



# KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Reaktorwerkstoffe / Heiße Zellen

APPARATUREN ZUR STÖRFALLSIMULATION MIT HTR-KUGELBRENNNELEMENTEN

von

W. Schenk, D. Pitzer

vorgelegt

bei der Tagung der Euratom-Arbeitsgruppe

"HOT CELL AND REMOTE HANDLING TECHNOLOGY"

Jülich, 28.-29. September 1988

Apparaturen zur Störfallsimulation  
mit HTR-Kugelbrennelementen

F+E-Vorhaben 10.96.0

Vorgang 0729

HBK-EA 12.11 - 12.15

von

W. Schenk

D. Pitzer

## Zusammenfassung

In den HZ der KFA können in speziellen Apparaturen HTR-Störfälle mit bestrahlten Kugelbrennelementen bis 2500 °C simuliert werden. Im Mittelpunkt dieses Beitrages steht die Kühlfingerapparatur, mit der neben der Spaltgasfreisetzung auch der Freisetzungsverlauf der wichtigen festen Spaltprodukte wie Cs 137, Sr 90 und J 131 bei Temperaturen bis 1800 °C gemessen werden kann. Die Ergebnisse dieser Versuche sind für Auslegung und Genehmigung kleiner HTR von großer Bedeutung.

## Verteiler:

IRW-Standard

HZ-Tagungsteilnehmer

## 1. Einleitung

In einem Hochtemperaturreaktor (HTR) werden eine große Menge von Kugelbrennelementen eingesetzt, im THTR 300 in Hamm-Uentrop sind dies z.B. 675 000. Ein Kugelbrennelement enthält je nach Sorte 16000 bis 38000 Partikeln. Jedes Partikel besteht aus Brennstoffkern und gasdichter Beschichtung aus Pyrokohlenstoff (PyC) und gegebenenfalls einer Siliziumkarbidzwischen-schicht (SiC-) /1/. Die Beschichtung stellt die wesentliche Barriere für Spaltprodukte dar. Da alle Komponenten des Kugelbrennelementes Brennstoffkern, Beschichtungen und Matrixgraphit keramisch sind und sich werkstoffmäßig -besonders in ihrer Struktur- nicht genau charakterisieren lassen, sind experimentelle empirische Methoden zur Beurteilung der Spaltprodukt-rückhaltung von größter Bedeutung. So werden in den HZ der KFA seit mehr als 10 Jahren Betriebs- und Störfallsimulationstests an Kugelbrennelementen durchgeführt /2,3/. Obwohl die KFA in den letzten Jahren ihre Aktivitäten im HTR-Bereich eingeschränkt hat, sind diese Arbeiten in enger Zusammenar-beit mit den am HTR beteiligten Firmen ausgeweitet worden.

## 2. Problematik

Da die Spaltproduktfreisetzung aus HTR-Brennelementen mit der Temperatur zunimmt, werden insbesondere Störfälle untersucht, bei denen im Reaktorkern die höchst möglichen Temperaturen entstehen (Abb. 1).

Zunächst wurden Heizversuche an Kugelbrennelementen zur Simulation hypothe-tischer Coreaufheizstörfälle mittelgroßer HTR bis zu 2500 °C durchgeführt /3,4/. Dann wurden für Auslegung und Genehmigung kleiner HTR relativ niedrige Störfalltemperaturen zwischen 1400 und 1800 °C bedeutsam. Zur Un-tersuchung des Spaltproduktfreisetzungsverlaufs in diesem Temperaturbereich und zum Nachweis, daß auch bei der höchsten Störfalltemperatur noch keine Partikeldefekte auftreten und damit die Spaltproduktfreisetzung sehr klein bleibt, wurde die "Kühlfingerapparatur (KÜFA)" entwickelt /5,6/.

Die Beschreibung dieser Apparatur steht im Mittelpunkt dieses Beitrags.

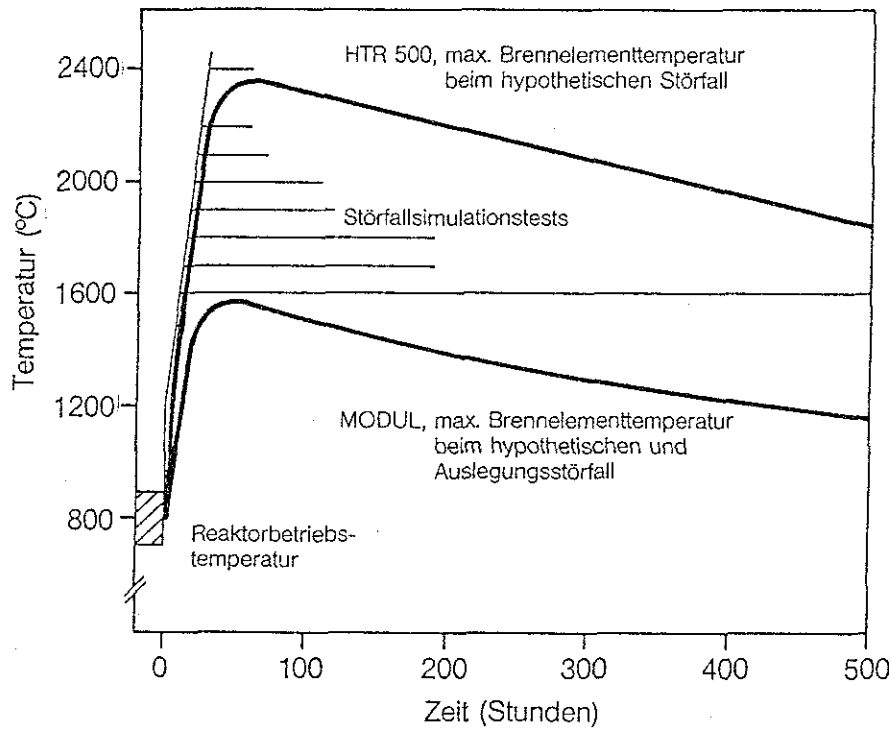


Abb. 1: Störfalltemperaturen in zwei künftigen HTR und Simulationsprogramm für Kugelbrennelementen

Weiterhin wird im Rahmen dieser Arbeiten in den HZ der KFA zur Zeit die "Korrosionsapparatur (KORA)" gebaut, in der mit Kugelbrennelementen Lufteinbruchstörfälle simuliert werden können. Einen Überblick über die Störfallsimulationsapparaturen gibt Tab. 1.

Wichtigste Ergebnisse der Störfallsimulationstests sind Spaltproduktfreisetzungs- und Partikeldefektanteile. Die kontinuierliche Spaltgasfreisetzungsmessung (Kr 85) gibt Auskunft über Partikeldefekte und damit auch über das ähnliche Jodfreisetzungsverhalten. Cäsium- und Strontiumnuklide sind für das Langzeitverhalten nach einem Störfall bedeutsam.

|                                 | K Ü F A<br>(seit 1984)                   | K O R A<br>(ab 1989)  | A.-Test<br>(seit 1977, Neubau 1988)         |
|---------------------------------|--|---|---|
| max. Temperatur                 | 1800 °C                                  | 1600 °C   | 2500 °C                                     |
| Spülgas                         | Helium                                   | Gemisch<br>(Co, O <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O, He) | Helium                                      |
| Heizexperiment                  | Auslegungsstörfälle                      | hypothetischer<br>Lufteinbruchstörfall                                  | hypothetischer<br>Coreaufheizstörfall       |
| Spaltgasmessung                 | Kr (Xe)-Freisetzungsverlauf              |   |   |
| Messung fester<br>Spaltprodukte | Cs-, Sr-, J-, Ag-<br>Freisetzungsverlauf | evtl. Cs-<br>Freisetzung  | Cs-Gesamtfreisetzung<br>(+1 % vom Inventar) |

Tab. 1: Apparaturen zur Störfallsimulation an Kugelbrennelementen

### 3. Kühlfingerapparatur /7/

Sowohl bei der Ausheiztestapparatur (A.-Test) als auch bei der KÜFA ist ein Widerstandsofen in einen Helium-Spülgaskreislauf integriert, dessen Hauptaufgabe es ist, die Messung der Spaltgase zu ermöglichen.

#### 3.1 Spülgaskreislauf

Ein Schema des Spülgaskreislaufs zeigt Abb. 2. Das beim Heizen aus dem Kugelbrennelement freigesetzte Spaltgas gelangt im Kreislauf in die außerhalb der Zelle im Bedienungsgang befindliche Meßfalle. In dem mit flüssigem Stickstoff gekühlten Aktivkohlefilter werden die freigesetzten Spaltgase adsorbiert. Die Aktivität in der Meßfalle wird während des gesamten Tests gammaspektrometrisch gemessen. Im allgemeinen kann nur das langlebige Krypton 85 nachgewiesen werden. Nur wenn die Abklingzeit der Kugelbrennelemente, d.h. die Zeit zwischen Entnahme aus dem Reaktor und Einsatz im Experiment nicht länger als 4 bis 8 Wochen beträgt, ist auch die Messung von Xenon 133 möglich.

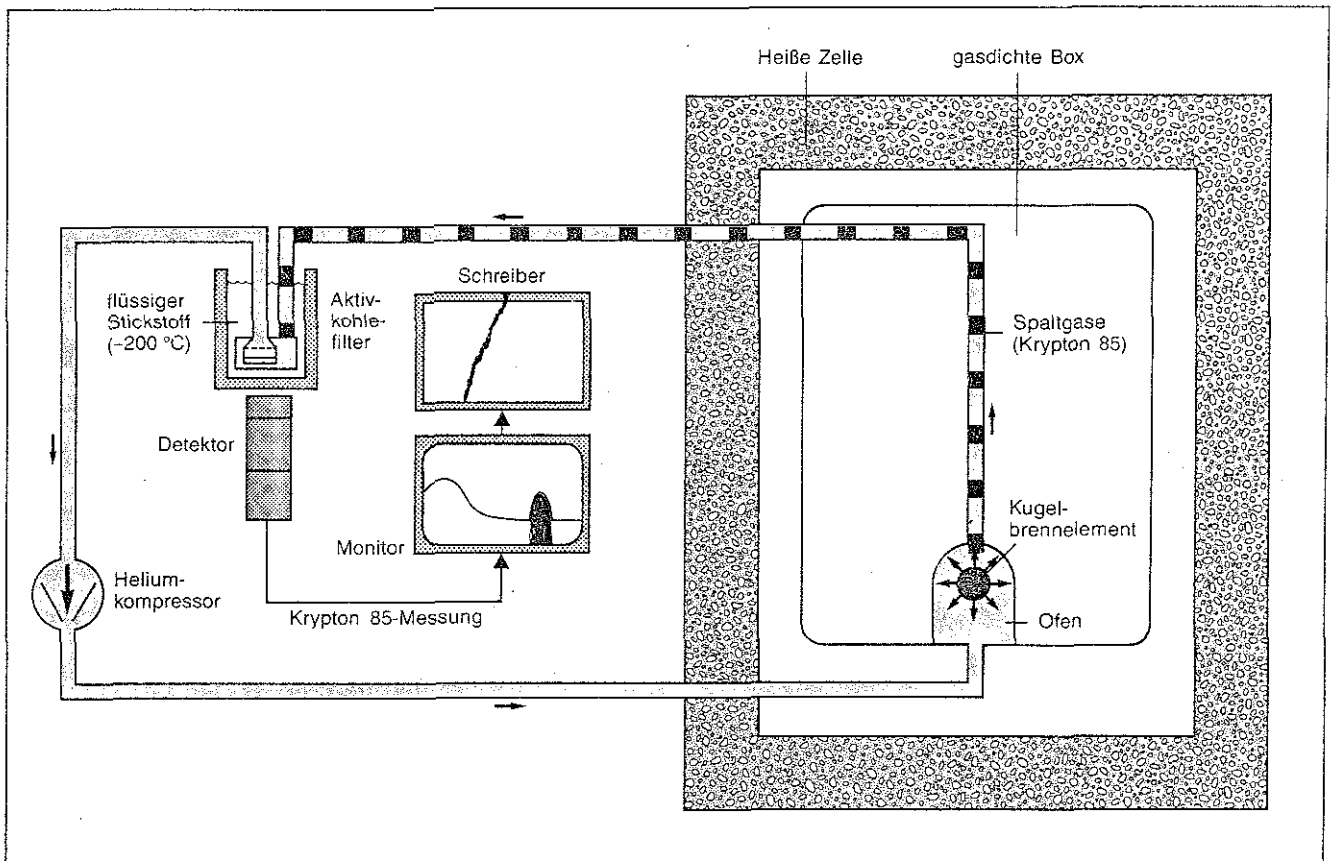


Abb. 2: Spülgaskreislauf der Störfallsimulationsapparaturen zur Messung der Spaltgasfreisetzung

Die Einzelheiten des Spülgaskreislaufs werden auf der in den Bedienungsschrank eingebauten Frontplatte erkennbar (Abb. 3). Farbige Dioden (kleine Kreise, teilweise mit Numerierung) geben über den Betriebszustand von Elektromagnetventilen und Geräten Auskunft.

Ein Membrankompressor (K1), dem ein Ersatzkompressor parallel geschaltet ist, wälzt das Helium im Kreislauf um. Mit dem Drosselventil (DV) im Bypass wird die Durchflußmenge auf etwa 30 l/h geregelt. In Durchflußrichtung hinter dem Kompressor sind zwei parallel angeordnete Reinigungsfallenpaare installiert, die wechselweise während eines Versuchs ausgeheizt werden können. Ein Fallenpaar besteht aus einer Zeolithfalle und einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Aktivkohlefalle [2]. Im Anschluß an die Reinigungsfallen durchfließt das Helium ein Feuchtigkeitsmeßgerät. Der Spülgaskreislauf

wird vor einem Heizversuch so lange gereinigt, bis die gemessenen  $H_2O$ -Werte kleiner als 10 ppm betragen. Geringe Verunreinigungen im Ofen sind Voraussetzung für eine lange Lebensdauer der wertvollen Tantalteile (Heizelement).

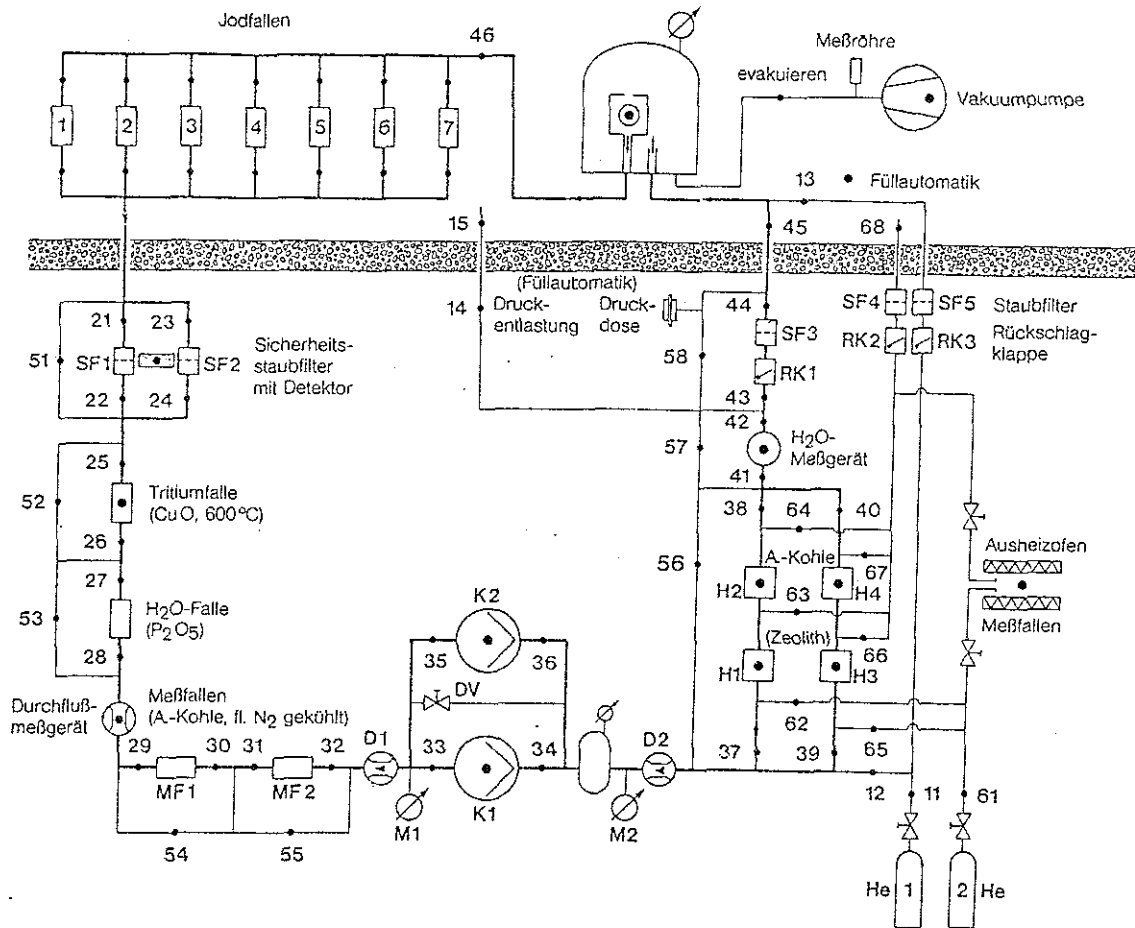


Abb. 3: Kreislaufschema von A.-Test und KUFA im Bedienungsschrank der Apparaturen

Vor dem Eintritt des Kreislaufs aber auch der Fallenausheizleitung und der Ofenfülleitung in die Heiße Zelle sind Rückschlagventile und Staubfilter eingebaut, um zu verhindern, daß über einen Rückstau Kontaminationen in den im Bedienungsgang befindlichen Apparaturteil gelangen.

Der Ofen kann nach der Beladung mit einem Kugelbrennelement und vor der Befüllung mit Helium evakuiert werden. Der Heliumdruck im Ofen wird mit einer Füllautomatik bei etwa 1100 mbar gehalten. Bei Aufheizvorgängen, wenn der Druck im Ofen ansteigt, wird He abgelassen, bei Auftreten eines Lecks wird der Druck durch Nachfüllen aufrechterhalten.

Die aus einem Kugelbrennelement freigesetzten festen Spaltprodukte werden -soweit sie sich nicht schon im Ofen und in der Rohrleitung abgelagert haben- in einer Jodfalle zurückgehalten. Die sieben parallel geschalteten Jodfallen können fernbedient ausgetauscht werden. Im Normalfall wird pro Versuch eine neue Falle benötigt. Die Jodfallen enthalten einen Absolutstaubfilter aus Sintermetall- und Papierfiltern, Kupferoxid und Aktivkohle /2/. Kurz hinter dem Wiedereintritt des Kreislaufs in den Bedienungsgang ist ein Sicherheitsstaubfilter eingebaut, das in Verbindung mit einem Detektor das Versagen einer Jodfalle anzeigen und eine weitere Kreislaufkontamination verhindern soll. CuO (Kupferoxid)- und P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (Phosphorpentoxid)-Falle haben die Aufgabe, aus Brennelement und Ofen freigeheiztes Tritium zu oxydieren, bzw. Feuchtigkeit vor der Meßfalle auszufiltern.

Die Kr 85-, evtl. auch Xe 133-Aktivität ebenso wie Feuchtigkeitsgehalt im Spülgas, He-Durchfluß, Ofentemperatur, Temperatur der Kühlfingerkondensatplatte und Ofenspannung werden während eines Versuchs mitgeschrieben (Abb. 4).



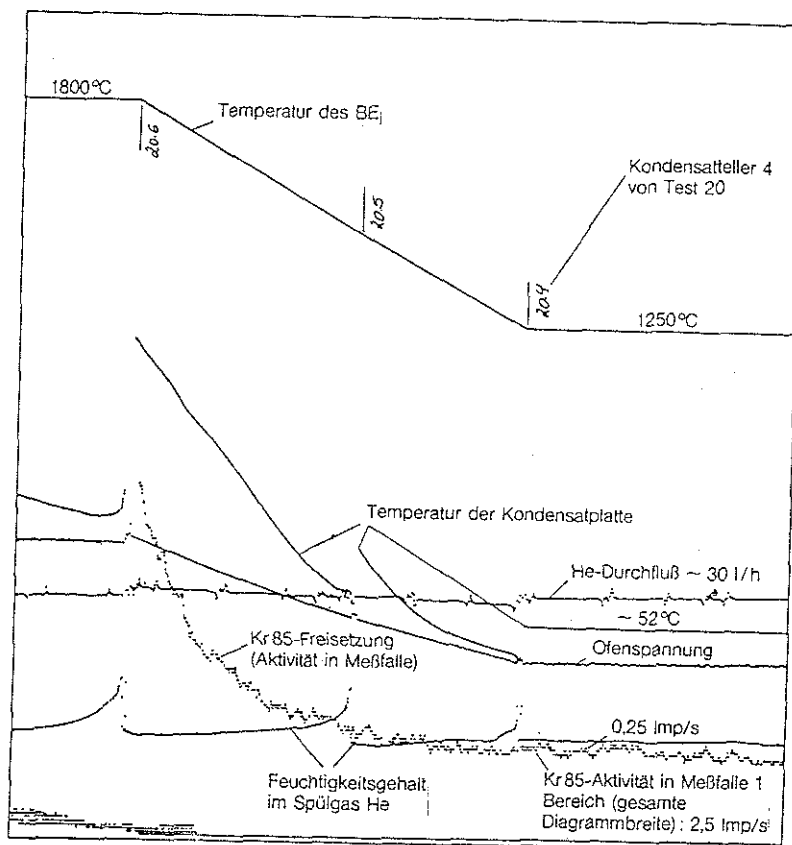


Abb. 4: Ausschnitt aus einem Meßdiagramm von einem Heizversuch mit der KÜFA (Test K20, HFR-K3/3)

### 3.2 Kühlfingerofen

Die schematische Darstellung der Messung während eines Heizversuchs freigesetzter fester Spaltprodukte mit Hilfe des Kühlfingerofens zeigt Abb. 5.

Feste Spaltprodukte können bei hohen Temperaturen durch Übergang vom festen in den gasförmigen Zustand von der Kugeloberfläche durch Desorption in das Kühlgas gelangen. Umgekehrt lagern sich diese Spaltprodukte durch Adsorption wieder ab. Dieses Ablagerungsverhalten wurde zum Auffangen der festen Spaltprodukte in der Kühlfingerapparatur genutzt.

Das Kugelbrennelement wird im Ofen durch drei Stifte in der Mitte eines Tantalrohres gehalten, so daß die Spaltprodukte ungehindert abdampfen können, und ist von unten nach oben von Helium umströmt. Tantalrohr und Brennelement werden durch einen stromdurchflossenen Widerstandsheizkörper, der

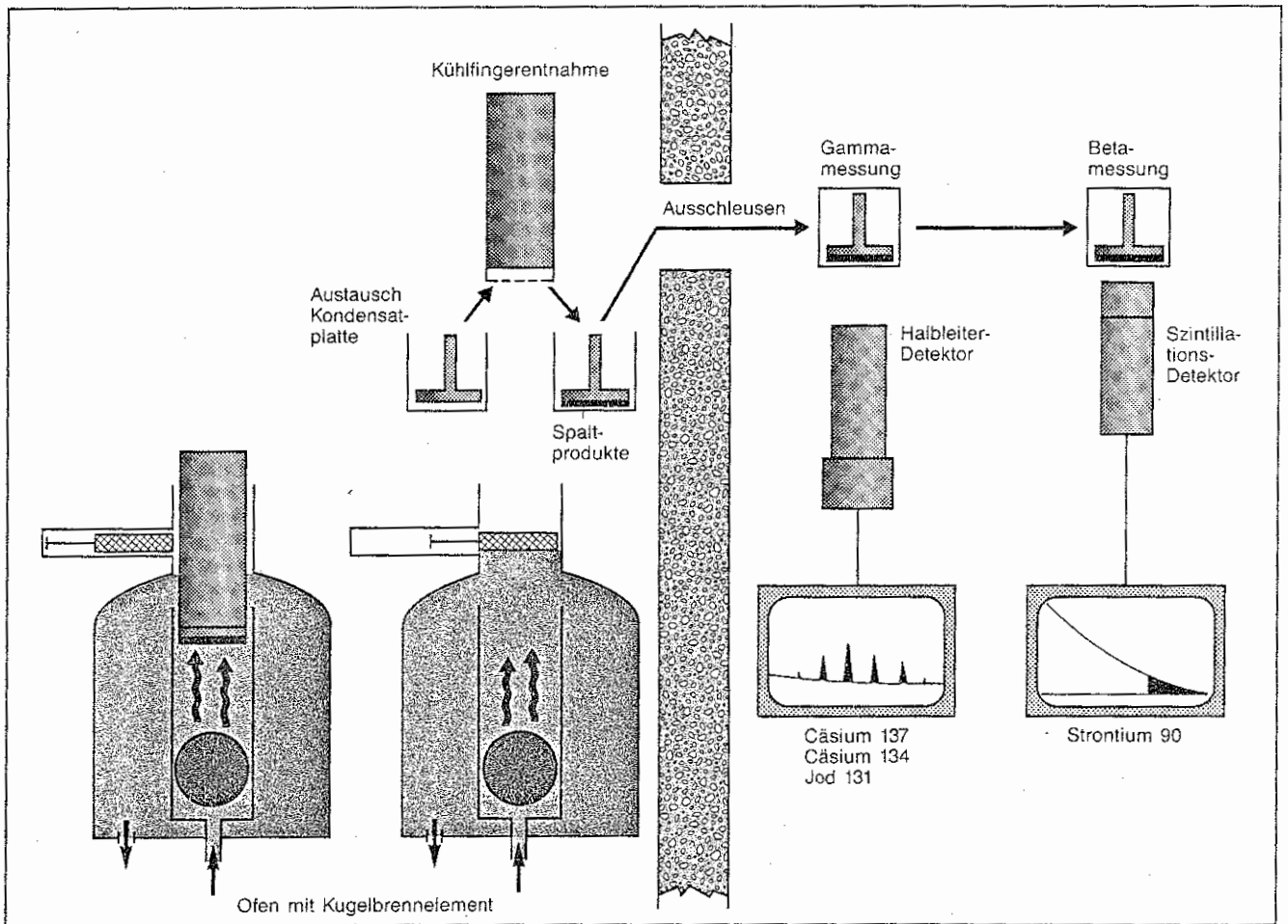


Abb. 5: Messung freigesetzter fester Spaltprodukte mit der Kühlfingerapparatur

ebenfalls aus Tantal besteht, aufgeheizt. In das heiße Tantalrohr hinein ragt der wasserdurchflossene Kühlfinger, an dessen Ende eine austauschbare Kondensatplatte gehalten wird. Auf dieser Platte, die bei einer Kugeltemperatur von 1600 °C weniger als 100 °C warm ist, lagert sich ein Großteil der aus dem Kugelbrennelement freigesetzten festen Spaltprodukte ab.

Der Kühlfinger kann während eines Heizversuchs, ohne daß die Kugel abgekühlt werden muß, über ein Schleusensystem dem Ofen entnommen werden. Der Plattentausch wird normalerweise ein- bis zweimal pro Tag durchgeführt, kann aber auch wesentlich öfter erfolgen, weil der Vorgang nur wenige Minuten dauert.

Die eingesetzten Platten werden aus der Heißen Zelle ausgeschleust und in einem Meßlabor gamma- und betaspektrometrisch gemessen. Dabei ist die Messung der Gammastrahler wie Cäsium 137 und Jod 131 relativ einfach, weil sie an ihren individuellen Energielinien zu erkennen sind. Strontium 90, ein Nuklid, das nur Betastrahlen aussendet, muß im Normalfall zur Messung chemisch von den anderen Spaltprodukten abgetrennt werden. Da es jedoch von den abgelagerten Spaltprodukten die Betastrahlung mit der höchsten Energie besitzt, läßt sich die Aktivität nach einem speziellen Eichverfahren mit einem Szintillationsdetektor messen.

Ein Schnitt durch den Kühlfingerofen verdeutlicht technische Einzelheiten (Abb. 6).

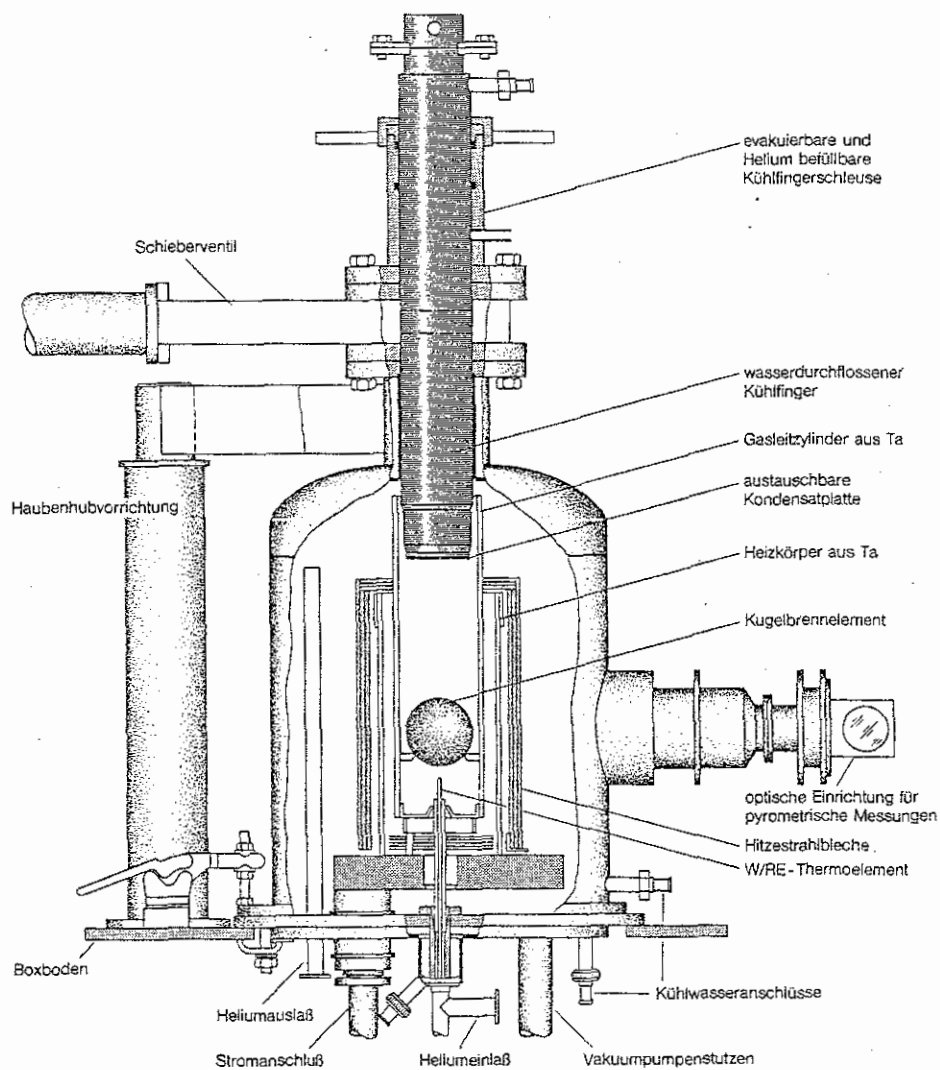


Abb. 6: Ofen der Kühlfingerapparatur

Der Rezipient ist in den Boden der gasdichten heißen Zellenbox eingebaut. Die Haube kann zur Beschickung mit einer hydropneumatischen Vorrichtung geöffnet werden. Dabei wird das Kugelbrennelement mit Hilfe einer Saugvorrichtung auf die Dreipunktauflage im Tantalgasführungsrohr gelegt.

Im Kühlfinger (Abb. 7) ist die Kondensatplatte durch eine pneumatisch ausklinkbare Halteklau arretiert.

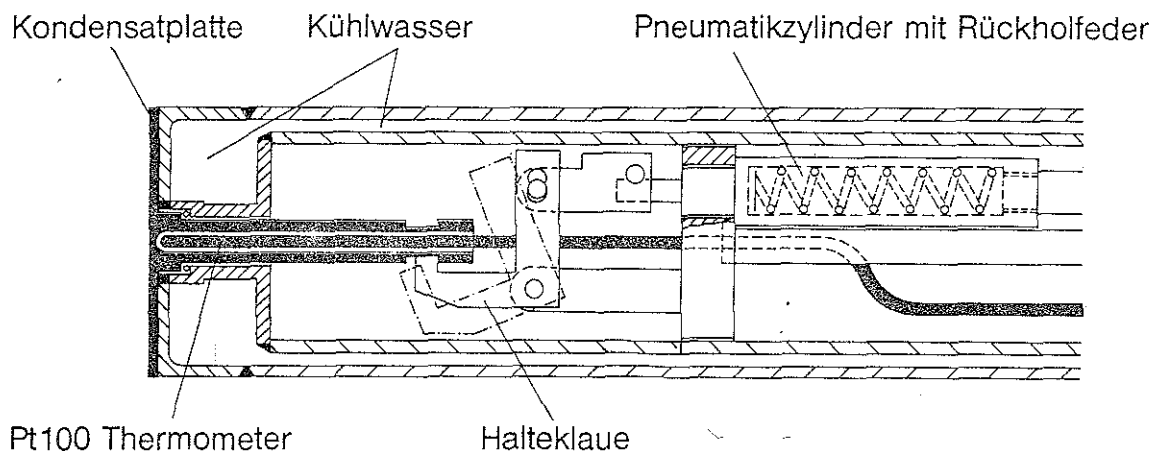


Abb. 7: Schnitt durch das Unterteil des Kühlfingers

So ist es möglich, nach Kühlfingerentnahme -bei der das pneumatische Schieberventil im Ofen geschlossen wird-, die benutzte Kondensatplatte kontaminationsfrei in eine bereitgehaltene Aluminiumdose fallen zu lassen und aus einer weiteren Dose eine neue Platte aufzunehmen.

Die Temperatur der Kondensatplatte wird mit einem Pt 100-Thermometer gemessen und mitgeschrieben. Auf dem Diagrammausschnitt in Abb. 4 ist erkennbar, wie mit der Einsatzdauer die Temperatur einer neuen Kondensatplatte ansteigt.

Abb. 4 zeigt auch, daß außerdem Brennelementtemperatur und Ofenspannung mitgeschrieben werden. Im Normalfall erfolgt die Temperaturregelung über

das im Ofen eingesetzte W/Re-Doppelthermoelement (Abb. 6). Bei Ausfall des Thermoelements ist die Regelung auch mit Hilfe der Ofenspannung möglich. In diesem Fall und zur Kontrolle kann durch Zellenfenster, Umlenkprisma und Ofenfenster die Temperatur des Tantalgasleitzyllinders mit einem Pyrometer gemessen werden.

Zur Kühlung von Ofen, Kühlfinger und Schieberventil sind fünf geschlossene Kühlkreisläufe nötig, die wiederum über einen Wärmetauscher, der an einen offenen Wasserkreislauf angeschlossen ist, rückgekühlt werden /2/.

Bei mangelhafter Kühlung schalten in jedem Kreislauf vorhandene Strömungs- bzw. Temperaturwächter die Heizung ab. Bei einem kleinen Leck im geschlossenen Kühlsystem erfolgt die Beendigung des Heizvorgangs über eine Kühlwasserniveauekontrolle.

Fotos von Bedienungsteil und Ofen der Kühlfingerapparatur zeigt Abb. 8.

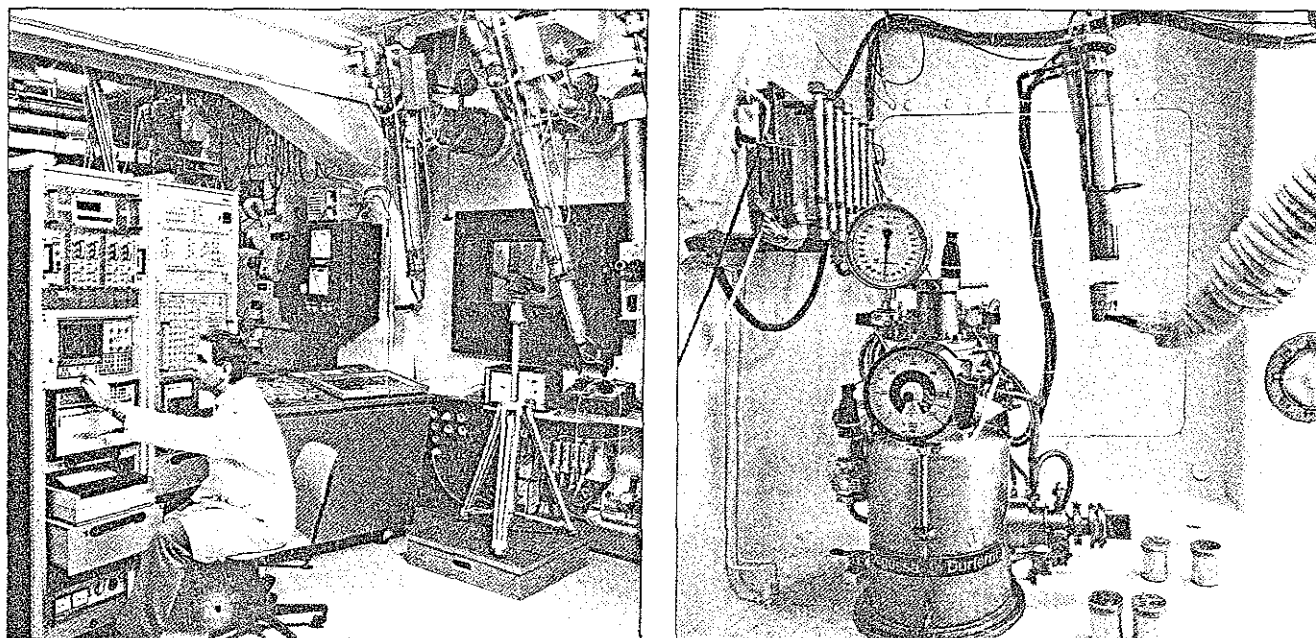


Abb. 8:

Im Bild links sind die Bedienungseinrichtungen der Kühlfingerapparatur zu erkennen: Spaltgasmeßelektronik, Schaltschrank für den Spülgaskreislauf, Bedienungspult für den Ofen und Zellenarbeitsplatz mit Manipulatoren und Zellenfenster. In der heißen Zelle befindet sich der Ofen, der im rechten Bild mit gezogenem Kühlfinger zu sehen ist.

### 3.3 Versuchsdurchführung

Mit den Heizversuchen soll die Störfallsituation im Reaktorcore weitgehend simuliert werden. Bei einem Störfall in einem HTR würden sich die Brennelemente von der Betriebstemperatur aus aufheizen. Im Experiment muß vermieden werden, daß zusätzliche Effekte, verursacht durch schnelles Aufheizen von Raumtemperatur aus oder durch Verunreinigungen im Spülgaskreislauf zu Schädigungen von Partikeln und Brennelementen führen, die beim Störfall im Reaktor unter den dann dort herrschenden Bedingungen nicht auftreten würden. Im Verlauf einer Reihe von Tests /3/ wurde folgendes Versuchsprogramm entwickelt (Abb. 9):

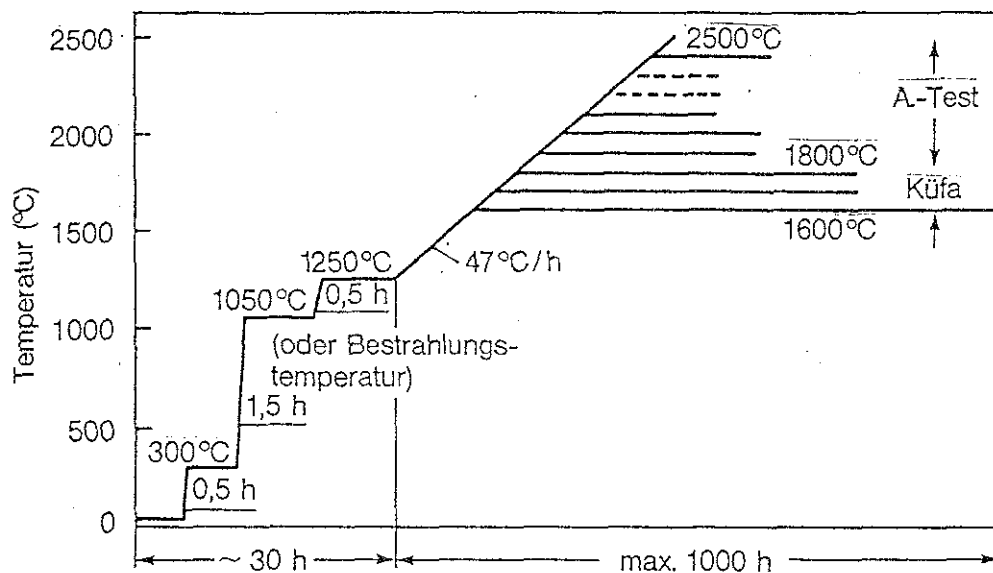


Abb. 9: Standardversuch in der Kühlfingerapparatur

Der Spülgasreinigung und evtl. Messung der Kaltemission der Brennstoffprobe folgt das Reinigungsheizen bei 300 °C, um im Brennelement absorbierte Feuchtigkeit auszutreiben. Mit der Heizphase bei 1050 und 1250 °C soll in erster Linie möglichst ein stationärer Zustand für Diffusionsvorgänge bei Bestrahlungstemperatur in den Partikeln erreicht werden, wie dies auch zu Beginn eines Störfalls gegeben wäre.

Nun folgt die eigentliche Störfallsimulation, wobei sich die Aufheizgeschwindigkeit an für mittelgroße HTR errechneten Störfalltransienten orientiert.

### 3.4 Eichung

Zur Eichung der Spaltgasmeßanordnung werden bei gleichbleibender Meßanordnung etwa ein- bis zweimal im Jahr Glasampullen mit unterschiedlicher, kalibrierter Kr 85- bzw. Xe 133-Aktivität im Ofen zerheizt. Das freigewordene Spaltgas wird genauso, wie beim Heizversuch mit Brennelementen, vollständig in den mit Aktivkohle gefüllten Meßfallen adsorbiert. Aus bekannter und gemessener Aktivität läßt sich der Eichfaktor errechnen. Bei jedem Versuch wird die Eichung mit Ru 106 für Kr 85 und Ba 133 für Xe 133, die jeweils ähnliche Gammaemissionslinien besitzen, überprüft.

Zur quantitativen Bestimmung der aus einer Brennstoffprobe freigesetzten Spaltproduktaktivität muß der an der Kondensatplatte abgelagerte Anteil bekannt sein. Dazu wurden umfangreiche Eichversuche mit Präparaten und kleineren Brennstoffproben durchgeführt, wobei der Probeninventarverlust und der an den Platten gefundene Anteil gemessen wurde. Im allgemeinen wird die Anordnung mit Heizversuchen bei 1600 oder 1800 °C geeicht, mit Graphitkugeln gleicher Größe wie die Brennelemente, in die Eichpräparate unterschiedlicher Aktivität eingegeben werden.

Die Spaltproduktverteilung im Ofen zeigt Abb. 10.

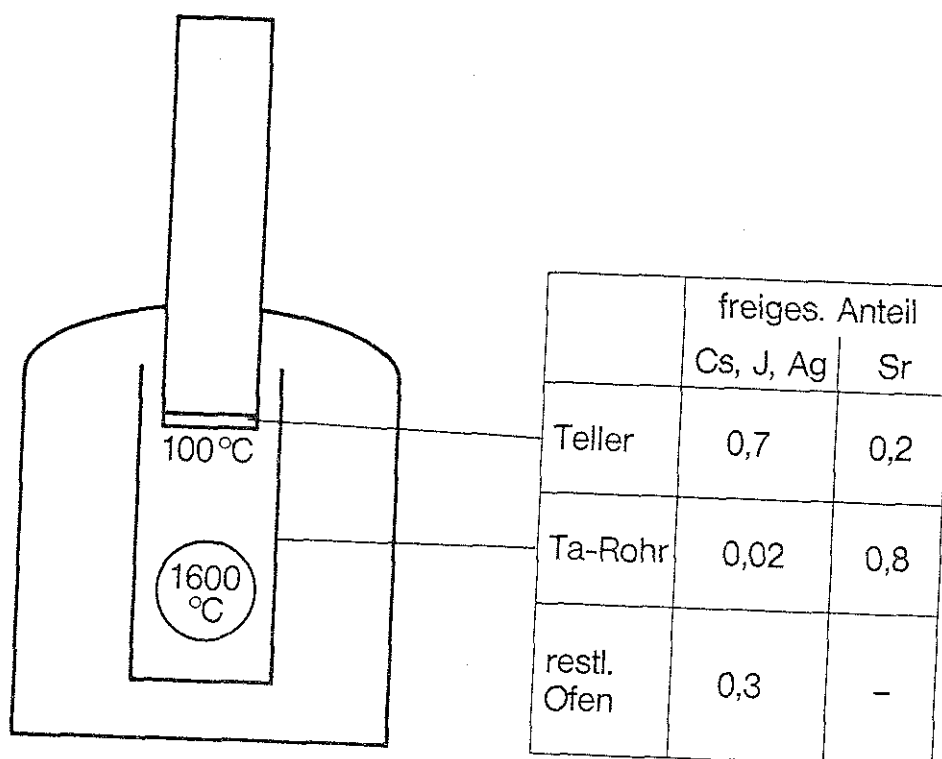


Abb. 10: Spaltproduktverteilung im KÜFA-Ofen

### 3.5 Ergebnisse

Bislang wurden 30 Ausheizversuche an Kugelbrennelementen und anderen Brennstoffproben bei 1400 bis 1800 °C bis zu 1000 h durchgeführt. Ein typisches Ergebnis zeigt Abb. 11, auf der der Spaltproduktfreisetzunganteil aus einem Kugelbrennelement bei 1600 °C dargestellt ist. Bei den festen Spaltprodukten bedeutet jeder Meßpunkt eine Kondensatplatte, während die Kr 85-Freisetzungsmessung während des gesamten Versuchs kontinuierlich erfolgt.

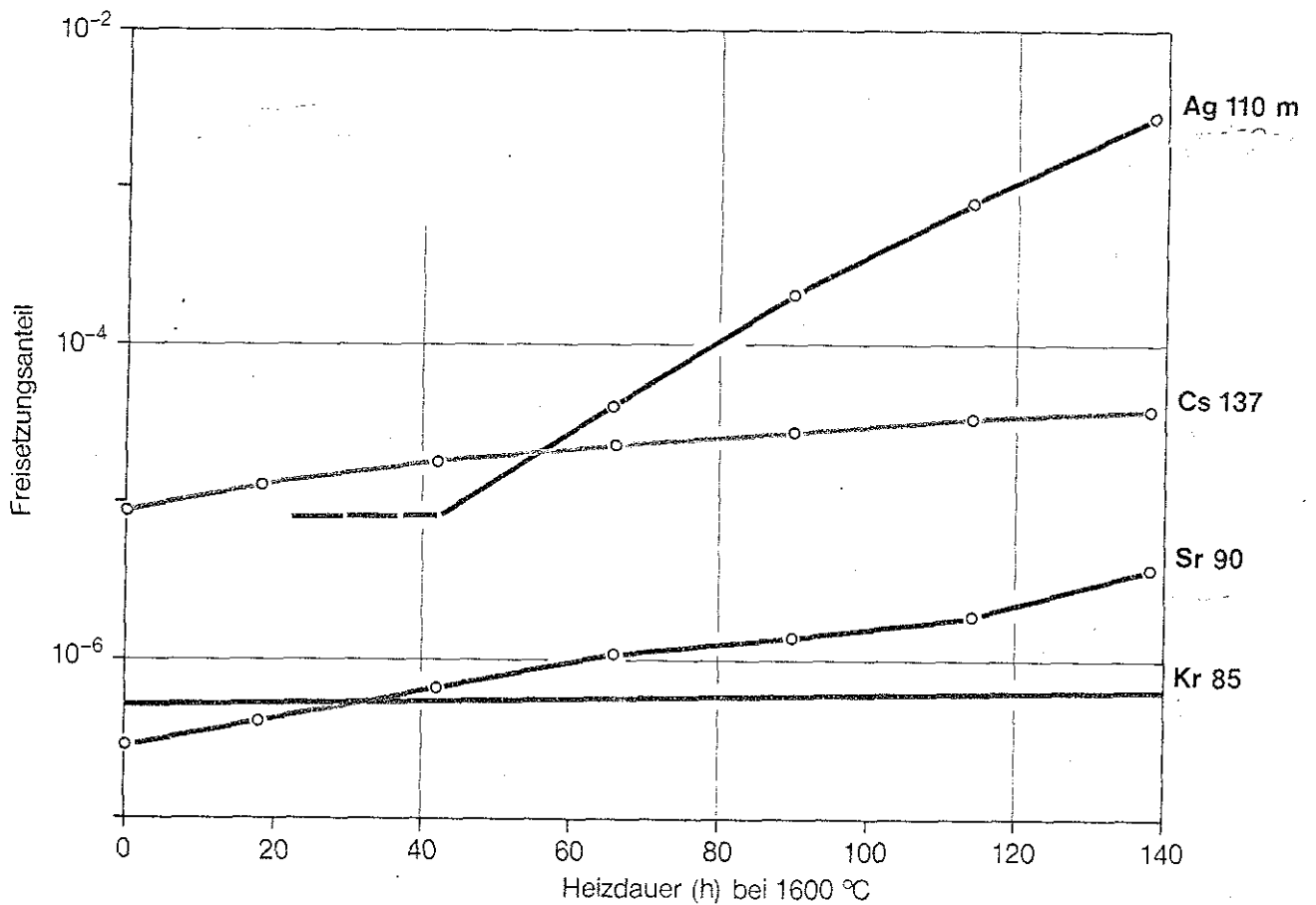


Abb. 11: Spaltproduktfreisetzung bei 1600 °C aus einem Kugelbrennelement (FRJ2-K13/2, 8 % fima)

Weitere Versuche, insbesondere an hochabgebrannten Kugeln und an aktivierten Brennelementen, bei denen die J 131-Freisetzung gemessen werden kann, sollen alle Kenntnislücken schließen und ausreichend statistisches Material für Genehmigung und Störfallanalysen verfügbar machen.



Literatur

- /1/ H. Nickel  
Development of Coated Fuel Particles  
KFA-Report, Jü1-687, Aug. 1970
  
- /2/ W. Schenk  
Nachbestrahlungsausheizverfahren für Kugelbrennelemente und  
andere Brennstoffproben  
KFA-Report, Jü1-1454, Sept. 1977
  
- /3/ W. Schenk  
Untersuchungen zum Verhalten von beschichteten Brennstoffteilchen  
und Kugelbrennelementen bei Störfalltemperaturen  
KFA-Report, Jü1-1490, Mai 1978
  
- /4/ E. Groos, W. Schenk  
Apparatur for Fission Gas Release Measurements from HTGR  
Fuel Elements at Very High Temperatures  
Conf. on Post-Irradiation Examination, BNES, Proc. p. 248, May 1980
  
- /5/ G.H. Lohnert, H. Nabielek, W. Schenk  
The Fuel Element of the HTR-Moduls, a Prerequisite of an Inherently  
Safe Reactor  
SMIRT Post-Conf. Seminar on Small and Medium-sized Nuclear Reactors,  
Lausanne, August 24-26, 1987
  
- /6/ H. Ragoß, W. Heit, H. Nabielek, W. Schenk  
Absicherung der brennelementspezifischen Quellterme für die  
radiologische Auslegung des HTR-Modul  
Jahrestagung Kerntechnik '88, Tagungsbericht S. 461, Mai 1988
  
- /7/ W. Schenk, D. Pitzer, H. Nabielek  
Spaltproduktfreisetzungsverlauf von Kugelbrennelementen bei  
Störfalltemperaturen  
KFA-Report, Jü1-2091, Okt. 1986