

## FREISETZUNG GASFÖRMIGER RADIONUKLIDE AUS LAGERNDEN HTR-BRENNELEMENTEN

R. Duwe\*, U. Brinkmann\*\*

\* Institut für Reaktorwerkstoffe

\*\* Projekt Hochtemperaturreaktor-Brennstoffkreislauf

Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Postfach 1913, D-5170 Jülich

1. Einleitung

Für Auslegung, Bau und sicheren Betrieb von Anlagen zur Zwischenlagerung verbrauchter HTR-Brennelemente muß das Freisetzungsverhalten der Elemente bezüglich gasförmiger Nuklide bekannt sein. Genehmigungsfähige Konzepte für Errichtung und Betrieb solcher Lageranlagen liegen vor. Für Brennelemente aus dem AVR-Versuchskernkraftwerk werden derartige Zwischenlager seit Jahren problemlos betrieben, für Elemente aus dem THTR sind bzw. werden sie zur Zeit realisiert. Aus Untersuchungen des Instituts für Reaktorwerkstoffe der KFA Jülich mit abgebrannten Brennelementen aus dem AVR-Betrieb und Bestrahlungsexperimenten werden die absichernden Daten zur Aktivitätsfreisetzung von HTR-Brennelementen unter Lagerbedingungen bereitgestellt. Diese Daten sollen nicht nur die Zwischenlagerphase abdecken, sondern auch für die beabsichtigte Endlagerung von AVR- und THTR-Brennelementen herangezogen werden können. Die Arbeiten werden im Rahmen des HBK-Projektes durchgeführt.

Es bot sich an, die Untersuchungen insbesondere an gepreßt-oxidischen Brennelementen (GO-BE) aus dem AVR durchzuführen, die zum einen in großer Menge zur Verfügung stehen, zum anderen hinsichtlich Bestrahlungsbelastung und Spaltproduktückhaltevermögen den THTR-Brennelementen vergleichbar sind.

2. Charakterisierung des Lagerguts

Aus dem AVR werden die abgebrannten Brennelemente in Mengen zu je 50 Stück in Kannen abgezogen, in den heißen Zellen der KFA 2 bis 4 Jahre zwischengelagert, sortiert und dann in Trockenlagerkannen aus Edelstahl zu je 950 Stück umgefüllt. Diese Trockenlagerkannen werden in ein bei KFA errichtetes Kannenlager (AVR-TL) transportiert, in dem sie bis zur weiteren Unterbringung (z.B. durch Umladen der Kannen in Sphäroguß- oder Betonlagerbehälter) verbleiben. Aufgrund der niedrigen Nachwärmeleistung

der AVR-TL-Kannen ( 80 W/950 BE) steigt die Temperatur in diesem Kannenlager nicht über 50°C an. Die freisetzbare Aktivität besteht ausschließlich aus Tritium und Krypton 85. Während Tritium und Kr 85 abklingen, baut sich nach entsprechend langer Lagerzeit das gasförmige Radionuklid Rn 222 auf. Dieses ist wegen seiner geringen Konzentration meßtechnisch kaum zu erfassen.

Aufgrund des Brennelementaufbaus bleibt der weitaus größte Teil des Kr 85 und auch des Rn 222 in den mit pyrolytischem Kohlenstoff beschichteten Brennstoffpartikeln eingeschlossen. Lediglich ein Anteil von etwa  $3 \times 10^{-4}$  des Inventars befindet sich in Teilchen mit defekter Beschichtung bzw. in der Brennelementmatrix und kann somit während der Lagerung freigesetzt werden. Tritium entsteht zu über 80 % aus Quellen außerhalb der beschichteten Brennstoffteilchen und trägt beträchtlich zur Gasaktivität in den Kannen bei. Analysen des Kannengases zeigten, daß unter diesen Lagerbedingungen bei der vorhandenen Luftfeuchte das Tritium überwiegend in der Form von HTO vorliegt. Angenommen wird, daß Tritium (T) zunächst als HT oder  $T_2$  freigesetzt wird. Diese tauschen dann bei vorhandener ionisierender Strahlung im Gasraum mit  $H_2O$  zu HTO aus. Die Kinetik dieses Prozesses wird noch untersucht. Da unter den herrschenden Bedingungen keine Dissoziation zu erwarten ist, kann eine Tritium-Permeation durch die Kannenwände ausgeschlossen werden.

In Abb. 1 ist der zeitliche Verlauf des gesamten gasförmig vorliegenden Aktivitätsinventars dargestellt, wobei zwischen freisetzbarem und gebundenem vorliegendem Anteil unterschieden wird. Konservativ bleibt unberücksichtigt, daß während des Einsatzes der Elemente im Reaktor bereits ein Anteil der Inventare freigesetzt wurde.

### 3. Meßaufbau und Ergebnisse

Um den zeitlichen Verlauf der Freisetzung von Brennelementen in einer Trockenlagerkanne messen zu können, wurde eine der Kannen mit fernbedienbaren Ventilen versehen. Die Kanne wurde mit 900 hochabgebrannten AVR-GO-BE mit einer Vorlagerzeit von 6 Jahren beladen und in das Kannenlager überführt. Monatlich wurde die Kanne an einen Gasspülkreislauf angeschlossen und dem Kannenleervolumen von 113 l ein Gasaliquot von 0,3 l zur Gasanalyse entnommen. Nach 2-jähriger Messung zeigte sich, daß die Freisetzungsrates der 900 BE in einer AVR-TL-Kanne für Kr 85  $1,5 \times 10^{-4}$  Ci pro Jahr beträgt, für HTO wurde ein Wert von  $3 \times 10^{-4}$  Ci pro Jahr ermittelt. Da das HTO in hohem Maß die Brennelementoberfläche belegt, machen sich aufgrund von Desorptions-Absorptions-Vorgängen bereits geringe

Temper  
Messw

4. Au:  
Lag

Für d  
mbar  
Triti  
größe  
der K  
verar  
durch

$F_0 =$   
 $D =$

Abb.  
und  
zier  
kann  
ren  
Wert

5. S  
Die  
Ann  
den  
mit  
85  
den  
Tri  
ter

Temperaturschwankungen im Lager (z.B. 6 K zwischen Sommer und Winter) in Messwertschwankungen bis zu 15 % bemerkbar.

#### 4. Auswertung der Ergebnisse und Errechnung der Freisetzung für 50 Jahre Lagerzeit

Für das Kannenverschlußsystem ist eine Leckrate von kleiner als  $1 \times 10^{-4}$  mbar l/s garantiert. Die Abnahme des Aktivitätsinventars von Kr 85 und Tritium durch radioaktiven Zerfall ist daher im Kannenvolumen wesentlich größer als durch Leckageverluste. Für eine konservative Vorausberechnung der Kannengasaktivität werden die Leckageverluste und weitere Inventarverarmungseffekte nicht berücksichtigt. Der Aktivitätsverlauf kann dann durch die Formel

$$N(t) = (F_0 \times t + D) \times e^{-\lambda t} \text{ beschrieben werden.}$$

$F_0$  = gemessene Freisetzungsrates

$D$  = spontan nach der Beladung von den Brennelementoberflächen desorbierte Aktivität, die meßtechnisch ermittelt wurde (muß insbesondere bei HTO berücksichtigt werden)

Abb. 2 zeigt den nach dieser Formel errechneten Verlauf für die Tritium- und Kr 85-Freisetzung und daraus abgeleitet eine aufgrund der spezifizierten Kannenleckage errechnete Freisetzungsrates aus der Trockenlagerkanne. Die Rechnung ergibt, daß für H 3 die Freisetzungsrates nach 15 Jahren Lagerzeit auf maximal  $3,5 \times 10^{-5}$  Ci/a ansteigt, für Kr 85 auf einen Wert von  $5,4 \times 10^{-6}$  Ci/a.

#### 5. Schlußfolgerung

Die Lagerung von HTR-Brennelementen in Edelstahlkannen führt selbst bei Annahme pessimistischer Bedingungen zu Freisetzungsrates, die weit unter den genehmigten Werten liegen. Als Beispiel kann das AVR-Trockenlager mit 72 AVR-TL-Kannen herangezogen werden, aus dem maximal  $6 \times 10^{-3}$  Ci Kr 85 und 2,4 Ci Tritium pro Jahr freigesetzt werden darf. Die vorliegenden Messungen und Rechnungen lassen darauf schließen, daß die Werte für Tritium um einen Faktor 1000, für Kr 85 um einen Faktor 15 unterschritten werden.

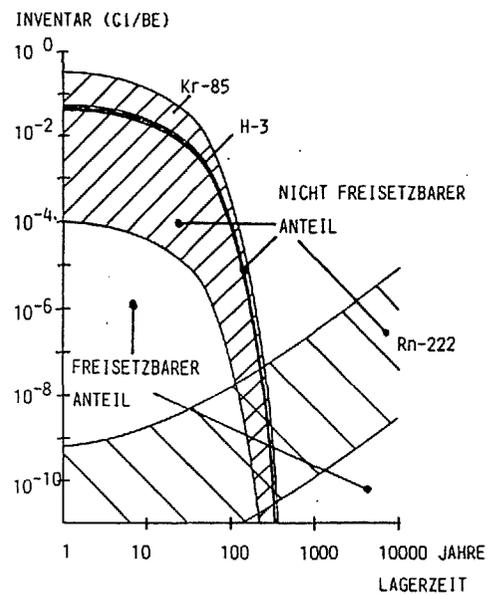


Abb. 1:  
Freisetzbare und nicht freisetzbare  
Anteile gasförmiger Radionuklide in  
einem AVR-Brennelement mit 15 % FIMA

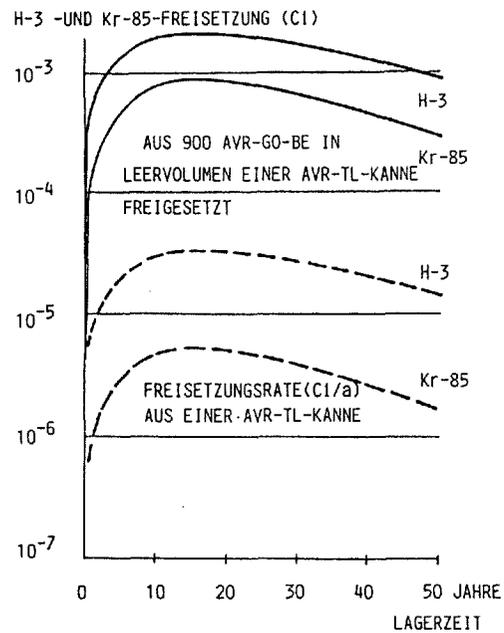


Abb. 2:  
Freisetzung von H3 und Kr 85 aus Brenn-  
elementen bzw. Lagerkannen  
(Kannenleckage  $1 \times 10^{-4}$  mbar l/s)