Untersuchung der Phänomene schwerer Störfälle innerhalb des Druckbehälters

M. Steinbrück, L. Sepold, IMF; H. Jacobs, A. Miassoedov IKET; W. Hering, R. Krieg, W. Schütz, IRS

Einleitung

Die meisten der heute weltweit und alle in Deutschland - betriebenen Kernreaktoren sind Leichtwasserreaktoren (LWR), in denen Uranoxid oder Uran-Plutonium-Mischoxid (MOX) als Brennstoff in neutronendurchlässigen Hüllrohren aus Zirkonium-Legierungen eingesetzt wird. Als Kühlmittel und Moderator zum Abbremsen der bei der nuklearen Kettenreaktion freigesetzten schnellen Neutronen wird normales "leichtes" Wasser (H₂O im Unterschied zum "schweren" Wasser D₂O, daher der Name) verwendet. Weitere wichtige Komponenten sind die Steuerstäbe, die zur Reaktorleistungsregelung (Kontrolle der Kettenreaktion) und zur Schnellabschaltung eines Reaktors dienen. Dabei besteht der Neutronenabsorber in den meisten Druckwasserreaktoren (DWR) aus einer Silber-Indium-Cadmium-Legierung (AIC) und in den meisten Siedewasserreaktoren (SWR) aus Borkarbid (B₄C).

Schwere Störfälle sind für diese Reaktorentypen extrem unwahrscheinlich. Zur weiteren Erhöhung der Sicherheitsstandards von Kernkraftwerken wurden und werden aber weltweit viele Forschungsarbeiten durchgeführt. Das Ziel ist dabei, die auftretenden Phänomene unter den extremen Bedingungen eines solchen Störfalls zu verstehen, Obergrenzen für Belastungen der Sicherheitsbarrieren zu bestimmen und Maßnahmen zu finden, die das Fortschreiten des Unfalls vermindern, beenden oder gar verhindern. Zu diesem Zweck werden komplexe Computer-Rechenprogramme verwendet, die mit Hilfe von Experimenten mit unterschiedlichen Skalierungen validiert werden.

Im vorliegenden Beitrag werden aktuelle Ergebnisse von Arbeiten aus dem Programm Nukleare Sicherheitsforschung im Forschungszentrum Karlsruhe vorgestellt, die sich mit den Phänomenen bis zum Versagen des Reaktordruckbehälters (RDB, "invessel") befassen. Die In-vessel-Abläufe bestimmen den primären Quellterm für Spaltprodukte und Wasserstoff im Sicherheitsbehälter sowie die Ausgangsbedingungen, wie Temperatur und Zusammensetzung der Schmelze, für den weiteren Verlauf des Unfalls außerhalb des Druckbehälters ("ex-vessel"), der Thema des vorausgehenden Beitrags (Alsmeyer u. a.) ist.

Frühe Kernzerstörung und Fluten des überhitzten Reaktorkerns

Die frühe Phase der Kernzerstörung ist durch erste Schmelzebildung metallischer Komponenten bei weitgehendem Erhalt der Brennelement-Geometrie charakterisiert. Sie ist sowohl phänomenologisch als auch hinsichtlich der Modellierung in den Rechenprogrammen zur Simulation schwerer Störfälle weitgehend gut verstanden und beschrieben. Durch den Unfall im Three-Mile-Island-Reaktor (TMI-2) in den USA im Jahre 1979 wurden national und international viele experimentelle Arbeiten initilert, so auch das CORA-Programm (Karlsruhe, 1987-1993).

Ein wichtiges Ergebnis daraus ist, dass sich Schmelzen aufgrund eutektischer Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Materialien deutlich unterhalb der Schmelztemperaturen der einzelnen Komponenten bilden [1].

Im Hinblick auf die rechtzeitige Beendigung eines schweren Reaktorstörfalls ist das Fluten des überhitzten Reaktorkerns mit Wasser eine der wichtigsten Unfallschutzmaßnahmen. Bei diesem Vorgang kann es aufgrund der exothermen chemischen Reaktionen zwischen dem entstehenden Wasserdampf und den Zircaloy-Brennelementhüllrohren zu einer temporären Temperatureskalation unter gleichzeitiger Bildung von großen Mengen Wasserstoff kommen. Der entstehende Wasserstoff darf sicherheitsrelevante Werte nicht überschreiten. Er muss daher im Reaktorcontainment chemisch in Rekombinatoren abgebunden oder kontrolliert abgebrannt werden, um eine Knallgasreaktion mit großen Folgeschäden zu verhindern. Um den so genannten Wasserstoffguellterm (Gesamtmenge und Rate) zu ermitteln, werden in der QUENCH-Versuchsanlage (Abb. 1), die 1997 in Betrieb genommen wurde, unter verschiedenen Versuchsbedingungen für DWR-, SWR- und russische WWER-Brennelemente Out-of-pile-Experimente, d. h. Simulationsexperimente außerhalb eines Reaktors, durchgeführt.

Bei diesen Experimenten wird ein umfangreich instrumentiertes Simulationsbündel in oxidierender Atmosphäre auf Temperaturen von 1500 bis 2000 °C aufgeheizt, um verschiedene Phasen eines



Abb. 1: QUENCH-Versuchsanlage zur Untersuchung von Wasserstoffquellterm und Materialwechselwirkungen beim Abschrecken eines überhitzten Reaktorkerns.

Störfalls zu simulieren. Wenn die vorgesehenen Parameter, wie Temperatur und Oxidationszustand erreicht sind, wird das Bündel mit Wasser oder Dampf abgeschreckt [2]. Bisher wurden neun Integral-Experimente solcher durchgeführt. Neben Temperatur und Grad der Voroxidation zum Zeitpunkt der Initiierung der Abschreckphase waren das Abschreckmedium (Wasser, Dampf) sowie die Untersuchung des Einflusses von B₄C-Absorbermaterial und Dampfmangelbedingungen die wichtigsten Versuchsparameter. Dampfmangel besteht z. B. dann, wenn der angebotene Dampf schon im unteren Bündelbereich komplett durch die Oxidationsreaktion konsumiert wurde und im verbleibenden oberen Bereich aufgrund der Wasserstoffbildung reduzierende Bedingungen herrschen.

Bei einem Teil der Versuche war das Fluten mit Wasser bzw. das Abschrecken mit Dampf erfolgreich und führte zur sofortigen Temperaturabsenkung und somit nur zu einer geringen zusätzlichen Wasserstoffproduktion. Bei anderen Versuchen wurde dagegen mit Beginn der Abschreckphase eine Temperatureskalation verbunden mit der Freisetzuna großer Mengen Wasserstoff beobachtet. Um dies zu verstehen, muss man sich vergegenwärtigen, dass das Wasser bzw. der Dampf zum einen wie gewünscht als Kühlmittel wirken und zum anderen aber auch als Oxidationsmittel. Die Energiebilanz zu Beginn des Abschreckprozesses ist ein entscheidendes Kriterium dafür, ob das Bündel erfolgreich abgekühlt wird oder ob das in dieser Phase erhöhte Dampfangebot zu einer Eskalation durch die exotherme chemische Reaktion führt. Die experimentellen Arbeiten haben gezeigt, dass eine Eskalation durch die Beeinträchtigung der Schutzwirkung der Oberflächen-Oxidschichten aufgrund von Rissbildung, Abplatzen oder Auflösen bei Dampfmangelbedingungen und durch die Bildung metallischer Schmelzen, insbesondere durch eutektischen Wechselwirkungen schon weit unterhalb der Schmelztemperaturen der einzelnen Komponenten, begünstigt wird.

Da die bei den extremen Bedingungen eines hypothetischen schweren Störfalls auftretenden Phänomene sehr komplex sind. werden die Bündeltests durch kleinskalige Einzeleffektuntersuchungen und den Einsatz von entsprechenden Rechenprogrammen unterstützt. Verschiedene, z. T. auch im Forschungszentrum entwickelte Computerprogramme (SCDAP/RELAP5, CALUMO, SVECHA/Q) helfen einerseits, die Versuche vorzubereiten und zu analysieren und werden andererseits mit Hilfe der experimentellen Daten validiert und verbessert. Anlässlich des QUENCH-06 Experiments wurden im Rahmen des Internationa-Standardproblems (ISP) len Nr. 45 [3] der OECD verschiedene Codesysteme miteinander verglichen. Es zeigte sich, dass die Programme einige Probleme mit der korrekten Berechnung der Anfangsbedingungen im Bündel zu Beginn des Flutens hatten. Fehlende Erfahrung bei der Handhabung solcher komplexen Codesysteme durch die Nutzer sowie Schwierigkeiten bei der angemessenen Modellierung der QUENCH-Anlage waren die Hauptursache für größere Abweichungen. Letzteres ist ein Indiz für den beginnenden Knowhow-Verlust im Bereich der Reaktorsicherheit, dem durch weitere Codeveraleiche unter Einbeziehuna junger Wissenschaftler entgegengewirkt werden kann.

Schmelzeverlagerung in den unteren Druckbehälter

Im Rahmen der LIVE-Experimente (Late In-Vessel Phase Experiments) sollen wichtige Phänomene während der späten Phase des Kernabschmelzens studiert werden. Die Hauptziele dieses im Aufbau befindlichen Vorhabens konzentrieren sich auf die

1. Beschreibung der späten Phase des Kernabschmelzens, der Kernverlagerung und der Ausbildung eines Schmelzensees innerhalb des RDB.

2. Untersuchungen zur Möglichkeit der Wiedergewinnung der Kühlung und Stabilisierung der Schmelze im RDB durch interne Wasserbespeisung und/oder Außenflutung des RDB.

Das experimentelle Programm ist in verschiedene Phasen unterteilt, in denen die transiente Verlagerung der Kernschmelze bis ins untere Plenum und die Ausbildung und das Verhalten von Schmelzenseen untersucht werden. Ziel ist, die wesentlichen Phasen des Unfallablaufs zu erfassen und Eingriffsmöglichkeiten zur Beherrschung des Unfalls aufzuzeigen.

Die LIVE-Versuchsanlage besteht aus einem Versuchsbehälter, einem Schmelzofen zur Erzeugung der Schmelze und einem volumetrischen Heizsystem zur Simulation der nuklearen Nachwärme. Der Versuchsbehälter ist ein im Maßstab 1:5 verkleinerter RDB typischen eines deutschen Druckwasserreaktors. Er ist mit verschiedener Messtechnik wie Wärmestromsensoren und Thermoelementen ausgestattet (Abb. 2). Die interne Instrumentierung - Thermoelemente, Viskosimeter, Probennahme, Krustenmessung, etc. - wird von oben durch den Deckel in den RDB eingebracht.

Die Experimente werden mit verschiedenen Simulationsschmelzen durchgeführt. In der ersten Versuchsserie werden Nitratschmelzen (KNO₃ und NaNO₃) eingesetzt, die bis etwa 350 °C aufgeheizt werden. In dieser Versuchsserie werden vor allem die Krustenausbildung in der unteren Kalotte und die Wärmeströme in die Behälterwand untersucht, um die Beanspruchungen des Behälters und Möglichkeiten der Kühlung angeben zu können.



Abb. 2: Aufbau eines Instrumentierungsstopfens für die Temperatur- und Wärmefluss-Messungen in der LIVE-Anlage.

In einer späteren Versuchsserie werden Oxidschmelzen eingesetzt, die bis ca. 1000 °C aufgeheizt werden. Da die ausgewählten Salz- und Oxidschmelzen in ihren Phasendiagrammen und in wichtigen Materialeigenschaften den Kernschmelzen ähnlich sind, können wesentliche Ergebnisse auf die Unfallsituation übertragen werden. Längerfristig ist geplant, auch Metallschmelzen in Kombination mit den Oxidschmelzen einzusetzen.

Energetische Wechselwirkung von Kernschmelze und Wasser (Dampfexplosion)

Dampfexplosionen können unter ungünstigen Umständen entstehen, wenn eine heiße Schmelze so mit Wasser vermischt wird, dass die Wärmeübertragungsfläche sprunghaft um Größenordnungen ansteigt und zu einer schlagartigen Verdampfung von Wasser mit entsprechendem Druckaufbau führt. Unfälle durch Dampfexplosionen kommen in

praktisch allen Industriezweigen vor, die mit großen Mengen heißer Schmelzen umgehen. Im Zusammenhang mit schweren Störfällen in Kernreaktoren war befürchtet worden, dass eine Dampfexplosion im Druckbehälter zu einem frühen Containmentversagen mit katastrophalen Folgen führen könnte. Wahrscheinlichkeitsanalysen konnten diese Befürchtungen weitgehend ausräumen. Aufgrund unserer eigenen Untersuchungen in drei Disziplinen konnten wir auch deterministisch zeigen, dass eine konservativ nach oben abgeschätzte maximale Explosionsenergie vom Druckbehälter beherrscht wird [4]. Der Weg dazu war:

1. Ermittelung des Zustandes der Einbauten im RDB und der Wege für die Verlagerung der Schmelze aus dem Kernbereich in das untere Kühlmittelplenum,

2. Berechnung der vermischten Schmelzemasse und ihres Energieinhalts mit Hilfe unserer Rechenmodelle,

3. konservative Abschätzung der Explosionsenergie und des Anteils davon, der zur Belastung des Deckels führt, und

4. experimentelle Ermittelung der Lastabtragfähigkeit des Deckelsystems, d. h. des Deckels und der Schrauben, die ihn halten.

Es bleibt aber die Notwendigkeit, die Belastungen durch diese und andere Dampfexplosionen bei der Analyse von Unfallabläufen zu berücksichtigen. Dazu müssen sie möglichst realistisch abgeschätzt werden. Dies erfordert die Entwicklung entsprechender thermo-fluiddynamischer Rechenmodelle und dafür eine möglichst weitgehende Kenntnis der komplexen Prozesse, sowie aussagekräftige und zuverlässige experimentelle Daten, an denen die Programme getestet werden können. Daher wurden und werden großskalige Experimente durchgeführt: bis etwa 1999 die QUEOS- und PREMIX-Experimente zur Vorvermischung und seit 2000 die ECO (Energy <u>CO</u>nversion) Experimente zur Energiefreisetzung in Explosionen.

Ein im Forschungszentrum entwickeltes Werkzeug zur Beschreibung von Schmelze-Kühlmittel-Wechselwirkungen ist das Rechenprogramm MATTINA - ein zeitabhängiges fluiddynamisches Mehrphasen-Mehrkomponenten-Modell, mit dem die Bewegungen von Schmelze. Wasser und Gas separat beschrieben werden können. Wärme- und Impulsaustausch erfolgen zwischen allen drei Feldern, Massenaustausch (Verdampfung und Kondensation) zwischen dem Wasser und dem Gas. Die physikalischen Wechselwirkungen zwischen den Fluiden werden mit Hilfe von zum Teil empirisch angepassten arithmetischen Modellen aus der Literatur beschrieben. Bis auf Fälle mit hohen Explosionsdrücken (über 10 MPa) ergaben die Nachrechnungen von verschiedenen Experimenten mit MATTINA gute Ergebnisse ohne individuelle Anpassung von Parametern. Daneben konnten mit MATTINA Erklärungen für einige Phänomene gefunden werden, die konsistent während der Vorvermischung in den ECO-Experimenten auftreten, zunächst aber schwer verständlich waren.

Der Zweck der ECO Versuche (Abb. 3) ist es, den Druck während einer Dampfexplosion und (zum ersten Mal für Explosionen in dieser Größenordnung) die freigesetzte mechanische Energie direkt zu messen [5]. Bisher wurden sieben Experimente durchgeführt. Bei dem Experi-



Abb. 3: Die ECO-Anlage besteht aus einem Zylinder, der mit der Bodenplatte fest verbunden ist, und einem Kolben, der sich nur gegen den Widerstand einer besonderen Art von Knautschmaterial zur Bestimmung der mechanischen Energie bewegen kann. Die Kernschmelze wird durch geschmolzenes Aluminiumoxid ersetzt, das mit Hilfe einer Thermitreaktion erzeugt wird. Maximal stehen knapp 20 kg Al₂O₃ mit einer Temperatur von etwa 2600 K zur Verfügung.

ment ECO-05 wurden 16.4 kg Schmelze in das Wasser eingebracht. Der Explosionsdruck überstieg an mehreren Messstellen den Messbereich von 45 MPa für fast eine Millisekunde. Die Explosionsenergie betrug etwa 2.35 % der gesamten in den 16.4 kg anfänglich verfügbaren thermischen Energie. Bei einer Wiederholung des Versuches (ECO-06) verlief die Vorvermischungsphase sehr ähnlich (z. B. wurden 15.2 kg vermischt). Trotzdem wurden zwar Drücke bis etwa 100 MPa gemessen, diese standen aber kürzer an und die Explosionsenergie betrug nur etwa ein Drittel des vorherigen Wertes. Die Versuche zeigten, dass Dampfexplosionen starken statistischen Schwankungen unterliegen.

Für Schäden am Containment ist es von entscheidender Bedeutung, ob das Deckelsystem (Deckel und Schrauben) des RDB dem Aufprall der nach oben geschleuderten Kernschmelze standhält. Deswegen wurde die maximale kinetische Energie der durch die Explosion nach oben geschleuderten Kernschmelze E_{slug} bestimmt, die vom Deckelsystem noch zuverlässig aufgenommen werden kann, sowie die dazu notwendige mechanische Energiefreisetzung (Explosionsenergie) unterhalb der Kerntrageplatte E_{plate}.

Hierbei spielt die mechanische Wechselwirkung mit den relativ filigranen Druckbehältereinbauten eine wesentliche Rolle. Die zuverlässige Beschreibung dieser Vorgänge in einem Rechenmodell ist jedoch nahezu unmöglich. Interessanterweise ergab sich aber, dass diese Wechselwirkung und die resultierende Beanspruchung des Druckbehälterdeckels in Modellexperimenten recht genau simuliert werden kann. Stark nichtlineare, große plastische Deformationen werden hierbei korrekt erfasst [6].

Die Untersuchungen wurden deswegen mit Hilfe der Modellex-

perimente BERDA im Maßstab 1:10 durchgeführt. Dazu wurde die Impakt-Versuchsanlage IVAN errichtet (Abb. 4). Die Kernschmelze wird hierbei mit einer niedrigschmelzenden Bleilegierung simuliert und mit Hilfe eines Druckgas-Antriebes nach oben geschleudert. Duktile Druckbehältereinbauten wurden als Stahlmodelle, versprödete Ein-



Abb. 4: Impaktversuchsanlage IVAN zur Untersuchung der Belastung des RDB-Deckels durch nach oben geschleuderte Kernschmelze nach einer energetischen Wechselwirkung zwischen Schmelze und Kühlmittel.

bauten als Rotgussmodelle sehr detailliert nachgebildet. Es wurden Experimente ohne diese Modelle (obere Einbauten geschmolzen), nur mit Modellen des oberen Rostes und mit den kompletten Modellen durchgeführt.

Wie zu erwarten, hat das Vorhandensein der Einbauten erhebliche Bedeutung. Sie erhöhen die zulässige Aufprallenergie E_{slug} um den Faktor 4 bis 8, die zulässige mechanische Energiefreisetzung E_{plate} um den Faktor 7 bis 14 (Abb. 5).

Somit kann aufgrund unserer Untersuchungen deterministisch ausgeschlossen werden, dass eine Dampfexplosion im Reaktordruckbehälter zu einem frühen Containmentversagen führt. Die weiteren theoretischen und experimentellen Arbeiten dienen dem Ziel, zu realistischeren Abschätzungen von Drücken und Explosionsenergien zu kommen.

Ausblick

Im Forschungszentrum wurden in den vergangenen Jahren wichtige Beiträge zur Phänomenologie und Modellierung der Vorgänge im Reaktordruckbehälter erbracht. Diese sind u. a. auch in die Sicherheitsauslegung des neuen Europäischen Druckwas-



Abb. 5: Zulässige max. Aufprall-Energien E_{slug} und zugehörige Energiefreisetzungen E_{plate} . Bei diesen Energien hält der Reaktordruckbehälterdeckel stand. Hierbei wurden einige recht ungünstige Annahmen zugrunde gelegt.

serreaktors (EPR) eingegangen, der demnächst vom französischdeutschen Unternehmen Framatome in Finnland gebaut wird.

Trotz der politisch motivierten Beschränkung unserer derzeitigen Arbeiten auf laufende Reaktoren gibt es noch eine Reihe von wichtigen neuen Problemstellungen. Neben den schon beschriebenen Arbeiten zur bisher kaum untersuchten späten in-vessel Phase in der LIVE-Versuchsanlage resultieren neue Problemstellungen aus der Verwendung weiterentwickelter und bisher nur für den Betrieb optimierter Materialien in Reaktoren. So ist zum Beispiel der Nachweis für neue, abbrandoptimierte Hüllrohrlegierungen zu erbringen, dass diese sich bei schweren Störfällen vergleichbar oder besser als das klassische Zircaloy-4 verhalten. Weiterhin ergibt sich aus der Erweiterung der EU die Verpflichtung, auch russische WWER-Reaktoren in die europäische Sicherheitsforschung einzubeziehen.

Ein Großteil der hier vorgestellten Arbeiten sind in internationalen Programmen im Rahmen der EU, der OECD und vieler weiterer biund multilateraler Kooperationen eingebunden und anerkannt.

Literatur

- [1] P. Hofmann, J. Nucl. Materials 270 (1999), 194-211
- [2] L. Sepold, P. Hofmann, W. Leiling,
 A. Miassoedov, D. Piel, L. Schmidt,
 M. Steinbrück,
 Nucl. Eng. Des. 204 (2001), 205-20
- W. Hering, Ch. Homann, J.-L. Lamy,
 A. Miassoedov, G. Schanz, L. Sepold,
 M. Steinbrück,
 FZKA 6722, Juli 2002
- [4] D. Struwe, H. Jacobs, U. Imke, R. Krieg, W. Hering, M. Böttcher, M. Lummer, T. Malmberg, G. Messemer, Ph. Schmuck, B. Göller, G.Vorberg, *FZKA 6316, Juli 1999*
- [5] W. Cherdron, U. Imke, H. Jacobs, A. Kaiser, W. Schütz, NURETH-10: The 10th Internat. Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics, Seoul, Korea, October 5-11, 2003, Paper G00103
- [6] R. Krieg, B. Dolensky, B. Göller,
 G. Hailfinger, O. Jonatzke,
 T. Malmberg, G. Messemer,
 - E. Stratmanns, G. Vorberg, H. Benz,
 - W. Ratajczak,
 - Nucl. Eng. Des. 202 (2000), 179-196