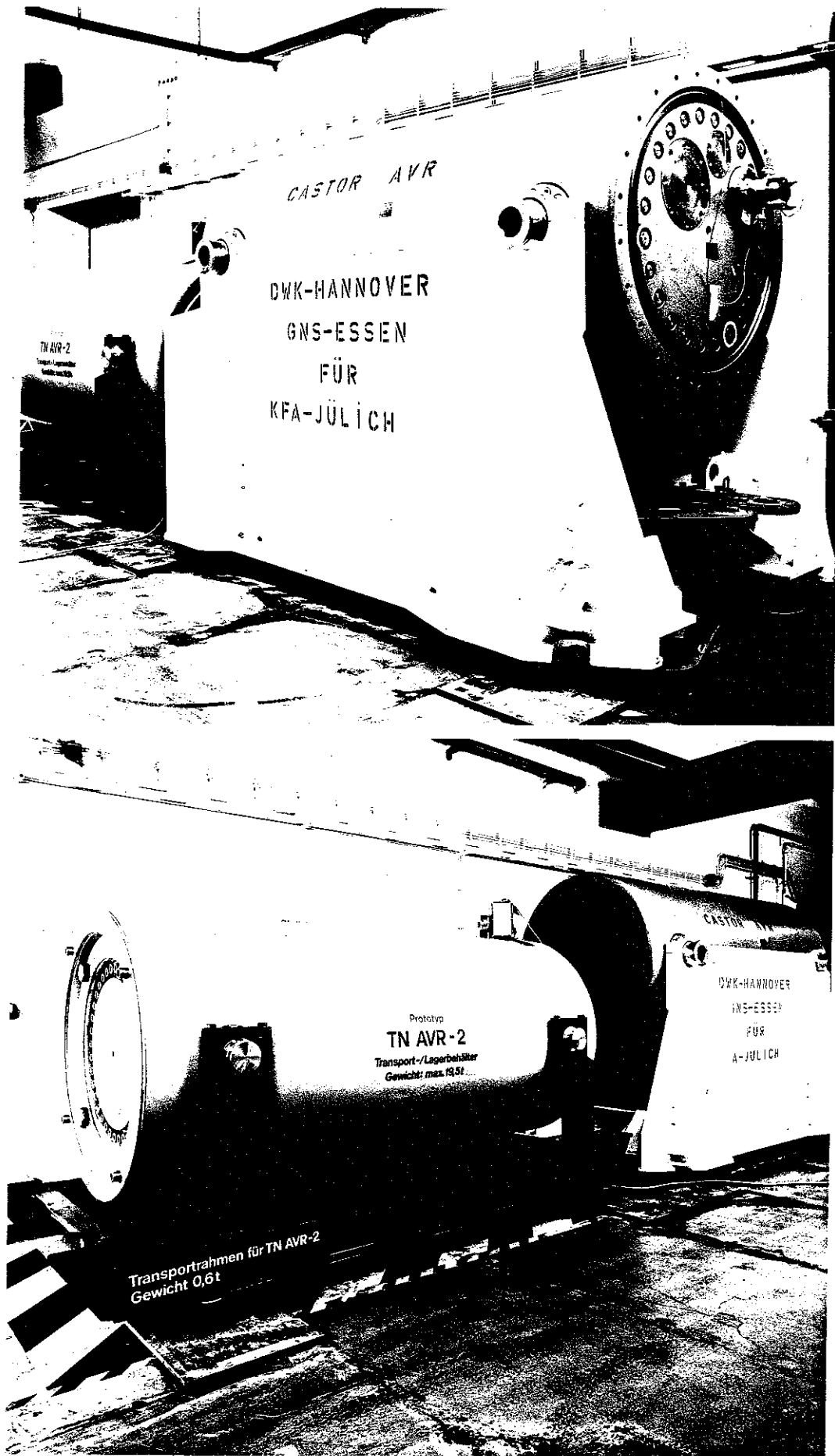


Abb. 8:



PROTOTYPEN DER TRANSPORT- UND LAGERBEHÄLTER AUS SPHÄROGUSS FÜR JEWEILS 1900 HTR-BRENNELEMENTE

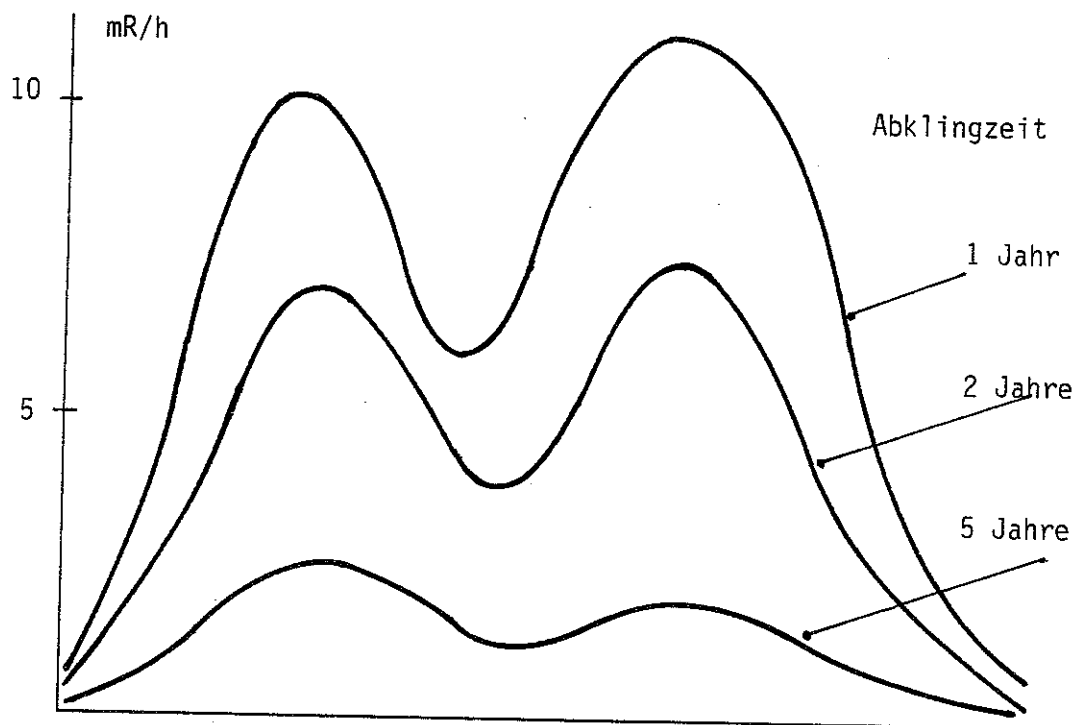
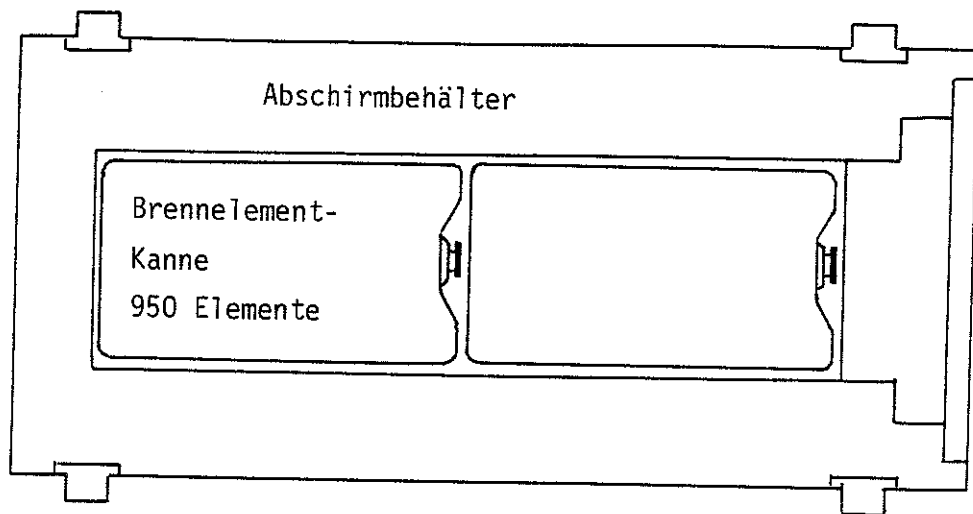


Abb. 9: Gamma-Dosisleistung an der Oberfläche eines Lagerbehälters in Abhängigkeit von der Abklingzeit

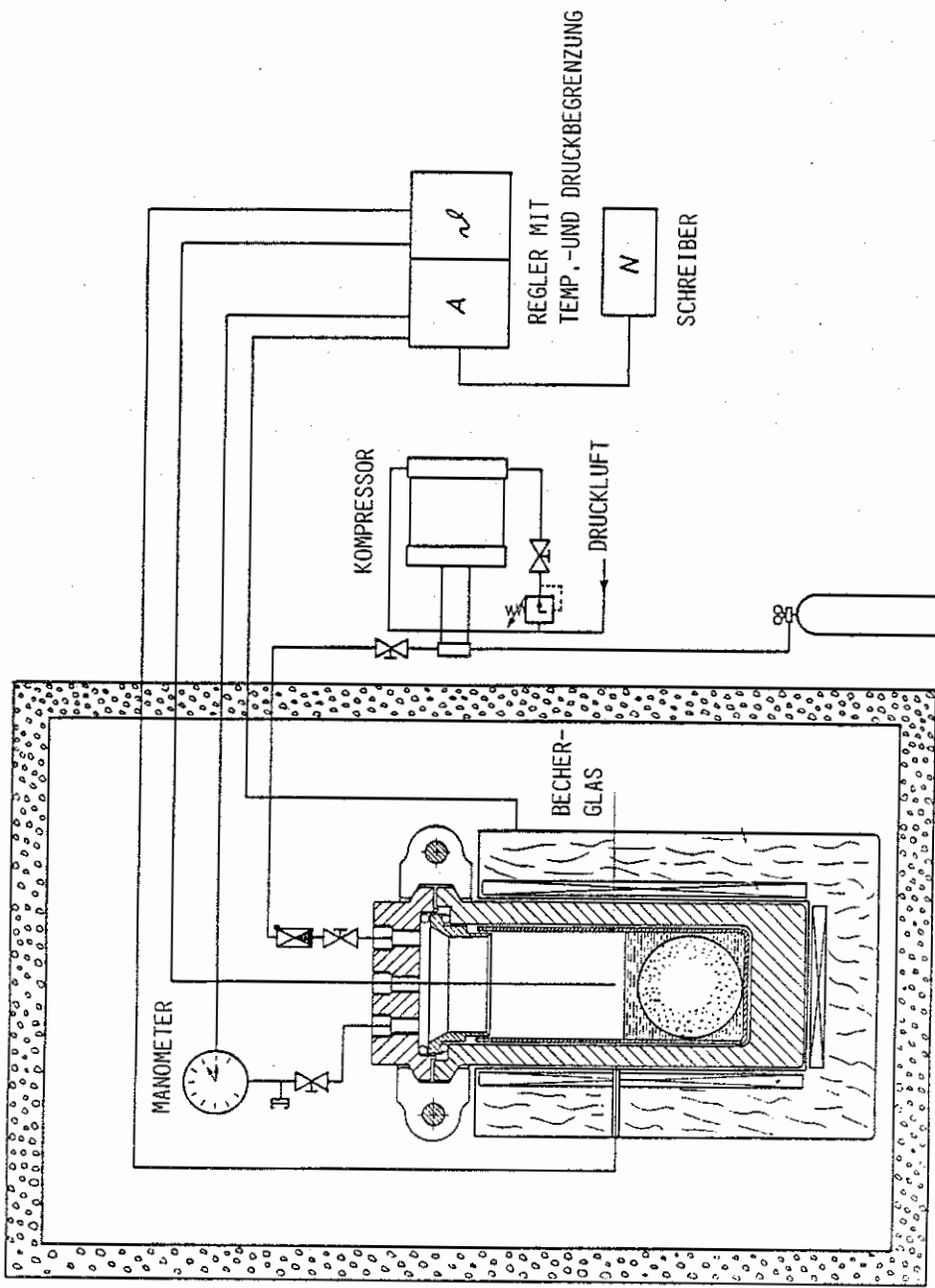
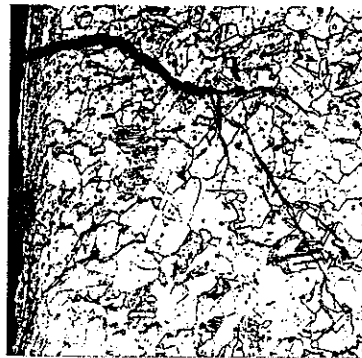
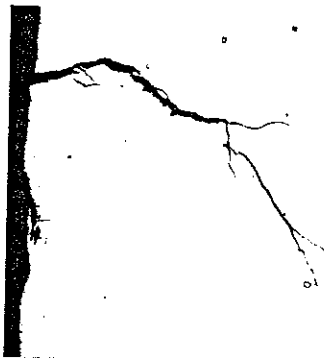
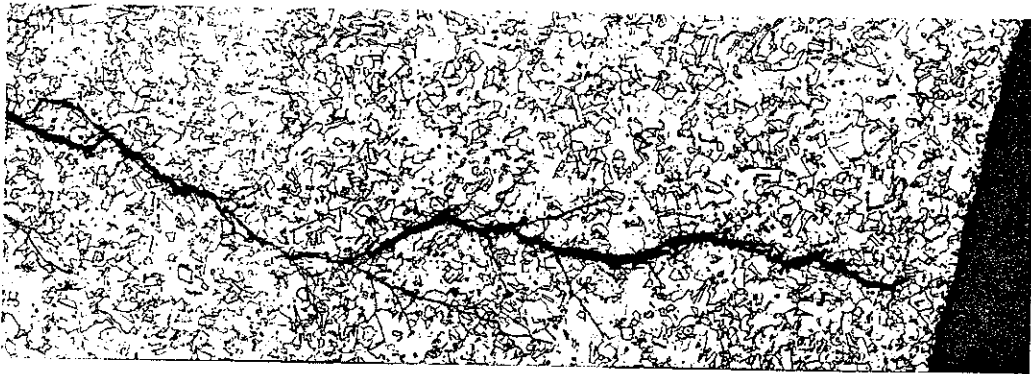
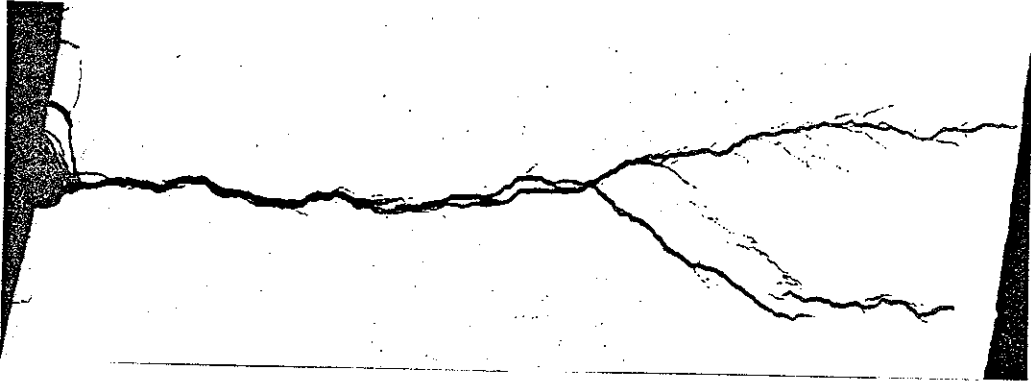


Abb. 10: Apparatur zur Untersuchung der Druckauslaugung von HTR-Brennelementen (300 bar, 200 °C)

Abb. 11: Korrosion einer Autoklavenwand durch Einwirkung von Strahlung und quinäarer Lauge bei 90° C
Material: V4A Wandstärke: 12 mm



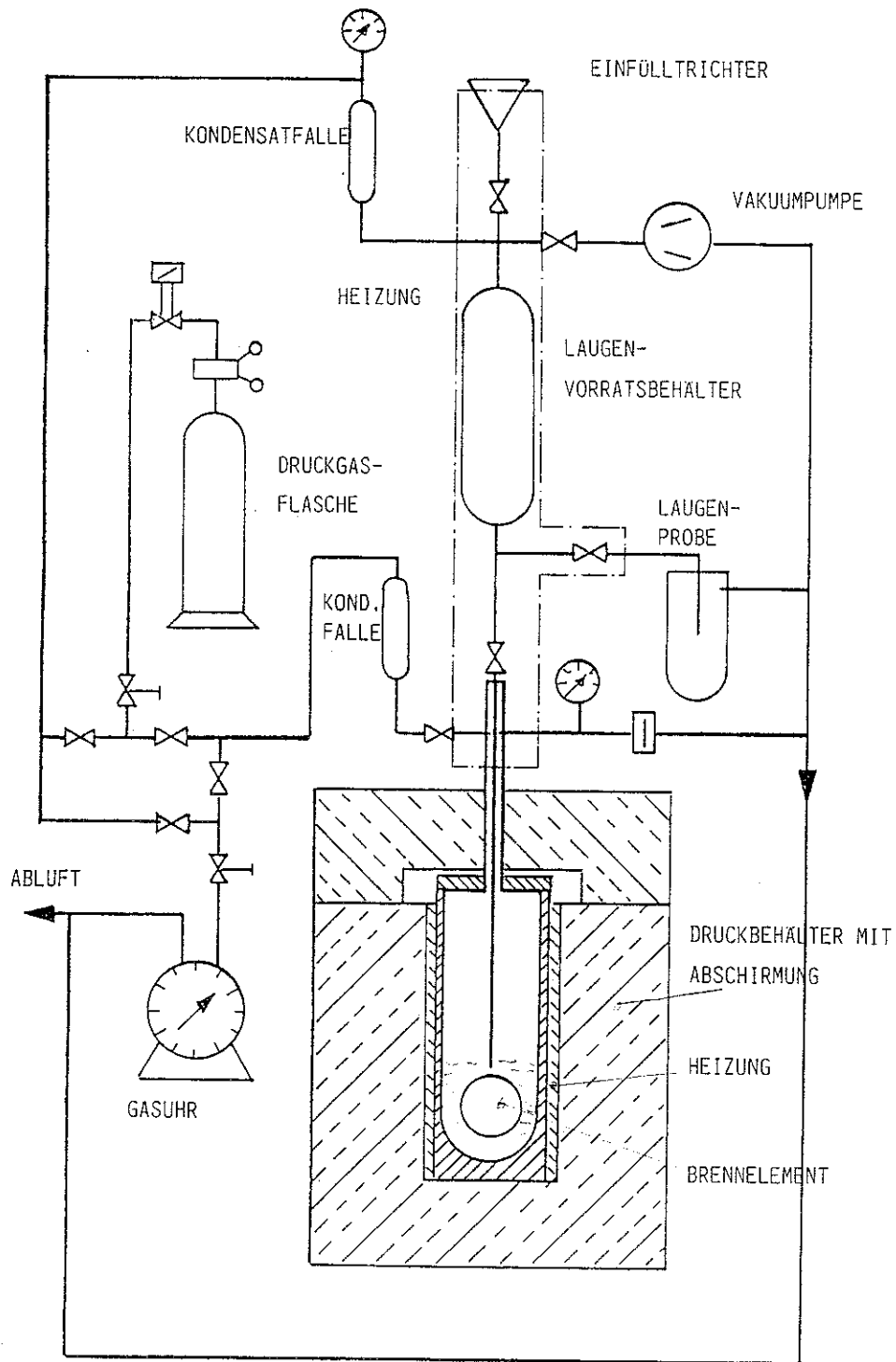


Abb. 12: Apparatur zur Untersuchung der Druckauslaugung von HTR-Brennelementen