



(12) Wirtschaftspatent

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

(19) **DD** (11) **234 102 A1**4(51) **G 21 C 17/06**
G 21 D 3/06**AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN**

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21)	WP G 21 C / 272 549 5	(22)	14.01.85	(44)	19.03.86
------	-----------------------	------	----------	------	----------

(71) VE Kombinat Kernkraftwerke „B. Leuschner“, 2200 Greifswald, DD

(72) Müller, Harald, Dipl.-Phys.; Zänker, Harald, Dipl.-Chem.; Legler, Dieter, Dipl.-Chem.; Venz, Hartmut, Dipl.-Chem.; Berndt, Reinhard, Dipl.-Math., DD

(54) Verfahren zur Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen bei Reaktorbetrieb. Sie ist vorzugsweise für Leichtwasserreaktoren und darüber hinaus auch für Reaktoren mit anderen Kühlmitteln anwendbar. Ziel und Aufgabe bestehen darin, ein Verfahren zur Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen bei Reaktorbetrieb zu schaffen, daß auf der radiometrischen Meßtechnik beruht und mit dem es möglich ist, die Anzahl der zu prüfenden Brennstoffkassetten bei offenem Reaktor zu verringern, so daß die Stillstandszeiten des Reaktors verkürzt werden. Dies wird dadurch erreicht, daß man das mittlere Konzentrationsverhältnis $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ aus Messungen der ^{85}Kr - und ^{133}Xe -Konzentrationen im Primärkühlmittel mit den zugehörigen „Unsicherheitsbereich“ bestimmt und die Brennstoffkassetten als schadensverdächtig lokalisiert, bei denen die errechneten mittleren betriebsbedingten Konzentrationsverhältnisse $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ im Brennstoff der Brennstoffkassetten oder auch der einzelnen Brennelemente im „Unsicherheitsbereich“ des aus Messungen im Primärkühlmittel bestimmten mittleren Konzentrationsverhältnisse $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ liegen.

Erfindungsanspruch:

1. Verfahren zur Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen bei Reaktorbetrieb, **gekennzeichnet dadurch**, daß man in regelmäßigen Abständen, vorzugsweise einmal pro Woche, Gasproben aus dem Primärwasser des Reaktors entnimmt und diese γ -spektrometrisch auf ^{133}Xe ausmißt, anschließend durch eine fraktionierte Destillation des Krypton von den übrigen Bestandteilen abtrennt, diese Kryptonfraktion bleibt dann mehrere Tage stehen, um das $^{85}\text{m Kr}$, ^{87}Kr und ^{88}Kr abklingen zu lassen, darauf folgend wird dann das ^{85}Kr γ -spektrometrisch bestimmt und das mittlere Konzentrationsverhältnis $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ gebildet, parallel dazu wird für jede Brennstoffkassette des Reaktors in regelmäßigen Abständen, vorzugsweise einmal pro Woche, anhand des Leistungsdiagrammes sowie der Steuerabfolge über bekannte Näherungsgleichungen das mittlere Konzentrationsverhältnis $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ im Brennstoff errechnet, danach wird der Unsicherheitsbereich der gemessenen Konzentrationsverhältnisse bestimmt und mit den errechneten Konzentrationsverhältnissen verglichen, wobei die Brennstoffkassetten als schadensverdächtig lokalisiert werden, deren errechnetes Konzentrationsverhältnis im Unsicherheitsbereich des gemessenen Konzentrationsverhältnisses liegt.
2. Verfahren zur Lokalisierung von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen nach Pkt. 1, **gekennzeichnet dadurch**, daß der Unsicherheitsbereich der gemessenen Konzentrationsverhältnisse über bekannte Gleichungen bestimmt wird.

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen bei Reaktorbetrieb, vorzugsweise für Leichtwasserreaktoren. Darüber hinaus ist sie auch für Reaktoren mit anderen Kühlmitteln anwendbar.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Bekanntlich wird während des Betriebes eines Leichtwasserreaktors regelmäßig die Spaltproduktkonzentration im Primärwasser bestimmt, um Schlußfolgerungen über den Dichtheitszustand der Brennelementhüllrohre ziehen zu können.

Weist diese indirekte Brennelementenkontrolle bei Leistungsbetrieb auf wesentliche Brennelementdefekte hin, so ist eine Suche der Brennstoffkassetten mit den defekten Brennelementen durch eine Brennelementkontrolle bei offenem Reaktor während des nachfolgenden Umladestillstandes notwendig.

Aus Lusanova, L. M., et. al.; Kernenergie 26 (1983) 20 ist bekannt, diese Brennelementkontrolle mit Hilfe eines Pennals und eines thermisch abgeschlossenen kleinen Prüfkreislaufes durchzuführen. In diesem Prüfkreislauf befindet sich aktivitätsfreies Kreislaufwasser, in dem bei Vorhandensein defekter Brennelemente Spaltprodukte nachgewiesen werden.

Derartige Prüfungen bei offenem Reaktor haben den entscheidenden Nachteil, daß sie eine Verlängerung des Umladestillstandes des Kraftwerksblockes bewirken und es somit zu hohen ökonomischen Verlusten aufgrund des Stillstandes des Kraftwerksblockes kommt.

Desweiteren ist es, insbesondere bei Leichtwasserreaktoren, bekannt, eine Vorlokalisierung der Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen bereits bei Reaktorbetrieb vorzunehmen, indem man γ -spektrometrisch das Konzentrationsverhältnis der Spaltproduktisotope ^{134}Cs und ^{137}Cs im Primärwasser bestimmt und aus diesem Verhältnis auf den Abbrand der Defektkassetten schließt (Beraha, R., et. al.; Nuclear Technol. 49 [1980] 426). Diese Vorlokalisierung wird so durchgeführt, daß für jede Brennstoffkassette eines Reaktors anhand des Leistungsdiagrammes sowie der Steuerabfahrtsfolge dieses Reaktors über bekannte Näherungsgleichungen das mittlere Konzentrationsverhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ im Brennstoff zum Zeitpunkt der Vorlokalisierung errechnet und mit dem gemessenen Konzentrationsverhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ im Primärwasser verglichen wird. Es muß aber berücksichtigt werden, daß sowohl die Rechenwerte, als auch die Meßwerte fehlerbehaftet sind. Dies ist darauf zurückzuführen,

- daß die Meßwerte der ^{134}Cs - und ^{137}Cs -Aktivität eine erhebliche Streuung aufweisen (Streuung der Meßwerte).
- daß das Cäsiumverhältnis nicht exakt berechnet werden kann, da seiner Bestimmung Näherungsgleichungen zugrunde gelegt werden (Fehler des Rechenprogrammes).
- daß der Abbrand des defekten Brennelementes nicht genau dem mittleren errechneten Abbrand der Brennstoffkassetten entspricht (Ungleichmäßigkeit des Abbrandes).

Aus der Streuung der Meßwerte, dem Fehler des Rechenprogrammes und der Ungleichmäßigkeit des Abbrandes wird die sogenannte „Unsicherheit“ des Verhältnisses $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ermittelt. Diese Unsicherheit wird dem gemessenen Cäsiumverhältnis zugeordnet und der zugehörige „Unsicherheitsbereich“ bestimmt.

$$\bar{Q}_{37} - U_{37} \leq Q_{37} \leq \bar{Q}_{37} + U_{37}$$

mit

$$Q_{37} = \frac{C_{\text{Cs}} - 134}{C_{\text{Cs}} - 137}$$

Die Brennelementkontrolle bei offenem Reaktor kann sich dann auf die Brennstoffkassetten beschränken, deren abbrand- und leistungsabhängige Konzentrationsverhältnisse $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in der Nähe (im „Unsicherheitsbereich“) des gemessenen Konzentrationsverhältnisses liegt. Die Anzahl der zu kontrollierenden Brennstoffkassetten ist bei dieser Verfahrensweise relativ hoch (etwa 50% aller Brennstoffkassetten).

Um diese Anzahl zu reduzieren ist in dem WP G 21 C/251498 3 vorgeschlagen, γ -spektrometrisch das Konzentrationsverhältnis der Spaltproduktisotope ^{134}Cs und ^{136}Cs im Primärwasser eines Reaktors zu bestimmen und parallel dazu aus dem Leistungsdiagramm und der Steuerabfahrtsweise dieses Reaktors über bekannte Näherungsgleichungen das abbrand- und leistungsabhängige Konzentrationsverhältnis $^{134}\text{Cs}/^{136}\text{Cs}$ im Brennstoff aller Brennstoffkassetten zu errechnen. Der Brennelementkontrolle bei offenem Reaktor werden nur diejenigen Brennstoffkassetten unterzogen, bei denen die anhand der

Näherungsgleichungen errechneten mittleren Konzentrationsverhältnisse $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ und $^{134}\text{Cs}/^{136}\text{Cs}$ der Brennstoffkassetten innerhalb beider „Unsicherheitsbereiche“ der aus γ -spektrometrischen Messungen der ^{134}Cs -, ^{136}Cs - und ^{137}Cs -Aktivitäten im Primärwasser gemessenen Konzentrationsverhältnisse $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ und $^{134}\text{Cs}/^{136}\text{Cs}$ liegen.

Zu einer solchen Verfahrensweise ist jedoch aus Cubicciotti, D., et. al.; American Nuclear Soc. Topical Meeting on Water Reactor Fuel Performance, St. Charles 1977 bekannt, daß die aus der Brennstoffsäule eines Brennelementes austretenden Cäsiumisotope aus dem defekten Brennelement in das Primärwasser erfolgt bei stationärem Reaktorbetrieb nur aus der unmittelbaren Nähe des Defektortes. Damit entsprechen die Cäsiumverhältnisse im Primärwasser dem lokalen Abbrand des defekten Brennelementes. In ungünstigen Fällen, z. B. bei Endstopfenschäden, kann dieser stark vom mittleren Abbrand abweichen und die Anwendung der Vorlokalisierung kann zur Einordnung des defekten Brennelementes in eine falsche Abbrandgruppe führen.

Dieses kann dadurch verhindert werden, daß dem Vorlokalisationsverfahren nicht die Cäsiumkonzentration im Primärwasser bei stationärem Normalbetrieb des Reaktors sondern die Cäsiumkonzentration während oder kurz nach Leistungstransienten zugrunde gelegt wird.

Darüber hinaus ist es bekannt, defekte Brennelemente bei Reaktorbetrieb zu lokalisieren, indem man das Konzentrationsverhältnis der bei der Spaltung natürlich entstehenden Xenonisotope $^{128}\text{Xe}/^{134}\text{Xe}$ sowie ^{130}Xe , ^{134}Xe (FR-PS 780231) oder $^{134}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ (US-PS 417652) im Primärkühlmittel bestimmt.

Die Brennelementkontrolle bei offenem Reaktor kann sich dann auf die Kassetten beschränken, deren Abbrandwert in der Nähe der Konzentrationsverhältnisse der Xenonisotope liegt.

Alle bekannten Lokalisationsverfahren, basierend auf den Spaltedelgasverhältnissen, haben den Nachteil, daß ihre Bestimmung nur mit Hilfe eines kostenaufwendigen Massenspektrometers realisiert werden können.

Ziel der Erfindung

Das Ziel der Erfindung besteht darin, ein Verfahren zur Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen zu schaffen, mit dem es möglich ist, die Anzahl der zu prüfenden Brennstoffkassetten bei offenem Reaktor zu verringern, so daß die Stillstandszeiten des Reaktors verkürzt werden.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen bei Reaktorbetrieb zu schaffen, das bei stationärem Normalbetrieb des Reaktors ohne Einschränkungen anwendbar ist und auf der radiometrischen Meßtechnik beruht.

Erfindungsgemäß wird die Aufgabe dadurch gelöst, daß bei Reaktorbetrieb in regelmäßigen Abständen vorzugsweise einmal pro Woche, Gasproben aus dem Primärwasser des Reaktors entnommen und γ -spektrometrisch auf ^{133}Xe ausgemessen werden.

Anschließend wird durch eine fraktionierte Destillation das Krypton von den übrigen Bestandteilen abgetrennt. Diese Kryptonfraktion bleibt dann mehrere Tage stehen, um das ^{85}mKr , ^{87}Kr und ^{88}Kr abklingen zu lassen. Danach wird dann das ^{85}Kr γ -spektrometrisch bestimmt.

Es besteht weiterhin die Möglichkeit, ohne fraktionierte Destillation zum ^{85}Kr zu gelangen. Bei dieser Möglichkeit läßt man die gesamte Gasprobe nach der ^{133}Xe -Bestimmung 25 bis 30 Tage stehen, so daß alle kurzlebigen Gasaktivitäten abgeklungen sind. Danach kann dann das ^{85}Kr , wie oben beschrieben, γ -spektrometrisch bestimmt werden.

Aus diesen γ -spektrometrischen Messungen wird dann das Konzentrationsverhältnis $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ gebildet. Parallel zu diesen Messungen wird in regelmäßigen Abständen, vorzugsweise einmal pro Woche, anhand des Leistungsdiagrammes sowie der Steuerabfolge über bekannte Näherungsgleichungen das mittlere Konzentrationsverhältnis $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ im Brennstoff errechnet. Danach wird der Unsicherheitsbereich der gemessenen Konzentrationsverhältnisse $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ bestimmt und mit dem errechneten Konzentrationsverhältnis verglichen. Dabei werden dann die Brennstoffkassetten als schadensverdächtig lokalisiert, deren errechnetes Konzentrationsverhältnis im Unsicherheitsbereich des gemessenen Konzentrationsverhältnisses liegt. Der Unsicherheitsbereich der gemessenen Konzentrationsverhältnisse wird über bekannte Gleichungen ermittelt.

Ausführungsbeispiel

Die Erfindung soll anhand eines Ausführungsbeispiels, z. B. der Lokalisation von Brennstoffkassetten mit defekten Brennelementen an einem Druckwasserreaktor, näher erläutert werden.

Zur Lokalisation defekter Brennelemente werden in regelmäßigen Abständen, z. B. einmal pro Woche, Gasproben aus dem Primärwasser entnommen. Diese Proben werden γ -spektrometrisch auf ^{133}Xe ausgemessen und anschließend wird durch fraktionierte Destillation auf chemischen Wege das Krypton (Kr) von den übrigen Bestandteilen abgetrennt, danach bleibt die Kryptonfraktion ein bis zwei Tage stehen, um das ^{85}mKr , ^{87}Kr und ^{88}Kr abklingen zu lassen. Darauf folgend wird dann das ^{85}Kr anhand seiner 514-KeV-Photolinie γ -spektrometrisch bestimmt, so daß man das mittlere Konzentrationsverhältnis $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ im Primärwasser erhält.

Parallel dazu wird für jede Brennstoffkassette des Reaktors in regelmäßigen Abständen, z. B. einmal pro Woche, anhand des Leistungsdiagrammes sowie der Steuerabfahrtsfolge dieses Reaktors über bekannte Näherungsgleichungen das mittlere Konzentrationsverhältnis $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ im Brennstoff errechnet. Danach wird dann über bekannte Gleichungen der Unsicherheitsbereich

$$\bar{Q}_{\text{SG}} - U_{\text{SG}} \leq Q_{\text{SG}} \leq \bar{Q}_{\text{SG}} + U_{\text{SG}}$$

mit

$$Q_{\text{SG}} = \frac{C_{^{85}\text{Kr}}}{C_{^{133}\text{Xe}}}$$

des gemessenen Konzentrationsverhältnisses $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$ im Primärwasser für bestimmte Kampagneabschnitte ermittelt.

Es bedeuten dabei:

Q_{SG} = Quotient der Konzentration der Spaltisotope

$C_{^{84}\text{Kr}}$ = Konzentration des Kryptonisotops

$C_{^{133}\text{Xe}}$ = Konzentration des Xenonisotops

\bar{Q}_{SG} = Mittelwert von Q_{SG}

U_{SG} = Unsicherheit des Konzentrationsverhältnisses $^{85}\text{Kr}/^{133}\text{Xe}$

Diese Unsicherheit des Konzentrationsverhältnisses wird aus der Streuung der Meßwerte, dem Fehler des Rechenprogrammes und

Alle Brennstoffkassetten mit einem errechneten Konzentrationsverhältnis $85 \text{ Kr}/133 \text{ Xe}$ innerhalb dieses Unsicherheitsbereiches sind schadensverdächtig.

Am Ende der Reaktorkampagne werden in der bekannten Weise während und kurz nach der durch das Reaktorabfahren verursachten Leistungstransiente die Konzentrationsverhältnisse $134 \text{ Cs}/137 \text{ Cs}$ und $134 \text{ Cs}/136 \text{ Cs}$ bestimmt.

Die Festlegung der bei offenem Reaktor zu prüfenden Brennstoffkassetten erfolgt anhand des Konzentrationsverhältnisses $85 \text{ Kr}/133 \text{ Xe}$ vor der Reaktorabschaltung sowie der Konzentrationsverhältnisse $134 \text{ Cs}/137 \text{ Cs}$ und $134 \text{ Cs}/136 \text{ Cs}$ während und kurz nach der Leistungstransiente.