



Forschungszentrum Karlsruhe
Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte
FZKA 6042

**Ein Modell zur Beschreibung
der Wasserstofferzeugung
durch Kernflutung bei
Kernschmelzunfällen**

A. Miassoedov

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheitsforschung

Dezember 1997

Forschungszentrum Karlsruhe
Technik und Umwelt
Wissenschaftliche Berichte
FZKA 6042

**Ein Modell zur Beschreibung der Wasserstoffherzeugung
durch Kernflutung bei Kernschmelzunfällen**

A.Miassoedov

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Projekt Nukleare Sicherheitsforschung

Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (TH)
genehmigte Dissertation

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe
1997

Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft
Deutscher Forschungszentren (HGF)

ISSN 0947-8620

Zusammenfassung

Bei allen Unfallabläufen in einem Kernkraftwerk wird es das oberste Ziel der Betriebsmannschaft sein, den überhitzten und freistehenden Kern wieder mit Wasser zu bedecken, um damit eine ausreichende Kühlung und die Beendigung des Unfalls zu erreichen. Diese Maßnahme ist als oberstes Schutzziel in den Unfallhandbüchern definiert. Der Flutvorgang führt zur erneuten Oxidation der Zirkaloy-Hüllrohre, erheblicher Wärmeentwicklung und drastischer Erhöhung der H₂-Produktionsrate. Zur Auslegung von effektiven H₂-Schutzsystemen bei bestehenden und zukünftigen Reaktoren ist deshalb das Verständnis und die Modellierung der physikalischen Prozesse unbedingt notwendig.

Das Ziel dieser Arbeit ist

- die Aufklärung der dominierenden physikalischen Phänomene, die für die schnelle Wasserstoffherzeugung beim Kernfluten verantwortlich sind, ausgehend von den umfangreichen CORA-Daten, die im Forschungszentrum Karlsruhe vorliegen,
- die Entwicklung und Überprüfung eines adäquaten theoretischen und numerischen Modells, das diese Phänomene hinreichend genau beschreibt.

Auf der Grundlage von detaillierten Analysen der CORA-Experimente wurde ein Modell zur Beschreibung der Wasserstofffreisetzung in der transienten Flutphase entwickelt. Es beinhaltet die Erfassung folgender Phänomene: Sauerstoffdiffusion im Zirkaloy-Hüllrohr; Wärmeleitung mit verteilten Wärmequellen im Brennstab und im oxidierten Hüllrohr; Wärmeübertragung durch Strahlung in der umgebenden Dampfatmosfera. Das Modell geht von intakter Stabgeometrie aus. Schmelzeverlagerung und konvektiver Wärmeübergang werden vernachlässigt. Das Modell wurde durch den Vergleich mit der umfangreichen CORA-Datenbank validiert.

Ein wichtiges neues Ergebnis der CORA-Simulation betrifft die chemische Zusammensetzung des Wasserstoff-Dampf-Gemisches, das während der Flutphase gebildet wird. Das Gefährdungspotential aus den hohen Wasserstoffproduktionsraten während eines Flutvorganges wird durch die begleitende Dampfentwicklung stark verringert.

Modeling of hydrogen generation during the core flooding in severe accidents

Abstract

In all severe accidents scenarios the main goal of operator actions will be to introduce water into the core region as soon as possible, in order to reestablish adequate core cooling and termination of the accident. Flooding the uncovered core is the accident management measure with top priority. The quenching could cause renewed oxidation of the zircaloy fuel rod cladding, giving reheating of the rods and a sharp increase in hydrogen production. The ability to understand and model the underlying physical processes is necessary for the design of any meaningful hydrogen control system.

The goal of the present work is

- to increase the understanding of the main physical phenomena responsible for the rapid hydrogen production under reflood conditions by careful analysis of the large CORA data base which exists at Forschungszentrum Karlsruhe,
- to develop and verify adequate theoretical and numerical models describing the important reflood physics.

On the basis of the detailed analysis of the CORA experiments a model describing the hydrogen release in the transient and reflood phases was developed. It includes description of the following phenomena: oxygen diffusion in the zircaloy cladding; heat conduction with the distributed heat sources in the rod and the oxidizing cladding; radiative heat transfer in the surrounding steam atmosphere. The model is based on intact fuel geometry, melt relocation is neglected. Convective heat transfer is only implicitly modelled in the energy balance, no mass convection is included. The model was validated on the large CORA-database existing at FZK.

A major result from CORA-simulations was, that the sudden high hydrogen release rates from a reflood event do not create immediately dangerous gas compositions because they are mitigated by an even stronger steam production.

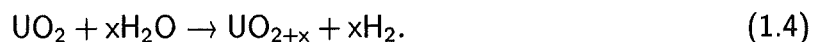
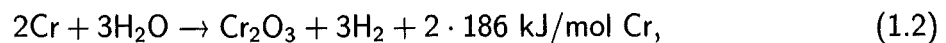
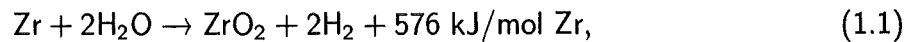
Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Mathematische Modellierung im REFLOX-Programm	5
2.1	Sauerstoffdiffusion	8
2.2	Wärmeleitung	23
2.3	Strahlungs-Wärmetransport in der dampfhaltigen Umgebung	29
3	Verifikation des REFLOX-Programmes durch Vergleich mit vorhandenen Rechenprogrammen	36
3.1	Beschreibung des SCDAP-Programmes	36
3.2	Beschreibung des MELCOR-Programmes	40
3.3	Vergleich von REFLOX- und SCDAP/RELAP-Ergebnissen	45
3.4	Vergleich von REFLOX- und MELCOR-Ergebnissen	52
4	Verifikation des REFLOX-Programmes bei der Analyse von CORA-Experimenten	59
4.1	Beschreibung der CORA-Experimente	59
4.2	Wasserstoffmischung und -Transport in der CORA-Anlage	70
4.3	Ergebnisse von REFLOX-Rechnungen für CORA-Experimente	80
4.3.1	Rechnungen mit vorgegebenen Temperaturen an der Staboberfläche	80
4.3.2	Rechnungen mit Wärmefluß durch Strahlung als Randbedingung an der Staboberfläche	91
5	Zusammenfassung und Ergebnisse	106
	Literaturverzeichnis	110

1 Einleitung

Das Wasserstoffproblem in der Leichtwasserreaktorsicherheit

Verschiedene Studien zur Sicherheit von Leichtwasserreaktoren (LWR) haben gezeigt [1, 2, 4], daß bei Kühlmittelverluststörfällen oder bei Anlagentransienten, die mit einem völligen Ausfall aller Sicherheitseinspeisesysteme verbunden sind, der Reaktorkern stark geschädigt werden kann. Falls die Temperaturen im Kern über 1300 K steigen, beginnen chemische Wechselwirkungen zwischen Kernkomponenten und Dampf, bei denen Wasserstoff nach folgenden Reaktionen entsteht:



Die Oxidation von Zirkon, dem Hauptbestandmittel des Hüllrohrmaterials Zirkaloy, ist mit erheblicher Wärmeentwicklung verbunden, die zu einer Selbstbeschleunigung der chemischen Reaktionen und zu einer weiteren Kernzerstörung führen kann. Die chemische Energiefreisetzung der Zr-Dampf-Reaktion kann das 5-10-fache der nuklearen Nachzerfallswärme erreichen. Die Oxidation von Eisen und Uranoxid verläuft dagegen nur mit geringer Wärmefreisetzung.

In großen Druckwasserreaktoren (DWR) der 1000 bis 1500 MW_e Leistungsklasse können bei schweren Störfällen mit Kernschäden 500 bis 1500 kg Wasserstoff produziert werden. Wenn man 100 % Zirkaloy-Oxidation als obere Grenze unterstellt, ergibt sich als gute Kenngröße für andere Reaktoren maximal 1 kg Wasserstoff pro MW elektrischer Leistung.

Der im überhitzten Kern entstehende Wasserstoff und Dampf wird an der Bruchstelle des Primärkreises (LOCA) oder über den Druckhalterabblasetank (bei Transienten) in die Sicherheitsbehälteratmosphäre abgegeben. Vermischung mit Luft und teilweise Kondensation des Dampfes an kalten Betonstrukturen kann zu reaktiven Wasserstoff-Luft-Dampf-Gemischen im Sicherheitsbehälter (SB) führen. Die Gaszusammensetzung hängt von Einzelheiten des Unfallablaufes ab, sie ist anfangs stark orts- und zeitabhängig.

Wenn einmal zündfähige Gemische entstanden sind, muß bei solchen Unfällen auch mit einem Zündereignis gerechnet werden, weil viele potentielle Zündquellen vorliegen (Relais, Motoren, Schalter, usw.) und die Betriebsmannschaft versuchen wird, den Unfall durch Einsatz aller verfügbaren Sicherheitssysteme abzufangen. Die Verbrennung von großen Mengen Wasserstoff würde dann erhebliche statische oder dynamische Lasten auf den SB erzeugen und seine Integrität gefährden.[†] Das Versagen des SB's in der frühen Unfallphase, während der noch eine hohe Konzentration an luftgetragenen Aerosolen vorliegt, würde zu ausgedehnten Landkontaminationen führen, vergleichbar mit dem Tschernobyl-Unfall.

Es besteht in Deutschland und Europa eine weitgehende Übereinstimmung zwischen dem Gesetzgeber (BMU), den Sicherheitsgremien (RSK,GRS), der Industrie und den Forschungszentren, daß großräumigen radioaktiven Freisetzungen aus Kernschmelzunfällen durch geeignete Maßnahmen begegnet werden muß. Für zukünftige Reaktoren in Deutschland verlangt das Ende 1994 veränderte Atomgesetz einen quasi-deterministischen Ausschluß großer Radioaktivitätsfreisetzungen in die Umgebung [3]. Der Nachweis kann über die Vermeidung von Kernschmelzunfallszenarien oder durch Ausschluß des Sicherheitsbehälterversagens geführt werden. Für bestehende Anlagen fordert die RSK eine nachweisliche Risikominderung.

In beiden Fällen, bei bestehenden und bei zukünftigen DWR-Anlagen, wird das Risiko für Containment-Versagen durch Wasserstoffverbrennungsprozesse dominiert. Die Analyse und Beherrschung solcher Vorgänge bei schweren Unfälle ist deshalb ein wesentlicher Beitrag zur weiteren Verringerung des Restrisikos aus dem Betrieb kerntechnischer Anlagen.

Wasserstofferzeugung beim Fluten eines überhitzten Reaktorkerns

Bei allen Unfallabläufen wird es das oberste Ziel der Betriebsmannschaft sein, den überhitzten und freistehenden Kern wieder mit Wasser zu bedecken, um damit eine ausreichende Kühlung und die Beendigung des Unfalls zu erreichen. Diese Maßnahme ist als oberstes Schutzziel in den Unfallhandbüchern definiert. Das Fluten eines Reaktorkerns kann auch automatisch erfolgen, z.B. bei Stromwiederkehr während eines Notstromfalles oder bei Absinken des Primärkreisdruckes unter den Einspeisedruck der Akkumulatoren (Übergang von einem Hochdruck- in einen Niederdruck-Kernschmelzunfall).

Da der Flutvorgang wichtige Auswirkungen auf den weiteren Unfallablauf und seine Konsequenzen haben kann, z.B. in Bezug auf Wasserstofferzeugung, Materialverlagerung und Spaltproduktfreisetzung, wurden verschiedene in-pile und out-of-pile Versuchsserien in mehreren Ländern durchgeführt (z.B. Bündelexperimente LOFT LP-FP-2 [6], PBF SFD-ST [7], PHE-

[†]Die Verbrennungsenergie von 1 kg Wasserstoff (120 MJ/kg), entspricht der von 30 kg TNT.

BUS B9R [9] und CORA-Experimente CORA-12, CORA-13, CORA-17 [8, 31]). Das wichtigste und unerwartete Ergebnis für die H₂-Entstehung war, daß mit Beginn der Wassereinspeisung eine drastische Erhöhung der H₂-Produktionsrate auftrat. Bevor eine sicher kühlbare Konfiguration der untersuchten Stabbündel erreicht werden konnte, wurden bedeutende H₂-Mengen, Energie und Spaltprodukte freigesetzt.

Die hohen Wasserstofferzeugungsraten sind deshalb von Bedeutung, weil sie besondere Anforderungen an Wasserstoffgegenmaßnahmen stellen. Zur Auslegung von effektiven H₂-Schutzsystemen bei bestehenden und zukünftigen Reaktoren ist deshalb das Verständnis und die Modellierung der physikalischen Prozesse unbedingt notwendig.

Stand der Modellierung der Wasserstofferzeugung durch Fluten eines Reaktorkerns

Versuche, die Wasserstofferzeugung beim Fluten eines Kerns mit den bestehenden Programmsystemen, wie z.B. MELCOR [49], SCDAP/RELAP5 [48] oder KESS [47] zu beschreiben, waren bisher nicht erfolgreich. Die Schlußfolgerung eines State-of-the-Art-Berichts [23] lautete, daß die verantwortlichen Prozesse noch nicht hinreichend geklärt seien und daß adäquate Modelle in den derzeitigen Programmen fehlen würden.

Gegenwärtig werden zwei Vorgänge als mögliche Ursachen für die beobachtete rasche H₂-Produktion in Erwägung gezogen:

- Rißbildung in der Zirkonoxidschicht von teiloxydierten Hüllrohren legt neue unoxidierte Zr-Metalloberflächen frei [27].
- Zersetzung von Zirkonhydrid bei plötzlicher Temperaturabsenkung des Hüllrohres, unter Freigabe von Wasserstoff [28, 29, 30].

Obwohl diese Prozesse während des Flutens sicher eine Rolle spielen, ist es bisher nicht gelungen, damit eine quantitative Erklärung der experimentellen Beobachtungen zu liefern, wie z.B. der raschen H₂-Produktion und der Wärmeentwicklung [27]. Die beiden genannten Hypothesen zeigen weiterhin folgende prinzipielle Schwierigkeiten:

- Rißbildung in der Zr-Oxidschicht erfordert eine starke Temperaturabsenkung. Das sollte die Sauerstoffdiffusion, den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt in der H₂-Entstehung, in der gesamten Oxidschicht verzögern. Risse öffnen demgegenüber nur kleine neue Oberflächen mit frischem Zr-Metall.

- Die Zersetzung von Zirkonhydrid ist ein endothermer Prozess, der für sich allein nicht die beobachtete Temperatureskalation während des Flutens erklären kann.

In dieser Situation erscheint es notwendig, eine detaillierte Analyse der CORA-Experimente zu unternehmen, die im FZK zwischen 1987 und 1993 durchgeführt wurden. Die CORA-Versuche haben die beste weltweit verfügbare Datenbasis für die wichtigen Experimentvariablen geliefert, die Aufschluß über die ablaufenden Vorgänge geben können. An identischen Bündeln wurden Versuche sowohl mit als auch ohne Fluten durchgeführt, so daß ideale Vergleichsbedingungen vorliegen.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die detaillierte Analyse der vorliegenden Versuchsergebnisse und die Identifikation der Mechanismen, die erstens die rasche H₂-Produktion erklären können, und zweitens auch mit allen anderen wichtigen Beobachtungen konsistent sind, z.B. den Temperatureskalationen. Für die physikalischen Prozesse beim Fluten soll ein numerisches Modell erstellt und dann auf einen Reaktorfall angewendet werden.

2 Mathematische Modellierung im REFLOX-Programm

Auf der Grundlage von detaillierten Analysen der CORA-Experimente wurde ein Modell zur Beschreibung der Wasserstofffreisetzung in der transienten Flutphase entwickelt. Es beinhaltet die Erfassung folgender Phänomene:

- Sauerstoffdiffusion im Zirkaloy-Hüllrohr,
- Wärmeleitung mit verteilten Wärmequellen im Brennstab und im oxidierten Hüllrohr,
- Wärmeübertragung durch Strahlung in der umgebenden Dampfatosphäre.

Die Geometrie des Kernbündels ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Es ist in vertikale Abschnitte unterteilt, deren Anzahl vom Anwender vorgegeben werden kann. Die Höhe dieser Abschnitte kann unterschiedlich sein, entsprechend dem vorliegenden Temperaturgradienten.

Folgende Annahmen werden getroffen:

- Jede gegebene Bündelsektion hat ihre eigene Temperatur-Zeit-Abhängigkeit. Es existiert kein radialer Temperaturgradient in der Bündelsektion. In jedem Abschnitt des Kernbündels wird ein einziger repräsentativer Brennstab modelliert.
- Die Kernummantelung und die Abstandshalter, die aus Zirkaloy bestehen, werden in dem Modell in der Form von äquivalenten Oberflächen berücksichtigt.
- Die Bündelgeometrie bleibt während des gesamten Prozesses erhalten. Eine Verlagerung der Schmelze wird nicht berücksichtigt.

Da die aus Zirkaloy bestehende Ummantelung in den CORA Experimenten denselben Oxidationsmechanismen wie die Hüllrohre der Stäbe unterliegt und damit auch für die Wasserstoff-erzeugung verantwortlich ist, wird in jeder Bündelebene ein äquivalenter repräsentativer Stab betrachtet, der für die Berechnungen der Ummantelungsoxidation benutzt wird.

Die Geometrie dieses Stabes ist für die ein- un doppelseitige-Oxidation der Ummantelung unterschiedlich. Die Ummantelungs-Geometrie und die entsprechende äquivalente Stabgeometrie

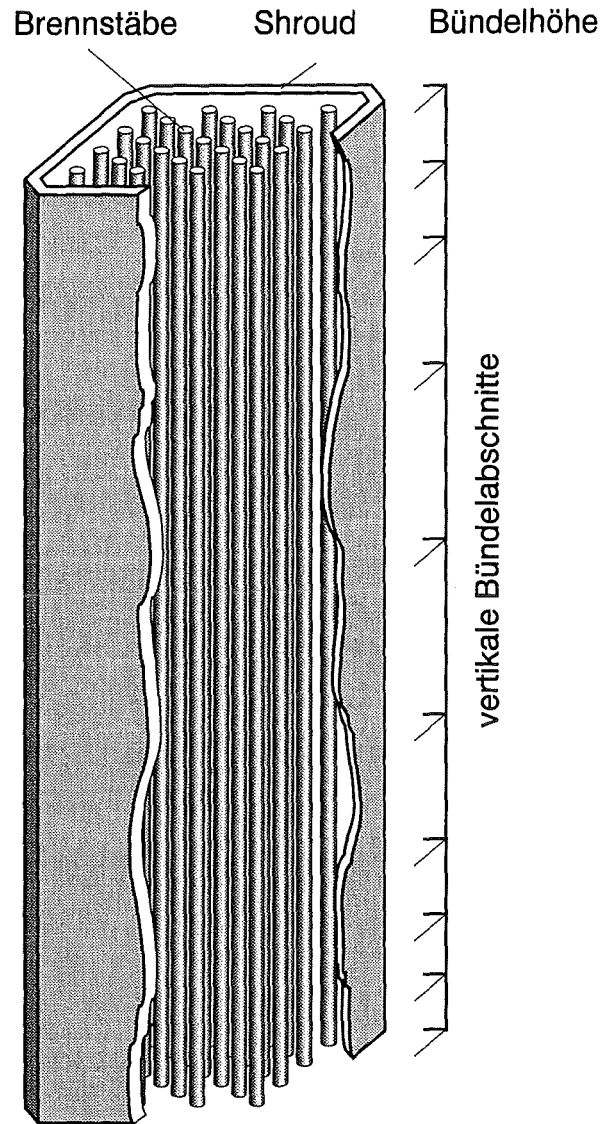


Abbildung 2.1: Darstellung eines Kernbündels mit CORA Geometrie.

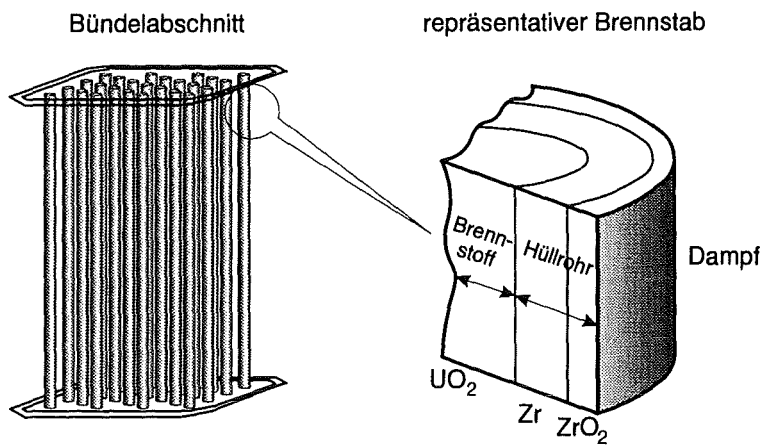


Abbildung 2.2: Schichtung eines Brennstabes.

des CORA-13 Experiments sind in den Tabellen 2.1 und 2.2 aufgelistet. Der relative Fehler der Gesamtfläche und des Gesamtvolumens der Ummantelung ist in diesem Fall kleiner als 12 %.

Äußere Dimensionen, mm	Wanddicke, mm	Höhe, mm
89.4 x 90.4	1.2	36 bis 1231

Tabelle 2.1: Ummantelungs-Geometrie im CORA-13 Experiment

	Einseitige Oxidation	Doppelseitige Oxidation
Stabdurchmesser, mm	11.141	11.141
Hüllrohrdicke, mm	1.2	0.6
Anzahl der Stäbe	10	20
Gesamtoberfläche, mm ²	$3.5 \cdot 10^5$	$6.99 \cdot 10^5$
relativer Fehler Δ_S , %	0	2
Gesamtvolumen, mm ³	$3.747 \cdot 10^5$	$3.971 \cdot 10^5$
relativer Fehler Δ_V , %	12	7

Tabelle 2.2: Äquivalenter Stab für die CORA-13 Ummantelung

Für das repräsentative Brennstabsegment in jedem dieser Bündelabschnitte existiert ein eindimensionales Diffusionsmodell mit sich bewegenden Grenzflächen zwischen den verschiedenen Reaktionsschichten, die sich aus den chemischen Wechselwirkungen der Zirkaloyhülle mit dem UO₂ und mit dem Dampf ergeben (s. Abbildung 2.2).

Das eindimensionale Wärmeleitungsproblem im Stab mit verteilten Wärmequellen wird für jeden Stab in den gegebenen Abschnitten gelöst. Dieses Modell berechnet die Temperaturverteilung im Stab und liefert die Eingabe für das Diffusionsmodell. Die Randbedingungen für das Wärmeleitungsmodell können erster Art (gegebene Temperatur an der Staboberfläche) oder dritter Art (Strahlungsfluß von der äußeren Oberfläche) sein.

Das Programm sagt Entstehung, Wachstum und Verschwinden von Wechselwirkungsschichten und die Temperaturverteilung innerhalb des Stabes voraus und berechnet die entsprechende Wasserstofffreisetzung als Funktion der Zeit.

Eine detaillierte Beschreibungen folgt in den nächsten Kapiteln.

2.1 Sauerstoffdiffusion

Die Oxidation des Zirkaloy-Hüllrohres, die durch Wechselwirkung mit Dampf ausgelöst wird, wurde bereits intensiv untersucht und durch Modelle beschrieben. Der erste Versuch, die komplizierte chemische Wechselwirkung zwischen UO_2 und Zirkaloy zu beschreiben, wurde durch Cronenberg und El-Grenk [11] unternommen. Sie entwickelten ein Sauerstoff-Diffusionsmodell, das das Zweistoff-Problem mit einer sich bewegenden Grenze in Zirkaloy aufgrund der alpha-beta-Phasenumwandlung löste. Olander [12] entwickelte ein Modell, das die Entstehung und das Wachstum aller drei Schichten, die durch die Wechselwirkung zwischen UO_2 und Zirkaloy auftreten, berücksichtigt. In diesem Modell wird die Kinetik des Prozesses durch die Diffusion von Sauerstoff, Uran und Zirkon bestimmt. Diese Modelle [11, 12] versuchen jedoch nur, die kinetischen anfänglichen Vorgänge des Systems zu simulieren, wenn alle Bewegungen der Grenzflächen parabolischen Gesetzmäßigkeiten folgen. Später wurden verschiedene Korrelationen zwischen der Oxidationsumwandlung (Sauerstoff-Aufnahme, Wasserstoffzeugung, äquivalente Metallumwandlung) und der Temperatur als Parameter vorgeschlagen [13, 14, 15, 16, 17, 18].

Es bestehen zwei verschiedene Möglichkeiten die Hüllenoxidation und die Brennstoffzersetzung zu beschreiben:

1. Simulation des Wachstums von verschiedenen Schichten mit vorgegebenen parabolischen Gesetzen,
2. Anwendung der lokalen Transportgleichungen für Sauerstoff, Uran und Zirkaloy in den verschiedenen Schichten und der Massenerhaltungsgleichungen an den Schnittstellen.

Das erste Verfahren ist einfacher und benötigt weniger Rechenzeit. Es ist bereits in mehreren Rechenprogrammen wie z.B. in MELCOR [49] und SCDAP/RELAP5 [48] implementiert. Die Modellierung erweist sich für einfache isotherme Zustände, für unbeschränkte Dampfmen gen und für praktisch unendliche Zr-Substrate als ausreichend. Die Ergebnisse können unpräzise sein, wenn die Programme zur Beschreibung von vollständiger Oxidation bei endlicher Dicke der Brennstoffhülle und unter unzureichendem Dampfangebot direkt angewendet werden. Ein Vergleich mit Experimenten zeigt, daß in den transienten Temperaturregimen dieser Weg versagt.

Beim zweiten Verfahren (implementiert z.B. im PECLOX-Programm [60]) erweist sich die

physikalische Modellierung als besser. Damit wird eine gute Übereinstimmung mit den Experimenten erreicht.

Wie Experimente zeigten, werden die Brennstoff/Hüllen/Dampf-Wechselwirkungen über die exponentielle Temperaturabhängigkeit hinaus beschleunigt, wenn die Temperaturen höher als 1000 K sind [61, 62]. Mikroskopische Untersuchungen [60] machten deutlich, daß ein System von zusätzlichen Schichten mit definierten Schnittstellen zwischen diesen in der Hülle bei Temperaturen zwischen 1200 und 2200 K existieren können (s. Abbildung 2.3).

Folgende Bedingungen sind für die Schichtenstehung erforderlich:

- Ausreichend Sauerstoff, der von der Außenfläche geliefert wird, führt zur Hüllenoxidation und zur Entstehung von zwei Phasen (α -Zr(O) und ZrO_2);
- Der Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle führt zur Aufschmelzung von UO_2 und zur Bildung von drei neuen Schichten mit zwei Schnittstellen (α -Zr(O)+(U,Zr)-Legierung, (U,Zr)-Legierung und α -Zr(O)) [63, 64].

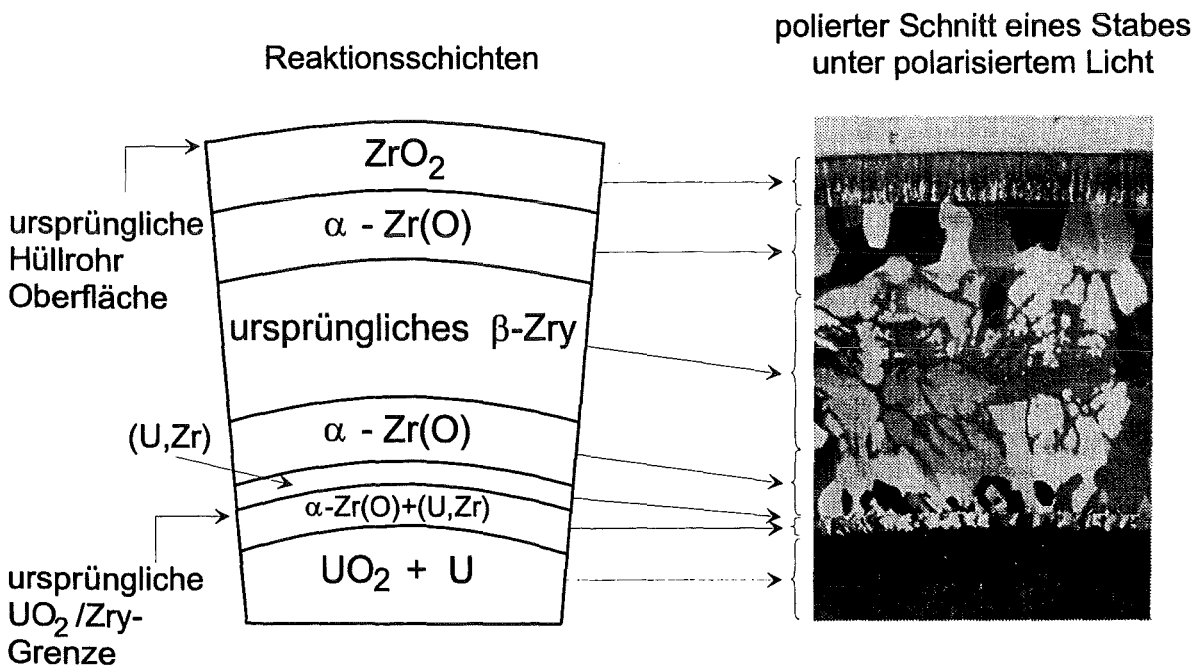


Abbildung 2.3: Anordnung der externen Zirkaloy/Sauerstoff- und internen UO_2 /Zirkaloy-Reaktionsschichten.

Folgende Sequenz von Schichten bildet sich radial von der Mitte des Brennstoffes zur Hüllenoberfläche (Abbildung 2.3):



Die Prozesse der UO_2/Zr /Dampf-Wechselwirkungen sind instationär. Beginnend sowohl an der Innen- als auch an der Außenoberfläche wachsen die Schichten unabhängig voneinander so, wie wenn die Reaktion in das unendliche Medium fortschreitet. Dadurch folgt die Bewegung der Grenzflächen während der Anfangsperiode bei den isothermen Experimenten nahezu den parabolischen Gesetzen. Mit fortschreitender Oxidation verkleinert sich die $\beta\text{-Zry}$ Schicht, bis sie vollständig verschwindet. Danach wandelt sich die äußere und innere $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase in eine einzelne Phase um. Im Laufe des fortschreitenden Oxidationsprozesses verringert sich die Dicke der $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase, der (U,Zr) -Legierung und der zweiphasigen $\alpha\text{-Zr(O)} + (\text{U,Zr})$ -Legierungsmischung. Am Ende des Prozesses sind die drei Phasen völlig verschwunden und ZrO_2 und UO_2 treten in Kontakt. Bevor die $\beta\text{-Zry}$ -Schicht und die sauerstoffstabilisierte $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase verschwinden, kann der Schmelzpunkt dieser beiden Phasen erreicht werden. Die Schmelzpunkte von $\beta\text{-Zry}$ und $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phasen sind vom Sauerstoffgehalt abhängig. Dadurch ist die Sauerstoffkonzentration in diesen Phasen in Hinsicht auf die Versprödung der Zirkaloyoberfläche, die durch die Sauerstoffaufnahme verursacht wird, sehr wichtig.

Für die Reaktorsicherheit sind folgende Punkte wichtig: die Entstehungs- und Auflösungsrate von sauerstoffstabilisierten $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phasen; die Entstehungsrate von ZrO_2 -Schichten an der äußeren Hülleneroberfläche; die Auflösung der $\beta\text{-Zry}$ -Phase; die Sauerstoffverteilung in den verschiedenen Schichten; die Wärmeerzeugung durch die chemischen Reaktionen; die Dampfaufnahme und die Wasserstoffherzeugung im Kühlkanal und die Menge des durch Zirkaloy chemisch gelösten UO_2 .

Die theoretische Behandlung dieser Prozesse basiert auf der experimentellen Beobachtung, daß zwei $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phasen durch Sauerstoffaufnahme von innen und außen entstehen und ungefähr mit der gleichen Rate wachsen, wenn angenommen wird, daß die Diffusion von Sauerstoff in das Zirkaloy die Oxidationsrate bestimmt. Die Bildung der Reaktionszonen und alle physikalischen Eigenschaften werden durch Lösen der Diffusionsgesetze von Fick und Stefan bestimmt.

Da die Diffusionskoeffizienten und die Phasengrenzkonzentrationen von der Temperatur abhängig sind, können sie nicht zeitlich und lokal als konstant betrachtet werden. Auch die Endlichkeit der Geometrie des Stabes wird nach einer gewissen Reaktionszeit berücksichtigt. Dieses betrifft sowohl die Ausdehnung der UO_2 -Pellets ins Zentrum als auch die Dicke der $\beta\text{-Zry}$ -Schicht, die vollständig oxidiert werden kann.

Sobald die Diffusion in Richtung des Zentrums des Stabes fortschreitet, ist die Näherung eines

kartesischen Koordinatensystems nicht mehr gültig, so daß Zylinderkoordinaten bei der Lösung des numerischen Problems verwendet werden müssen.

Zwei partielle Differentialgleichungen müssen zur Berechnung der Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen und der Bewegung der Schnittstellen zwischen den Zonen gelöst werden. Im ersten Fall handelt es sich um das zweite Ficksche Gesetz, das in Zylinderkoordinaten folgende Form hat:

$$\frac{\partial C}{\partial \tau} = \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \cdot \left(r \cdot D \cdot \frac{\partial C}{\partial r} \right) . \quad (2.1)$$

Wobei C die Sauerstoffkonzentration, r die radiale Koordinate, τ die Zeit und D der Diffusionskoeffizient ist.

Für jede Grenze zwischen den Phasen i und $i - 1$ verursacht die Differenz zwischen hineingehenden F_i^+ und hinausgehenden F_{i-1}^- Flüssen die Bewegungen der Grenzflächen (Stefan-Gleichung):

$$\frac{\partial S}{\partial \tau} = \frac{F_{i-1}^- - F_i^+}{2\pi S (C_{i-1}^- - C_i^+)} . \quad (2.2)$$

In dieser Gleichung ist S die temporäre radiale Position der Grenzfläche, C_{i-1}^- und C_i^+ sind die Phasengrenzkonzentrationen und F_{i-1}^- und F_i^+ sind die Sauerstoffflüsse rechts und links der Grenzfläche.

Die Flüsse werden in Zylinderkoordinaten durch das erste Ficksche Gesetz berechnet:

$$F = -2\pi r \cdot D \cdot \frac{\partial C}{\partial r} . \quad (2.3)$$

Da sich die Dichte der Phasen stark unterscheidet, ändert sich die Querschnittsfläche des Stabes in einigen Fällen in Folge der Phasenumwandlung beträchtlich.

Wenn diese Ausdehnungs-/Schrumpfungseffekte berücksichtigt werden, muß die Stefan-Gleichung (Gleichung 2.2) modifiziert werden. Diese Effekte entstehen durch die Massenerhaltung der Sauerstoff- und Metallanteile an der Grenzfläche der zwei Phasen. Aus der Betrachtung der Gleichung 2.2 wird klar, daß für eine endliche Bewegungsgeschwindigkeit der

Grenzflächen sich sowohl die Sauerstoffkonzentration als auch die Flüsse stark an der Grenze ändern. Die Konzentrationen links und rechts der Grenze, C^- und C^+ , werden aus dem Phasendiagramm für den Gleichgewichtszustand bestimmt. Laut erstem Fickschen Gesetz (Gleichung 2.3) werden die Sauerstoffflüsse F^- und F^+ durch die Konzentrationsgradienten und die Diffusionskoeffizienten links und rechts der Phasengrenze hervorgerufen. Die Konzentrationen und die Gradienten sind für Berechnung der Flüsse notwendig. Da der Grenzübergang $\partial\tau \rightarrow 0$ in der Nachbarschaft der Grenzfläche durchgeführt wird, werden die konstanten Konzentrationen C^- und C^+ für die Berechnung der Grenzflächen-Wanderung ∂S im Zeitschritt $\partial\tau$ verwendet.

Im Modell wird angenommen, daß nur die gasförmigen Komponenten diffundieren können, d.h. es werden nur die Sauerstoffflüsse und keine Metallflüsse berücksichtigt, was experimentell abgesichert ist (verschiedene Ionenradien).

An den Phasengrenzen, an denen die chemischen Reaktionen stattfinden, tritt eine Volumen- oder Konzentrationsänderung auf. Dies kommt im allgemeinen durch die Umformung von einem dichteren zu einem weniger dichten Material (oder umgekehrt) vor. Im folgenden wird die Sauerstoffkonzentration mit C und die molare Dichte von Zr mit ρ bezeichnet.

Nach der Wanderung der Phasengrenze auf Grund der chemischen Reaktion wird ein Volumenelement ∂V_D zur Zeit τ zu einem Volumenelement ∂V_G zur Zeit $\tau + \partial\tau$ neu berechnet. Das Volumenelement ∂V_D erfährt innerhalb des Zeitschrittes durch Ausdehnung eine Volumenänderung ∂V_S , sodaß das Volumen ∂V_G entsteht. In diesem Prozess wird die Sauerstoffmasse vor der Reaktion $M_{ox} = C^+ \cdot \partial V_D$ durch die Sauerstoffmasse nach der Reaktion $M_{ox}^* = C^- \cdot \partial V_G$ ersetzt. Die Metallmasse $M_{Zr} = \rho^+ \cdot \partial V_D$ vor der Reaktion und die Metallmasse $M_{Zr}^* = \rho^- \cdot \partial V_G$ nach der Reaktion werden in der gleichen Weise behandelt.

Die Sauerstoffmasse in einem Volumenelement ändert sich durch den hineingehenden und hinausgehenden Sauerstoff an der Phasengrenze. Die Metallmasse bleibt jedoch konstant. Da die Metallflüsse nicht in den Berechnungen berücksichtigt werden, lauten die Massenerhaltungsgleichungen für den Sauerstoff- und Metallanteil wie folgt:

$$M_{ox}^* - M_{ox} = (F^- - F^+) \cdot \partial\tau, \quad (2.4)$$

$$M_{Zr}^* - M_{Zr} = 0, \quad (2.5)$$

was zu folgenden Gleichungen für die Volumenelemente ∂V_G und ∂V_D führt:

$$\partial V_G = \frac{(F^- - F^+) \cdot \partial \tau}{C^- - \frac{\rho^-}{\rho^+} C^+}, \quad (2.6)$$

$$\partial V_D = \frac{\rho^-}{\rho^+} \cdot \partial V_G. \quad (2.7)$$

Die Volumenänderung durch Ausdehnung ∂V_S ergibt sich zu:

$$\partial V_S = \partial V_G - \partial V_D. \quad (2.8)$$

Eine negative Volumenausdehnung bedeutet, daß das Kontraktion auftritt.

Das Volumenelement ∂V_G , das in Folge der chemischen Reaktion im Zeitschritt $\partial \tau$ berechnet wird, ist mit der Bewegung der Grenzfläche ∂S wie folgt verknüpft:

$$\partial V_G = 2\pi S \cdot \partial S. \quad (2.9)$$

Die Geschwindigkeit der Bewegung der Grenzfläche folgt aus Gleichung 2.6:

$$\frac{\partial S}{\partial \tau} = \frac{F^- - F^+}{2\pi S \left(C^- - \frac{\rho^-}{\rho^+} C^+ \right)}. \quad (2.10)$$

Jede sich bewegende Phasengrenze trägt zur Ausdehnung oder Schrumpfung des gesamten Stabvolumens bei. Dies wird durch Änderung der Dichte der Metallphasen verursacht. Laut Gleichungen 2.7 – 2.9 wird die Ausdehnungsrate für jede Phasengrenze mit folgender Gleichung beschrieben:

$$\frac{\partial V_S}{\partial \tau} = 2\pi S \left(1 - \frac{\rho^-}{\rho^+} \right) \cdot \frac{\partial S}{\partial \tau}. \quad (2.11)$$

Eine Illustration des physikalischen Prozesses der Bewegung einer Phasengrenze und der Nomenklatur sind in Abbildung 2.4 dargestellt.

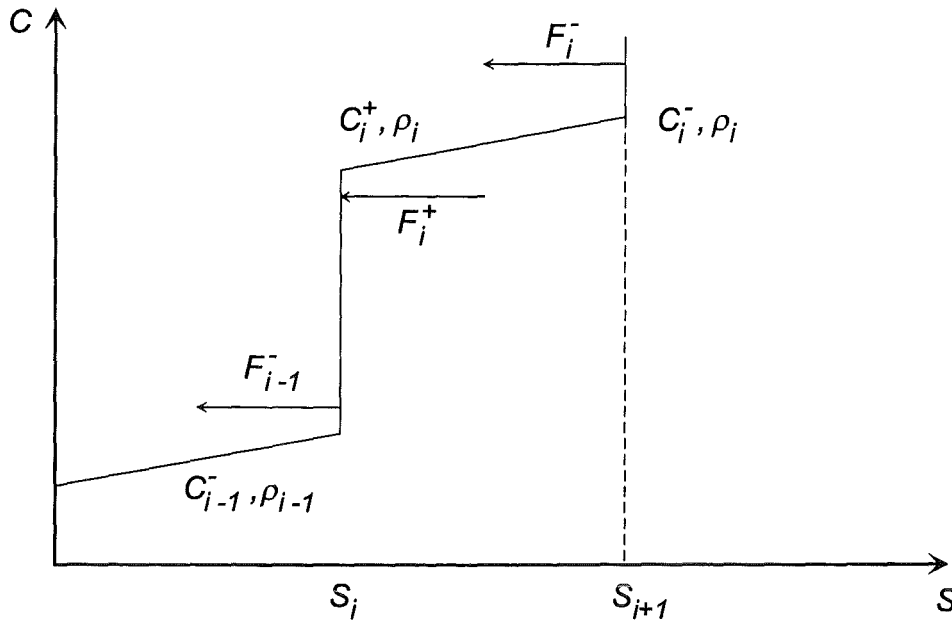


Abbildung 2.4: Bewegung der Phasengrenze zwischen den Schichten i und $i + 1$ (Die Sauerstoffquelle befindet sich rechts).

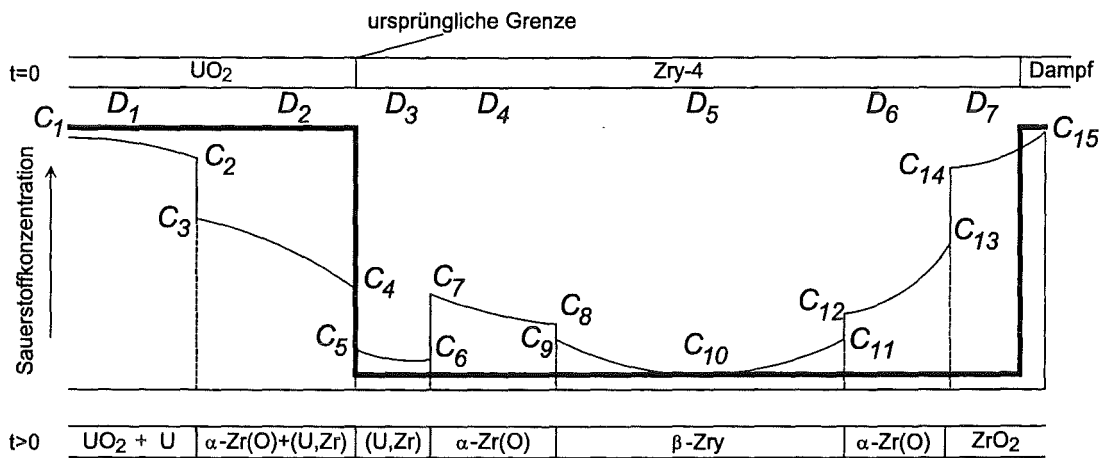


Abbildung 2.5: UO_2 /Zirkaloy, Dampf/Zirkaloy Diffusionssystem. Die Sauerstoffkonzentration zum Zeitpunkt $t=0$ ist fett dargestellt.

Für eine Modellierung des beschriebenen Prozesses benötigt man folgende Materialeigenschaften: den Sauerstoffkoeffizienten, die Phasengrenzkonzentrationen und die Metalldichte, die alle temperaturabhängig sind. Die Struktur und Zusammensetzung des UO_2 /Zirkaloy-Diffusionssystems ist in Abbildung 2.5 dargestellt. Dieses Bild zeigt das Sauerstoffkonzentrationsprofil in den sieben Phasen des UO_2 /Zirkaloy-Diffusionssystems.

Die Sauerstoffphasengrenzkonzentrationen C_1 bis C_{10} sind aus den Referenzen [65, 66, 67, 68] entnommen und in Tabelle 2.3 zusammengefaßt. Die Sauerstoffdiffusionskoeffizienten für die Phasen D_1, D_2, D_3, D_5, D_7 sind aus den Referenzen [65, 66] und D_4, D_6 aus Referenz [75] entnommen. Die Temperatur-Abhängigkeit der Diffusionskoeffizienten ist in Tabelle 2.4 aufgelistet.

$$\begin{array}{ll}
 C_1 = 1.275 & C_{10} = 8.5 \cdot 10^{-3} \\
 C_2 = 1.255 & C_{11} = C_9 \\
 C_3 = 1.36 \cdot 10^{-4} \cdot T(^{\circ}\text{C}) + 0.391 & C_{12} = C_6 \\
 C_4 = 5.92 \cdot 10^{-5} \cdot T(^{\circ}\text{C}) + 0.454 & C_{13} = 0.4649 \\
 C_5 = 0.025 & C_{14} = 1.2846 \\
 C_6 = 0.015 & C_{15} = 1.511 \\
 C_7 = -1.03 \cdot 10^{-4} \cdot T(^{\circ}\text{C}) + 0.603 & \\
 C_8 = 0.497 \cdot \ln(T(^{\circ}\text{C})/1135) & \\
 C_9 = 0.163 \cdot \ln(T(^{\circ}\text{C})/1135) &
 \end{array}$$

Tabelle 2.3: Sauerstoffphasengrenzkonzentrationen C_1 bis C_{10} , g/cm^3 .

$T, ^{\circ}\text{C}$	D_1	D_2	D_3	D_4, D_6	D_5	D_7
1000	.5576E-9	.3927E-7	.2769E-7	.3169E-5	.3774E-6	.9085E-6
1100	.1584E-6	.1050E-6	.1014E-6	.4500E-5	.8503E-6	.2155E-5
1200	.6917E-6	.2964E-6	.2839E-6	.6095E-5	.1716E-5	.4548E-5
1300	.1595E-5	.6727E-6	.6586E-6	.7941E-5	.3166E-5	.8227E-5
1400	.2547E-5	.1385E-5	.1317E-5	.1003E-4	.5430E-5	.1549E-4
1500	.2963E-5	.2625E-5	.2326E-5	.1233E-4	.8763E-5	.2577E-4
1600	.2335E-5	.4643E-5	.3674E-5	.1483E-4	.1344E-4	.4061E-4
1700	.7883E-6	.7741E-5	.5214E-5	.1751E-4	.1973E-4	.6111E-4
2200	.7883E-6	.5000E-4	.1700E-4	.3282E-4	.6000E-4	.2872E-3

Tabelle 2.4: Sauerstoffdiffusionskoeffizienten für verschiedene Schichten (cm^2/s), vgl. Abbildung 2.5.

Die Sauerstoffkonzentrationen werden in Übereinstimmung mit dem Phasendiagramm als Randbedingungen betrachtet (z.B. gleich Null in einem Inertgas). Die Randbedingungen im Zentrum und an der Oberfläche des Zylinders sind voneinander unabhängig, sie können jedoch zeitabhängig sein. Im Zentrum des zylindrischen Stabes muß als Randbedingung der Fluß zu Null gesetzt werden.

Die Sauerstoffkonzentration an der Oberfläche wird in Übereinstimmung mit dem Phasendiagramm (für ZrO_2 stöchiometrische Zusammensetzung) eingesetzt, wenn ausreichend Sauerstoff verfügbar ist. Bei begrenztem Sauerstoffangebot verbraucht der Oxidationsprozeß auch den verfügbaren Dampf. Die Randbedingungen sind in diesem Fall durch den maximalen Dampffluß an die Oberfläche gegeben.

Für die numerische Lösung der Differentialgleichungen wird der zylindrische Stab, der aus verschiedenen Materialschichten besteht, in Maschen unterteilt (vgl. Abbildung 2.6). Jede Schicht kann bis zu 50 Maschen enthalten. Um die Bewegung der Phasengrenzen zu berechnen, ist es notwendig, die Maschen in der Nähe der Phasengrenze so klein wie möglich zu wählen. Als Größe der Maschen ist aus rechentechnischen Gründen nur ein geradzahliges Vielfaches der kleinsten Maschenweite erlaubt.

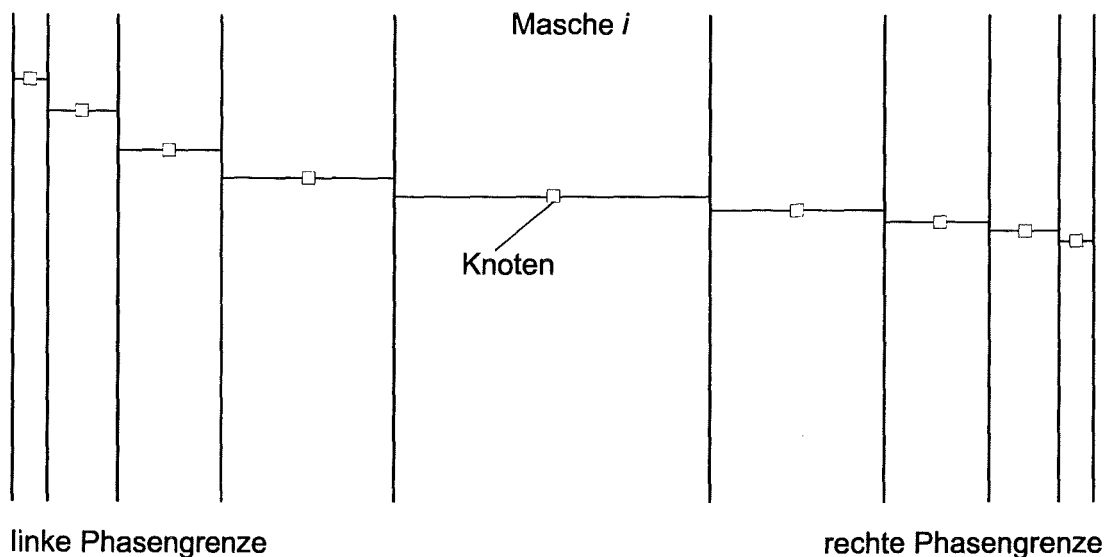


Abbildung 2.6: Geometrische Anordnung der Maschen in der Reaktionsschicht.

Für die Lösung der Gleichungen wird eine explizite Integrationsmethode verwendet, die den Fluß, der durch das Konzentrationsprofil des vorhergehenden Zeitschrittes verursacht wird, benutzt, um das neue Konzentrationsprofil zu bestimmen. Für Masche i gilt somit:

$$(C_i^* - C_i) \cdot \delta V_i = (F_i^- - F_i^+) \delta \tau, \quad (2.12)$$

wobei $\delta \tau$ der Zeitschritt, F_i^- und F_i^+ die Flüsse an der linken und rechten Seite der Phasengrenze, δV_i das Volumen der Masche i , C_i die bekannte Konzentration zur Zeit τ und C_i^* die neue Konzentration zur Zeit $\tau + \delta \tau$ ist.

Die explizite Integration erfordert in Zylinderkoordinaten folgendes Stabilitätskriterium für den Zeitschritt:

$$\delta \tau \leq \frac{(\delta r)^2}{2D}. \quad (2.13)$$

wobei D der Diffusionskoeffizient und δr die Maschenweite ist. Dadurch limitiert die Größe der kleinsten Masche in allen modellierten Schichten die maximale Größe des Zeitschritts.

Bei der Berechnung von Flüssen über die Maschengrenzen in den Schichten, die mehr als eine Masche besitzen, wird die Konzentration als konstant über die Masche angenommen. Die Konzentration an der rechten Grenze der Masche i ist gleich der Konzentration an der linken Grenze der Masche $i + 1$, d.h. der hinausgehende Fluß an der rechten Seite von der Masche i ist gleich dem hineingehenden Fluß an der linken Seite der Masche $i + 1$.

Die Flüsse für die Maschen i und $i + 1$ werden mit folgenden Gleichungen beschrieben:

$$F_i^+ = -4\pi r_i^+ D_i \cdot \frac{C_i^+ - C_i^-}{\delta r_i}, \quad (2.14)$$

$$F_{i+1}^- = F_i^+, \quad (2.15)$$

$$C_i^+ = \frac{r_{i+1}^- D_{i+1} C_{i+1} \delta r_i + r_i^+ D_i C_i \delta r_{i+1}}{r_{i+1}^- D_{i+1} \delta r_i + r_i^+ D_i \delta r_{i+1}}, \quad (2.16)$$

$$\delta r_i = r_i^+ - r_i^-, \quad (2.17)$$

$$\delta r_{i+1} = r_{i+1}^+ - r_{i-1}^-, \quad (2.18)$$

wobei für Masche i gilt:

- F_i^- und F_i^+ – Flüsse an der linken und rechten Maschengrenze,
- C_i^- und C_i^+ – Konzentrationen an der linken und rechten Maschengrenze,
- r_i^- und r_i^+ – Positionen der linken und rechten Maschengrenze,
- δr_i – Maschenweite,
- D_i – Diffusionskoeffizient in der Masche,
- C_i – Sauerstoffkonzentration in der Masche.

Die Flüsse an den Phasengrenzen werden aus den entsprechenden Konzentrationen berechnet:

$$F_b^- = -4\pi r_1^- D_1 \cdot \frac{C_1 - C_b^-}{\delta r_1}, \quad (2.19)$$

$$F_b^+ = -4\pi r_n^+ D_n \cdot \frac{C_b^+ - C_n}{\delta r_n}, \quad (2.20)$$

$$F_1^- = F_b^-, \quad (2.21)$$

$$F_1^+ = F_b^+, \quad (2.22)$$

mit

- F_b^- und F_b^+ – Flüsse an den äußeren Grenzen einer Schicht,
- C_b^- und C_b^+ – Phasengrenzkonzentration an den äußeren Grenzen einer Schicht,
- F_1^- und F_n^+ – Flüsse an der Grenze der ersten und letzten Masche der Schicht,
- C_1^- und C_n^+ – Konzentration an der Grenze der ersten und letzten Masche der Schicht,
- r_1^- und r_n^+ – Position der ersten und letzten Maschengrenzen innerhalb der Schicht,
- δr_1 und δr_n – Weite der ersten und letzten Masche der Schicht,
- D_1 und D_n – Diffusionskoeffizient für die erste und letzte Masche der Schicht,
- C_1 und C_n – Sauerstoffkonzentration in der ersten und letzten Masche der Schicht.

Die Bewegung der Phasengrenzen von Zeitschritt zu Zeitschritt infolge chemischer Reaktionen ändert die Maschenweite. Nach der Berechnung der neuen Position der Phasengrenzfläche nach

einem Zeitschritt wird die neue Konzentration für alle Maschen mit Gleichung 2.12. berechnet. Dann wird ein neues Maschennetz für jede Strukturschicht erzeugt. Das neue Maschennetz wird nach jedem Zeitschritt so gebildet, daß die Konzentrationsprofile korrekt bleiben und die Massenerhaltung gewährleistet ist.

Um die Fähigkeit des Verfahrens zu demonstrieren, den Oxidationsprozess des Zirkaloy-Hüllrohres durch Dampf zu modellieren, wurden Berechnungen für isotherme Bedingungen durchgeführt. Dabei bildet sich folgende Sequenz von Schichten im Stab:



Abbildungen 2.7 – 2.12 zeigen die Berechnungsergebnisse für Konzentrationsprofile von Sauerstoff bis zur vollständigen Oxidation bei einer konstanten Temperatur von 1800 °C. Bild 2.7 zeigt den konstanten Ausgangswert der Sauerstoffkonzentration in UO_2 und β -Zirkaloy. Bild 2.8 stellt die Konzentrationsverteilung dar, in der die meisten Phasen vorkommen. In Bild 2.9 ist ersichtlich, daß die β -Zirkaloy-Phase fast gesättigt ist. Bild 2.10 zeigt das Konzentrationsprofil, in dem das β -Zirkaloy verschwindet und die α -Zr(O)-Phase fast gesättigt ist. Nach 1200 s sind die zwei äußeren α -Zr(O)-Phasen und die (U,Zr)-Phase verschwunden, was in Bild 2.11 verdeutlicht wird. Die Zustände nach 1600 s zeigt Abbildung 2.11, wenn die zwei verbleibenden Phasen $\text{UO}_2 + \text{U}$ und ZrO_2 ihre stabilen Sättigungszustände fast erreicht haben.

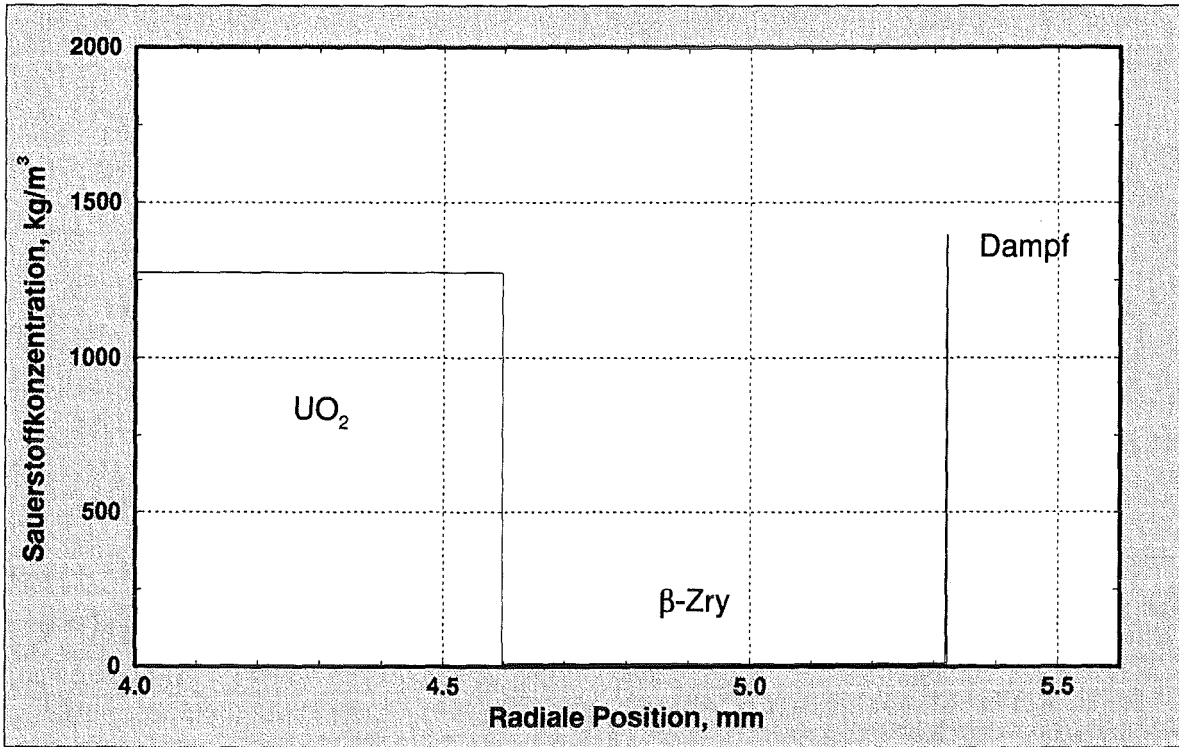


Abbildung 2.7: Sauerstoffkonzentration im UO₂-Brennstoff und Zirkaloy-Hüllrohr zum Zeitpunkt $t=0$.

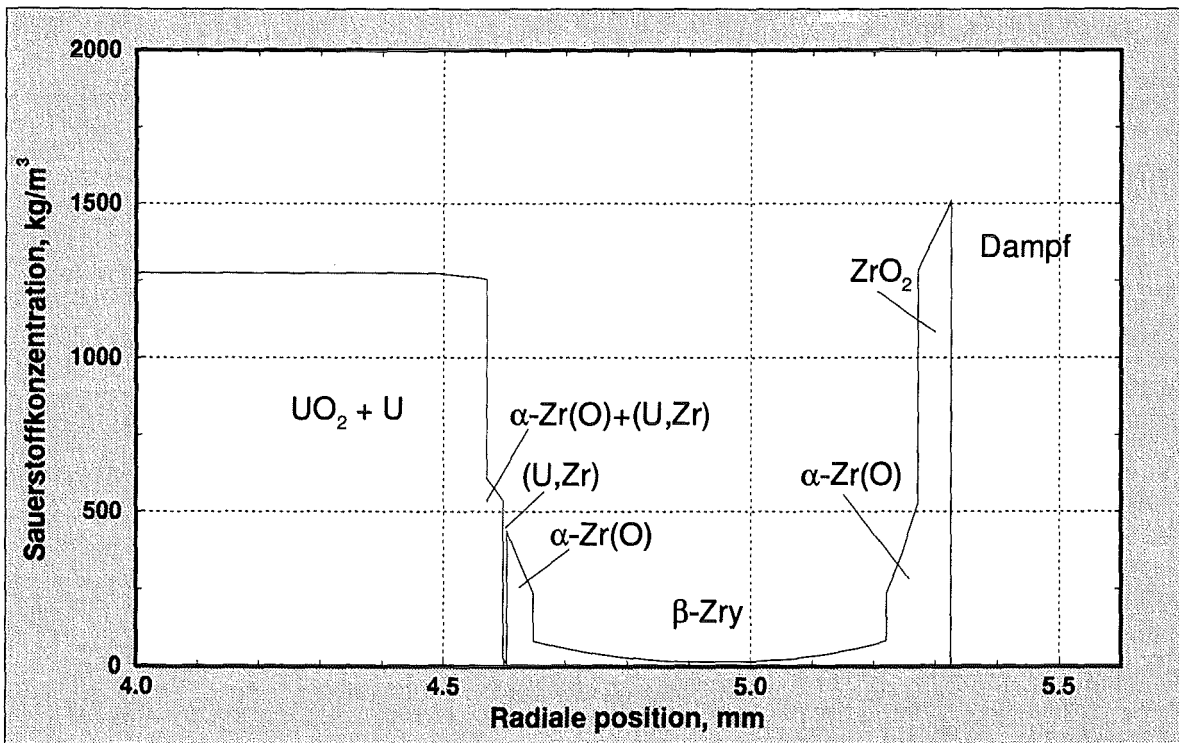


Abbildung 2.8: Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800 °C zum Zeitpunkt $t=10$ s.

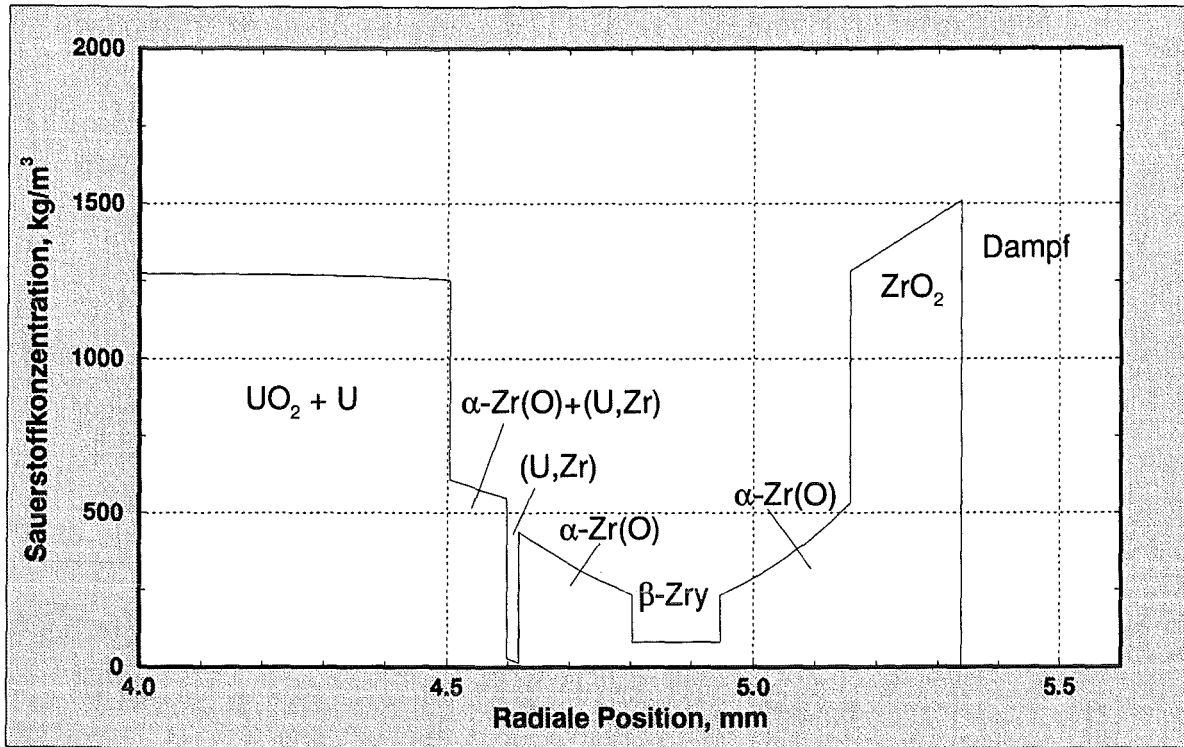


Abbildung 2.9: Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800 °C zum Zeitpunkt t=100 s.

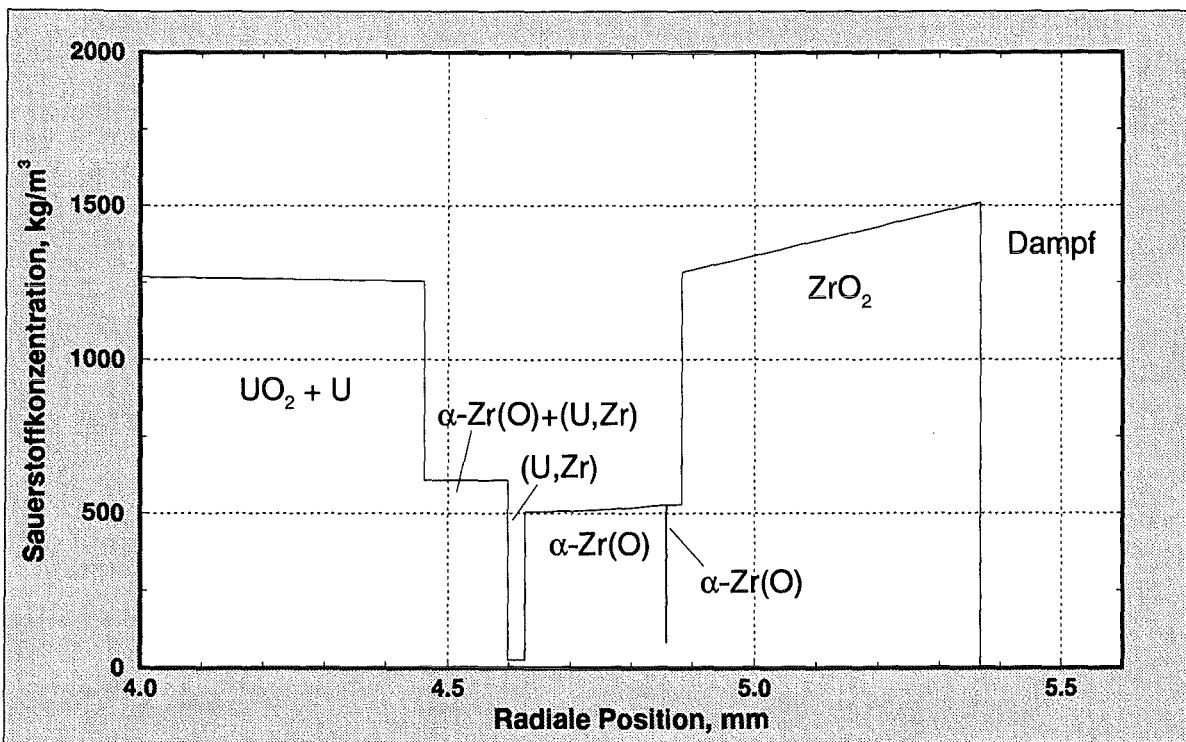


Abbildung 2.10: Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800 °C zum Zeitpunkt t=500 s.

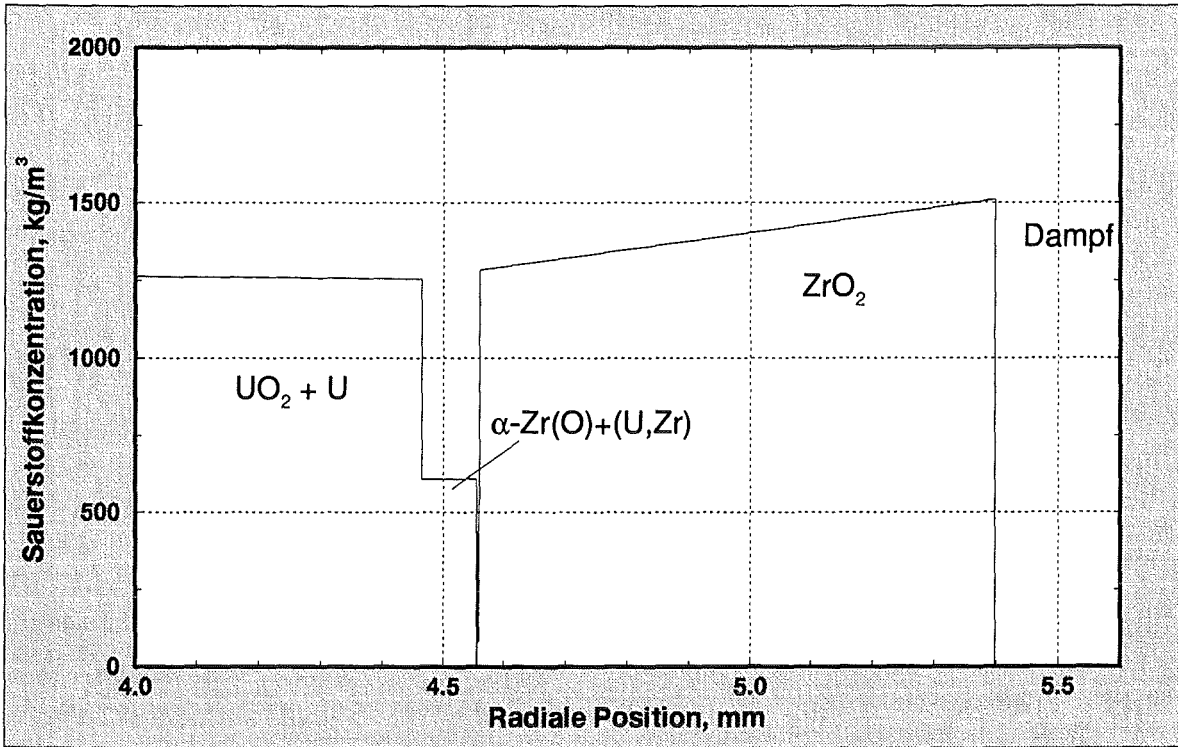


Abbildung 2.11: Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800 °C zum Zeitpunkt t=1200 s.

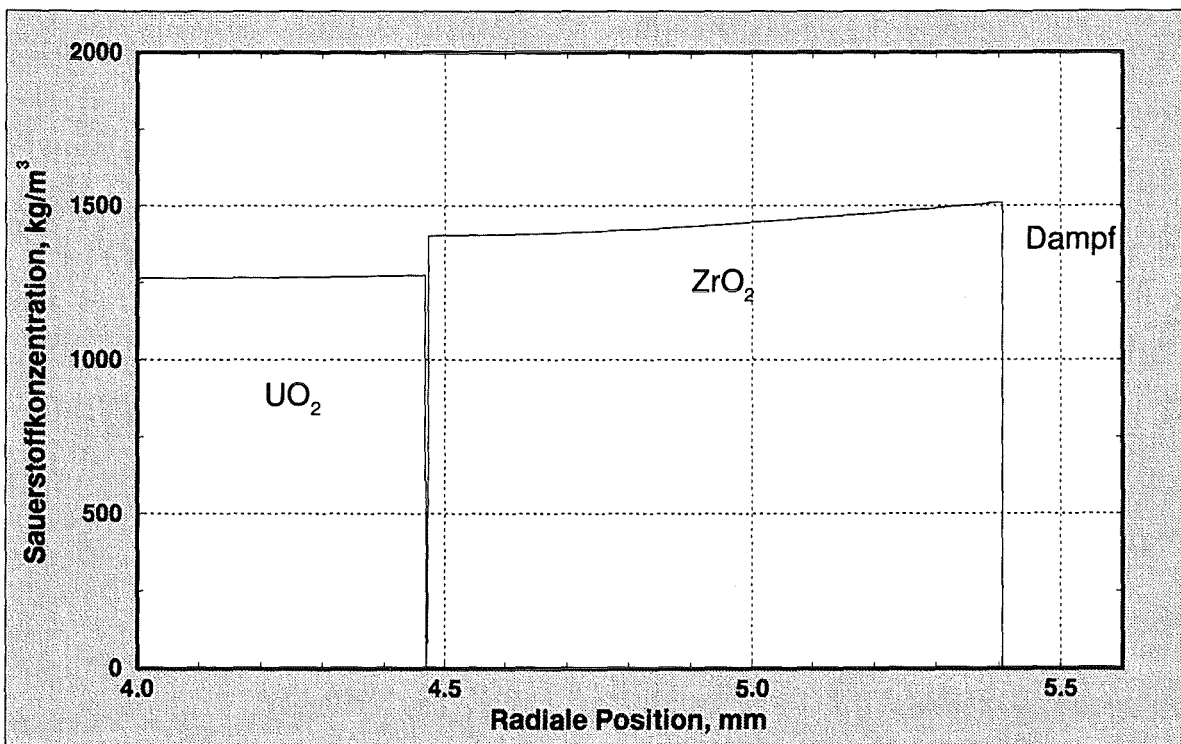


Abbildung 2.12: Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800 °C zum Zeitpunkt t=1600 s.

2.2 Wärmeleitung

Wärmeleitungsmodelle für einen gleichförmigen Stab (ein-, zwei- und dreidimensional) [19, 20, 21, 22], die auf verschiedenen Vereinfachungen beruhen, wurden bereits in früheren Untersuchungen vorgeschlagen. Es ist jedoch nicht möglich, diese Modelle zur Analyse von Flutungsexperimenten anzuwenden. Dies hat folgende Gründe:

- die Modelle nehmen die Brennstabstruktur als gleichförmig an und betrachten keine chemische Wärmefreisetzung an der sich bewegenden Grenzfläche zwischen Zr-Oxid und -Metall,
- die Modelle benutzen eine quasi-stationäre Näherung, wobei die Flutungsexperimente im Wesentlichen instationär sind,
- die Rechenergebnisse dieser Modelle wurden hauptsächlich mit Experimenten verglichen, in denen die Temperaturen niedriger als 600 K waren. Dieser Wert ist viel kleiner als die Temperaturen, die bei Flutungsprozessen zu erwarten sind.

Weiterhin ist in diesen Modellen die Beschreibung der Wärmeaustauschrate mit dem umgebenden Medium die wichtigste Annahme. Der Zusammenhang zwischen Oberflächentemperatur und dem Wärmefluß nach außen wird durch eine Kombination von Schritt-, Linear- und/oder Exponentialfunktionen approximiert. Diese Betrachtungsweise macht es möglich, das Wärmeaustauschproblem mit einer stationären Näherung analytisch zu betrachten. Die Beschreibung des umgebenden Wasser/Dampf-Mediums und der Wärmeleitungsprozesse im gleichförmigen Stab ist damit jedoch sehr vereinfacht. Andere Modelle [24, 25] für Voraussagen von Hüllrohrtemperaturen enthalten Korrelationen, die für verschiedene Regionen des Bündels empirisch bestimmt wurden.

Das hier zu untersuchende Objekt soll ein mit UO_2 -Pellets gefülltes und mit einer Oxidschicht umgebenes Rohrelement sein. Jede Oxidschicht des Rohres besitzt eine der folgenden Materialien: Zr, sauerstoffstabilisiertes α -Zr und ZrO_2 . Die Anzahl der Schichten ist nicht beschränkt und kann durch den Anwender vorgegeben werden. Die Pellets und die Hülle werden als ein System von Schichten betrachtet, wo das Pellet die innere Schicht bildet (Abbildung 2.2). Ein Spalt zwischen Pellet und Hülle wird wegen der hohen Temperaturen nicht betrachtet.

Ein langer Zylinder mit innerer Wärmeerzeugung, bei dem die Wärme durch elektrische Beheizung (typisch für CORA-Experimente) erzeugt wird, oder ein Brennstab, in dem die Wärme

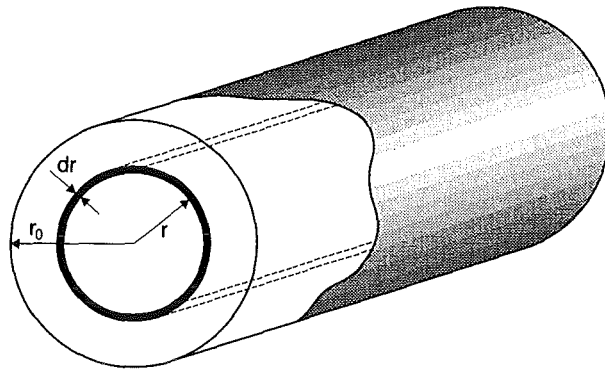


Abbildung 2.13: Nomenklatur der geometrischen Größen für Wärmeleitung in einem Zylinder mit internen Wärmequellen.

durch Kernspaltung entsteht, kann als idealisiertes System betrachtet werden. Dabei wird die Energiegleichung für ein Ringelement [69] (s. Abbildung 2.13) mit der Dicke dr und Innenradius r gebildet:

$$-\lambda(r, T)A_r \left. \frac{\partial T(r, t)}{\partial r} \right|_r + q(r, t)A_r \partial r = -\lambda(r, T)A_{r+dr} \left. \frac{\partial T(r, t)}{\partial r} \right|_{r+dr} + \rho(r, T)c(r, T) \frac{\partial T(r, t)}{\partial t} A_r \partial r. \quad (2.23)$$

wobei t die Zeit, $T(r, t)$ die Temperatur, $c(r, t)$ die spezifische Wärmekapazität, $\rho(r, T)$ die Materialdichte, $\lambda(r, T)$ die Wärmeleitfähigkeit, $q(r, t)$ die Wärmequellendichte und $A_r = 2\pi r dl$, $A_{r+dr} = 2\pi(r + dr)dl$ und dl die Ringelementlänge sind. Die Differenz der Temperaturgradienten bei $r + dr$ und bei r ergibt nach Vereinfachung die Gleichung für die eindimensionale radiale Temperaturverteilung in Zylinderkoordinaten:

$$\rho(r, T)c(r, T) \frac{\partial T(r, t)}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r\lambda(r, T) \frac{\partial T(r, t)}{\partial r} \right) + q(r, t). \quad (2.24)$$

Eine explizite Finite-Differenzen-Methode wird für die Temperaturverteilungsberechnung verwendet. Der (r, t) -Bereich wird in Intervalle Δr , Δt (s. Abbildung 2.14) unterteilt. Es gilt

$$r = i\Delta r \quad i = 0, 1, 2, \dots, N \text{ mit } r_0 = N\Delta r,$$

$$t = n\Delta t \quad n = 0, 1, 2, \dots$$

und für die Temperatur $T(r, t)$

$$T(r, t) = T(i\Delta r, n\Delta t) \equiv T_i^n. \quad (2.25)$$

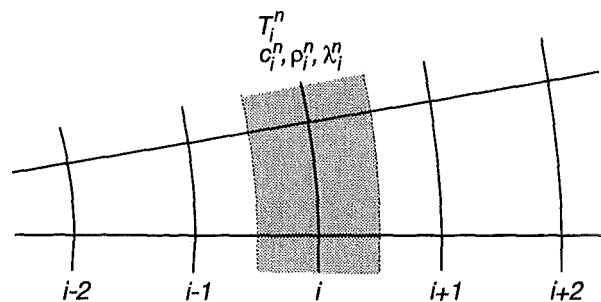


Abbildung 2.14: Ein (r, t) Bereich im zylindrischen Koordinatensystem.

Für Radien r größer als Null wird Gleichung 2.24 in finiten Differenzen wie folgt repräsentiert:

$$\frac{\rho_i^n c_i^n}{\Delta t} (T_i^{n+1} - T_i^n) = a_{i+1}^n (T_{i+1}^n - T_i^n) - a_i^n (T_i^n - T_{i-1}^n) + q_i^n, \quad (2.26)$$

wobei

$$a_{i+1}^n = \frac{1}{r_i} \left(\frac{\lambda_{i+1} r_{i+1} + \lambda_i r_i}{2(\Delta r)^2} \right) = \frac{1}{2i\Delta r} \left(\frac{\lambda_{i+1} r_{i+1} + \lambda_i r_i}{(\Delta r)^2} \right), \quad (2.27)$$

$$a_i^n = \frac{1}{r_i} \left(\frac{\lambda_i r_i + \lambda_{i-1} r_{i-1}}{2(\Delta r)^2} \right) = \frac{1}{2i\Delta r} \left(\frac{\lambda_i r_i + \lambda_{i-1} r_{i-1}}{(\Delta r)^2} \right). \quad (2.28)$$

Gleichung 2.26 besitzt folgende Lösung für T_i^{n+1} :

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta t}{\rho_i^n c_i^n} [\alpha_{i+1}^n (T_{i+1}^n - T_i^n) - \alpha_i^n (T_i^n - T_{i-1}^n) + q_i^n]. \quad (2.29)$$

In der Mitte bei $r = 0$ besitzt Gleichung 2.24 eine Singularität, was die numerische Lösung erschwert. Wenn angenommen wird, daß $\lambda(r, t)$ im UO_2 -Pellet gleichmäßig verteilt ist, kann die eindimensionale Wärmeleitungsgleichung 2.24 wie folgt geschrieben werden:

$$\rho(r, T)c(r, T) \frac{\partial T(r, t)}{\partial t} = \lambda \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T(r, t)}{\partial r} \right) + q(r, t). \quad (2.30)$$

Da

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \frac{\partial T}{\partial r} + r \frac{\partial^2 T}{\partial r^2},$$

gilt, besitzt Gleichung 2.30 folgende Form:

$$\rho(r, T)c(r, T) \frac{\partial T(r, t)}{\partial t} = \lambda \left[\frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right] + q(r, t). \quad (2.31)$$

In der Mitte bei $r = 0$ erhält man

$$\lim_{x \rightarrow 0} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right) = \frac{\partial^2 T}{\partial r^2},$$

durch die L'Hospital-Regel. Dadurch kann Gleichung 2.31 umgeschrieben werden:

$$\rho(r, T)c(r, T) \frac{\partial T(r, t)}{\partial t} = 2\lambda \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + q(r, t) \text{ bei } r = 0. \quad (2.32)$$

Die endgültige finite Differenzenform sieht somit aus wie folgt:

$$T_0^{n+1} = \left(1 - \frac{\Delta t}{\rho_0^n c_0^n} \frac{4\lambda_0^n}{(\Delta r)^2} \right) T_0^n + \frac{\Delta t}{\rho_0^n c_0^n} \left(\frac{4\lambda_0^n}{(\Delta r)^2} T_1^n + q_0^n \right). \quad (2.33)$$

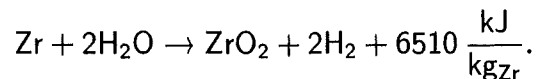
Gleichungen 2.29 und 2.33 beschreiben das Wärmeleitungsproblem 2.24 mit finiten Differenzen.

Um mit dem REFLOX-Programm sowohl die CORA-Experimente zu modellieren, wo die Beheizung durch elektrischen Strom erfolgt, als auch reale Reaktorbrennelemente, wo Energiequellen im UO_2 -Pellet verteilt sind, sind für die Wärmequellendichte $q(r, t)$ in Gleichung 2.24 folgende Ansätze zu machen:

$$q(r, t) = \begin{cases} q_f(r, t)|_{0 \leq r \leq r_{\text{UO}_2}} + q_{\text{ch}}(r, t)|_{r=r_{\text{ZrO}_2}} & \text{für Reaktorbrennelemente,} \\ q_{\text{el}}(r, t)|_{r=0} + q_{\text{ch}}(r, t)|_{r=r_{\text{ZrO}_2}} & \text{für CORA-Experimente,} \end{cases}$$

wobei $q_f(r, t)$ und $q_{\text{el}}(r, t)$ die Wärmequellendichten sind, die die Kernspaltung bzw. die elektrische Beheizung vollständig beschreiben, $q_{\text{ch}}(r, t)$ die Wärmequellendichte der exothermen chemischen Zirkaloy/Dampf-Reaktion, r_{UO_2} der Außenradius des UO_2 -Pellets und r_{ZrO_2} der Innenradius der sich bewegenden ZrO_2 -Schicht ist.

Die Zeitabhängigkeit von $q_f(r, t)$ und $q_{\text{el}}(r, t)$ sind Eingabedaten für das Modell. Sie müssen deshalb außerhalb des REFLOX-Programmes bestimmt werden. Der Wert von $q_{\text{ch}}(r, t)$ wird im Diffusionsteil des REFLOX-Programmes aus folgender Reaktion [70] berechnet:



Die Materialeigenschaften, die für das Wärmeleitungsmodell benötigt werden, sind in Tabelle 2.5 aufgelistet. Zur Vereinfachung der Berechnungen können die spezifischen Wärmekapazitäten c , Dichten ρ , und die Wärmeleitfähigkeit λ als temperaturunabhängig für alle Reaktionsschichten berücksichtigt werden, ausgenommen der Wärmekapazität von UO_2 [71]. Diese Abhängigkeit ist in Abbildung 2.15 dargestellt und wird durch folgende Formel angenähert:

$$c_{\text{UO}_2}(T) = 175.121 + 0.281 \cdot T - 1.97 \cdot 10^{-4} \cdot T^2 + 5.38 \cdot 10^{-8} \cdot T^3, \quad (2.34)$$

für $300 \text{ K} \leq T \leq 3100 \text{ K}$.

Wie bereits angemerkt, wird die Temperaturverteilung $T(r, t)$ durch den Wärmeleitungsteil im REFLOX-Programm berechnet und an das Diffusionsmodell übergeben, das die Grenzflächenbewegung und die chemische Wärmequellendichte berechnet.

	UO ₂	Zr	ZrO ₂
$\rho, \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	$10.1 \cdot 10^3$	$5.28 \cdot 10^3$	$5.81 \cdot 10^3$
$\lambda, \frac{\text{W}}{\text{m} \cdot \text{K}}$	$0.03 \cdot 10^2$	$0.95 \cdot 10^2$	$0.03 \cdot 10^2$
$c, \frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{K}}$	Gl. 2.34	$0.33 \cdot 10^3$	$0.60 \cdot 10^3$

Tabelle 2.5: Für die Wärmeleitungsrechnungen verwendete Materialeigenschaften.

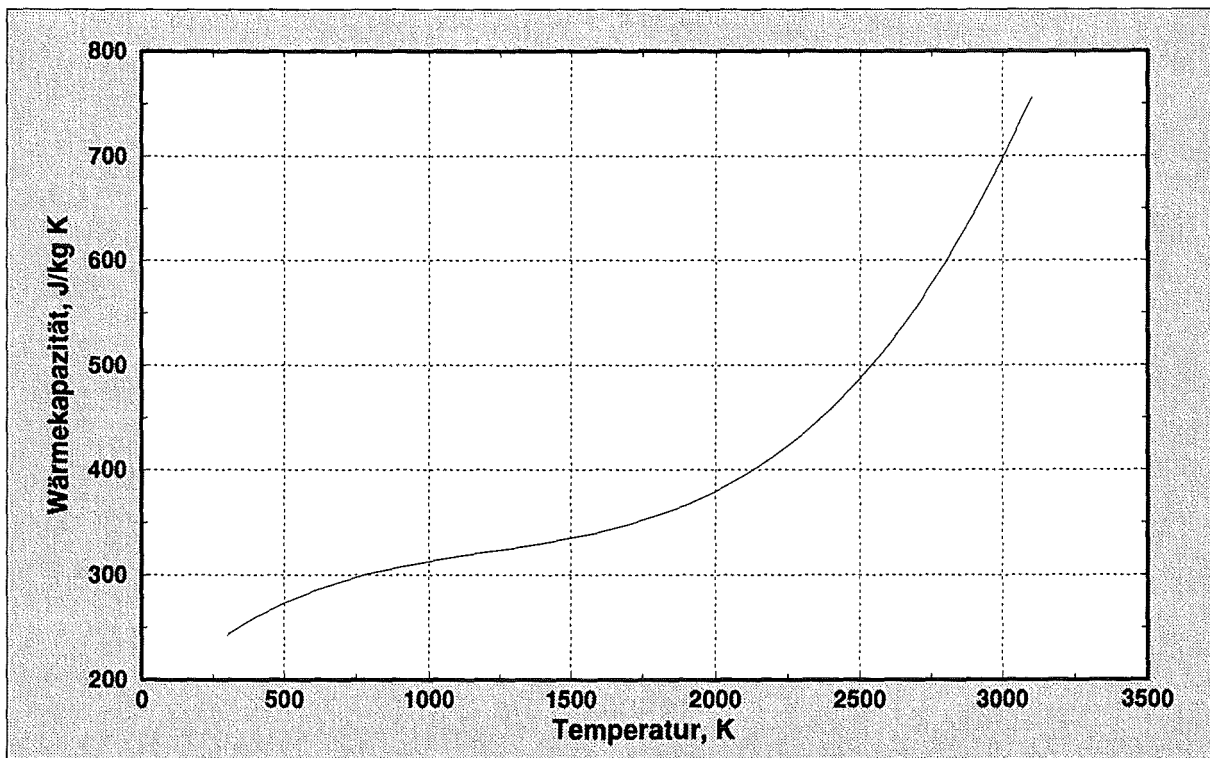


Abbildung 2.15: Temperaturabhängigkeit der UO₂-Wärmekapazität.

2.3 Strahlungs-Wärmetransport in der dampfhaltigen Umgebung

Wie bereits in Abschnitt 2.2 beschrieben wurde, können die Randbedingungen für das Wärmeleitungsmodell von erster Art (gegebene Temperatur an der Grenze) oder von dritter Art (Strahlungsfluß von der Außenfläche) sein:

$$-k \frac{\partial T}{\partial n} + q_{\text{rad}} \Big|_S = 0. \quad (2.35)$$

In diesem Abschnitt wird das Modell für die Wärmeübertragung durch Strahlung von der Außenoberfläche hergeleitet.

Zur Vereinfachung wurde in diesem Fall die P1-Approximation [72] für eine Energieübertragung für ein graues Medium zwischen zwei unendlich langen konzentrischen Zylindern verwendet. Die P1-Approximation reduziert die Integralgleichung der Wärmeübertragung ins Medium zu Differentialgleichungen durch Approximation der Übertragungsrelation mit einem endlichen Satz von Impulsgleichungen.

Die Gleichung für die Energieübertragung für ein graues Medium zwischen den zwei unendlich langen konzentrischen Zylindern in der P1-Approximation hat folgende Form:

$$q_{\text{rad}} = \frac{\sigma(T_{\text{bound}}^4 - T_{\text{surf}}^4)}{\frac{3}{8} a_g D_1 \ln\left(\frac{D_2}{D_1}\right) + \left(E_1 + \frac{1}{2}\right) + \frac{D_1}{D_2} \left(E_2 + \frac{1}{2}\right)}, \quad (2.36)$$

wobei

D_1, D_2 – Zylinderdurchmesser,

a_g – durchschnittlicher Gasabsorptionskoeffizient.

$E_i = (1 - \epsilon_i)/\epsilon_i$, wobei ϵ_i der Emissionskoeffizient der Oberfläche i ist.

Für CORA-Experimente ist D_1 der Durchmesser des Brennelements, D_2 der effektive Durchmesser des Hochtemperaturschirms, T_{surf} die Brennelementoberflächentemperatur, T_{bound} die Hochtemperaturschirm-Temperatur, die aus den Experimenten entnommen wird, und ϵ_i der Emissionskoeffizient des ZrO_2 [49], der von der ZrO_2 -Schichtdicke Δr_{ox} abhängig ist:

$$\epsilon = 0.325 + 0.1246 \cdot 10^6 \cdot \Delta r_{ox} [\Delta r_{ox} < 3.88 \cdot 10^{-6} \text{ m}], \quad (2.37)$$

$$\epsilon = 0.808642 - 50.0 \cdot \Delta r_{ox} [\Delta r_{ox} \geq 3.88 \cdot 10^{-6} \text{ m}]. \quad (2.38)$$

Für Oberflächen, die Temperaturen über 1500 K erreichen, wird die mit obigen Gleichungen berechnete Emission mit dem folgenden Faktor multipliziert:

$$F = \exp \left[\frac{1500.0 - T_{surf}}{300.0} \right], \quad (2.39)$$

wobei T_{surf} die Oberflächentemperatur ist. Der minimale Wert dieses Faktors ist 0.325. Die Temperaturabhängigkeit der ZrO_2 -Emissionskoeffizienten für drei verschiedene ZrO_2 -Schichtdicken ($\Delta r_{ox} = 3.88 \mu\text{m}$, $\Delta r_{ox} = 500 \mu\text{m}$ und $\Delta r_{ox} = 1000 \mu\text{m}$) ist in Abbildung 2.16 dargestellt.

Die Dampfabsorption k_g wird wie folgt berechnet:

$$k_g = \frac{\int_0^{\infty} \alpha_{\lambda} e_{b\lambda}(T_{surf}) d\lambda}{\sigma T_{surf}^4}, \quad (2.40)$$

wobei α_{λ} der spektrale Absorptionskoeffizient ist, der vom Druck p und von der optischen Länge L abhängig ist,

$$\alpha_{\lambda} = 1 - \exp(-k_{g\lambda} p L), \quad (2.41)$$

und $e_{b\lambda}$ die Planck'sche Funktion darstellt:

$$e_{b\lambda}(\lambda, T) = \frac{2\pi h c_0^2}{\lambda^5 (e^{hc_0/k\lambda T} - 1)}, \quad (2.42)$$

h – Planck'sche Konstante,

k – Boltzmannkonstante,

c_0 – Lichtgeschwindigkeit.

Die spektralen Dampfabsorbtionskoeffizienten $k_{g\lambda}$ sind [73] entnommen. In diesem Artikel ist das gesamte Dampfabsorbtionspektrum in 439 Gruppen unterteilt. Die spektralen Dampfabsorbtionskoeffizienten sind für sechs Dampftemperaturen (300, 600, 1000, 1500, 2000 und 2500 K) bestimmt. Für andere Temperaturen werden die Koeffizienten durch lineare Interpolation berechnet. Da in jeder Gruppe die spektralen Absorbtionskoeffizienten als konstant angenommen werden, nimmt Gleichung 2.40 folgende Form an:

$$k_g = \frac{\sum_{i=1}^{439} a_{\lambda_i} \bar{e}_{\lambda_i}(T_{\text{surf}}) \Delta\lambda_i}{\sigma T_{\text{surf}}^4}, \quad (2.43)$$

wobei $\bar{e}_{\lambda_i}(T_{\text{surf}})$ der mittlere Wert der Planck'schen Funktion 2.42 für die Wellenlänge in der Mitte des Bandes i ist. Nach der Berechnung der Dampfabsorbtion wird der Dampfabsorbtionskoeffizient bestimmt:

$$a_g = \frac{\ln(1 - k_g)}{L}. \quad (2.44)$$

Die Temperaturabhängigkeit der spektralen Dampfabsorbtionskoeffizienten ist in den Abbildungen 2.17–2.22 dargestellt. Zum Vergleich sind in diesen Abbildungen zusätzlich die Absorbtionskoeffizienten aus [74] gezeigt, die in SCDAP/RELAP5 verwendet werden.

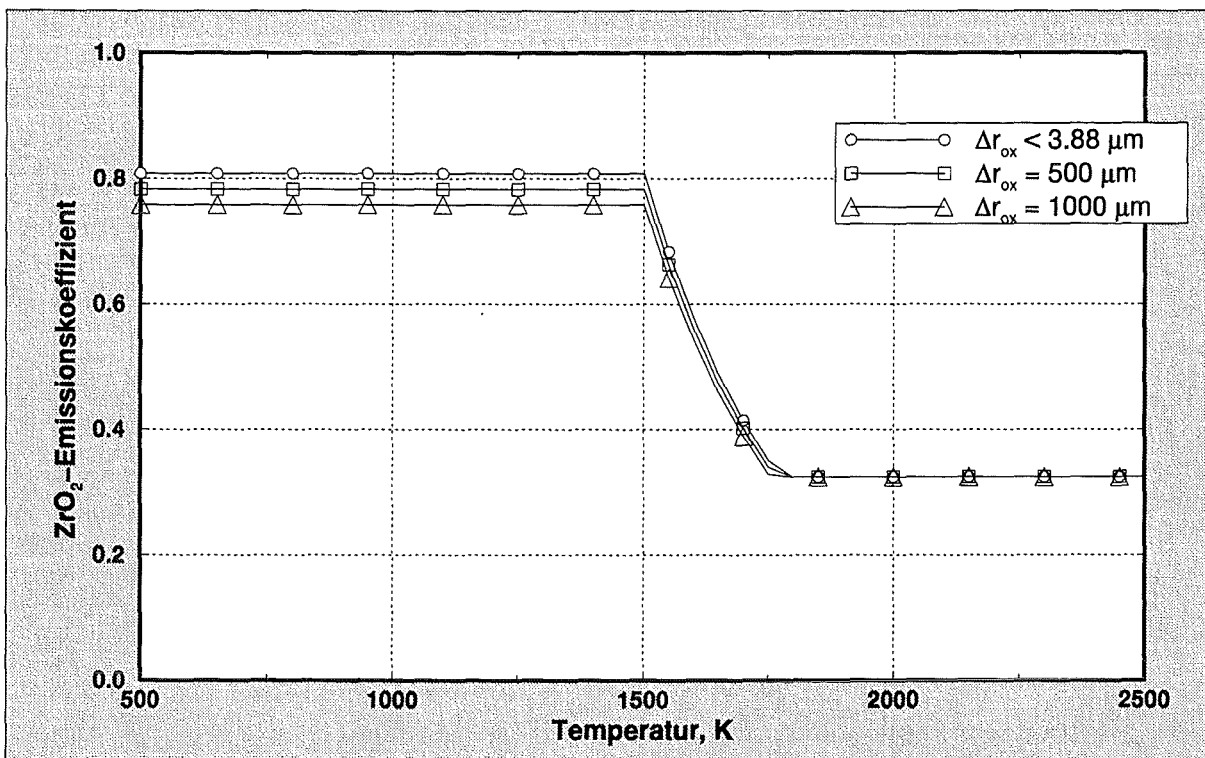


Abbildung 2.16: Temperaturabhängigkeit der ZrO₂-Emissionskoeffizienten.

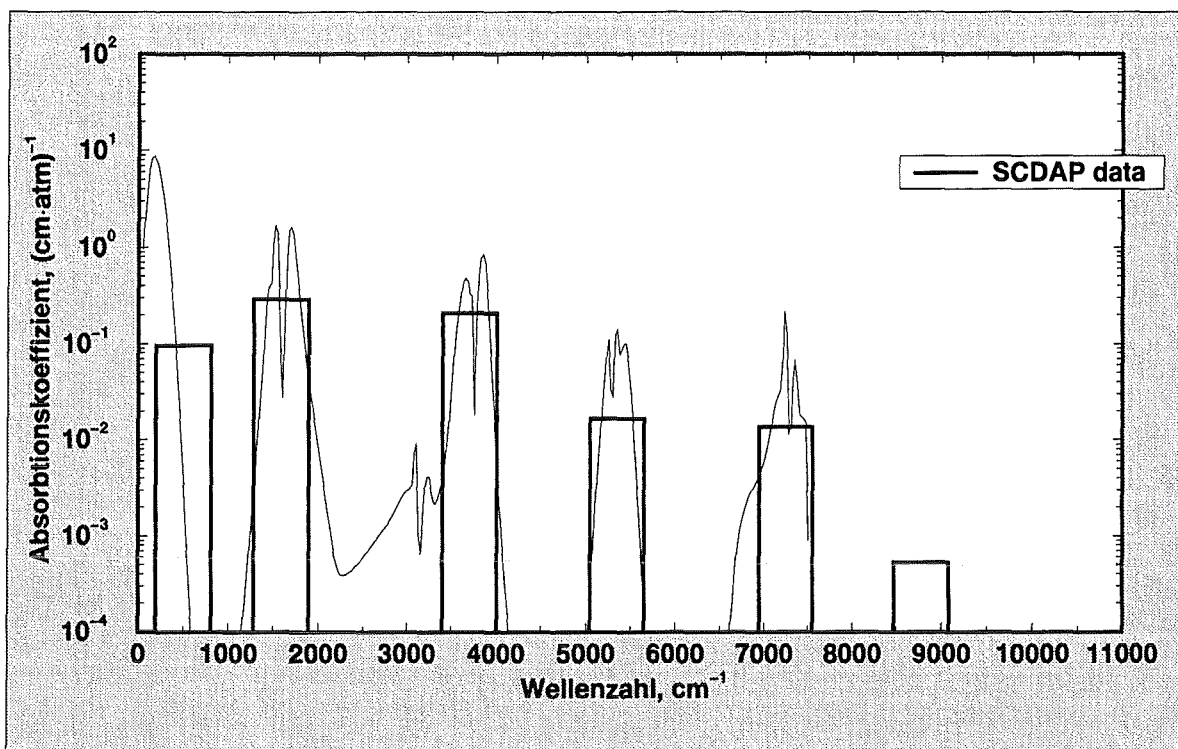


Abbildung 2.17: Dampfabsorptionskoeffizienten bei $T = 300$ K

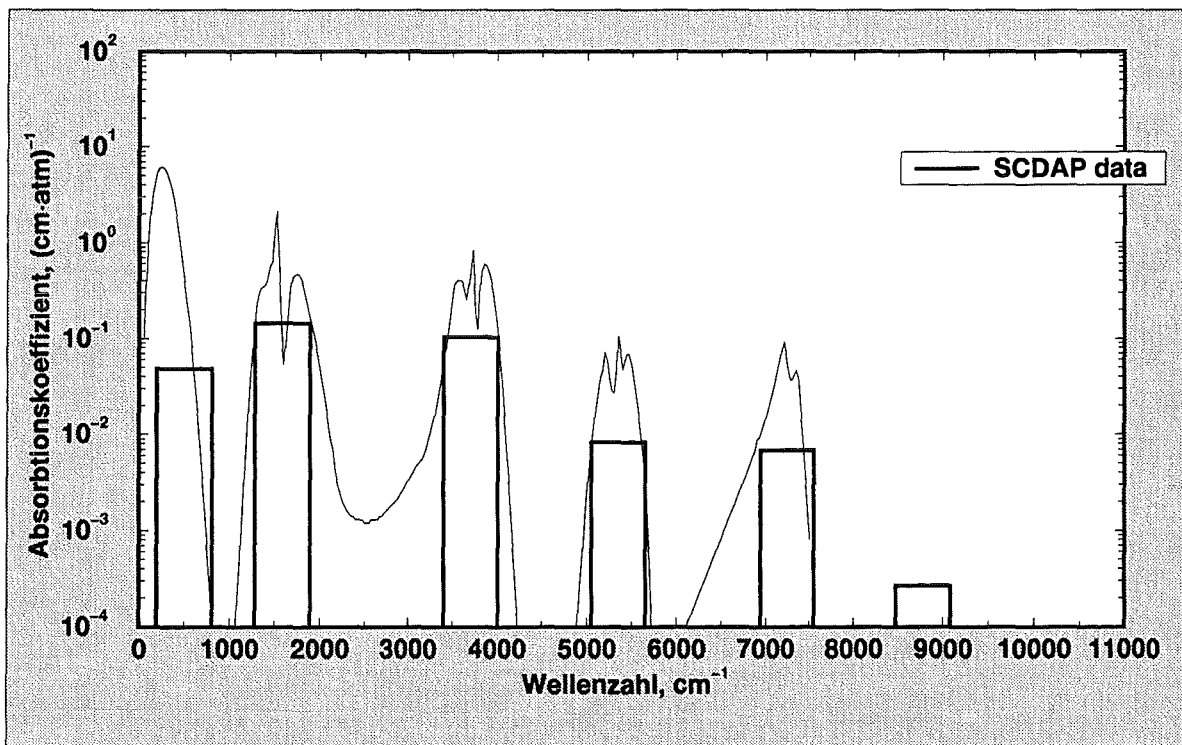


Abbildung 2.18: Dampfabsorptionskoeffizienten bei $T = 600$ K

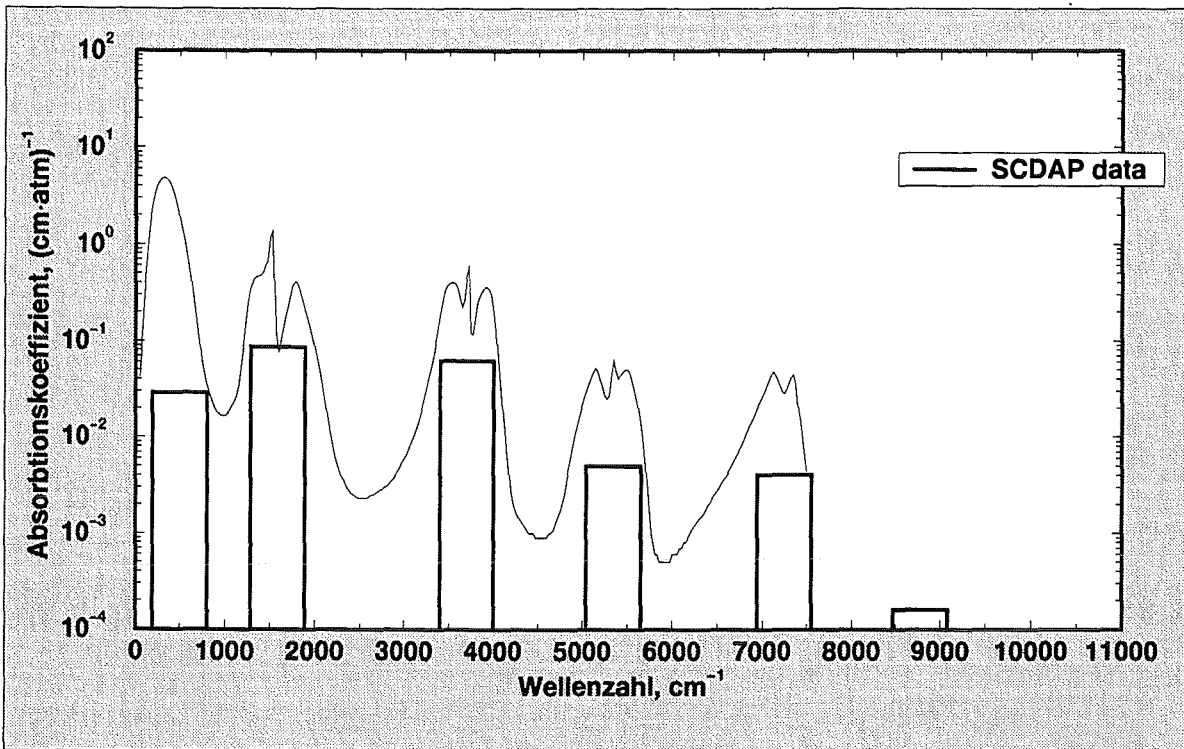


Abbildung 2.19: Dampfabsorbptionskoeffizienten bei $T = 1000$ K

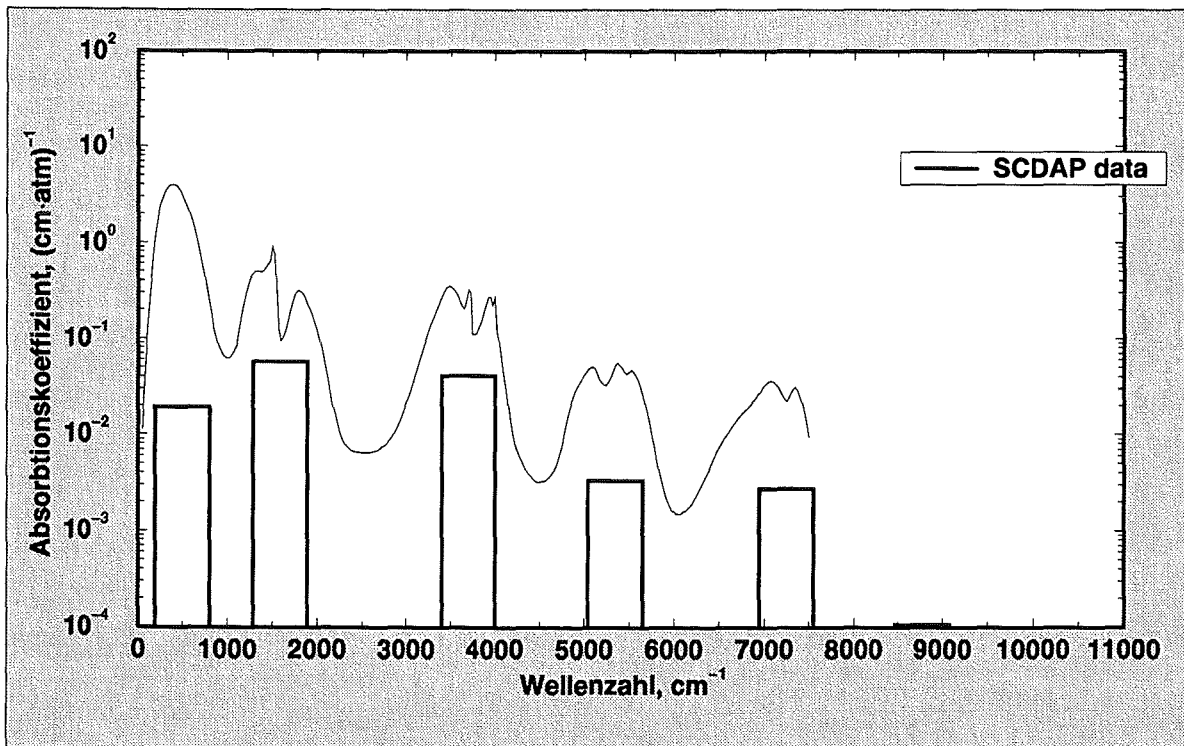


Abbildung 2.20: Dampfabsorbptionskoeffizienten bei $T = 1500$ K

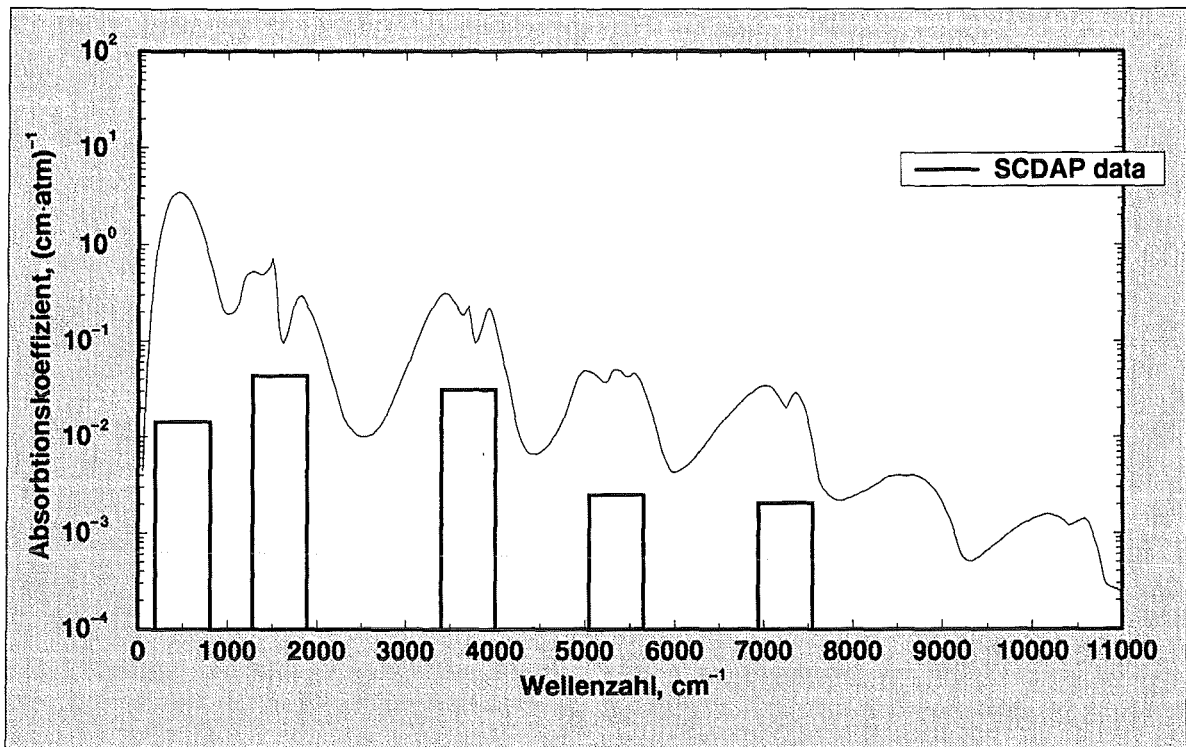


Abbildung 2.21: Dampfabsorptionskoeffizienten bei $T = 2000 \text{ K}$

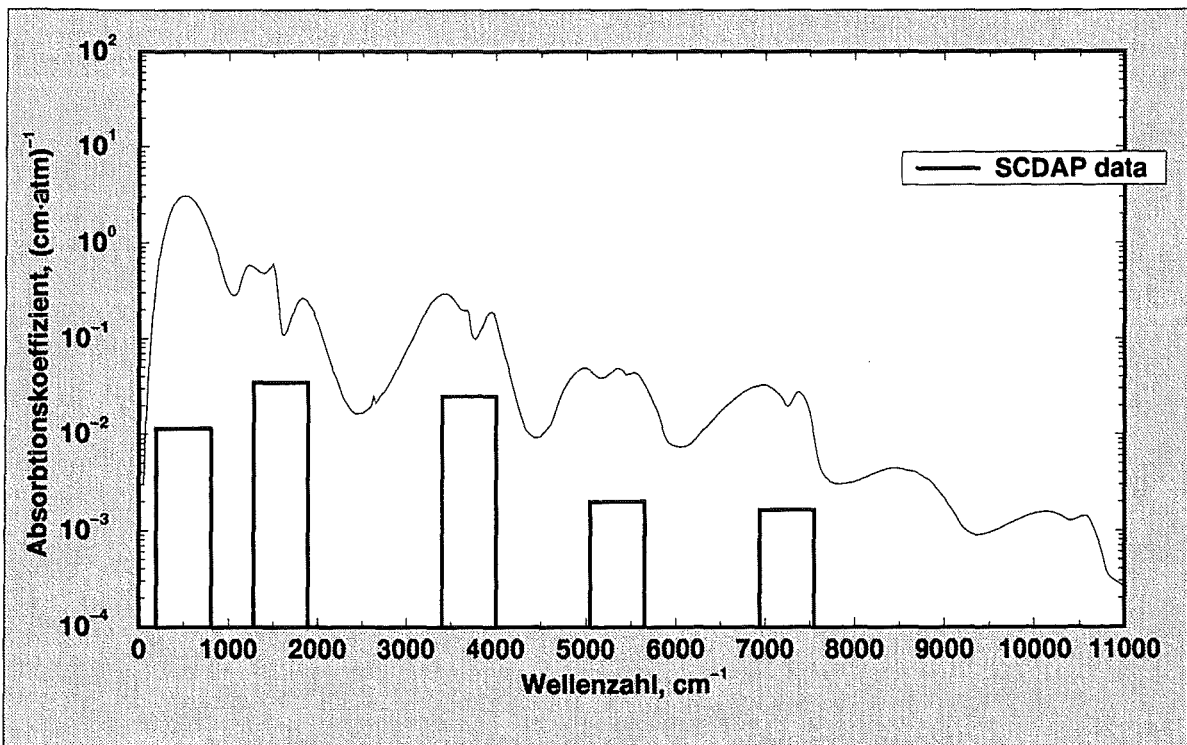


Abbildung 2.22: Dampfabsorptionskoeffizienten bei $T = 2500 \text{ K}$

3 Verifikation des REFLOX-Programmes durch Vergleich mit vorhandenen Rechenprogrammen

Vor der Anwendung des REFLOX-Programmes zur Simulation eines Kernreaktorstörfalles wurde REFLOX mit den existierenden Rechenprogrammen SCDAP/RELAP [48] und MELCOR [49] verglichen.

Eine der Möglichkeiten des REFLOX-Programmes ist es, Brennstabtemperaturen als Eingabedaten zu benutzen. Dies ist für die Validierung sehr wichtig, da die mit den SCDAP/RELAP- und MELCOR-Programmen berechneten Temperaturen direkt als Eingabe für das Diffusionsmodell des REFLOX-Programmes verwendet werden können. Die entsprechende ZrO_2 -Schichtdicke und Wasserstoffproduktionsrate stellen die wichtigsten Vergleichsparameter für die Validierung dar.

Der Vergleich mit dem SCDAP/RELAP-Programm wurde auf der Basis des CORA-13 Experimentes durchgeführt. Für den Vergleich mit dem MELCOR-Programm wurde ein typischer EPR-Störfall ausgewählt. Eine kurze Beschreibung der SCDAP- und MELCOR-Programme und die Ergebnisse der Validierung werden in den folgenden Abschnitten präsentiert.

3.1 Beschreibung des SCDAP-Programmes

Das Rechenprogramm für die Analyse der LWR-Störfall-Transienten SCDAP/RELAP5 wurde im Idaho National Engineering Laboratory (INEL) für die U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) entwickelt. Das Hauptziel dieses Programmes ist die Analyse schwerer Reaktor-Störfälle zur Unterstützung von Genehmigungsverfahren. Das SCDAP-Programm hat alle notwendigen Eigenschaften zur Lizenzierung, Prüfungs-Berechnung, Störfall-Strategie-Berechnungen, Experimente-Planung und -Analyse. SCDAP/RELAP5 ist ein vielseitiges Programm, das, zusammen mit der Berechnung des Reaktorkühlsystem-Verhaltens während einer schweren Störfall-Transiente, auch als Werkzeug für die Simulation von mehreren hydraulischen und thermischen Transienten sowie in Kernsystemen und auch in nicht-nuklearen Systemen verwendet werden kann.

SCDAP/RELAP5 wurde aus den drei einzelnen Rechenprogrammen RELAP5/MOD2 [50], SCDAP [51] und TRAP-MELT [52, 53] entwickelt. Diese Programme wurden in einem Modell integriert. Das entstandene Programm modelliert die gekoppelten Wechselwirkungen, die während eines schweren Störfalles zwischen dem Reaktorkern, dem Reaktorkühlsystem und den Spaltprodukten auftreten.

Mit dem SCDAP-Programm ist es möglich, ein großes Spektrum von System-Strukturen zu modellieren, von einzelnen Rohren bis zu verschiedenen experimentellen Anlagen und realen Kernreaktorsystemen. Die Struktur kann durch eine beliebige Anzahl von Fluid-Kontrollvolumina und Verbindungen, Wärme-Strukturen, Kern- und Systemkomponenten modelliert werden. Die Flüsse, Volumina und Fluß-Widerstände können sich mit der Zeit entweder durch Benutzer-Eingabe oder durch Modelle, die Geometrieänderungen durch Kernbeschädigung beschreiben, ändern.

Das Programm kann das Verhalten des Reaktorkerns während schwerer Störfälle modellieren. Die Betrachtung des Reaktorkerns schließt Brennstab-Aufheizung, -Aufblähen und -Zerreißen, Spaltprodukt-Freisetzung, schnelle Oxidation, UO_2 -Auflösung, ZrO_2 -Bruch, Fließen und Erstarren des geschmolzenen Brennstoffes und der Hülle, sowie Partikel-Entstehung und -Verhalten ein. Es modelliert auch das Kontrollstab- und Shroud-Verhalten. Mit den SCDAP Kernkomponenten können LWR-repräsentative Brennstäbe, Ag-In-Cd- und B_4C -Kontrollstäbe, elektrisch beheizte Brennstab-Simulatoren, nicht-nukleare Kern-Strukturen und allgemeine Strukturen beschrieben werden.

Die Modelle für die chemische Wechselwirkung, die mit dem Verhalten der Struktur verbunden ist, sind zur Zeit auf die Material-Oxidation und Brennstoff-Auflösung begrenzt. Die chemische Wechselwirkung, die mit der Eutektik-Bildung (Zirkaloy/Edelstahl-Wechselwirkung) verbunden ist, wird nicht explizit modelliert. Die Änderungen in der Temperatur der Schmelze, die durch solche Wechselwirkung auftreten, können jedoch berücksichtigt werden.

Material-Oxidation wird entweder mit dem stationären oder mit dem transienten Modell beschrieben. Dies beinhaltet entsprechende Wärmefreisetzung, Wasserstoffherzeugung und Dampfverbrauch. Das stationäre Modell nutzt die Gleichungen für die Oxidationsrate mit Material-Temperaturen, die im Wärmeleitungsmodell definiert sind. Dieses Modell kann für alle Materialien angewendet werden, außer wenn bei Zirkaloy die Wärmeerzeugungsrate durch die Oxidation zu hoch wird. Dieses Modell löst die Gleichungen für die Materialtemperatur und Oxidationsrate gleichzeitig und verwendet die "lumped-parameter" Formulierung für die Temperatur. Das Modell wurde speziell für das SCDAP-Programm entwickelt, wo große Zeitschrit-

te verwendet werden können, und wird stufenweise ersetzt, wenn neu entwickelte Modelle zur Verfügung stehen.

Die Material-Oxidation wird mit folgender parabolischen Gleichung beschrieben:

$$\frac{d\delta}{dt} = \frac{A}{\delta} \exp\left(-\frac{B}{T}\right). \quad (3.1)$$

mit

δ – Schichtdicke (m),

T – Temperatur (K),

t – Zeit (s),

A und B – Konstanten für die parabolische Oxidationsraten aus dem Rechenprogramm MATRO [54, 55].

Unter Annahme einer konstanten Temperatur kann diese Gleichung für ein Zeit-Intervall Δt integriert werden:

$$\delta^2 - \delta_0^2 = 2A \exp\left(-\frac{B}{T}\right) \Delta t, \quad (3.2)$$

wobei δ_0 der Wert zum Anfang des Intervalls ist. Für Zirkaloy werden drei parabolische Gleichungen für die Sauerstoff-Zunahme und den Wachstum des α - und ZrO_2 -Schichtes gelöst. Für allen anderen Materialien wird nur die Sauerstoff-Zunahme berechnet.

Die Wärmeleistung durch Oxidation Q_{ox} wird aus der Sauerstoff-Zunahme berechnet,

$$Q_{ox} = \frac{M}{M_0} h_r S \frac{dW}{dt}, \quad (3.3)$$

mit

M_0 – Sauerstoff-Molengewicht,

M – Material-Molengewicht,

- h_r – Reaktions-Wärme (J/kg des reagierenden Materials),
 S – ursprüngliche Oberfläche,
 W – Sauerstoff-Zunahme pro Oberflächeneinheit.

Die ursprüngliche Oberfläche S basiert auf der Oberfläche vor dem Anfang der Oxidation und berücksichtigt keine Umformungs-Effekte.

Die Wasserstofferzeugung und der Dampfverbrauch werden auch aus der Sauerstoff-Zunahme wie folgt berechnet:

$$\text{H}_2 \text{ Erzeugungsrate} = \frac{1}{8} S \frac{dW}{dt}, \quad (3.4)$$

$$\text{H}_2\text{O Dampfverbrauchsrate} = \frac{9}{8} S \frac{dW}{dt}. \quad (3.5)$$

Der Oxidations-Prozess besitzt zwei Grenzen. Die Oxidation wird gestoppt, wenn das Material komplett oxidiert ist. Für das Zirkaloy ist das die Zeit von der kompletten Umwandlung zum ZrO_2 und für Fe die Zeit von der kompletten Umwandlung zum FeO_2 . Die entsprechende Grenze für die Sauerstoff-Zunahme hat folgende Form:

$$W \leq \frac{M_0}{M} \rho \frac{V}{S}, \quad (3.6)$$

wobei ρ die Dichte und V das Volumen des Materials ist. Weiterhin wird die Oxidationsrate durch das Dampfangebot limitiert:

$$\frac{dW}{dt} \leq \frac{8}{9} \frac{m}{S}, \quad (3.7)$$

wobei m die Massenflußrate des Dampfes senkrecht zur Oberfläche ist.

Im SCDAP/RELAP5-Programm ist eine Reihe von wichtigen Annahmen getroffen, die von der Struktur und dem Typ der modellierten Komponenten abhängig sind: die Oberfläche und das Material-Volumen können in zylindrischen oder kartesischen Koordinaten eingegeben werden; die Volumen-Änderung durch Oxidation wird nur für Zirkaloy berücksichtigt.

Für Strukturen, die aus mehreren Schichten bestehen (einschließlich Schichten mit erstarrten Materialien) wird angenommen, daß die Oxidation von inneren Schichten nur nach kompletter Oxidation der äußeren Schichten stattfindet. Weiterhin wird angenommen, daß die komplett oxidierten äußeren Schichten nicht den Dampffluß zu den inneren Schichten behindern und die äußeren Schichten werden ignoriert. Für alle Schichten werden die gleichen parabolischen Gleichungen gelöst.

Für die aufgeblähten und geplatzten Hüllrohre werden die Oxidationsraten in betroffenen Regionen verdoppelt, sofern innere und äußere Hüllrohr- und/oder Shroud-Oberflächen die gleiche Oxidationsrate besitzen.

3.2 Beschreibung des MELCOR-Programmes

MELCOR ist ein Rechenprogramm für die vollständige Modellierung des Ablaufes schwerer Störfälle in Leichtwasserreaktor-Kernkraftwerken. MELCOR wurde in den Sandia National Laboratories für U.S. Nuclear Regulatory Commission als Werkzeug der zweiten Generation für Risikostudien und als Nachfolger des Quellterm-Programmpaketes (Source Term Code Package) entwickelt. Das volle Spektrum von Unfallphänomenen, einschließlich der Reaktorkühlkreisläufe und der thermohydraulischen Reaktion des Reaktordruckbehälters, Kern-Aufheizung, -Degradierung und -Verlagerung und Spaltprodukt-Freisetzung und -Transport ist in MELCOR als einheitliches System für SWR's und DWR's eingeschlossen. MELCOR wurde auch für Sensitivitätsstudien entwickelt.

Folgende Eigenschaften von schweren Störfällen können mit MELCOR analysiert werden:

- thermohydraulische Reaktion des Reaktorkühlsystems, der Reaktorkaverne und des Sicherheitsbehälters;
- Kern-Aufheizung, -Verformung und -Verlagerung;
- Kernschmelze/Beton-Wechselwirkung;
- Freisetzung, Transport und Ablagerung der Spaltprodukte;
- Einfluß von Sicherheitsmaßnahmen auf Thermohydraulik und Spaltproduktverhalten.

Für die verschiedenen Module wurden gut definierte Schnittstellen entwickelt. Dies ermöglicht einen Austausch von kompletten und konsistenten Informationen, d.h. alle Phänomene sind in

jedem Zeitschritt explizit gekoppelt. Die meisten der MELCOR-Modelle sind mechanistisch. Sie sind mit den detaillierteren Modellen vergleichbar, die in der letzte Zeit entwickelt wurden. Die Anwendung der parametrischen Modelle ist auf die Fälle begrenzt, in denen eine phänomenologische Unsicherheit besteht und keine Übereinstimmung mit den akzeptierten mechanistischen Verfahren erreicht ist.

Durch die relativ einfache Gitter-Erzeugung kann das MELCOR-Programm als Werkzeug der zweiten Generation für Sicherheitsstudien betrachtet werden. Wenn höher auflösende Gitter verwendet werden, können MELCOR-Ergebnisse der Genauigkeit anderer detaillierterer Programme nahekommen. Das MELCOR-Programm soll nicht als Konkurrent zu den anderen detaillierteren Programmen betrachtet werden, da diese nur für spezifische Fälle entwickelt wurden.

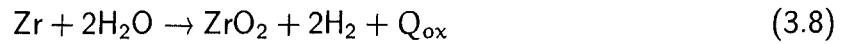
Das MELCOR-Programm schließt mehrere Pakete ein, die verschiedene Teile der Störfall-Phänomenologie modellieren. Die Zirkaloy-Oxidation durch Dampf ist im COR-Modul (Core Behavior) modelliert. Dieses Modul berechnet die thermische Reaktion des Kerns und der unteren Strukturen und modelliert die Kernmaterial-Verlagerung und Partikel-Bildung. Brennstoff-Pellets, Hüllrohre, Abstandshalter, Kanister-Wände (für SWR), andere Strukturen (wie z.B. Kontroll- und Führungsrohre) und entstehende Partikel werden innerhalb der verschiedenen COR-Modul-Zellen separat modelliert.

Zirkaloy- und Stahl-Oxidation wird mittels Festkörper-Diffusion des Sauerstoffes durch die Oxidschicht und Gasdiffusion des Dampfes und des Sauerstoffes durch das Gemisch modelliert. Auch die chemische B_4C /Dampf-Reaktion wird betrachtet.

Die Metalloxidation wird mit Hilfe parabolischer kinetischer Gleichungen durch entsprechende Konstanten für Oxidationsrate für Zirkaloy berechnet. Dies kann auf die Gasdiffusion limitiert werden. Die Zirkaloy-Oxidation wird für Hüllrohr und Führungsrohr berechnet. Sowohl Zirkaloy- als auch Stahl-Oxidation wird für entstehende Partikel berechnet. Konglomerat-Partikel-Oxidation (d.h. Material, das geschmolzen wurde und wieder auf der anderen Oberfläche erstarrt ist) wird ebenfalls modelliert. Diese Eigenschaft des Programmes kann jedoch deaktiviert werden, ohne die Oxidation der intakten Komponenten zu beeinflussen. Das Oxidationsmodell benutzt Bereiche der Oberfläche, an denen die Effekte der Konglomerat-Partikel-Oxidation berücksichtigt werden. Für den SWR-Reaktorkern wird auch die Oxidation der Kanister-Wände (die im Kontakt mit verschiedenen Umgebungen sein können) betrachtet. Eine Kontroll-Funktion kann eingeschaltet werden, um die Oxidation in verschiedenen Bereichen zu stoppen. Dies ermöglicht die Analyse von Situationen, wie z.B. das Auftreten einer

Fluß-Blockade.

Die Gleichungen für die chemische Zirkaloy/Dampf-Reaktion und Oxidation mit Sauerstoff lauten in MELCOR wie folgt:



Die chemische Wärme, die durch die Reaktionen 3.8 und 3.9 entsteht, wird aus den Enthalpien der Reaktanden und der Produkte berechnet. Folgende Gleichung wird benutzt, um die Reaktionsenergie für eine beliebige Temperatur T zu erhalten:

$$Q_{\text{ox}}(T) = Q_{\text{ox}}(T_0) + H_{\text{rp}}(T) - H_{\text{rp}}(T_0) , \quad (3.10)$$

$$H_{\text{rp}}(T) = H_r(T) - H_p(T) , \quad (3.11)$$

mit

Q_{ox} – freigesetzte Reaktionsenergie,

H_r – Reaktand-Enthalpie,

H_p – Produkt-Enthalpie,

T_0 – Referenz-Temperatur.

Die Referenz-Temperatur beträgt 298.15 K und die entsprechenden Reaktionsenergien für diese Temperatur betragen $5.797 \cdot 10^6 \text{ J/kg}_{\text{Zr}}$ für die Zirkaloy/ H_2O Reaktion und $1.2065 \cdot 10^7 \text{ J/kg}_{\text{Zr}}$ für die Zirkaloy/ O_2 Reaktion. Alle Reaktionsenergien werden für die Temperatur des Kontrollvolumens berechnet und auf die oxidierenden Komponenten angewandt.

Die Festkörperdiffusion des Sauerstoffes durch die Oxidschicht zum unoxidierten Material wird mit folgender parabolischen Gleichung berechnet:

$$\frac{d(W^2)}{dt} = K(T) , \quad (3.12)$$

wobei W die Masse des oxidierten Materials pro Oberfläche-Einheit und $K(T)$ die Rate-Konstante ist, die eine exponentielle Abhängigkeit von der Oberflächentemperatur T hat.

Gleichung 3.12 wird analytisch für den Zeitschritt Δt integriert, wobei angenommen wird, daß die Temperatur T (d.h. auch die $K(T)$ Konstante) der Komponenten konstant ist.

$$(W^{n+1})^2 = (W^n)^2 + K(T^2)\Delta t. \quad (3.13)$$

Für die Zirkaloy/ H_2O -Reaktion werden die Konstanten von Urbanic-Heidrich [56] für eine Oxidationskinetik des Arrhenius-Typs benutzt:

$$K(T) = 29.6 \cdot \exp\left(\frac{-16820.0}{T}\right), \text{ für } T < 1853.0 \quad (3.14)$$

$$K(T) = 87.9 \cdot \exp\left(\frac{-16610.0}{T}\right), \text{ für } T \geq 1853.0 \quad (3.15)$$

Für die Zirkaloy/ O_2 -Reaktion werden die Konstanten [57] für eine Oxidationskinetik des Arrhenius-Typs benutzt:

$$K(T) = 50.4 \cdot \exp\left(\frac{-14630.0}{T}\right). \quad (3.16)$$

Für kleinere Konzentrationen des Oxidationsmittels kann die Gasdiffusion die Reaktionsrate limitieren. Diese hat folgende Form:

$$\frac{dW}{dt} = \frac{MW k_c P_{ox}}{n R T_f}, \quad (3.17)$$

wobei

MW – Molekular-Gewicht des oxidierten Materials,

k_c – Massen-Übertragungs-Koeffizient,

P_{ox} – Partialdruck des Oxidationsmittels (H_2O oder O_2),

n – Anzahl der verbrauchten Mole des Oxidationsmittels (H_2O oder O_2)
pro Mol des Metalls,

R – universelle Gaskonstante,

T_f – Temperatur des Gasfilms, $\frac{T+T_{gas}}{2}$.

Die Oxidationsrate der Gasdiffusion wird benutzt, wenn sie kleiner ist als die Oxidationsrate, welche mit Gleichung 3.13 berechnet wurde. Obwohl das Molekulargewicht MW und die Anzahl der verbrauchten Molen n von H_2O durch die Reaktion definiert wird, wird die Menge von (MW/nR) im Programm als Empfindlichkeits-Koeffizienten-Matrix für die Reaktionen mit H_2O eingesetzt. Dies erlaubt eine separate Kontrolle der Oxidationsrate der Gasdiffusion. Der Empfindlichkeits-Koeffizient ist im Programm intern verdoppelt, um eine äquivalente Rate der Gasdiffusion des Sauerstoffes zu erhalten ($n_{H_2O} = 2n_{O_2}$).

Für die Zirkaloy-Oxidation in der Umgebung, die beide Gase H_2O und O_2 enthält, wird die maximale Oxidationsrate für beide Gase wie folgt berechnet:

$$\frac{dW}{dt} = \max \left[\left(\frac{dW}{dt} \right)_{H_2O}, \left(\frac{dW}{dt} \right)_{O_2} \right]. \quad (3.18)$$

Es bestehen zwei Möglichkeiten, den Oxidationsmittel-Verbrauch zwischen Dampf und Sauerstoff aufzuteilen. In der voreingestellten Option ist der Verbrauch von Dampf bis zu der Zeit nicht möglich, bis daß der gesamte Sauerstoff verbraucht ist. Dies ist äquivalent mit der Annahme, daß die gesamte Menge an Wasserstoff, der durch die Dampf/Zirkaloy-Oxidation erzeugt wird, sofort durch Verbrennung mit dem vorhandenen Sauerstoff zu Dampf konvertiert wird. Diese Option benötigt keine Zeitschritt-Verringerung, die mit der normalen Verbrennung von Wasserstoff verbunden wäre. In der zweiten Option werden die Reaktionen in den Gleichungen 3.8 und 3.9 proportional zu den relativen Raten umgeschrieben:

$$f_{H_2O} = \frac{\left(\frac{dW}{dt} \right)_{H_2O}}{\left(\frac{dW}{dt} \right)_{H_2O} + \left(\frac{dW}{dt} \right)_{O_2}}, \quad (3.19)$$

$$f_{O_2} = 1 - f_{H_2O}. \quad (3.20)$$

3.3 Vergleich von REFLOX- und SCDAP/RELAP-Ergebnissen

Ein Vergleich zwischen REFLOX- und SCDAP/RELAP-Berechnungen wurde basierend auf den experimentellen CORA-13 Ergebnissen durchgeführt. Die Temperaturverteilung im Stabbündel wurde mit SCDAP/RELAP berechnet (vgl. Abbildungen 3.1 – 3.2) [58] und als Eingabedaten für das Diffusionsmodell des REFLOX-Programmes benutzt. Die mit REFLOX berechnete ZrO_2 -Schichtdicke wird als Hauptvergleichsparameter gewählt.

Das CORA-Stabbündel ist in zehn verschiedene axiale Abschnitte eingeteilt. In den Berechnungen wird angenommen, daß kein radialer Temperaturgradient über die Bündel existiert. Die Daten des CORA-13 Stabbündels sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. Das Dampfangebot wird während des gesamten Prozesses als unbegrenzt angenommen, was auch durch die Meßdaten belegt ist. Da das Temperaturniveau der Ebene 1 zu klein ist, wird die Oxidation dieser Ebene nicht berücksichtigt.

Bündeltyp	DWR
Bündelgröße	25 Stäbe
Anzahl der beheizten Stäbe	16
Rasterabstand	14.3 mm
Stabdurchmesser	10.75 mm
Hüllrohrmaterial	Zry 4
Hüllrohrdicke	0.725 mm

Tabelle 3.1: Daten des CORA-Stabbündels.

Die REFLOX-Ergebnisse für die axialen Zonen 2 bis 10 sind in den Abbildungen 3.3 und 3.11 dargestellt. Die berechnete ZrO_2 -Schichtdicke entspricht der Temperaturverteilung, wobei die maximale Oxidation in der Mitte des Bündels stattgefunden hat. Das Ende der Oxidation im oberen Teil des Bündels bei 4150 s, das mit dem SCDAP/RELAP-Programm vorausgesagt wurde (s. Abbildungen 3.6 – 3.10), wird durch das Schmelzen von Zirkaloy und Materialverlagerung zum unteren Bündelbereich verursacht. Das SCDAP/RELAP-Programm betrachtet keine weitere Zirkaloy-Oxidation nach der ersten Materialverlagerung. Im REFLOX-Programm wird der Prozess der Materialverlagerung nicht berücksichtigt. Deshalb wird eine weitere Zirkaloy-Oxidation in diesen Ebenen vorausgesagt.

Das REFLOX-Diffusionsmodell berechnet im allgemeinen etwas kleinere Oxidationsraten im Vergleich zu denen, wie sie mit den parabolischen Gesetze in SCDAP/RELAP berechnet werden. Die Ergebnisse stimmen jedoch gut bis zum Zeitpunkt der Schmelzeverlagerung überein, ab dem SCDAP/RELAP den weiteren Oxidationsprozess künstlich stoppt.

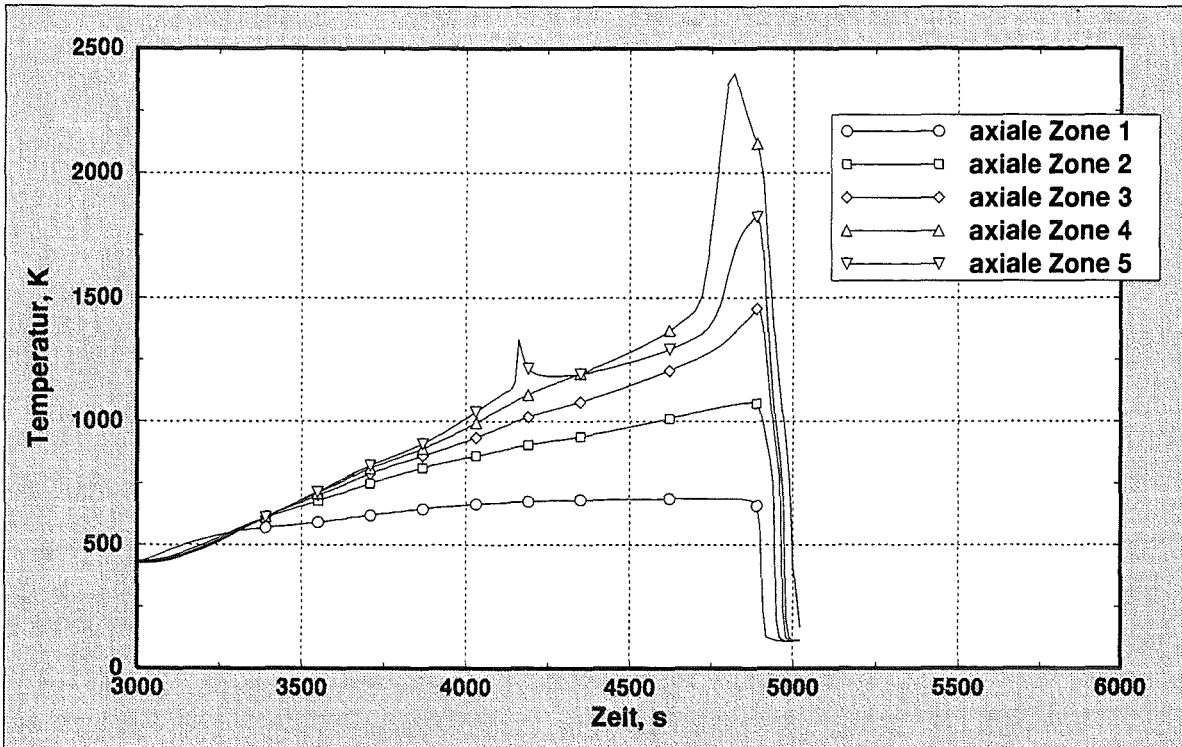


Abbildung 3.1: Temperaturverteilung im CORA-13 Experiment, mit SCDAP/RELAP berechnet. Axiale Zonen 1 bis 5.

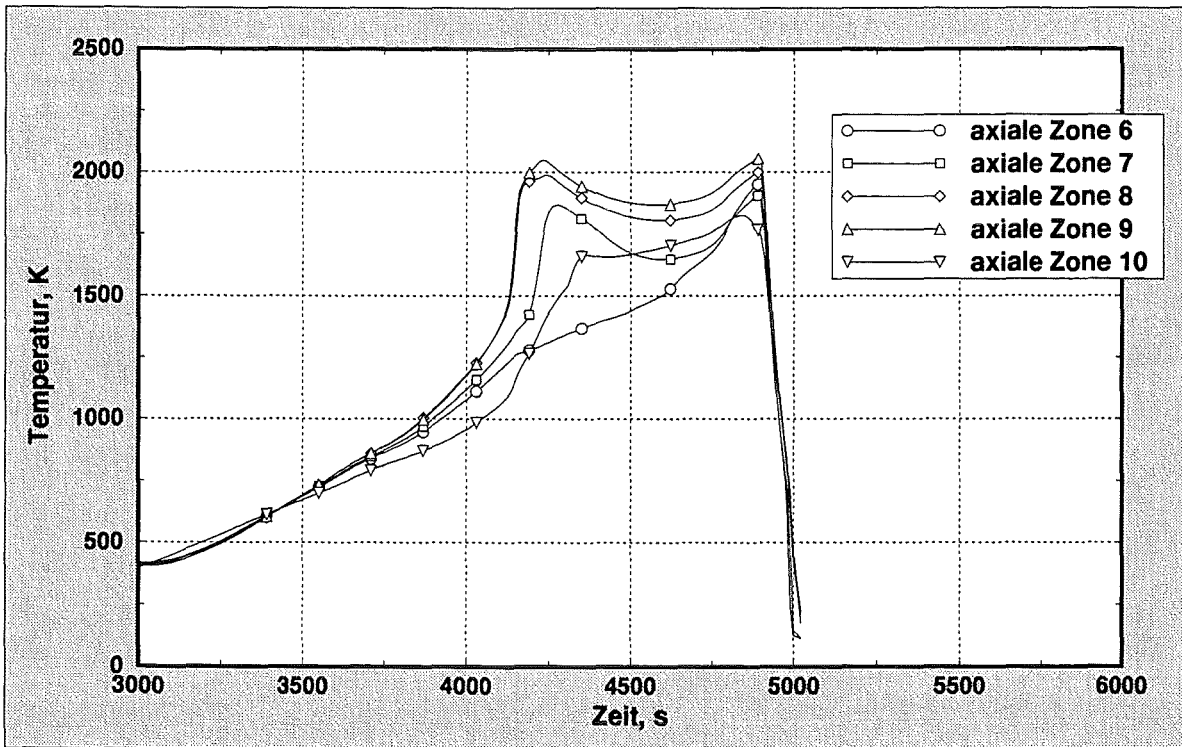


Abbildung 3.2: Temperaturverteilung im CORA-13 Experiment, mit SCDAP/RELAP berechnet. Axiale Zonen 6 bis 10.

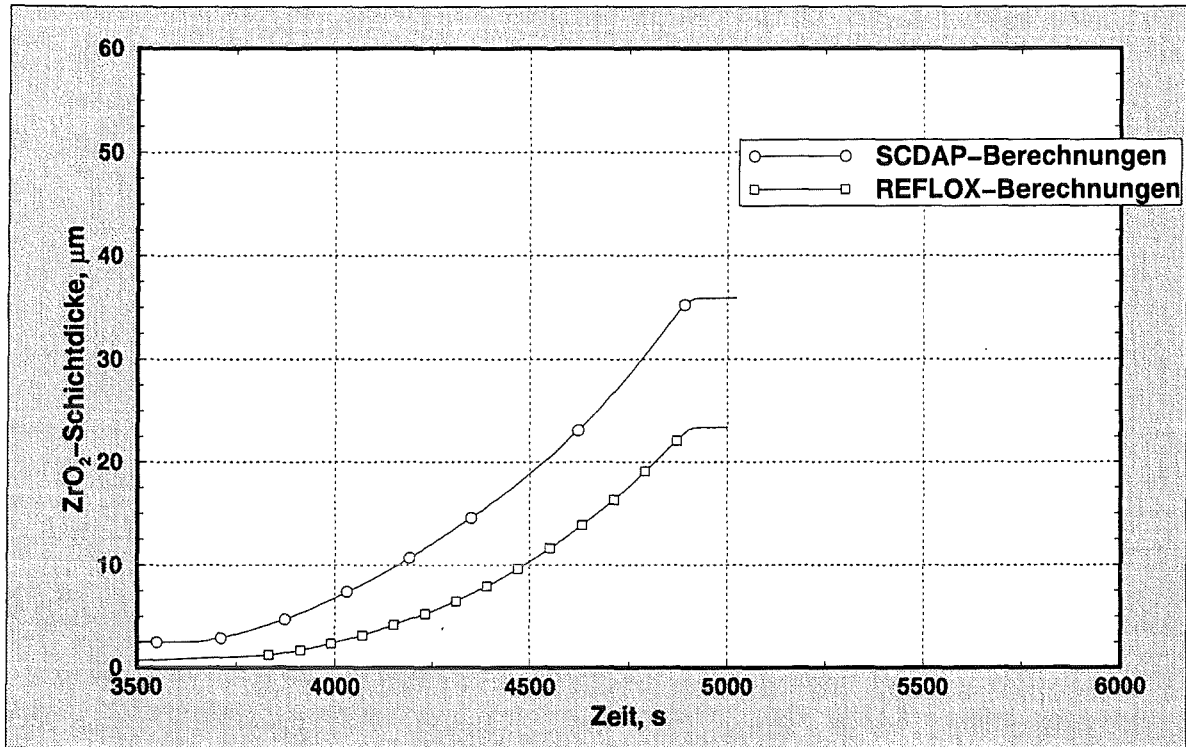


Abbildung 3.3: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO₂-Schichtdicke. Axiale Zone 2.

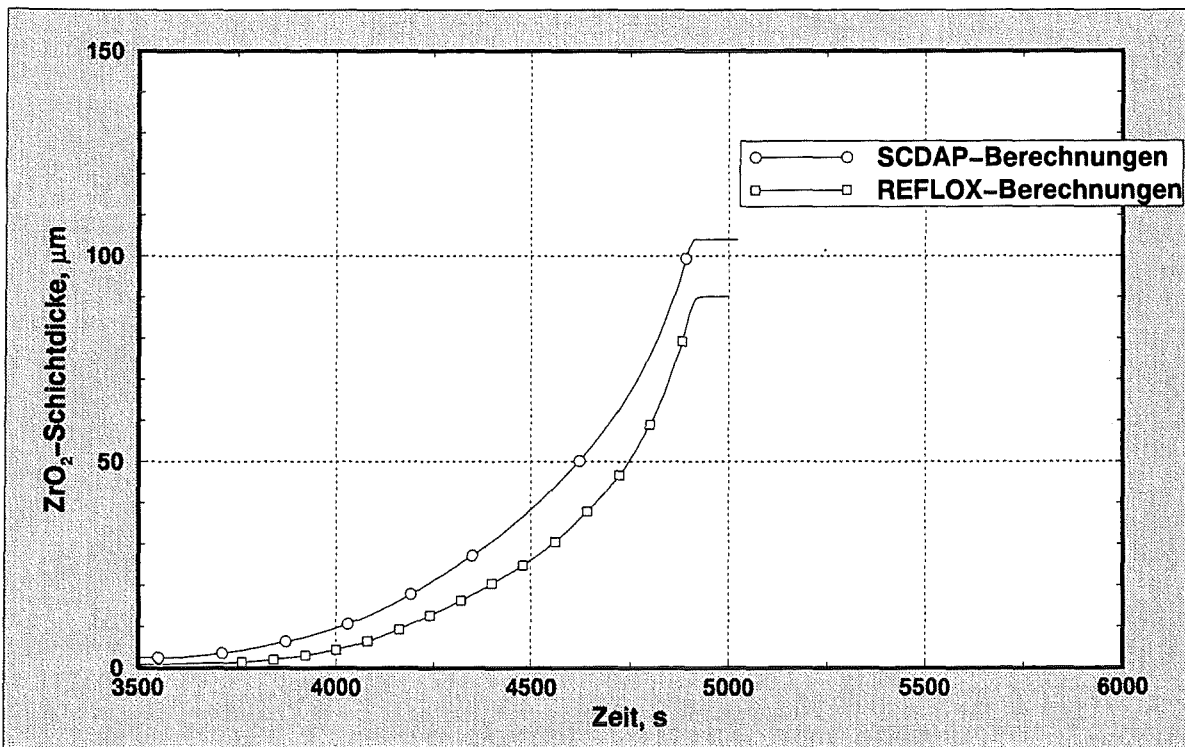


Abbildung 3.4: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO₂-Schichtdicke. Axiale Zone 3.

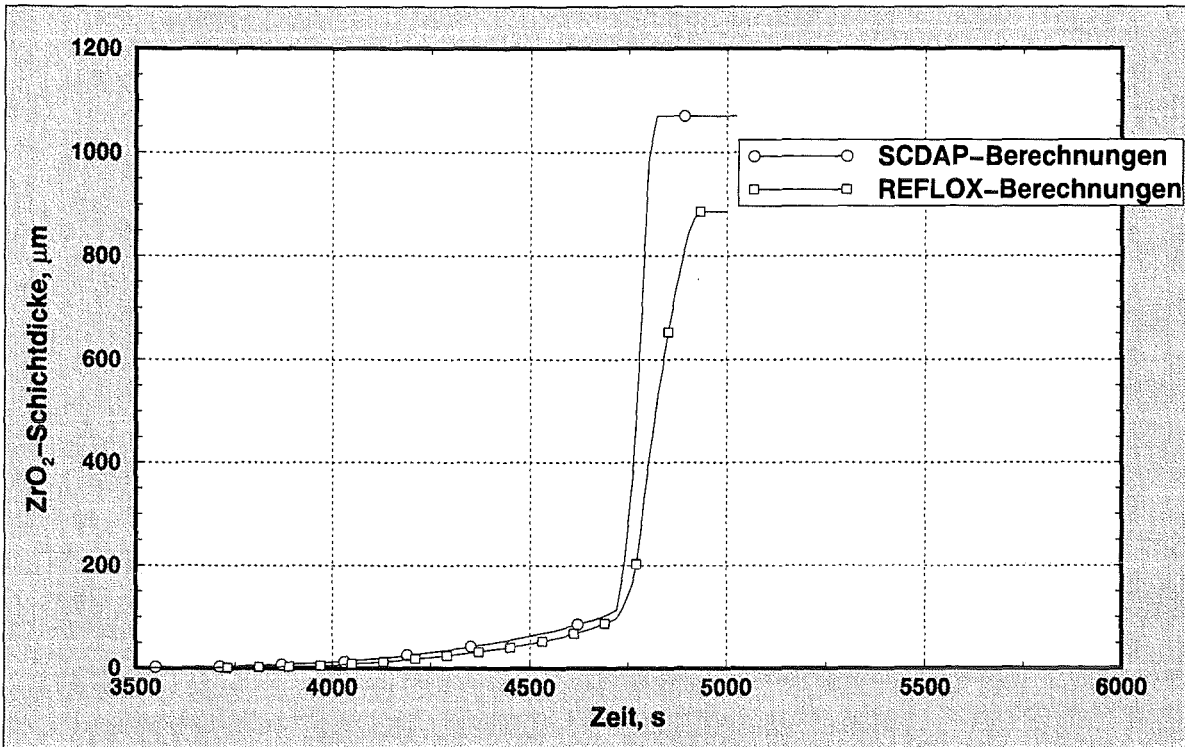


Abbildung 3.5: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO₂-Schichtdicke. Axiale Zone 4.

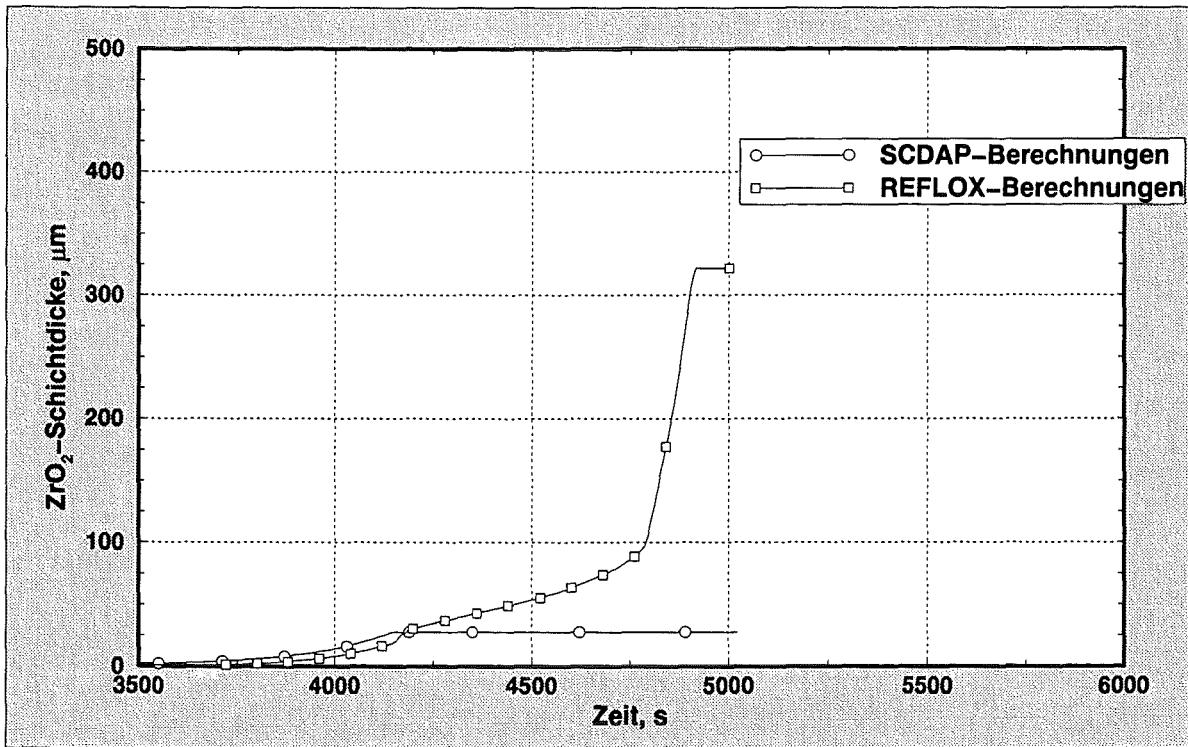


Abbildung 3.6: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO₂-Schichtdicke. Axiale Zone 5.

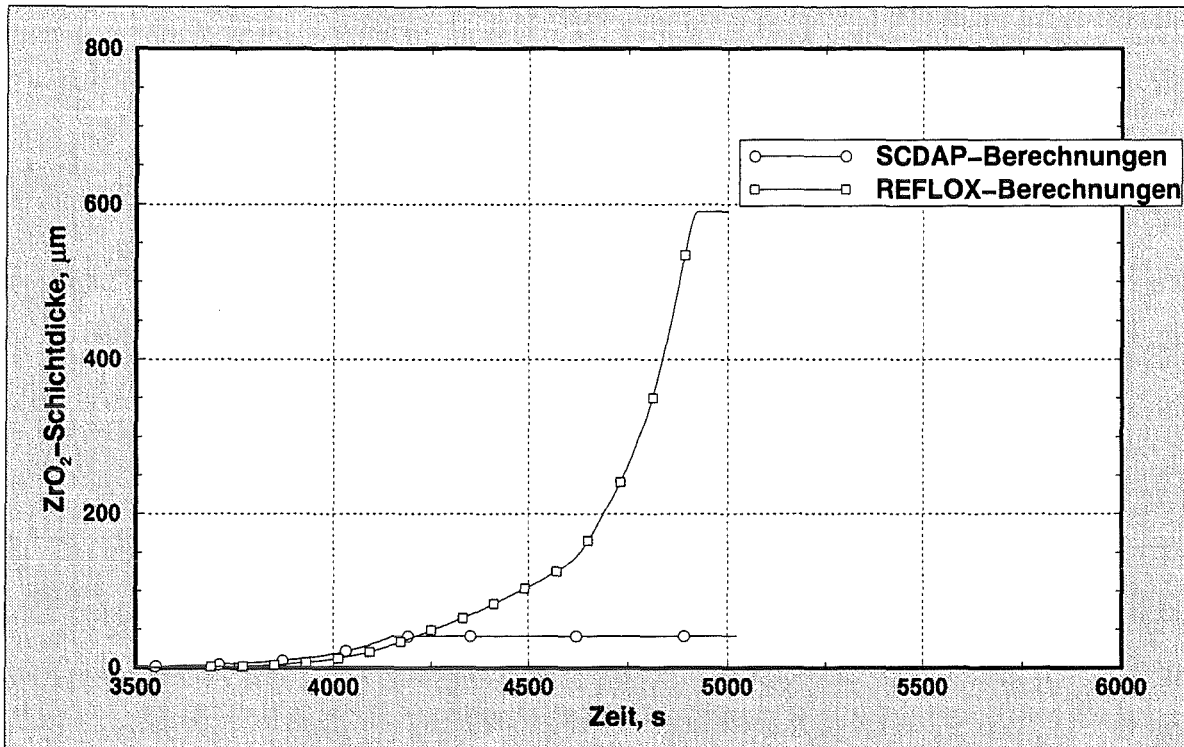


Abbildung 3.7: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 6.

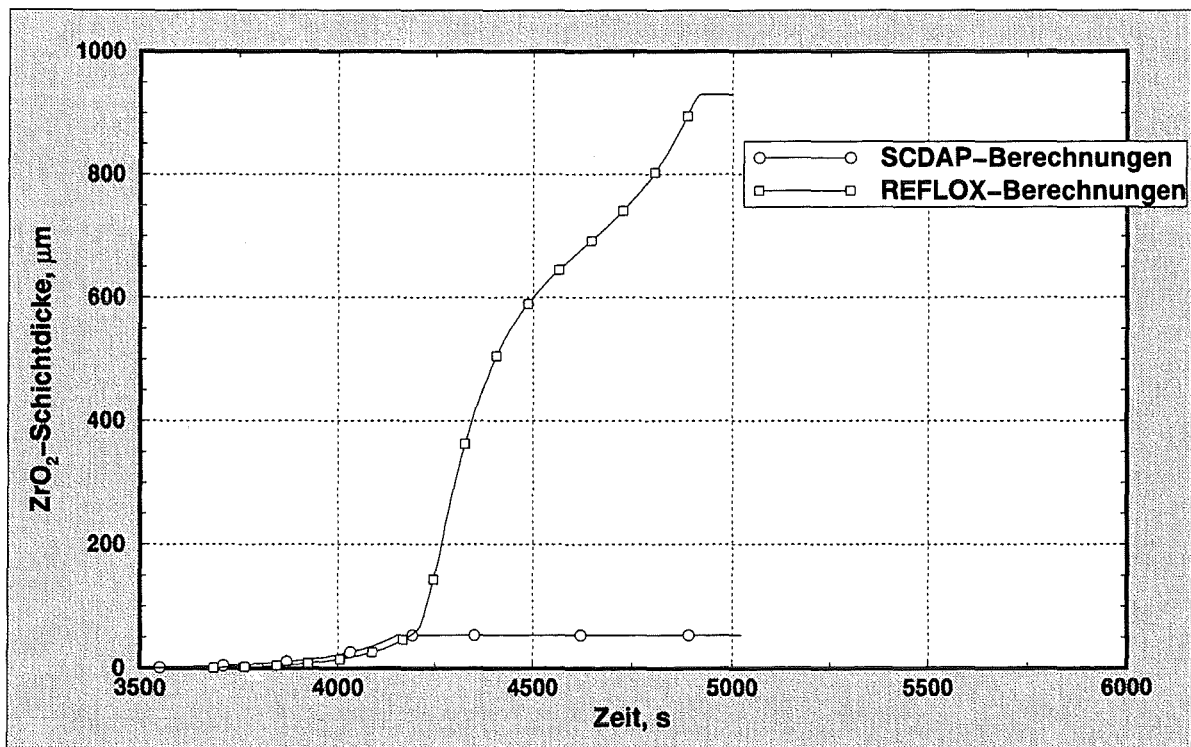


Abbildung 3.8: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 7.

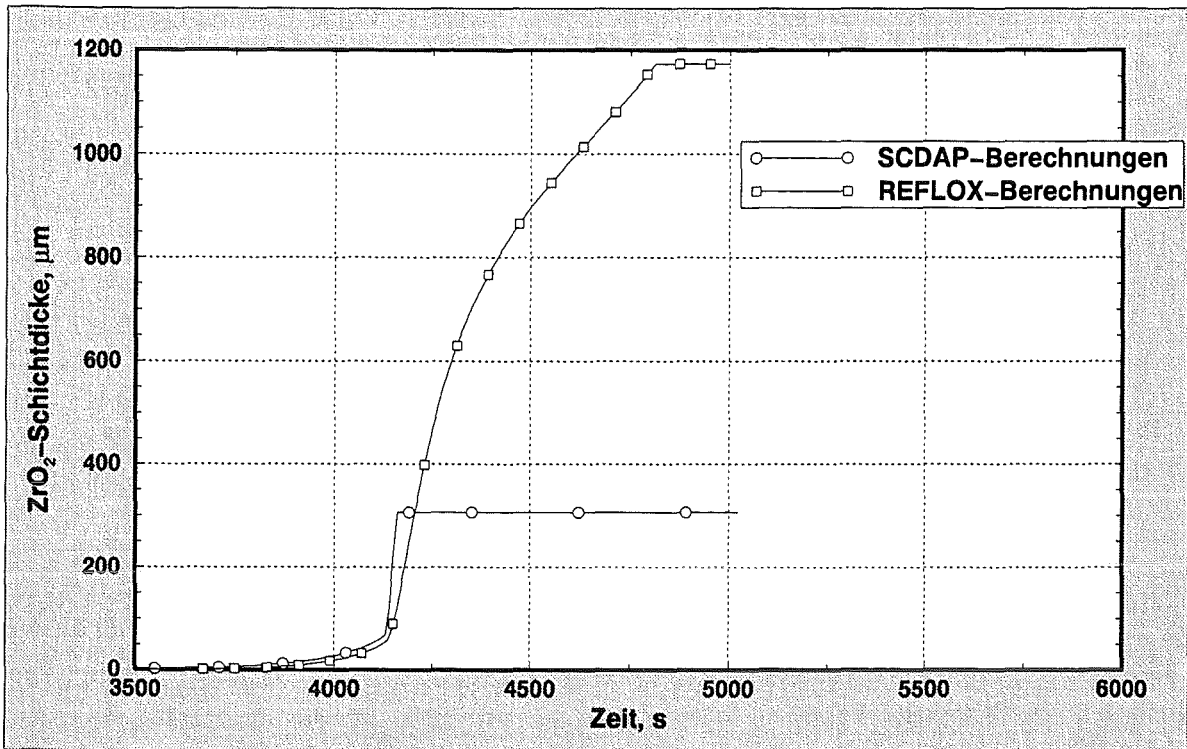


Abbildung 3.9: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO₂-Schichtdicke. Axiale Zone 8.

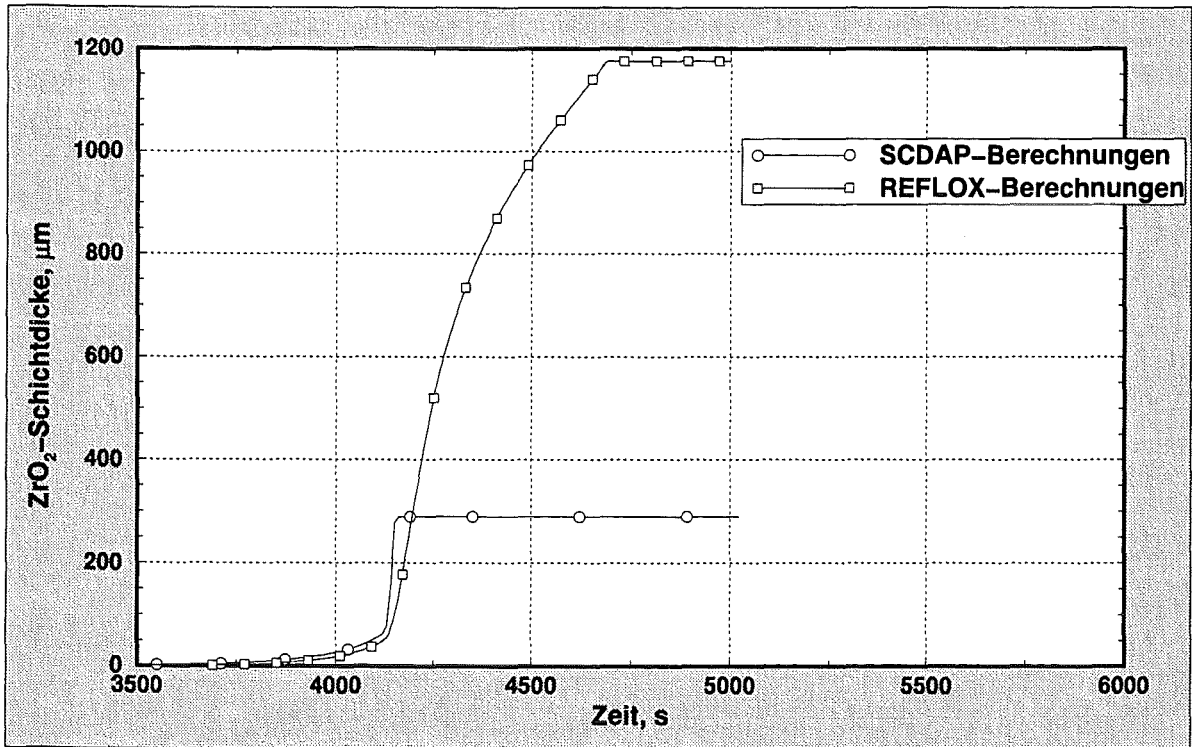


Abbildung 3.10: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO₂-Schichtdicke. Axiale Zone 9.

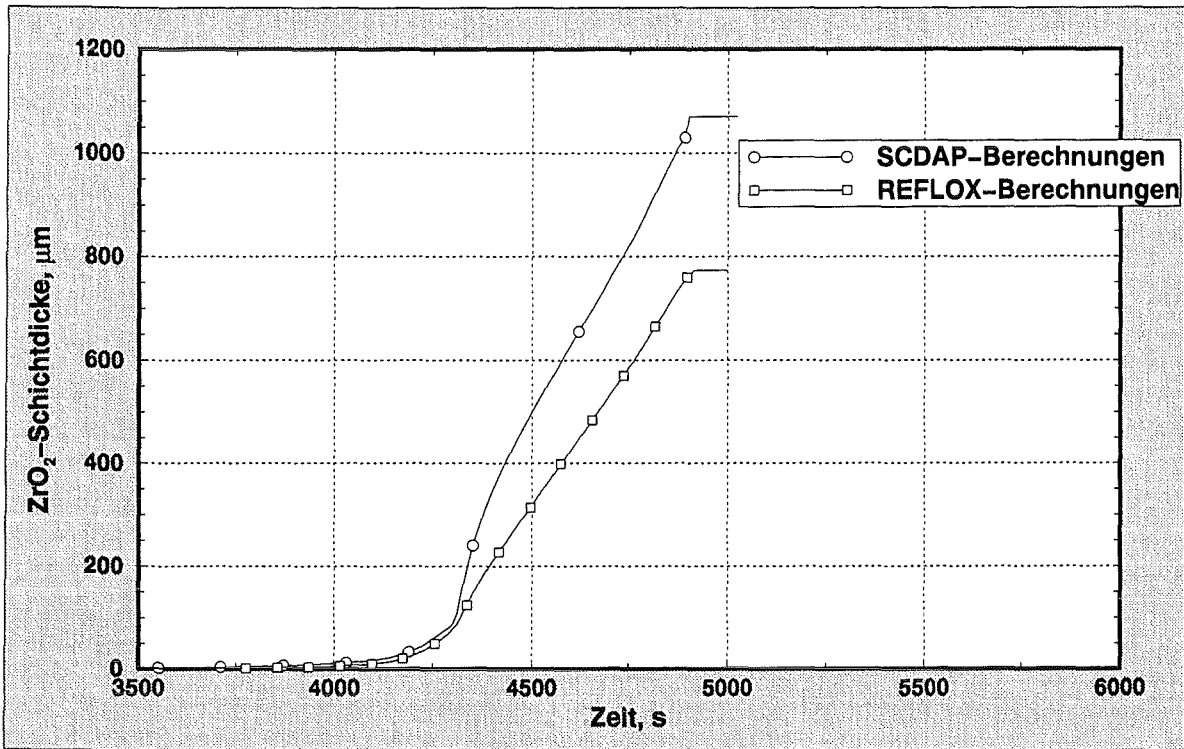


Abbildung 3.11: Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO₂-Schichtdicke. Axiale Zone 10.

3.4 Vergleich von REFLOX- und MELCOR-Ergebnissen

Die REFLOX-Validierung mit MELCOR wurde für den Europäischen Druckwasserreaktor (EPR) durchgeführt. Die Ergebnisse von MELCOR für einen typischen EPR-Unfall wurden als Eingabedaten für REFLOX eingesetzt. Wasserstoffproduktion und Oxidationsstatus des Kerns wurden als Hauptvergleichsparameter herangezogen.

Mit MELCOR wurde ein typischer EPR-Unfallablauf berechnet [59]. Da die Temperaturverteilung in verschiedenen Kernebenen in REFLOX als Eingabedaten betrachtet werden, werden nur diese Daten der MELCOR-Ergebnisse benötigt.

Der Reaktorkern ist in drei radiale Zonen eingeteilt. Jede Zone hat zehn axiale Ebenen. Diese Geometrie wurde in den REFLOX- und MELCOR-Berechnungen benutzt, wie Abbildung 3.12 zeigt. Die Kernparameter sind in Tabelle 3.2 aufgelistet. Nur das Zirkaloy, das in den Brennstäben vorhanden ist, wurde für die Berechnungen benutzt. Zusätzliche Zirkaloy-Materialien, wie Abstandshalter, in den REFLOX-Berechnungen werden nicht berücksichtigt. Die Menge des zusätzlichen Zirkaloy (Abstandshalter, Führungsrohre usw.) beträgt weniger als 14%. Dies sollte bei den zukünftigen Diskussionen von REFLOX-Berechnungen in Betracht gezogen werden. Das Dampfangebot wird während des gesamten Prozesses als unbegrenzt angenommen.

Kernhöhe, m	4.2
Anzahl der Brennelemente	241
Anzahl der Brennstäbe pro Brennelement	264
Stabdurchmesser, mm	9.5
Hüllrohrdicke, mm	0.64
Hüllrohrmaterial	Zry-4
Zirkaloy-Gesamtmasse, kg	36360

Tabelle 3.2: Parameter des EPR Reaktorkerns.

Die Temperaturverteilungen, die mit dem MELCOR-Programm berechnet und im REFLOX-Programm als Eingabedaten verwendet wurden, sind in den Abbildungen 3.13 – 3.15 dargestellt. Die plötzliche Temperatur-Absenkung in den MELCOR-Berechnungen wurde durch Kern-Schmelzen und Materialverlagerung in den unteren Bereich des Reaktorkerns verursacht. Da im REFLOX-Programm angenommen wird, daß die Geometrie des Reaktorkerns sich während der Berechnungen nicht ändert, wurde eine weitere Oxidation der verlagerten Schmelze nicht berücksichtigt. Die axiale Temperaturverteilung (vgl. Abbildungen 3.16 – 3.18) zeigt, daß nach 1400 Sekunden das gesamte Kernmaterial zum unteren Bereich des Reaktorkerns

verlagert wurde. Zu diesem Zeitpunkt wurden die REFLOX-Berechnungen beendet.

Die Ergebnisse der REFLOX-Berechnungen sind in den Abbildungen 3.19 – 3.21 dargestellt. Die Wasserstoffproduktionsrate (s. Abbildung 3.19) erreicht ihren maximalen Wert von 1 kg/s bei ca. 1400 s. Die zweite Spitze der Wasserstoffproduktionsrate bei 1650 Sekunden wird durch die verzögerte Aufheizung und Oxidation der dritten Zone verursacht, in welcher die Temperaturen nur nach 1500 Sekunden (vgl. Abbildung 3.15) höher als 1300 K werden. Die Gesamtmenge des Wasserstoffes, der während dieser relativ kurzen (500 Sekunden) Transientenphase freigesetzt wird, beträgt 70 kg (s. Abbildung 3.20). Dies entspricht 4.5% an oxidiertem Zirkaloy (basierend auf 36360 kg Zirkaloy-Gesamtmasse). Diese Ergebnisse stimmen mit MELCOR-Berechnungen gut überein. Das MELCOR-Programm sagt 50 kg Wasserstoff bei 1400 Sekunden voraus.

Die berechnete ZrO_2 -Schichtdicke (s. Abbildung 3.21) stimmt mit der axialen Temperaturverteilung gut überein (vgl. Abbildungen 3.16 – 3.18). Die höchste Menge des Zirkaloys wird im mittleren Bereich des Kerns oxidiert und die entsprechende ZrO_2 -Schichtdicke ist für diese kurze Transientenphase nicht größer als 200 μm .

Das Hauptziel dieser Berechnungen war, die Aussagefähigkeit des REFLOX-Programmes an einer realen Reaktorkern-Geometrie zu demonstrieren. Durch den Vergleich mit dem MELCOR-Programm konnte diese Fähigkeit bewiesen werden. Für die weitere Analyse soll die Berechnung des Abschreckens des Kerns und die dadurch ausgelöste Wasserstoffproduktion durchgeführt werden.

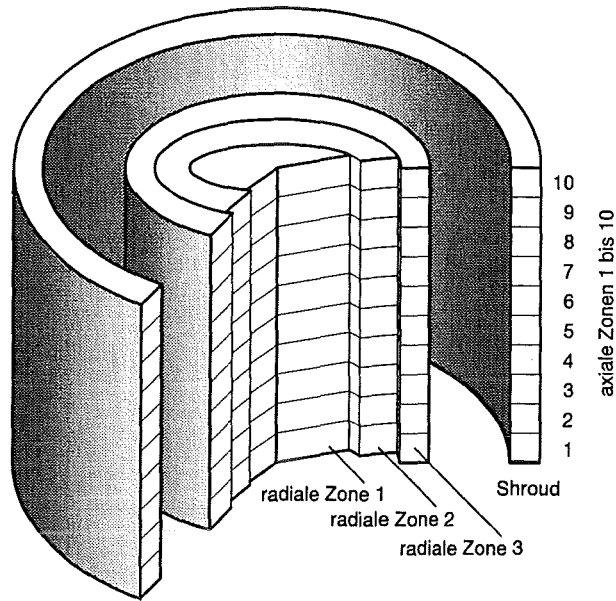


Abbildung 3.12: Geometrie des EPR-Kerns, die in den REFLOX- und MELCOR-Berechnungen benutzt wurde.

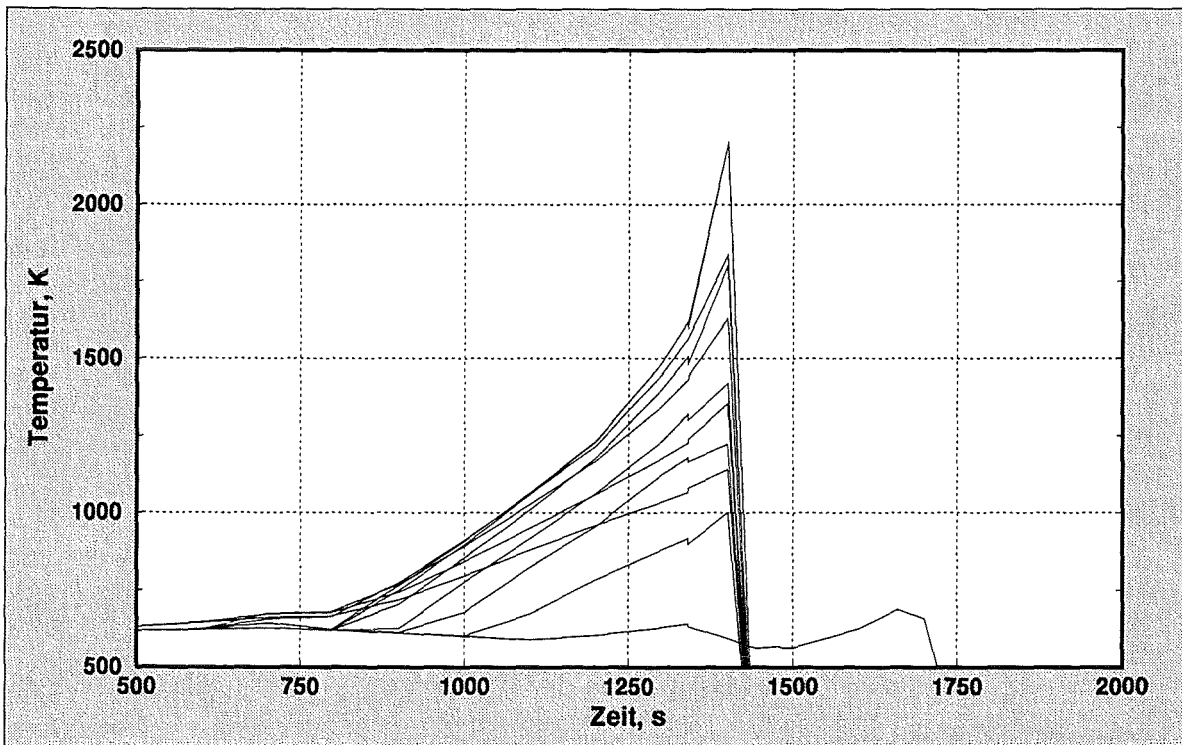


Abbildung 3.13: Kerntemperaturen in verschiedenen Ebenen, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 1.

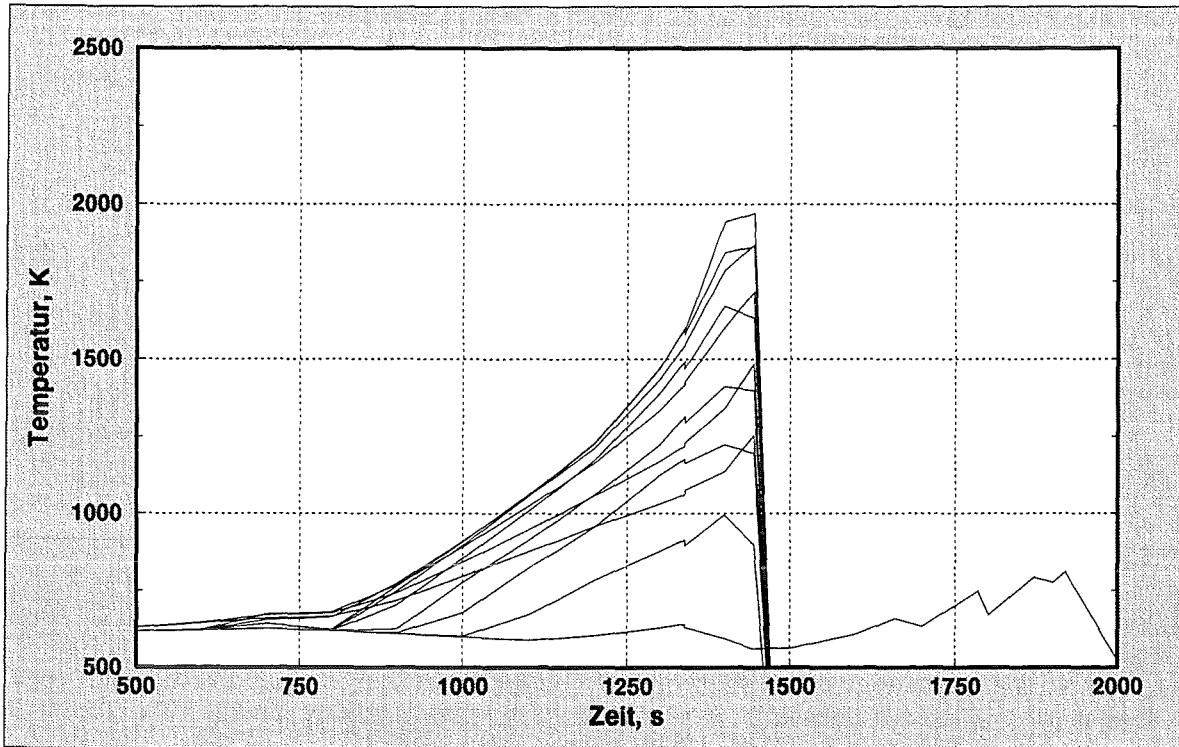


Abbildung 3.14: Kerntemperaturen in verschiedenen Ebenen, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 2.

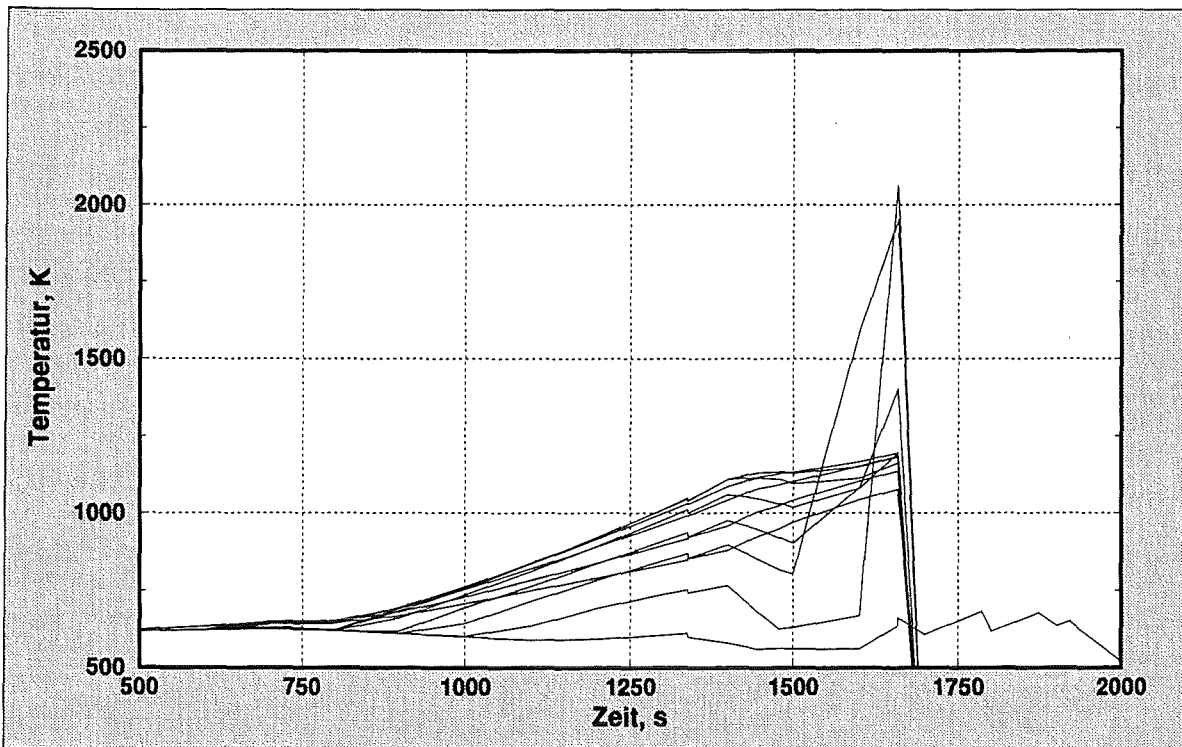


Abbildung 3.15: Kerntemperaturen in verschiedenen Ebenen, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 3.

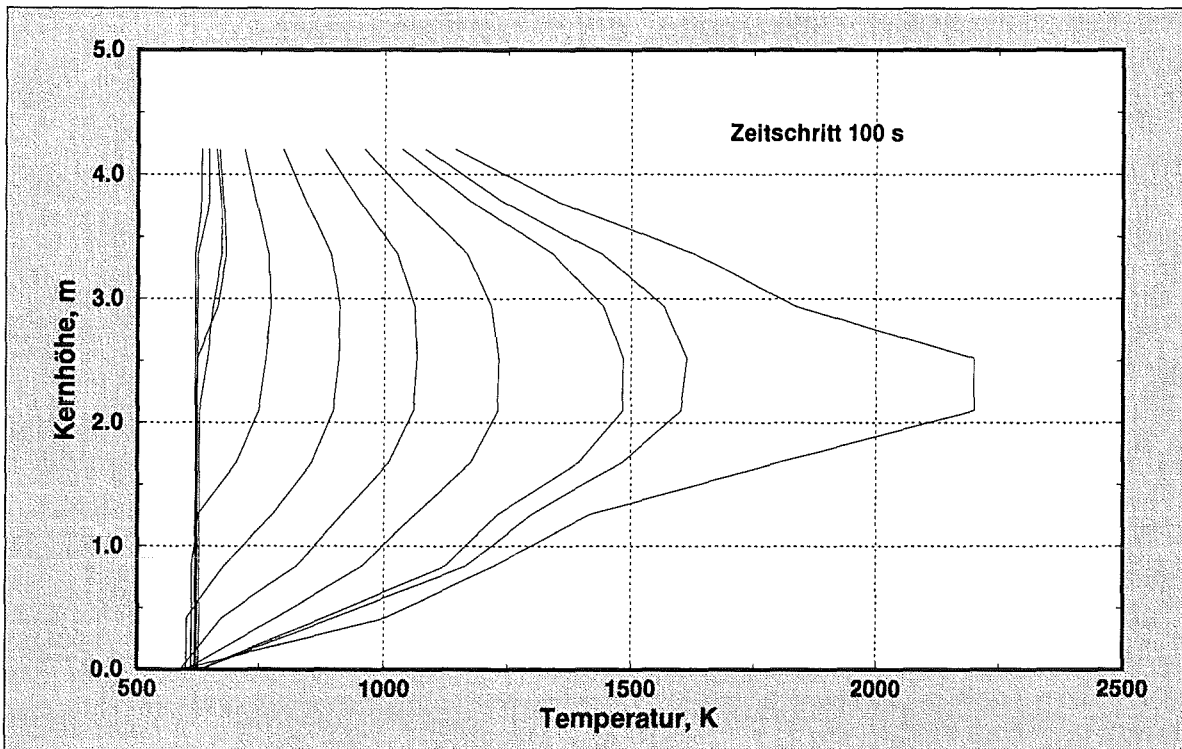


Abbildung 3.16: Axiale Temperaturverteilung, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 1.

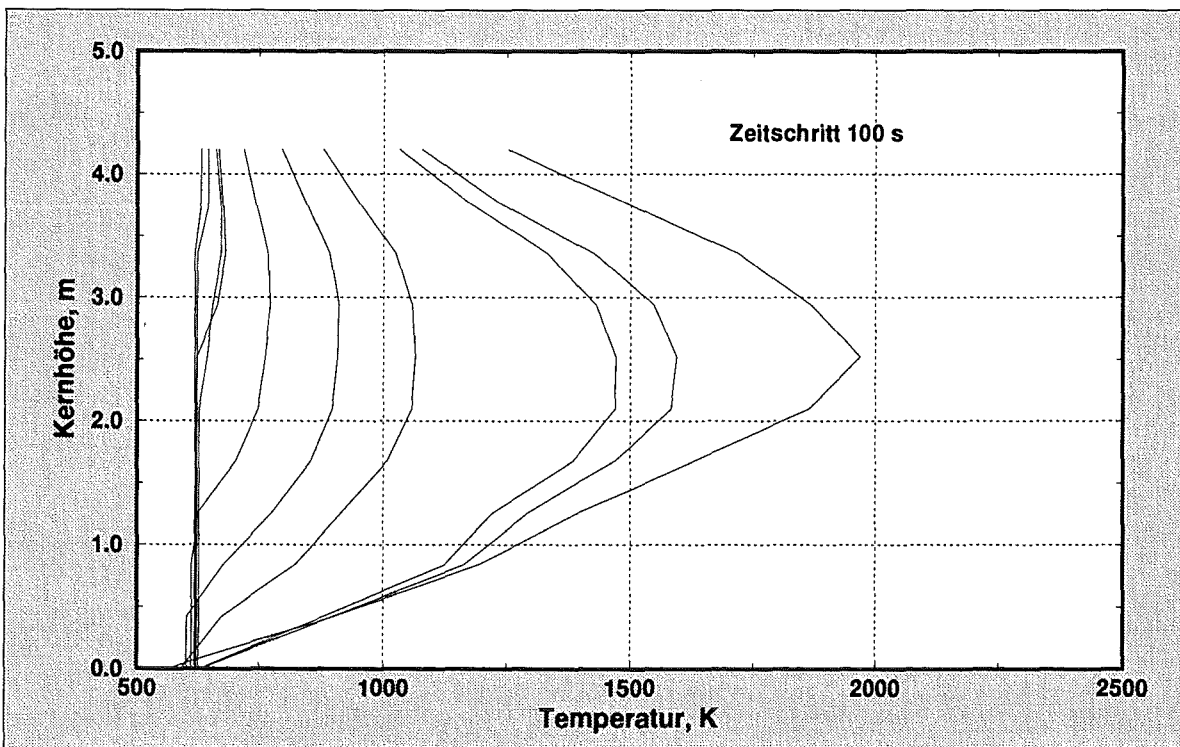


Abbildung 3.17: Axiale Temperaturverteilung, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 2.

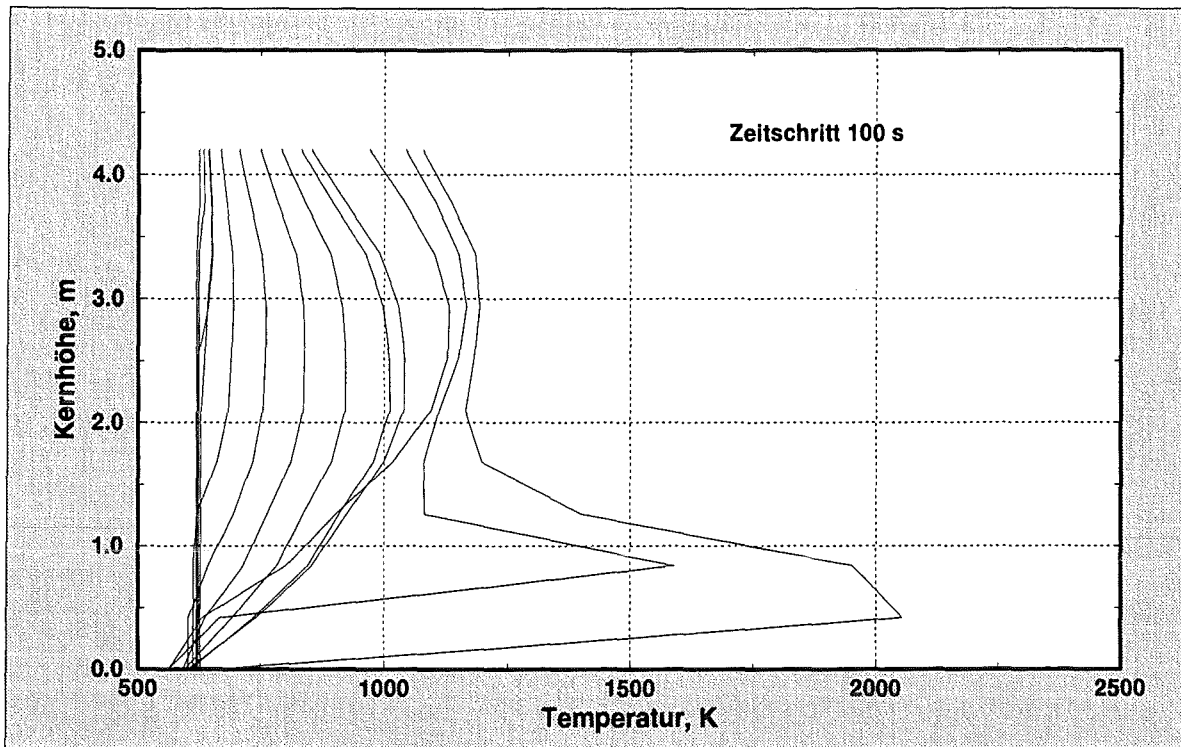


Abbildung 3.18: Axiale Temperaturverteilung, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 3.

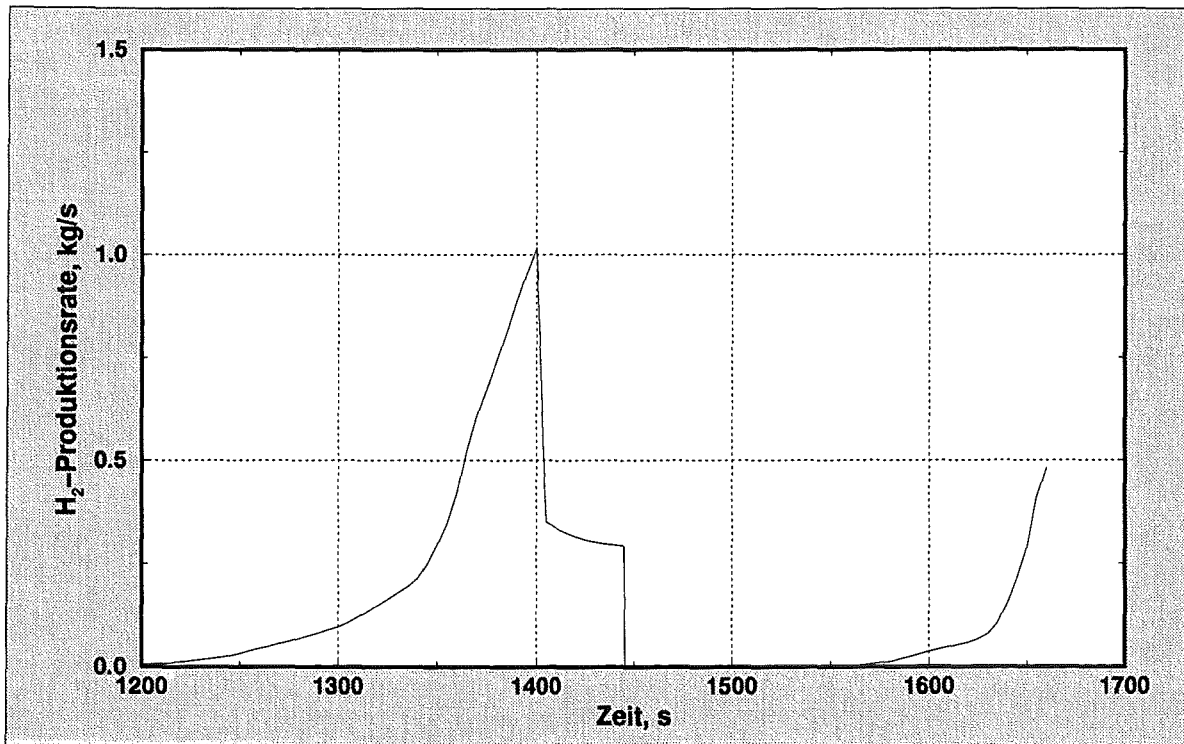


Abbildung 3.19: Wasserstoffproduktionsrate, mit REFLOX berechnet.

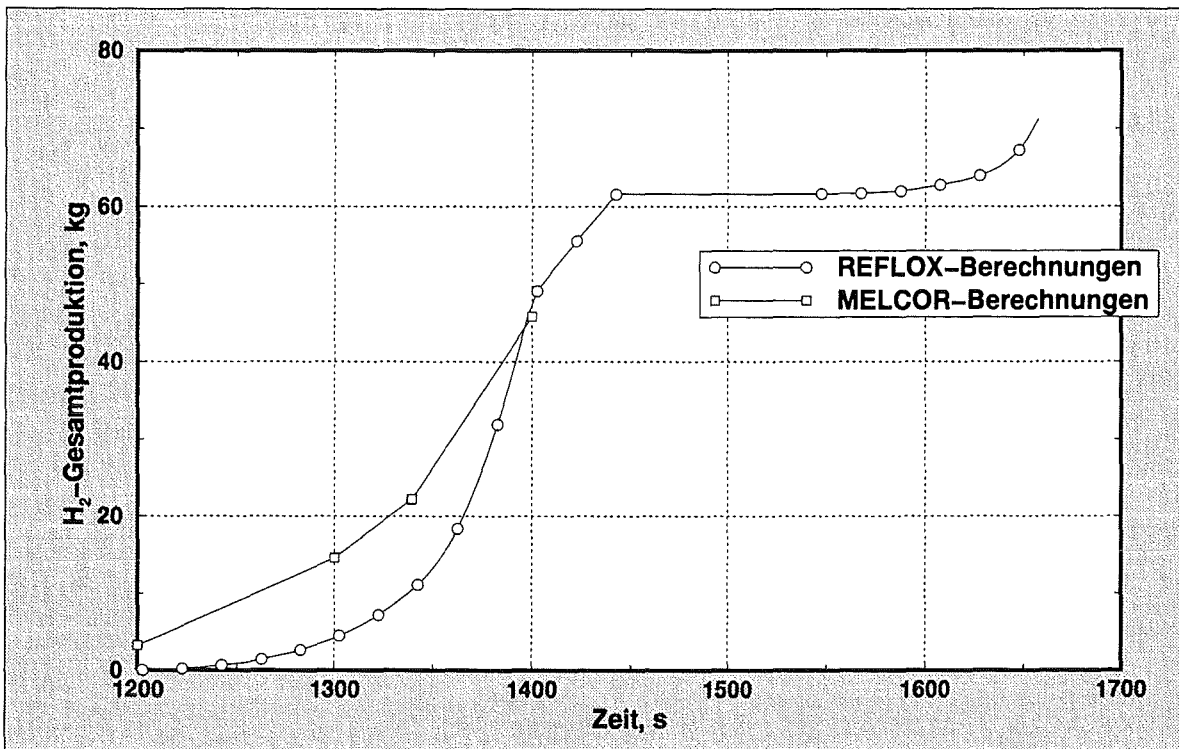


Abbildung 3.20: Vollständige Wasserstoffproduktionsrate, Vergleich REFLOX und MELCOR.

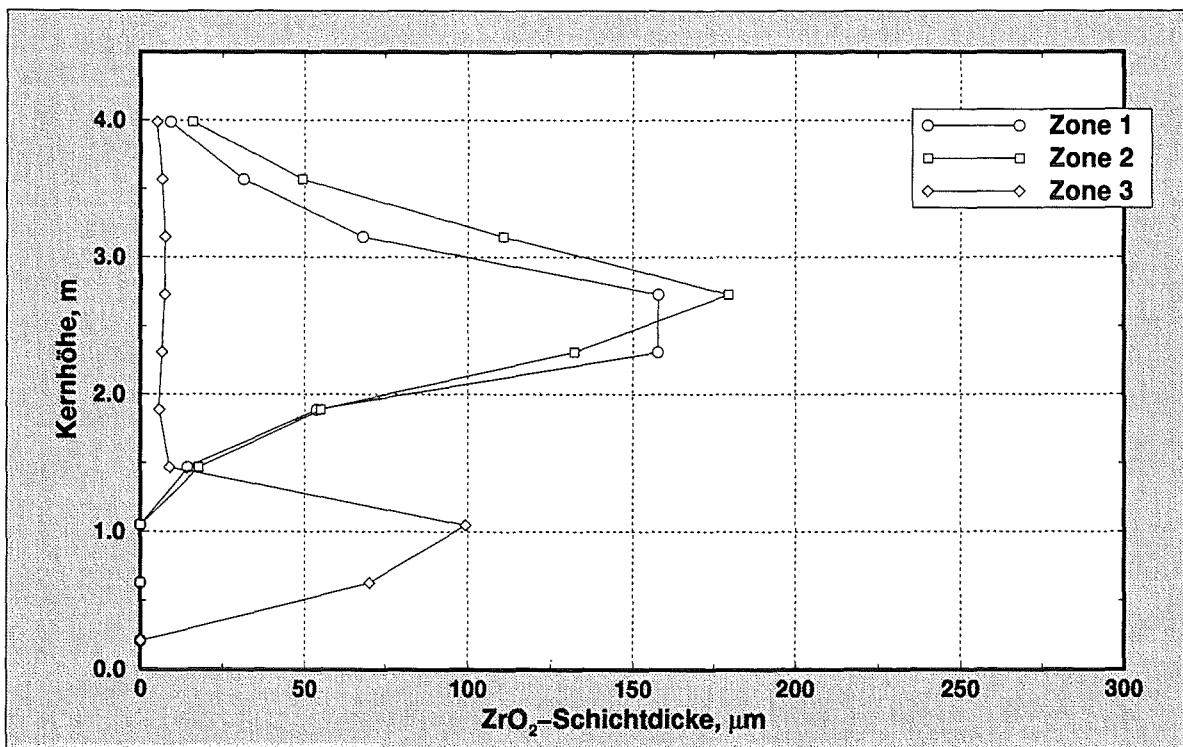


Abbildung 3.21: ZrO₂-Schichtdicke in drei verschiedenen radialen Zonen, Ergebnisse REFLOX.

4 Verifikation des REFLOX-Programmes bei der Analyse von CORA-Experimenten

4.1 Beschreibung der CORA-Experimente

Im Rahmen der internationalen Erforschungen von Unfallabläufen, die zu schweren Kernschäden führen ("Severe Fuel Damage" SFD) wurden Experimente in der Out-of-pile-Versuchsanlage CORA durchgeführt. Das experimentelle Programm wurde eingesetzt, um Daten über Versagen von LWR-Brennelementmaterialien bei Temperaturen zwischen 1200°C und 2000°C und in manchen Fällen bis zu 2400°C zu liefern. In den CORA-Experimenten wurde der Schwerpunkt auf folgende Untersuchungen gelegt:

- UO₂-Auflösung im geschmolzenen Zirkaloy als Funktion der Aufheizrate, maximaler Temperatur und Brennstoff/Hülle Kontaktdruck,
- Anstieg der Temperatur, die durch eine exotherme Zirkon-Wasserdampf-Reaktion ausgelöst wird,
- Effekte der Verlagerung des geschmolzenen Zirkaloy, Oxiddicke, Wasserstoffherzeugung und des lokalen Wasserdampfgesamtverbrauches ("steam starvation"),
- Bestimmung des Einflusses der Abstandhalter, Absorbermaterialien und Kontrollstäbe am Brennstoffstabverhalten und -versagen,
- Auswertung der Fragmentierung stark beschädigter Brennstäbe während des Abschreckens, um entstehende Trümmer zu charakterisieren,
- Verhalten der geschmolzenen Phasen im Kernbündel und die Wechselwirkung dieser Phasen mit Dampf, einschließlich des Oxidations- und Erstarrungsverhaltens der (U, Zr, O) Schmelze.

In der Zeit zwischen 1987 und 1992 wurden insgesamt 17 CORA-Experimente mit zwei verschiedenen DWR- und SWR-typischen Bündelgeometrien durchgeführt. Diese Bündel repräsentieren Brennelemente mit den dazugehörigen Brennstoffelementen, Hüllrohren, Absorberma-

terialien und Abstandhaltern. Die angemessene Wahl von Anfangsbedingungen in Bündel-Experimenten ermöglicht es, den Einfluß von verschiedenen Komponenten oder experimentellen Bedingungen am Unfallverlauf zu analysieren.

Die Experimente, die in Rahmen des CORA-Versuchsprogrammes durchgeführt wurden, sind in Tabelle 4.1 aufgelistet. Die sind im Folgenden kurz beschrieben:

- CORA-2 und CORA-3 waren die ersten Versuche mit UO_2 -Pelletmaterial, um die Unfallabläufe, die zu schweren Kernschäden führen, zu simulieren. In beiden Experimenten wurden keine Absorberstäbe eingesetzt. Diese Versuche sollten die Testverfahren und Brennstab/Hülle Wechselwirkung demonstrieren. CORA-3 wurde als Hochtemperatur-experiment ($T \approx 2400 \text{ }^\circ\text{C}$) durchgeführt [32].
- In den Versuchsbündeln CORA-5 und CORA-12 wurden DWR-spezifische Absorbermaterialien (Ag, In, Cd) eingesetzt [33]. CORA-12 war das Experiment, in dem das heiße Bündel durch Wasser abgeschreckt wurde.
- CORA-16 und CORA-17 waren die ersten Versuche mit SWR-typischen Bündeln. CORA-17 war ein Experiment, in dem das heiße Bündel durch Wasser abgeschreckt wurde [34].
- Im DWR-spezifischen Versuchsbündel von CORA-15 wurden alle Stäbe, ausgenommen der zwei Absorberstäbe, mit Innendruck beaufschlagt, um den Einfluß des Aufblähens der Brennelement-Hüllrohre auf das Materialverhalten des Bündels zu untersuchen [35].
- Bei CORA-9 mit DWR-typischem Bündel wurde ein erhöhter Systemdruck von 10 bar simuliert, um die Prozesse der Brennstoff/Hüllrohr-Wechselwirkung zu untersuchen.
- Die Experimente CORA-7 (DWR-Bündel) und CORA-18 (SWR-Bündel) wurden bei Temperaturen unterhalb $2000 \text{ }^\circ\text{C}$ beendet, um Informationen über die chemische Zusammensetzung der Reaktionsprodukte bei niedrigen Temperaturen zu erhalten [36].
- CORA-13 war ein Versuch mit DWR-spezifischem Bündel, in dem das heiße Bündel bei höheren Temperaturen als bei CORA-12 durch Wasser abgeschreckt wurde. Der Versuch CORA-13 wurde von OECD/CSNI als Internationales Standardproblem ISP-31 für einen Codevergleich ausgewählt [37].
- Die Versuche CORA-28 und CORA-29 waren das DWR- bzw. SWR-Experiment mit voroxidierten Bündelkomponenten [38].

- Die Versuche CORA-30 (DWR-Bündel) und CORA-31 (SWR-Bündel) wurden mit einer geringeren Anfangsaufheizrate ($0.2 \text{ K/s} - 0.3 \text{ K/s}$) als alle vorangegangenen Versuche durchgeführt [39].
- CORA-10 war ein Versuch mit PWR-spezifischem Bündel und einer reduzierten Dampfzufuhr von 2 g/s . Die Isolation am unteren Bündelende wurde entfernt, um einen großen axialen Temperaturgradienten zu erreichen und die Krusten- bzw. Blockadebildung durch verlagerte Schmelzen untersuchen [40].
- Bei CORA-33 mit SWR-typischem Bündel wurde das Materialverhalten unter sogenannten "Trockener Kern" Bedingungen untersucht. Dies war der einzige Versuch, in dem kein Dampf vom Verdampfer und Überhitzer präsent war. Die einzige Dampfquelle war das Wasser, das sich im Zylinder unterhalb der Teststrecke befand [41].
- Am Ende des CORA-Programmes wurden zwei WWER-1000-spezifische Versuche CORA-W1 und CORA-W2 mit echten WWER-typischen Materialien durchgeführt. Im Versuch CORA-W1 wurde das Hochtemperatur-Materialverhalten von WWER-1000-Brennelementen ohne Absorbermaterial und im Versuch CORA-W2 mit B_4C -Absorbermaterial untersucht [42, 43].

Die CORA-Anlage ist im Wesentlichen aus drei Funktionsgruppen aufgebaut [44]: Dem Dampferzeugersystem, der Teststrecke mit Abschreckvorrichtung und dem Abgassystem (s. Abbildung 4.1).

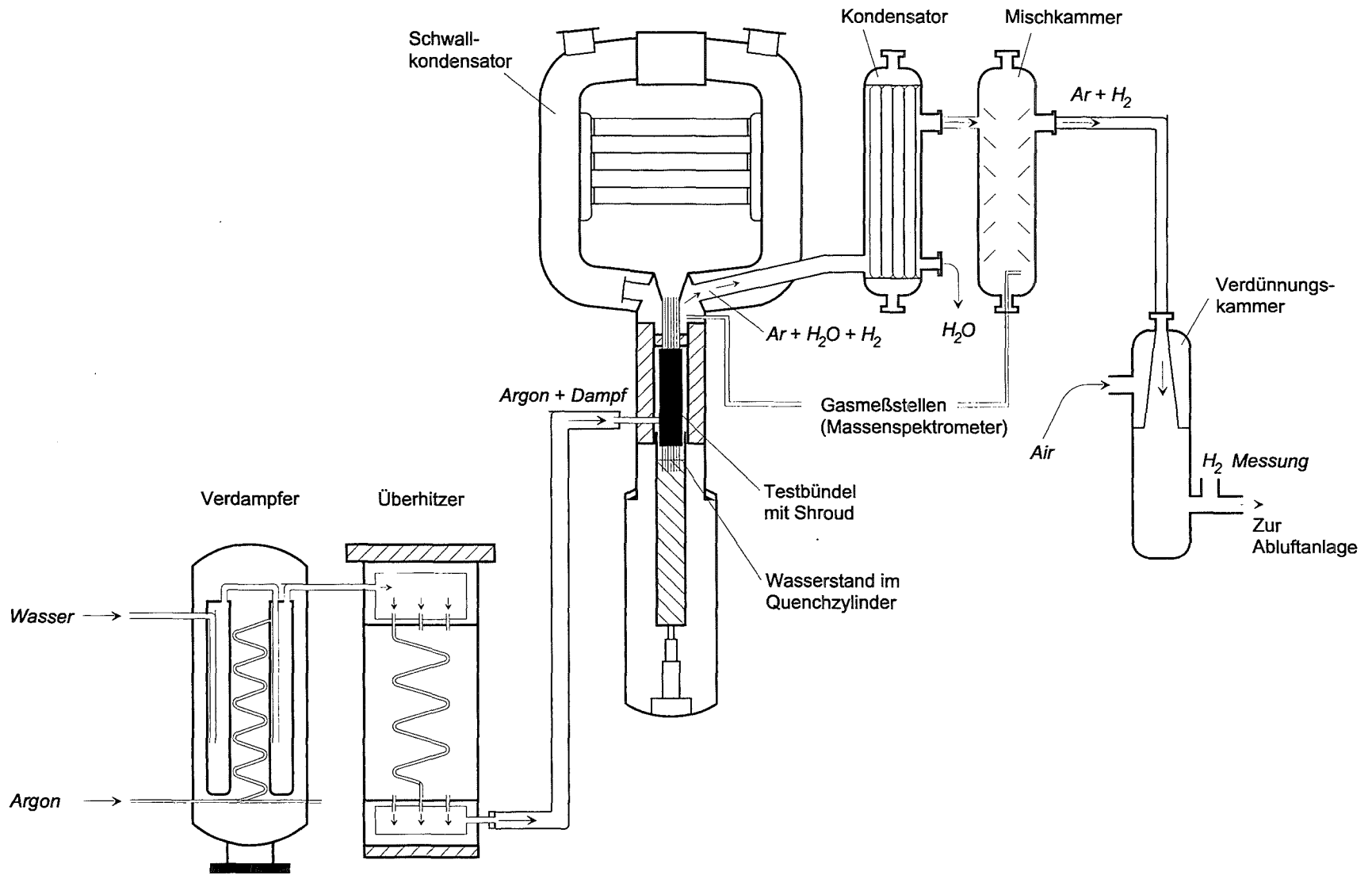
Der Dampferzeuger und der Dampfüberhitzer sind innerhalb des CORA-Druckbehälters angebracht. Im Dampferzeugersystem wird Wasser ($T \approx 300\text{K}$) auf eine heiße Oberfläche ($T \approx 600\text{K}$) gesprüht, wodurch eine konstante Verdampfungsrate erreicht wird. Zusätzlich wird im Verdampfer Argon in einer separaten Rohrspirale aufgeheizt und mit dem leicht überhitzten Dampf gemischt. Dieses Gemisch wird im nachgeschalteten Dampfüberhitzer auf maximal ca. 1000 K aufgeheizt. Die maximale Dampfflußrate liegt bei 33 g/s .

Der zentrale Teil der Anlage ist das Brennstab Bündel (s. Abbildung 4.2). Das Bündel kann aus maximal 32 beheizten Stäben, 20 unbeheizten Stäben und 5 DWR-typischen Absorberstäben bestehen. Der Abstandhalter gewährleistet einen DWR-spezifischen Rasterabstand von 14.3 mm . Dies ergibt eine 9×9 -Matrix, wobei an den vier Ecken jeweils 6 Positionen frei bleiben. Für die obere Kühlung des Bündels sind alle beheizten Stäbe und Thermoelemente zur Wärmeabfuhr von Wasser umspült, das während des Versuches maximal ca. 350 K erreichen kann. Das Wasser wird im Wärmetauscher gekühlt. Am unteren Ende werden die beheizten Stäbe

Test Nr.	Max. Hüllrohrtemperaturen	Absorbermaterial	Weitere Testbedingungen	Testdurchführung
DWR- und SWR-spezifische Versuche				
2	≈ 2000 °C	–	UO ₂ -Referenztest, Inconel-Abstandshalter	06.08.1987
3	≈ 2400 °C	–	UO ₂ -Hochtemperaturtest Inconel-Abstandshalter	03.12.1987
5	≈ 2000 °C	Ag, In, Cd	DWR-Absorberstab	26.02.1988
12	≈ 2000 °C	Ag, In, Cd	Quenchen	09.06.1988
16	≈ 2000 °C	B ₄ C	SWR-Absorberstab	24.11.1988
15	≈ 2000 °C	Ag, In, Cd	Hoher Stabinnendruck	02.03.1989
17	≈ 2000 °C	B ₄ C	SWR, Quenchen	29.06.1989
9	≈ 2000 °C	Ag, In, Cd	Hoher Systemdruck, 10 bar	09.11.1989
7	< 2000 °C	Ag, In, Cd	57-Stäbe, langsame Abkühlung	22.02.1990
18	< 2000 °C	B ₄ C	59-Stäbe, langsame Abkühlung	21.06.1990
13	≈ 2200 °C	Ag, In, Cd	OECD/ISP-31; Quenchen bei höheren Temperaturen	15.11.1990
29	≈ 2000 °C	Ag, In, Cd	DWR-spezifische Voroxidation	11.04.1991
31	≈ 2000 °C	B ₄ C	langsame Aufheizung (≈0.3 K/s)	25.07.1991
30	≈ 2000 °C	Ag, In, Cd	langsame Aufheizung (≈0.2 K/s)	30.10.1991
28	≈ 2000 °C	B ₄ C	SWR-spezifische Voroxidation	25.02.1992
10	≈ 2000 °C	Ag, In, Cd	reduziertes Dampfangebot (2 g/s)	16.07.1992
33	≈ 2000 °C	B ₄ C	trockener Kern (ohne Dampf), Aufheizung 0.3 K/s	01.10.1992
WWER-spezifische Versuche				
W1	≈ 2000 °C		Referenzversuch	18.02.1993
W2	≈ 2000 °C	B ₄ C	mit Absorberstab	21.04.1993

Tabelle 4.1: CORA-Testmatrix.

Abbildung 4.1: Systemkomponenten der CORA-Versuchsanlage.



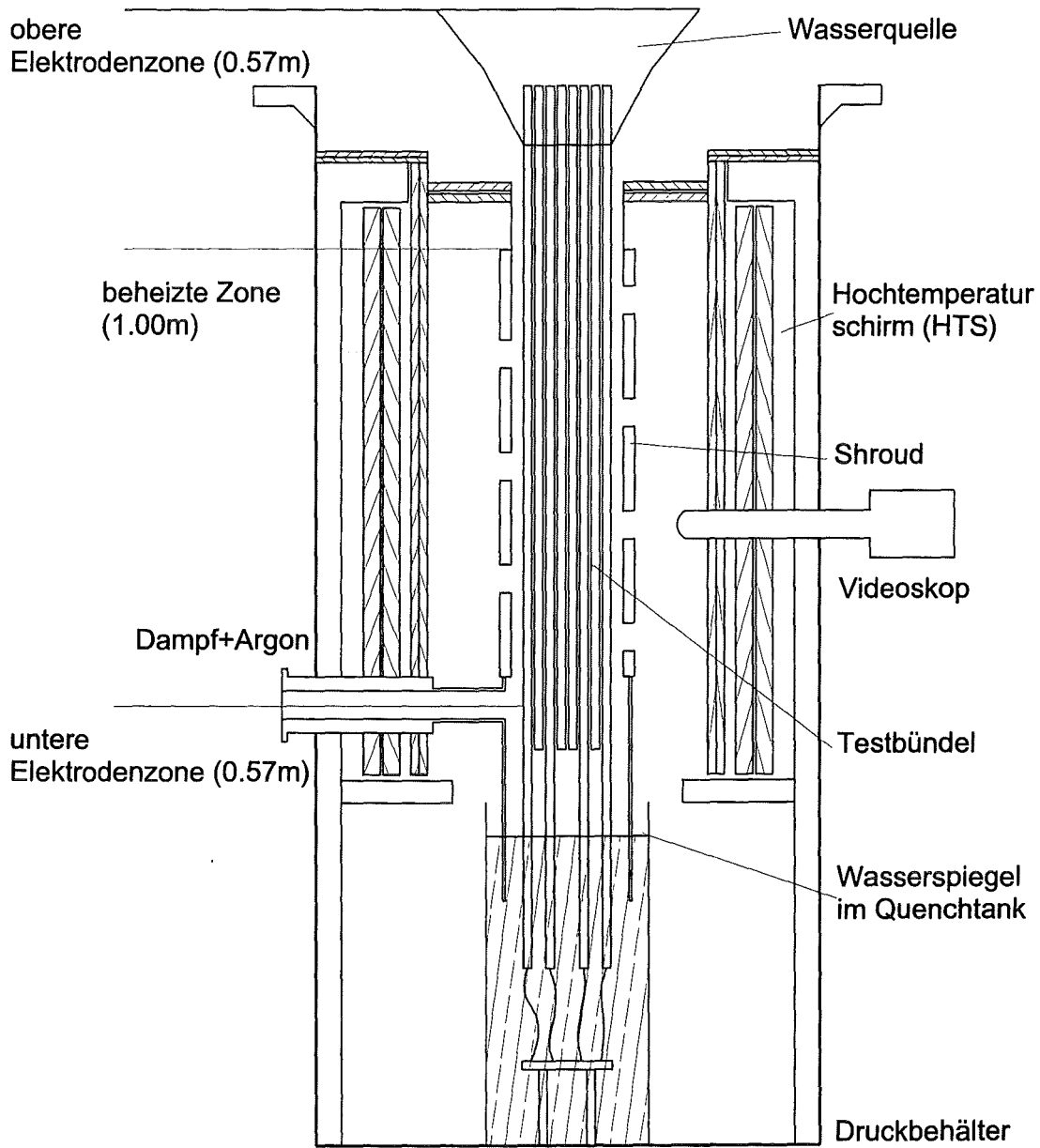


Abbildung 4.2: Teststrecke der CORA-Versuchsanlage.

mit Wasser in der Abschreckvorrichtung gekühlt. Der Anfangswasserstand der Abschreckvorrichtung befindet sich in der -220 mm Ebene. Die unbeheizten Stäbe sind nur durch eine Verbindung mittels Thermoelementen im Kontakt mit Wasser. Die Abschreckvorrichtung besteht aus einem 70 l fassenden Zylinder und einer dazugehörigen hydraulischen Hubvorrichtung.

Der beheizte Stab befindet sich innerhalb eines PWR-typischen Zirkaloy-Hüllrohres und besteht aus UO_2 -Pellets mit zentralem Erhitzer. Der Erhitzer selbst besteht aus einem 1024 mm langen Wolframstab und ist an beiden Enden an Molybdän-Elektroden geschraubt, die direkt am Zirkaloy-Hüllrohr befestigt sind. Die Molybdän-Elektroden sind mit Kupfer-Elektroden verbunden. Beide Elektroden sind von der Zirkaloy-Hülle durch eine 0.2 mm dicke ZrO_2 -Schicht isoliert. Das Zirkaloy-Hüllrohr und die Molybdän-Elektroden sind mittels Quetschdichtungen abgeschlossen. Am oberen Anschlußstück ist ein Kapillarrohr befestigt, um einen angemessenen Innendruck innerhalb der Brennstab-Simulatoren zu produzieren. Große flexible Kabel liefern eine Verbindung zum elektrischen System. Die Brennstäbe sind am oberen Bündelflansch in der Bündelkopfplatte befestigt und dort druckdicht abgeschlossen.

Der ca. 1.5 m lange unbeheizte Stab entspricht in seinen Abmessungen und seinem Aufbau einem normalen DWR-Brennstab und besteht aus festen UO_2 -Pellets (ca. 9.2 mm Durchmesser und 10 mm Länge) innerhalb des Zirkaloy-Hüllrohres. Die unbeheizten Stäbe sind nur am oberen Bündelflansch fixiert und enden 20 mm oberhalb der Wasseroberfläche in der Abschreckvorrichtung. Am Ende des Stabes ist ein Kapillarrohr befestigt. Durch dieses strömt Argon, mit dem der Innendruck erzeugt wird.

Die verwendeten Absorberstäbe entsprechen in Dimension und chemischer Zusammensetzung (80% Ag, 15% In, 5% Cd) den DWR-Absorberstäben und befinden sich innerhalb des Zirkaloy- oder Edelstahl-Führungsrohres. Der Kontakt zu den Brennstäben ist durch Zirkaloy- oder Inconel-Abstandshalter gewährleistet.

In der beheizten Zone ist das Bündel mit einem 1.2 mm dicken Zirkaloyblech ummantelt. Dieses Blech ist mit einer 19 mm dicken ZrO_2 -Faserschicht isoliert, um die Wärmeverluste so gering wie möglich zu halten. Die Blechummantelung unterliegt denselben Oxidationsmechanismen wie die Hüllrohre der Stäbe. Durch die entstandene Oxidationswärme steigen damit die Ummantelungs-Temperaturen entsprechend den Temperaturen der Stäbe im Bündel.

Durch den Ringraum von der Ummantelungsisolierung getrennt beginnt im Abstand von 153 mm der Hochtemperaturschirm (HTS). Die Isolationsschicht des HTS besteht innen aus 38 mm starken ZrO_2 -Faserplatten und außen aus 76 mm dicken Al_2O_3 -Faserplatten. Der HTS befindet

sich innerhalb des Druckbehälters, in dem mehrere Sichtfenster für das Bündel existieren. Diese Öffnungen erlauben die kontinuierliche Registrierung der Schadensentwicklung des Bündels durch Verwendung von Videoskopen.

Unterhalb des HTS befindet sich die Abschreckvorrichtung, bestehend aus dem zylindrischen Tank, welcher mit kontrollierter Geschwindigkeit nach oben gefahren werden kann. Der Zylinder ist durch drei Stäbe geführt, die auch den elektrischen Strom zum unteren Ende des Bündels liefern.

Während des Experimentes wird eine große Menge von Temperatur-, Flußraten- und anderen Bündel- und Anlage-Parametern gemessen. Die elektrische Stromversorgung wird für jeden Stab durch Messung der Spannung an Stabgruppen für jeden Stab individuell durchgeführt. Zur Temperaturmessung in den Hochtemperaturbereichen von Bündel und Shroud werden 32 WRe-5–WRe-26 Thermoelemente verwendet. An der inneren Oberfläche des HTS sind 32 gekapselte WRe-3–WRe25 Thermoelemente angeordnet. Dies erlaubt eine Messung von radialem und axialem Temperaturprofil in Shroud und HTS.

Die Gaszusammensetzung während der CORA-Versuche wird mit zwei Quadrupol-Massenspektrometern bestimmt. Diese sind an zwei Stellen innerhalb des Druckbehälters mittels Kapillarrohren mit der Entnahmesonde verbunden (vgl. Abbildung 4.3). Ein System analysiert das trockene Gas in Mischkammer 1 nach dem Kondensator, das andere analysiert das Gas direkt oberhalb des Bündels an der Anschlußstelle einer der Abgasrohre. Dieses Gas enthält einen großen Anteil an Wasserdampf und wird deswegen vor dem Eingang zum Analysator mit Helium verdünnt. Die Gleichung für die quantitative Auswertung der Wasserstoffmessungen lautet:

$$R_m = 2P_H \cdot F_{Ar} / (22.4[g/l]P_{Ar}), \quad (4.1)$$

mit

R_m – Wasserstoffproduktionsrate, g/s,

P_H – Wasserstoff-Partialdruck, bar,

P_{Ar} – Argon-Partialdruck, bar,

F_{Ar} – Argonfluß durch Mischkammer 1, l/s.

Wasserstoff- und Dampf-Partialdruck werden aus den im Massenspektrometer gemessenen Ionen-Strömen berechnet. Die Partialdrücke sind so korrigiert, daß die Summe der Partialdrücke aller Gase in der Mischkammer den Totaldruck ergibt.

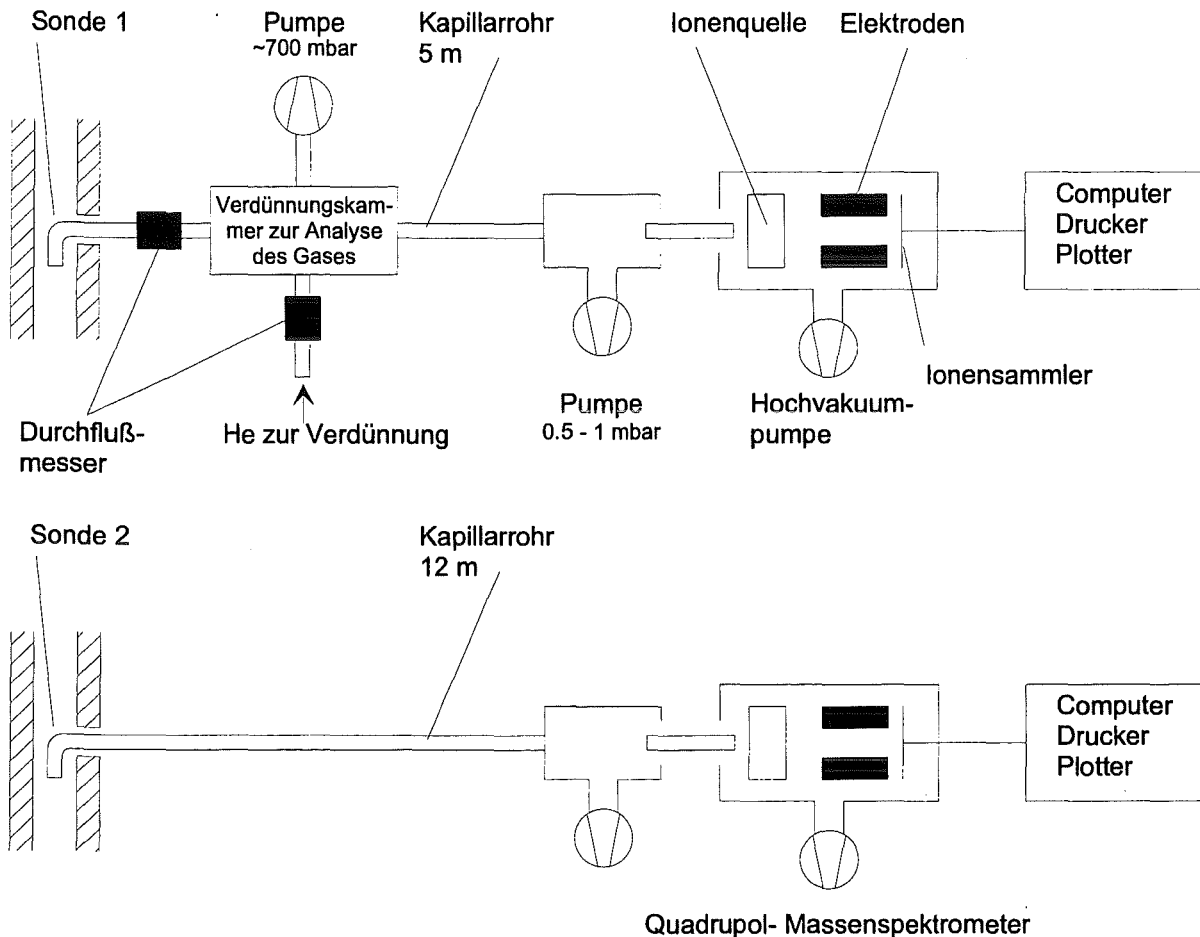


Abbildung 4.3: Wasserstoffmessungen in der CORA-Analge.

Ein typischer CORA-Versuchsablauf kann in folgende Phasen unterteilt werden (s. Abbildung 4.4):

1. Vorbereitungsphase

Vor dem Start des Versuchs wird die Anlage auf die Anfangsbedingungen eingestellt. Das Ölsystem im Ölaufheizer des Verdampfers wird auf 500 K erwärmt und der elektrische, direkt beheizte Dampfüberhitzer auf einen definierten Heizstrom eingestellt [44]. Während dieser Phase strömt ca. 6 g/s Argon durch das Bündel, um Temperaturen zwischen 600 K im unteren und 500 K im oberen Bereich zu erreichen.

2. Vorheizphase ($t < 3000$ s)

Während der Vorheizphase werden mit einem konstanten heißen Argon-Strom noch eventuell vorhandene Reste von Dampf und Stickstoff aus dem Bündel entfernt. Am Ende dieser Phase sind die HTS-Temperaturen so hoch, daß keine Dampfkondensation auftritt.

3. Aufheizphase ($3000 \text{ s} \leq t < 3900 \text{ s}$)

Mit der Erhöhung der elektrischen Heizleistung wird 3000 s nach Versuchsbeginn eine Temperaturzunahme von ca. 0.3 K/s erreicht und die transiente Phase des Tests gestartet. Die ansteigende Heizleistung läßt Wasser, das sich im Zylinder unterhalb der Teststrecke befindet, verdampfen, wobei ein zusätzlicher, langsam ansteigender Dampfstrom von ca. 0.07 - 0.6 g/s entsteht. Nach 3300 s wird Wasser in den Verdampfer eingesprüht, wobei der dabei entstehende Dampf die Teststrecke mit konstantem Fluß von 2 - 6 g/s erreicht (abhängig von den experimentellen Bedingungen).

4. Eskalationsphase ($3900 \text{ s} \leq t < 4850 \text{ s}$)

In der Zeit zwischen 3900 s und 4100 s überschreiten die Temperaturen in der oberen Hälfte des Bündels 1500 K, wodurch die exotherme Zirkaloy-Dampf-Reaktion merklich Wärme erzeugt. Die chemische Wärmefreisetzung kann in bestimmten Bündelebenen lokal die elektrische Heizleistung übersteigen und somit zur verstärkten Aufheizung des Bündels beitragen.

5. Abkühlphase ($t \geq 4850 \text{ s}$)

Der Versuch wird mit dem Abschalten der elektrischen Heizung nach 4850s beendet. Nach dem Abschalten der Heizung stehen zwei Abkühlungsarten zur Wahl:

- *Abkühlung durch Argon*

Der Argonfluß durch das Bündel wird auf einem konstanten Wert (6 - 8 g/s) gehalten, um das Bündel und den Dampfüberhitzer abzukühlen. Dadurch wird eine geringe Abkühlrate von 1 - 5 K/s erreicht.

- *Abkühlung durch Fluten von unten*

Zur Untersuchung derartiger Unfallabläufe, die zu schweren Kernschäden führen, wird das heiße Brennstabbündel nach der Aufheizung mit Hilfe eines mit kaltem Wasser gefüllten Zylinders rasch abgekühlt. Zu diesem Zweck wird der Zylinder angehoben, um die Stäbe von unten zu kühlen. Die Abkühlraten liegen in diesem Fall weit über 1000 K/s.

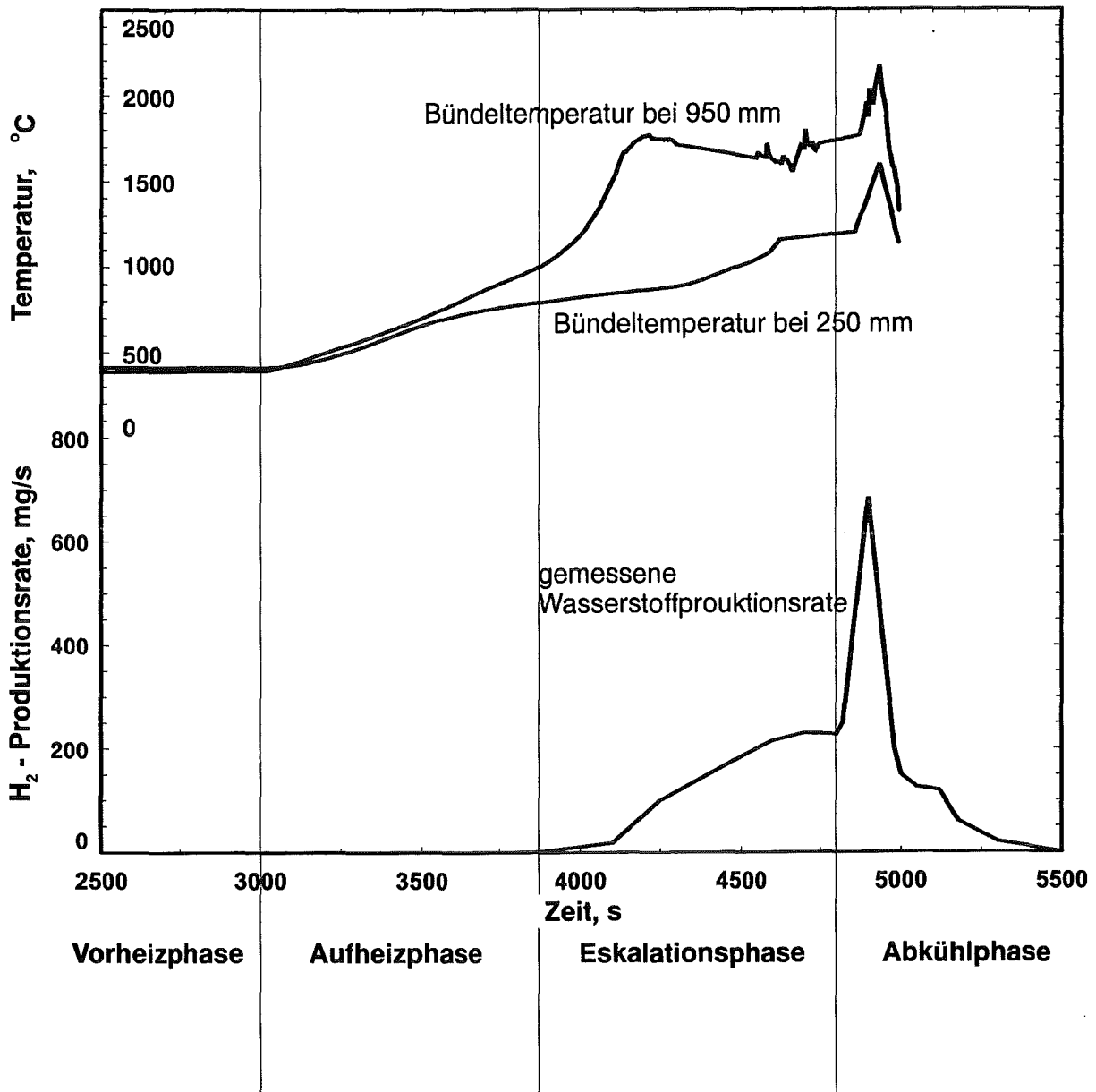


Abbildung 4.4: Phasen eines CORA-Tests (basierend auf experimentellen Ergebnissen in CORA-13).

4.2 Wasserstoffmischung und -Transport in der CORA-Anlage

Sowohl die Ergebnisse der REFLOX-Berechnungen, die für CORA Experimente durchgeführt wurden und die als Randbedingungen gemessene Temperaturen benutzen, als auch die Ergebnisse anderer Rechenprogramme (z.B. das Programm KESS [47], Abbildung 4.5) zeigen eine Differenz zwischen gemessener und berechneter Wasserstoffproduktionsrate. In fast allen Rechnungen beginnt die Wasserstoffproduktion direkt nach der exothermen Dampf/Zirkaloy-Reaktion und erreicht schnell sein maximalen Wert, wobei die experimentellen Ergebnisse einen geringen Anstieg der Wasserstoffproduktion in der transienten Phase zeigen. Dieser Unterschied kann sehr gut im Kalibrierungsversuch mit dem CORA-7 Bündel beobachtet werden, in dem eine Mischung von Wasserstoff und Argon in die Testsektion der Anlage in radialer Richtung eingespeist wurde.

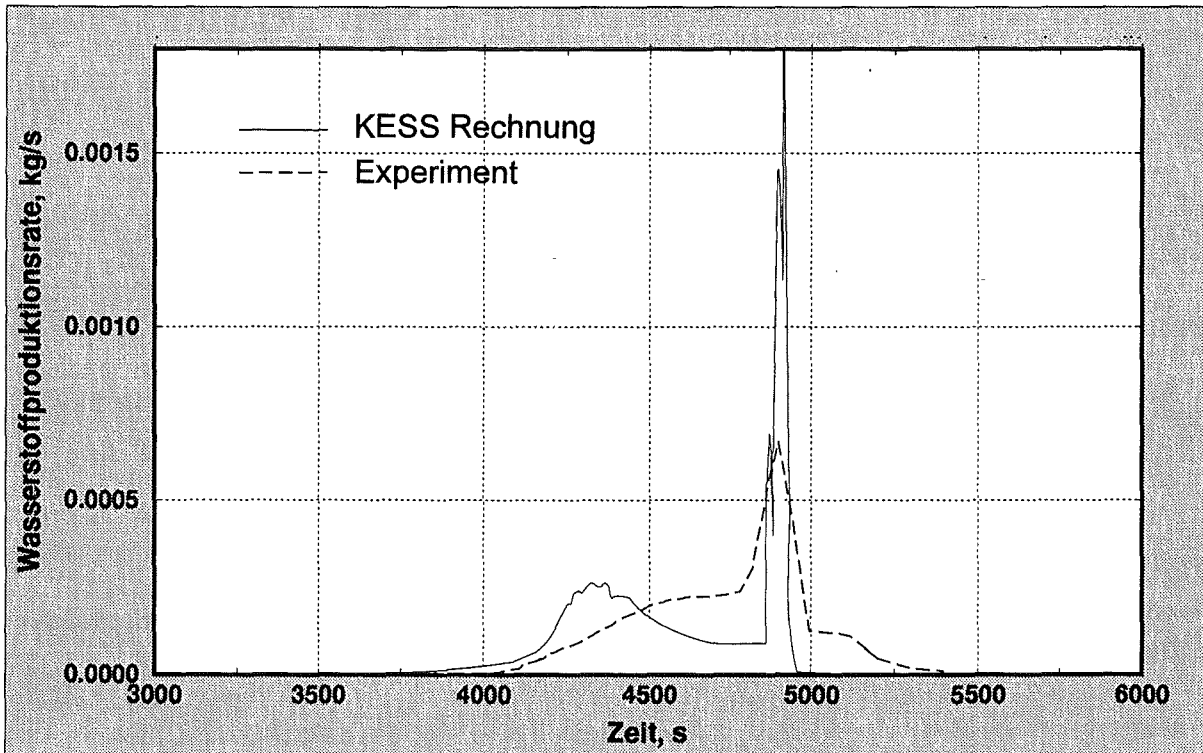


Abbildung 4.5: H₂-Massenflußrate im CORA-13 Versuch, mit KESS Programm berechnet.

Abbildungen 4.6 und 4.7 zeigen vom Massenspektrometer registrierte Daten, die in einem Vorversuch mit H₂-Einspeisung von 0,24 l/s (entspricht 21,4 mg/s Produktionsrate) in der CORA-Anlage erhalten wurden. Im ersten Schritt wurde 110 s lang Wasserstoff eingespeist und dann gestoppt (t=3760 s bis t=3870 s in Abbildung 4.6 und t=11860 s bis t=11970 s in Abbildung 4.7).

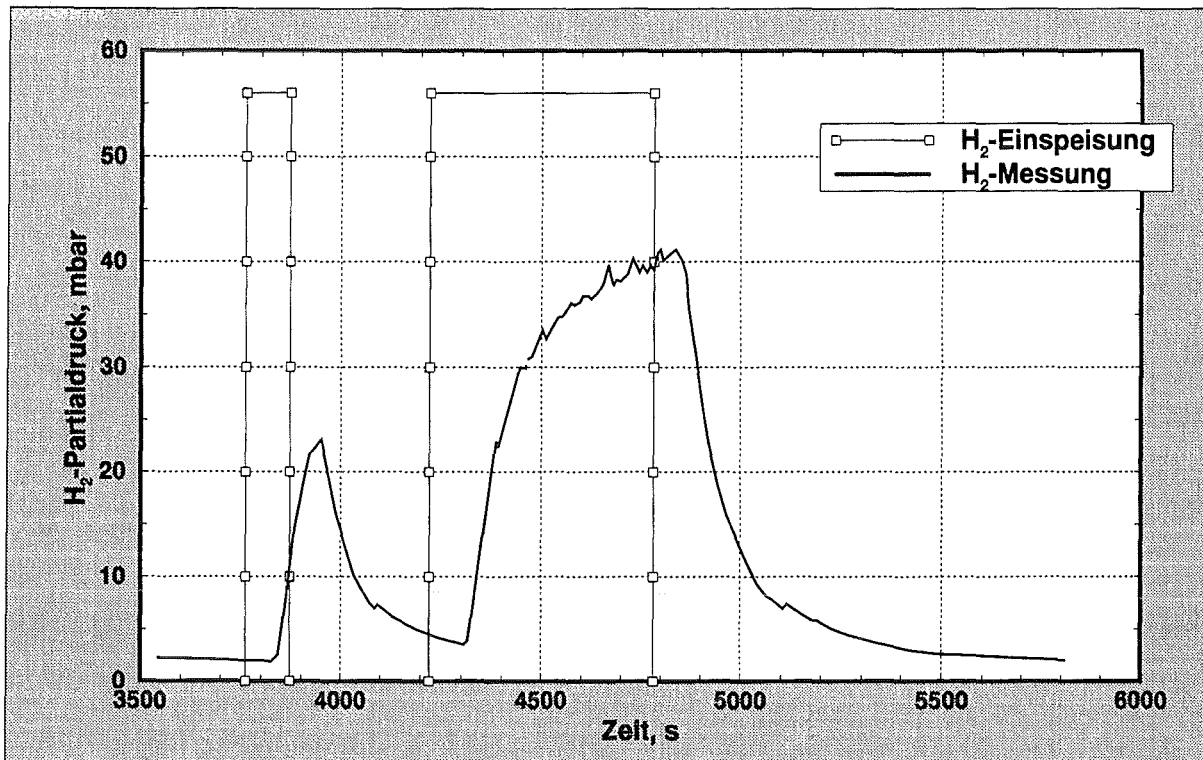


Abbildung 4.6: CORA-7 Vorversuch Phase 1: Argonfluß 9.52 l/s, H₂-Fluß 0.24 l/s.

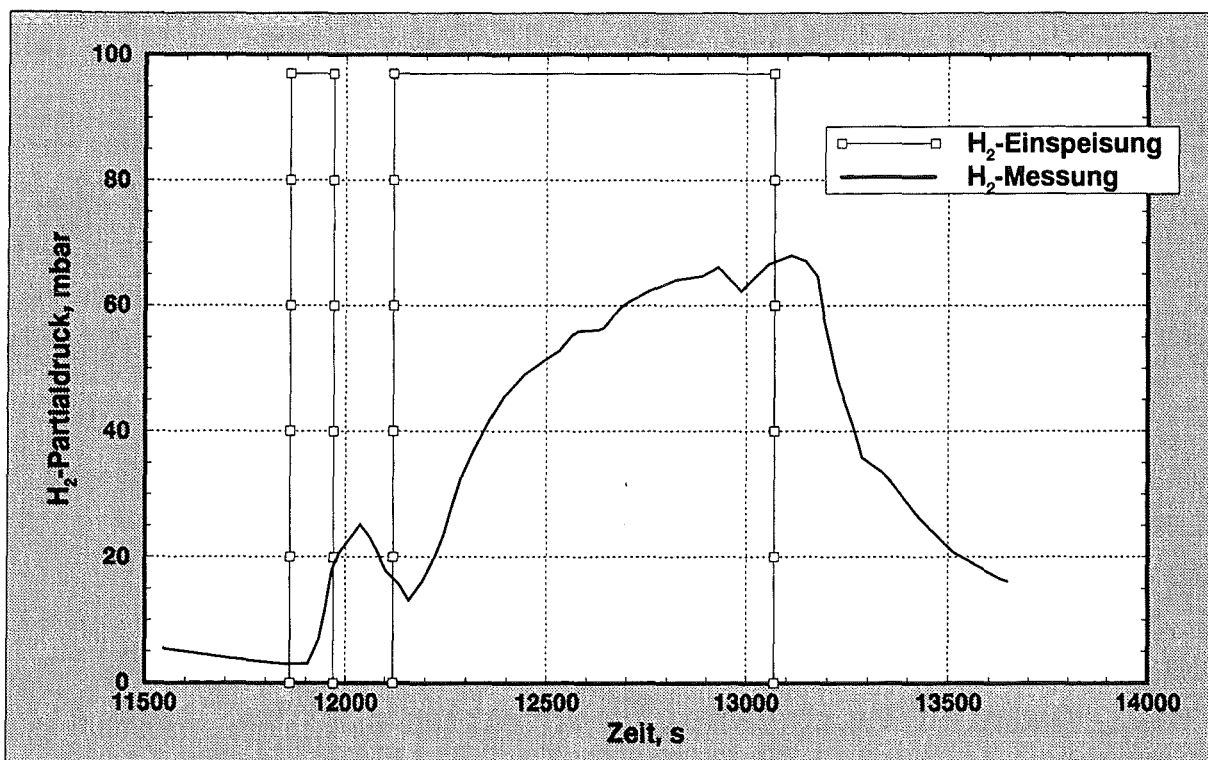


Abbildung 4.7: CORA-7 Vorversuch Phase 2: Argonfluß 5.45 l/s, H₂-Fluß 0.24 l/s.

Unter der Annahme einer gleichförmigen Verteilung von Wasserstoff am Eintritt und unter Berücksichtigung des Argonflusses durch das Bündel wurde ein idealer Partialdruck berechnet, wie aus dem konstanten Verlauf der Wasserstoffproduktion in beiden Abbildungen zu erkennen ist. Die zweite H₂-Einspeisung wurde nach der Pause für einen größeren Zeitraum mit der gleichen Intensität wie die erste Einspeisung durchgeführt.

Das Massenspektrometer beginnt nach 50 s Verzögerungszeit den Wasserstoff zu registrieren. Der Gradient des registrierten Wasserstoffpartialdruckes steigt mit Erhöhung des Argonflusses (s. Abbildung 4.6). Das zeigt, daß die Verteilung in radialer Richtung für einen größeren Argon-Fluß kleiner ist (vgl. Abbildung 4.6). Deshalb ist die Wasserstoff-Spitze für einen größeren Argon-Fluß deutlich höher, wie aus dem Vergleich von Abbildungen 4.6 und 4.7 ersichtlich ist. Selbst für einen längeren Zeitraum des Einlasses von 550 Sekunden (s. Abbildung 4.6) und 950 Sekunden (s. Abbildung 4.7) wurde der berechnete Wasserstoffdruck bei der Massenspektrometeranalyse wegen Diffusion in axialer Richtung nicht erreicht. Aus dem Vergleich der Einlaßkurven mit den Massenspektrometerergebnissen ist ersichtlich, daß der Wasserstofffluß noch nach dem Stop der Einspeisung mit Zeitverzug registriert wird. Außerdem wird gezeigt, daß bei höheren Gasgeschwindigkeiten im Bündel, wie sie etwa beim Abschrecken auftreten, eine bessere Übereinstimmung zwischen der Wasserstoffproduktionsraten im Bündel und der Wasserstoffproduktionsraten, die in der Mischkammer gemessen wurden, vorhanden ist. Dies betrifft sowohl den Zeitverzug als auch die Maximalwerte.

Eine mögliche Erklärung folgt aus der Analyse der CORA-Anlage (s. Abbildung 4.1): Der Wasserstoff, der in der Teststrecke freigesetzt wird, vermischt sich mit Argon und Dampf und wird zum Kondensator und weiter zur Mischkammer durch Kapillarrohre übertragen (s. Abbildung 4.3). Die Mischungs- und Transport-Prozesse sind deshalb für die Verzögerung und Rückführung der gemessenen Wasserstoffproduktionsraten verantwortlich.

Um eine realistischere Aussage über die H₂-Erzeugungsraten im Bündel treffen zu können, wird im folgenden eine Modellierung durchgeführt. Diese basiert auf der Annahme, daß die Mischungsprozesse im Bündel wesentlich schneller als der Gastransport sind.

Das betrachtete vereinfachte System ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Das gesamte Volumen V repräsentiert alle Volumina innerhalb der CORA-Anlage zwischen der Quelle (Bündel) und der Detektorposition in der Mischkammer.

Die Gleichungen für die Wasserstoff-Massenströme am Eingang q_{in} und am Ausgang q_{out} haben folgende Form:

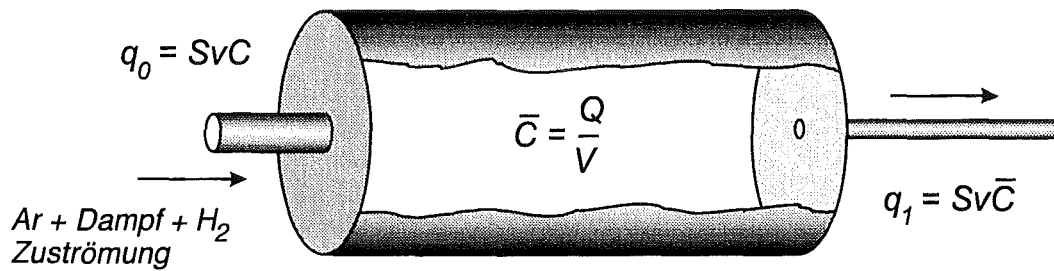


Abbildung 4.8: Vereinfachtes Diagramm für die Modellierung von H₂-Mischung und -Transport in der CORA-Anlage.

$$q_{\text{in}} = SvC_{\text{in}} , \quad (4.2)$$

$$q_{\text{out}} = Sv\bar{C} , \quad (4.3)$$

mit

q_{in} – Wasserstoff-Massenstrom am Eingang,

q_{out} – Wasserstoff-Massenstrom am Ausgang,

S – Eingangs- und Ausgangsquerschnitt,

v – Gasgeschwindigkeit,

C_{in} und \bar{C} – Wasserstoffkonzentration am Ein- und Ausgang.

Der Wasserstoff-Massenstrom am Ausgang q_{out} in Gleichung 4.3 beschreibt die gemessenen Wasserstoffproduktionsraten in der Mischkammer bei den CORA-Experimenten.

Die Gleichung für die Gesamtmenge des Wasserstoffes im Volumen V hat folgende Form:

$$Q = \bar{C} \cdot V , \quad (4.4)$$

wobei \bar{C} die mittlere Wasserstoffkonzentration im System ist. Das Erhaltungsgesetz für die Gesamtmenge an Wasserstoff ist dann:

$$\frac{dQ}{dt} = q_{\text{in}} - q_{\text{out}} , \quad (4.5)$$

oder

$$V \frac{d\bar{C}}{dt} = SvC_{in} - Sv\bar{C} . \quad (4.6)$$

Zur Vereinfachung wird angenommen, daß das Produkt Sv für die Eingangs- und Ausgangsmassenströme gleich ist. Nach Konvertierung der rechte Seite von Gleichung 4.6 erhält man

$$\frac{V}{Sv} \cdot Sv \frac{d\bar{C}}{dt} = SvC_{in} - Sv\bar{C} , \quad (4.7)$$

und weiter

$$\frac{V}{Sv} \cdot \frac{dq_{out}}{dt} = q_{in} - q_{out} . \quad (4.8)$$

Definiert man

$$\alpha = \frac{V}{Sv} , \quad (4.9)$$

wobei α die charakteristische hydrodynamische Zeit der Systemantwort ist, erhält man die endgültige Gleichung für den Wasserstoff-Massenstrom am Ausgang:

$$\alpha \frac{dq_{out}}{dt} = q_{in} - q_{out} . \quad (4.10)$$

Gleichung 4.10 besitzt folgende Lösung:

$$q_{out}(t) = e^{-\alpha t} \int_0^t q_{in}(\tau) e^{\alpha \tau} d\tau . \quad (4.11)$$

Wenn die Verzögerungszeit der Systemantwort t_{del} berücksichtigt wird und angenommen wird, daß der Massenstrom am Eingang $q_{in} = q_0 = \text{const}$ ist, wie im CORA-7 Vorversuch, dann reduziert sich Gleichung 4.11 wie folgt:

$$q_{in}(t) = \begin{cases} q_0, 0 \leq t \leq t_{del} : & q_{out} = 0, \\ q_0, t_{del} \leq t \leq T + t_{del} : & q_{out} = q_0(1 - e^{-t/\alpha}), \\ 0, t > T + t_{del} : & q_{out} = q_0(1 - e^{-(T+t_{del})/\alpha})e^{-t/\alpha}. \end{cases} \quad (4.12)$$

Die Ergebnisse der parametrischen Berechnungen unter Verwendung von Gleichung 4.12 sind in den Abbildungen 4.9 und 4.10 dargestellt. Zur Vereinfachung wird angenommen, daß die Verzögerungszeit der Systemantwort t_{del} gleich Null ist.

Abbildung 4.9 zeigt die Empfindlichkeit des Modells in Abhängigkeit von der charakteristischen hydrodynamischen Zeit der Systemantwort α . Man kann beobachten, daß größere Werte von α (dies entspricht niedrigen Flußraten im Systemvolumen, wie in transienten Phasen von CORA-Experimenten) zu einer langsamen Erhöhung des Ausgangsmassenstromes führen (vgl. Abbildung 4.9a). Die Verwendung von kleineren α -Werten (dies entspricht hohen Flußraten im Systemvolumen, typisch für die Abschreckphase in CORA-Experimenten) führt dazu, daß die Eingangs- und Ausgangsströme nahezu identisch sind (s. Abbildung 4.9c).

Die Ergebnisse der Überprüfung der Modell-Empfindlichkeit bezüglich der Länge der Unterbrechungszeit zwischen zwei Eingangsströmen sind in Abbildung 4.10 dargestellt. Wenn die Zeitdifferenz zwischen zwei Eingangsströmen Null wird, ist, wie zu erwarten, ein kontinuierlicher Ausgangsstrom festzustellen (vgl. Abbildung 4.10c).

Parameter α in Gleichung 4.12 ist von mehreren Variablen abhängig:

$$\alpha = f(q_{Ar}, q_{Dampf}, q_{H_2}, V, S, \dots) . \quad (4.13)$$

Da die genaue Abhängigkeit von den Variablen nicht bekannt ist, wird folgender Ansatz gemacht:

$$\alpha = \frac{V_{eff}}{q_{Ar} + q_{Dampf} + q_{H_2}} , \quad (4.14)$$

wobei V_{eff} das effektive Systemvolumen ist und q_{Ar} , q_{Dampf} und q_{H_2} Argon-, Dampf- und Wassertoffströme sind. Das effektive Systemvolumen V_{eff} wurde so gewählt, daß es den CORA-7 Vorversuch so gut wie möglich beschreibt. Dieser V_{eff} -Wert wurde in den Analysen von allen untersuchten CORA-Experimenten benutzt.

Die Verzögerungszeit der Systemantwort t_{del} wurde aus dem CORA-7 Vorversuch zu 50 Sekunden bestimmt und für alle anderen CORA-Experimenten ebenfalls benutzt (s. Abbildungen 4.6-4.7).

Das hier entwickelte Modell für H_2 -Mischung und -Transport wurde für Nachrechnungen des CORA-7 Vorversuches verwendet. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 4.11 und 4.12 gezeigt. Die Konstante α vom CORA-7 Vorversuch wird für Phase 1 zu $\alpha_1 = 150$ s gesetzt, und für Phase 2 zu

$$\alpha_2 = \alpha_1 \cdot \frac{(q_{Ar} + q_{H_2})_{Phase1}}{(q_{Ar} + q_{H_2})_{Phase2}} = 257 \text{ s} .$$

Die Einbeziehung des entwickelten Transportmodelles führt zu sehr guten Übereinstimmungen zwischen gemessenen und berechneten Wasserstoffströmen. Dies zeigt die wichtige Rolle des Gastransportes in CORA-Experimenten, welcher für die Analyse der Wasserstoffherzeugung in CORA-Experimenten korrekt beschrieben sein muß.

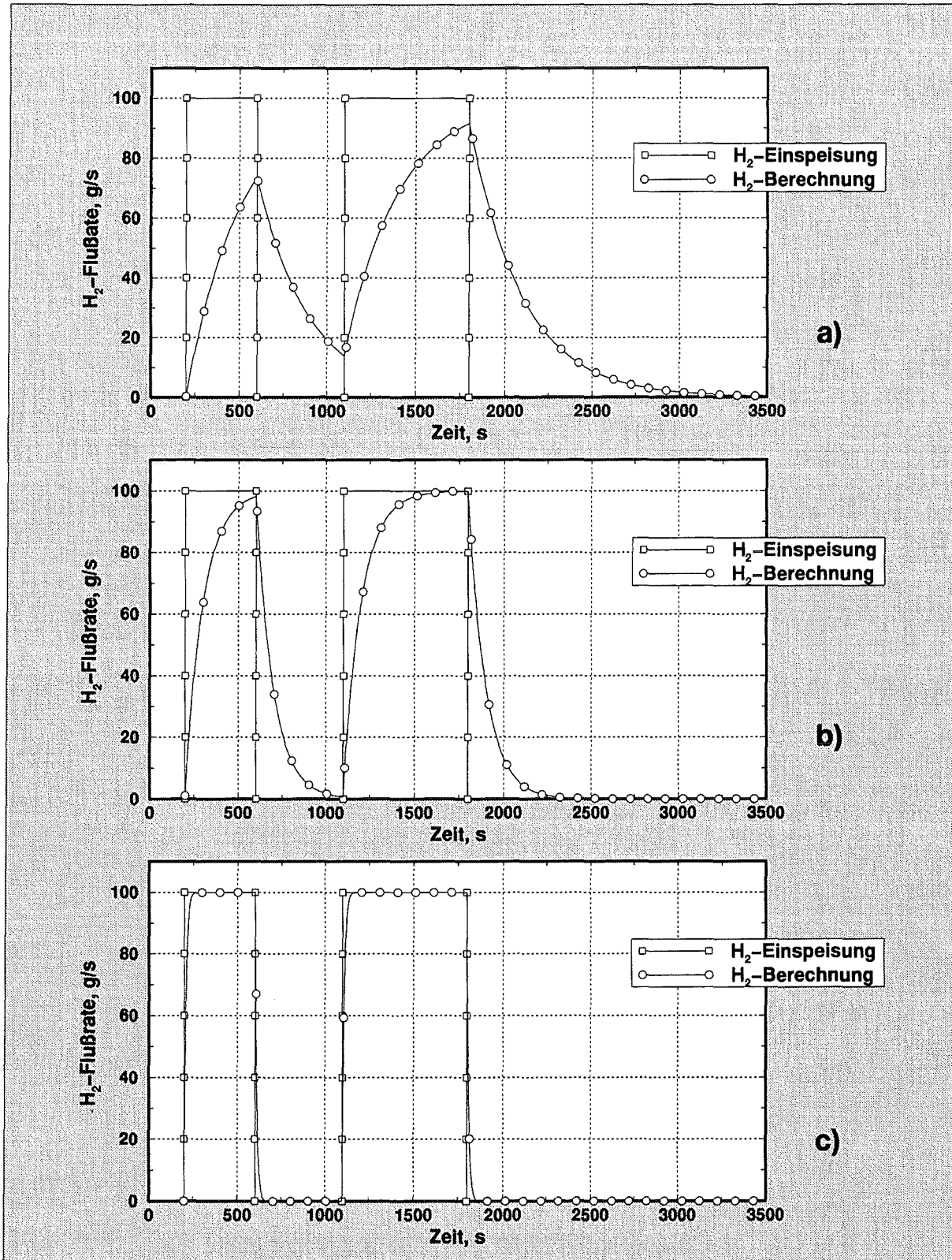


Abbildung 4.9: Empfindlichkeit des Modells in Abhängigkeit von der charakteristischen hydrodynamischen Zeit der Systemantwort α . a) $\alpha = 250$ s, b) $\alpha = 100$ s, c) $\alpha = 10$ s.

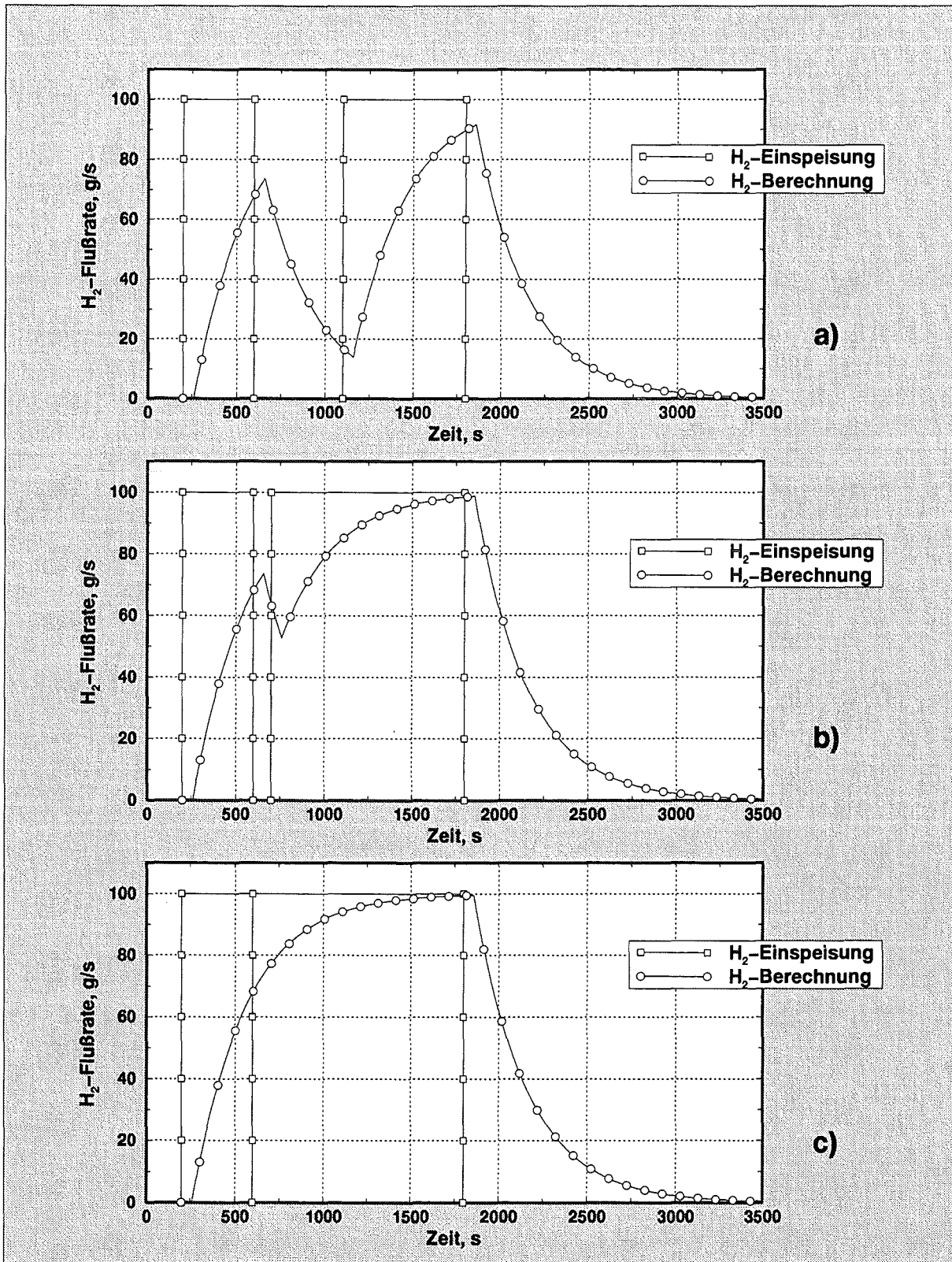


Abbildung 4.10: Empfindlichkeit des Modells bezüglich der Länge der Unterbrechungszeit zwischen zwei Eingangsströmen. a) Unterbrechungszeit 500 s, b) Unterbrechungszeit 100 s, c) Unterbrechungszeit 0 s.

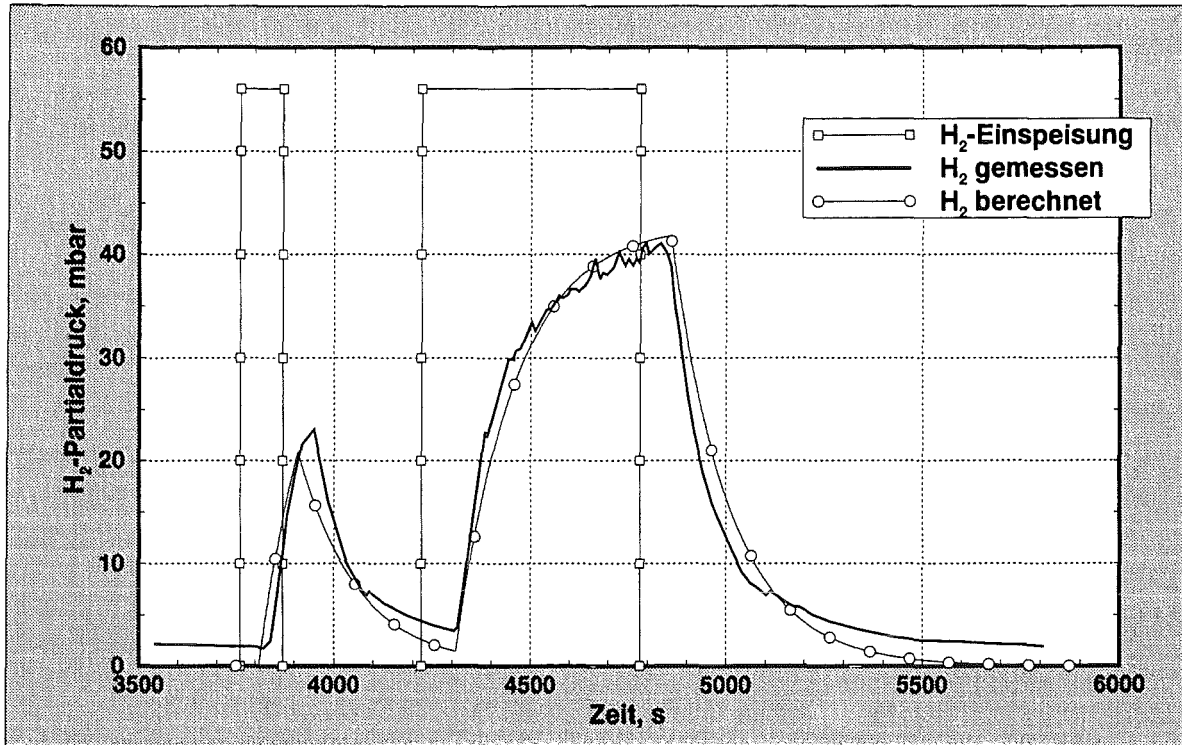


Abbildung 4.11: Zeitabhängigkeit des gemessenen H₂-Partialdruckes in der Mischkammer im Vergleich mit berechneten Daten für den CORA-7 Vorversuch 1.

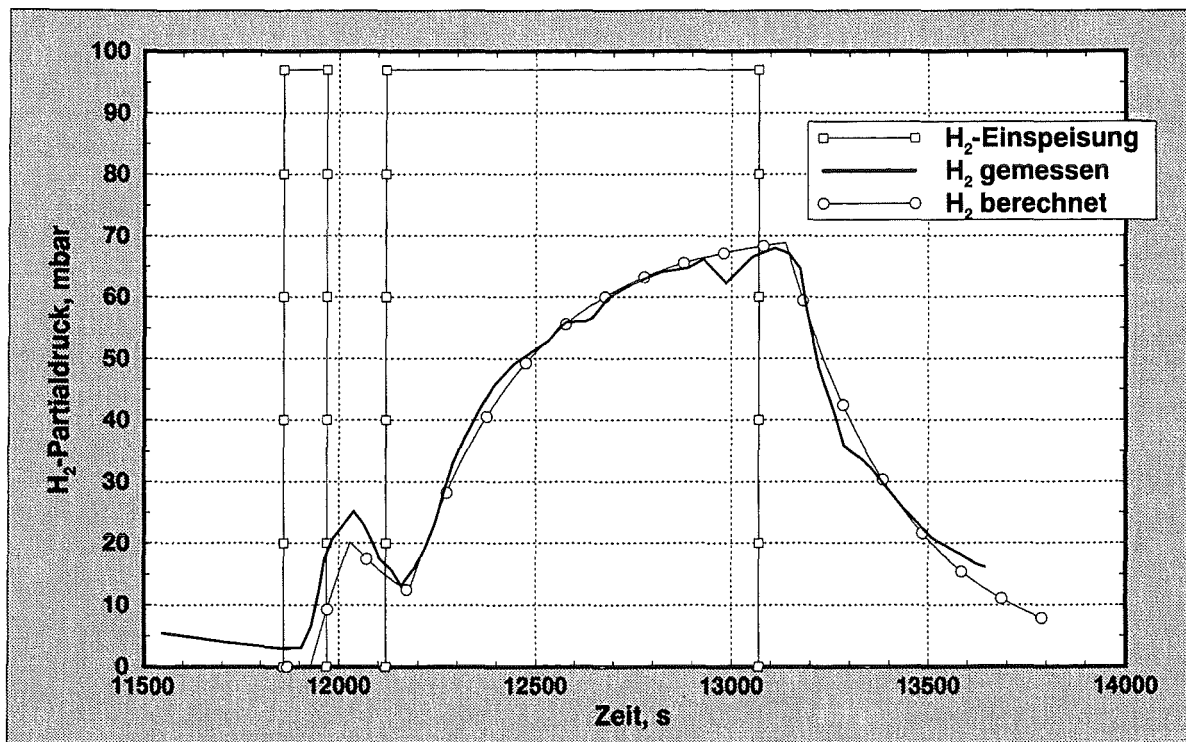


Abbildung 4.12: Zeitabhängigkeit des gemessenen H₂-Partialdruckes in der Mischkammer im Vergleich mit berechneten Daten für den CORA-7 Vorversuch 2.

4.3 Ergebnisse von REFLOX-Rechnungen für CORA-Experimente

Die REFLOX-Rechnungen wurden mit zwei verschiedenen Randbedingungen durchgeführt. Die Ergebnisse werden im folgenden diskutiert.

4.3.1 Rechnungen mit vorgegebenen Temperaturen an der Staboberfläche

Zur Validierung des theoretischen Modells wurden Out-Of-Pile CORA-Tests ausgewählt, da hierfür detaillierte und zuverlässige experimentelle Daten vorhanden sind. In diesem Abschnitt werden vier CORA-Experimente (CORA-13, CORA-2, CORA-3, CORA-31) vorgestellt, die mit dem REFLOX-Programm mit Randbedingungen der ersten Art an der Staboberfläche (Kapitel 2), d.h. mit den Bündeltemperaturen, die im Experiment ermittelt wurden, analysiert sind. Die Vorgehensweise wird im Detail für den CORA-13 Test beschrieben. Die Analyse der anderen CORA-Experimente wurden in der gleichen Weise durchgeführt.

Das CORA-Stabbündel ist in sieben verschiedene vertikale Abschnitte eingeteilt (vgl. Tabelle 4.2).

Vertikaler Abschnitt	Bündelhöhe, mm
1	0 ÷ 250
2	250 ÷ 475
3	475 ÷ 620
4	620 ÷ 950
5	950 ÷ 1050
6	1050 ÷ 1150
7	1150 ÷ 1350

Tabelle 4.2: Die Geometrie des CORA-13-Stabbündels.

Jeder Abschnitt wird unabhängig behandelt und hat seine eigene zeitabhängige Temperaturverteilung, wie in den Abbildungen 4.13 und 4.14 gezeigt ist. In den Berechnungen wird angenommen, daß kein radialer Temperaturgradient über die Bündel und den Shroud existiert [37]. Das bedeutet, daß für die Berechnungen für jeden Abschnitt ein repräsentativer Brennstab benutzt wird. Die Ergebnisse werden proportional zu der Anzahl der Brennstäbe im Bündel skaliert. Der Shroud und die Abstandshälter, die aus Zirkaloy hergestellt sind, werden in den Berechnungen in der Form von äquivalenten Oberflächen berücksichtigt. Der Shroud und die

Abstandshalter haben die gleiche zeitabhängige Temperaturverteilung wie der repräsentative Brennstab der gleichen Höhe. Es wird angenommen, daß sich die Geometrie des Bündels während der Berechnungen nicht ändert.

Der im Experiment gemessene zeitabhängige Temperaturverlauf wird auf das Wärmeleitungsmodell als Randbedingungen der 1. Art angewandt (Abschnitt 2.2). Die Temperaturverteilung innerhalb des Brennstabes wurde analysiert, um den Einfluß der chemischen Wärmefreisetzung an der Zr/ZrO_2 Grenzfläche zu untersuchen. Mit Programmen wie MELCOR sind solche hochauflösenden Rechnungen nicht möglich. Die zu verschiedenen Zeiten berechneten Temperaturverteilungen im Brennstab sind in den Abbildungen 4.15 und 4.16 gezeigt. Das Programm sagt nur schwache Temperaturegradienten im Brennstab und im Hüllrohr während der gesamten Temperaturtransition voraus. Es existiert keine Temperaturerhöhung im Hüllrohr, die eine hohe Wasserstoffproduktion während des Abschreckens auslösen würde.

Die Produktionsraten von Wasserstoff, die mit dem REFLOX-Programm berechnet wurden, sind für sieben verschiedene Abschnitte in den Abbildungen 4.17 und 4.18 dargestellt (die Beiträge von Shroud und Abstandshalter sind eingeschlossen). Direkt nach Beginn der Wechselwirkung zwischen Zirkaloy und Dampf (nach ca. 3700 s) trägt hauptsächlich der mittlere Teil des Bündels (Ebenen von 475 mm bis 950 mm) zur Wasserstoffproduktion bei. Zum Zeitpunkt des Abschreckens (4870 s) ist praktisch das gesamte metallische Zirkaloy in diesen Abschnitten oxidiert. Deshalb wird eine hohe Wasserstoffproduktion in der Abschreckphase berechnet, die aus der starken Oxidation des Zirkalloys entsteht, das noch im Bündel unter 475 mm und über 950 mm vorhanden ist.

Für die Berechnungen der Ummantelungsoxidation wurde eine einseitige Oxidation mit 10 äquivalenten Stäben angenommen (vgl. Tabelle 2.2). Der Anteil der Wasserstoffproduktionsrate und Wasserstoffgesamtproduktion, der durch Ummantelungsoxidation freigesetzt wurde, ist in den Abbildungen 4.19 und 4.20 dargestellt. Dieser Anteil schwankt im Laufe des Oxidationsprozesses zwischen 30 – 40 %.

Die berechnete Variation der ZrO_2 -Schichtdicke (s. Abbildung 4.21) zeigt, daß am Ende der Berechnungszeit das gesamte metallische Zirkaloy über 600 mm oxidiert ist, was gut mit den experimentellen Daten übereinstimmt.

Die vollständige Wasserstoffproduktionsrate ist für alle sieben Abschnitte in Abbildung 4.22 gezeigt (Kurven 1 und 2). Kurve 1 zeigt Rechnungen ohne die Berücksichtigung des Mischungs- und Transportmodelles (vgl. Abschnitt 4.2). Die berechnete Wasserstoffproduktion in der Tran-

sientenphase des Experimentes (4000 – 4500 s) unterscheidet sich von den Messungen durch einen steilen Gradienten direkt nach Beginn der chemischen Zirkaloy/Dampf-Reaktion. Das berechnete Wasserstoffmaximum in der Abschreckphase wird gut beschrieben. Nur unter Berücksichtigung des Mischungs- und Transportmodelles (Kurve 2 in Abbildung 4.22) wird eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten in der Transientenphase erreicht.

Die oben beschriebene Vorgehensweise wurde gewählt, um die Wasserstoffproduktionsraten der drei anderen CORA-Experimente, CORA-2, CORA-3 und CORA-31 zu berechnen. Bei allen diesen Experimenten wurde das Stabbündel nicht abgeschreckt. Die Temperaturhistorie [32, 39] an verschiedenen Abschnitten des Stabbündels und dem Shroud wurden wiederum als Eingabeparameter für das Berechnungsprogramm benutzt. Die Wasserstoffproduktionsraten, die mit REFLOX berechnet wurden, sind unter Berücksichtigung des Mischung- und Transportmodelles (Kurve 2) und ohne Berücksichtigung (Kurve 1) in den Abbildungen 4.23 – 4.25 dargestellt.

Die Ergebnisse der REFLOX-Rechnungen mit dem gemessenen Temperaturverlauf als Eingabeparameter zeigt, daß das Programm die Wasserstoffproduktion in allen untersuchten Fällen vorhersagen kann. Sehr wichtig ist, daß das Programm sowohl die Freisetzungsspitze des Wasserstoffes vorhersagen kann, die während des Abschreckens des Stabbündels im CORA-13 Experiment auftrat, als auch die Dicke der ZrO_2 -Schicht.

Es sollte erwähnt werden, daß in den Rechnungen nur konventionelle Modelle für Wärmeleitung und Sauerstoffdiffusion zusammen mit dem neu entwickelten CORA-Transportmodell angewendet werden. Es wurden keine zusätzlichen Annahmen getroffen und keine neuen Effekte benötigt, um die starke Wasserstofferzeugung zu beschreiben. Die Hauptfrage, welcher Prozess tatsächlich die experimentell beobachtete Temperaturerhöhung und die damit verbundene Zirkaloy-Oxidation und Wasserstoffproduktion auslöst, bleibt jedoch in diesen Rechnungen offen.

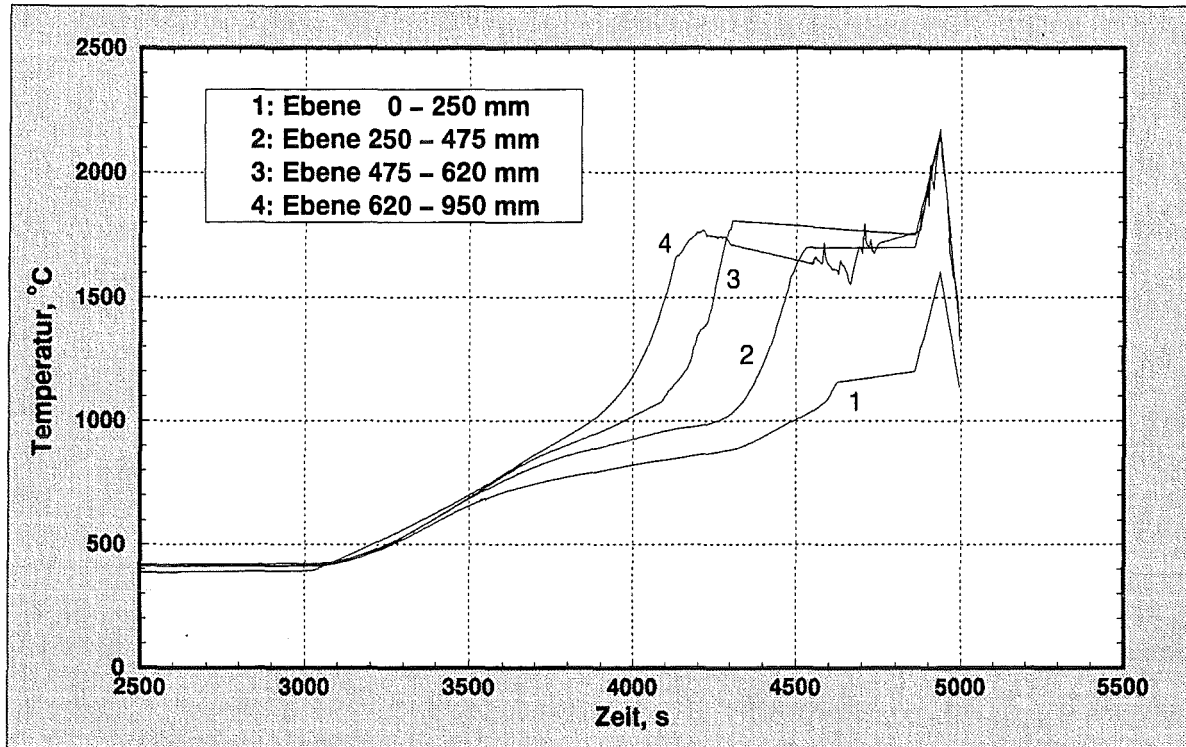


Abbildung 4.13: Axiale Temperaturprofile im CORA-13 Experiment.

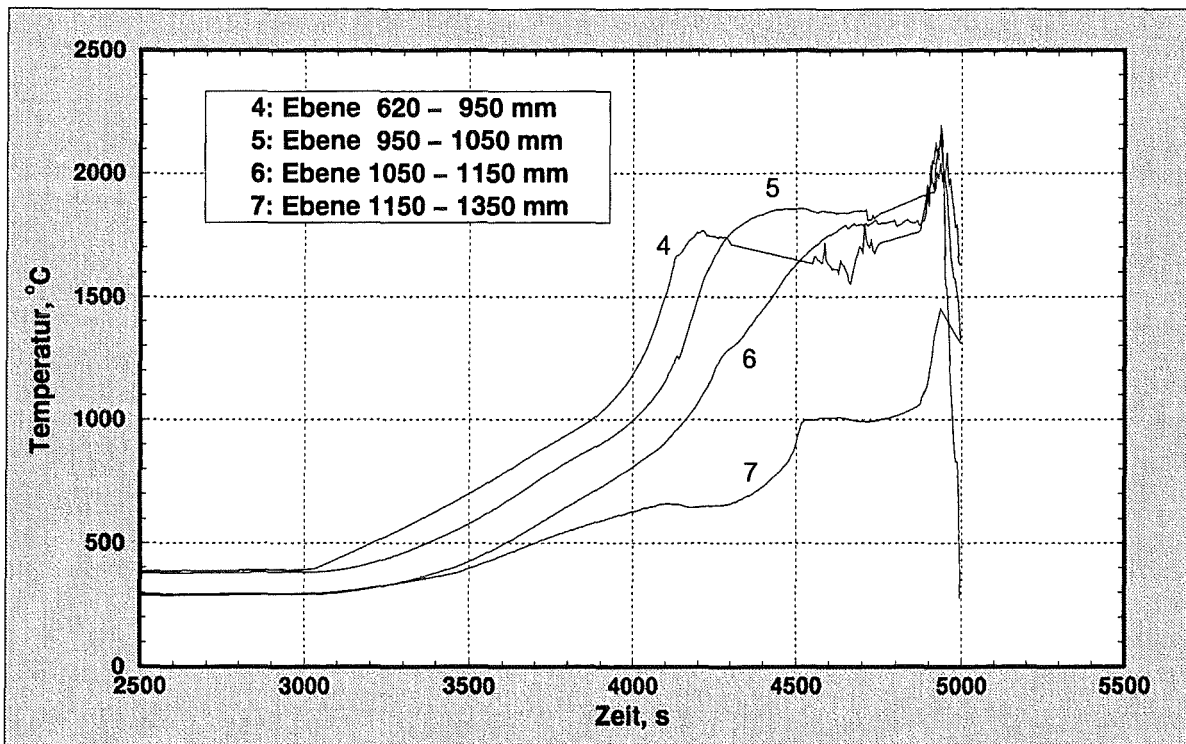


Abbildung 4.14: Axiale Temperaturprofile im CORA-13 Experiment.

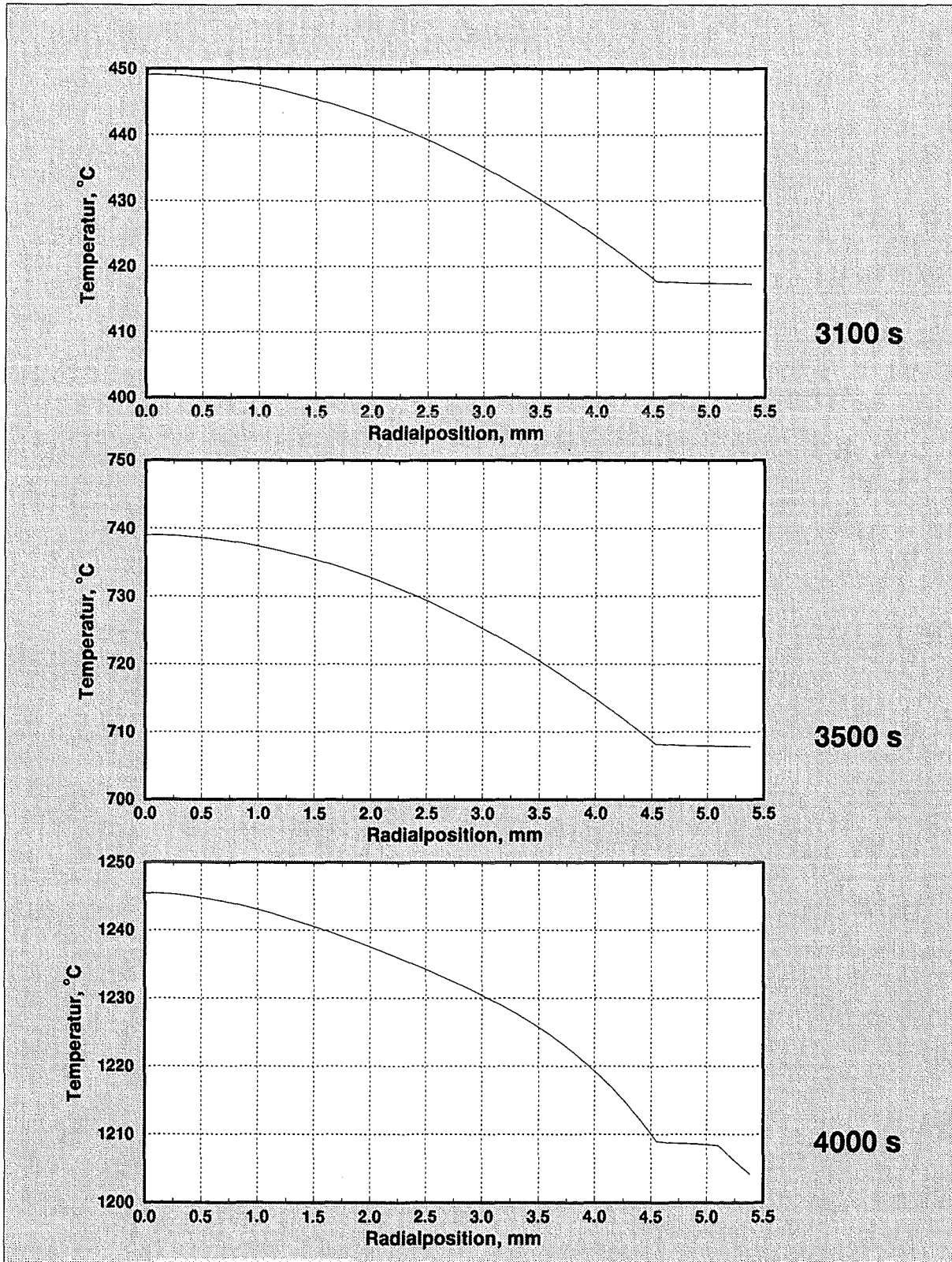


Abbildung 4.15: Temperaturverteilung im Brennstab in der CORA-13-Nachrechnung.

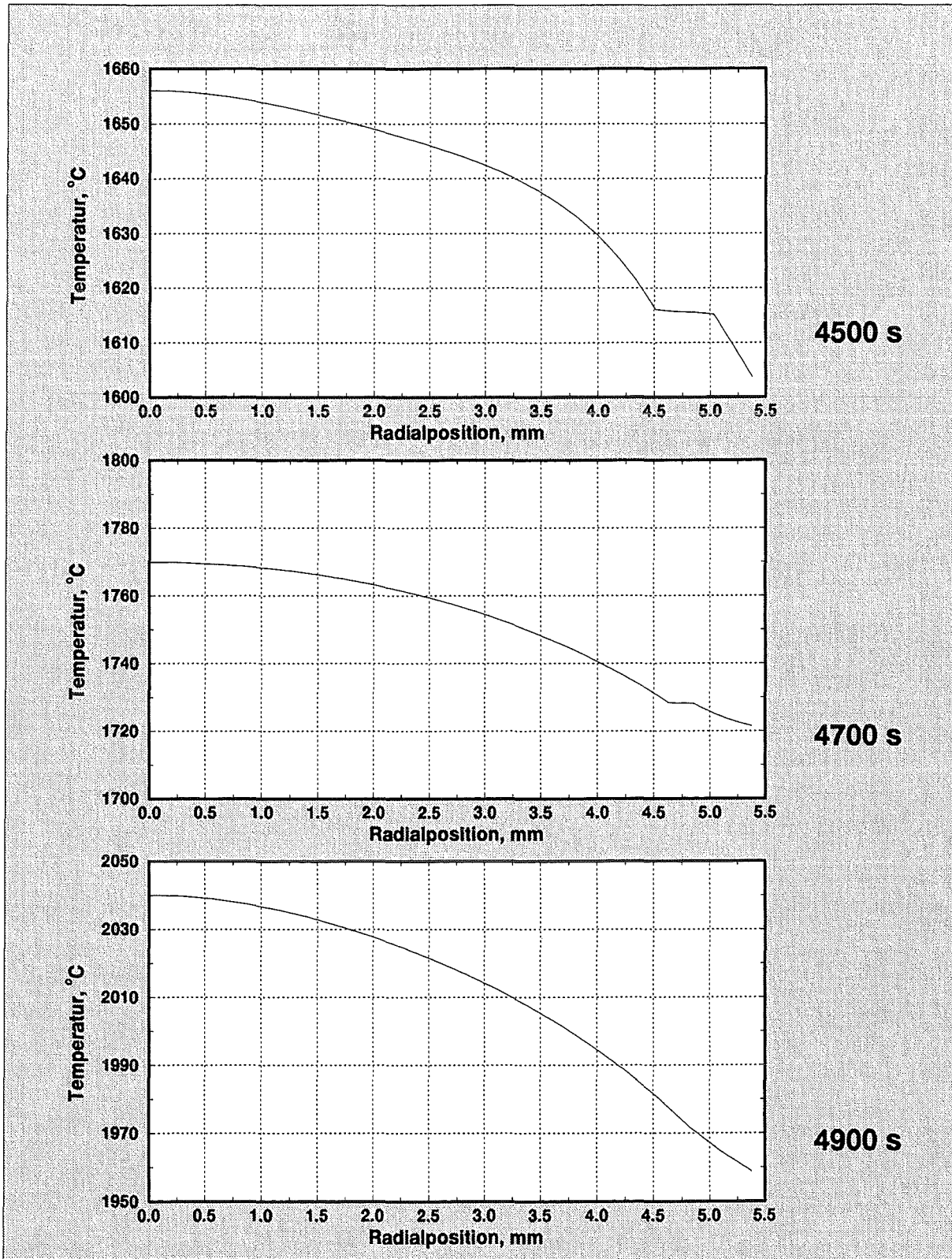


Abbildung 4.16: Temperaturverteilung im Brennstab in der CORA-13-Nachrechnung.

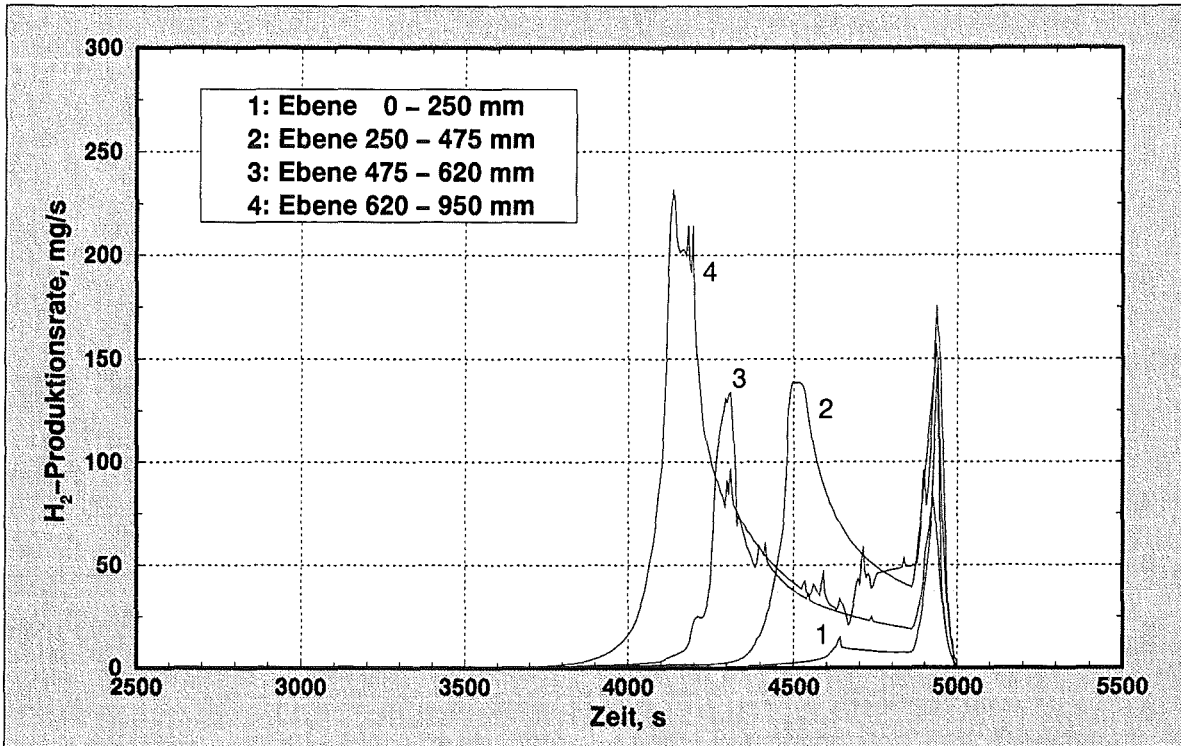


Abbildung 4.17: Wasserstoffproduktionsraten in verschiedenen Ebenen in der CORA-13-Nachrechnung.

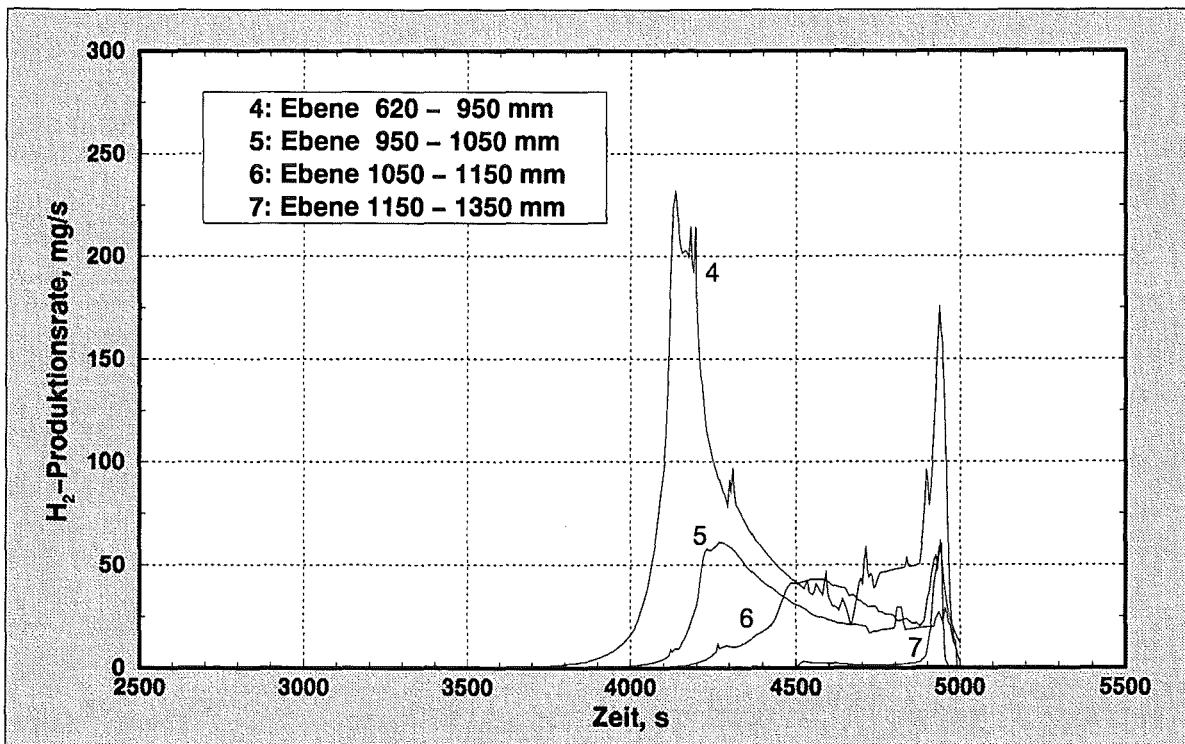


Abbildung 4.18: Wasserstoffproduktionsraten in verschiedenen Ebenen in der CORA-13-Nachrechnung.

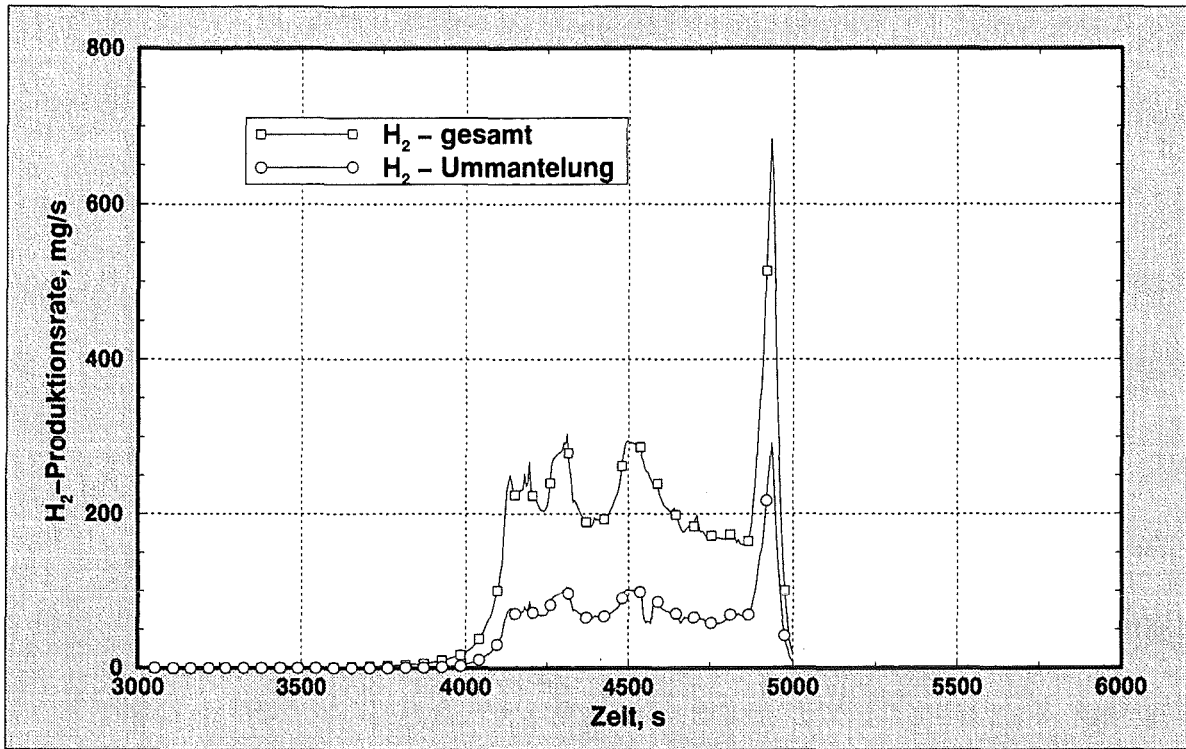


Abbildung 4.19: Anteil der H₂-Erzeugungsrate, der durch die Ummantelungsoxidation hervorgerufen wird, an der H₂-Gesamterzeugungsrate.

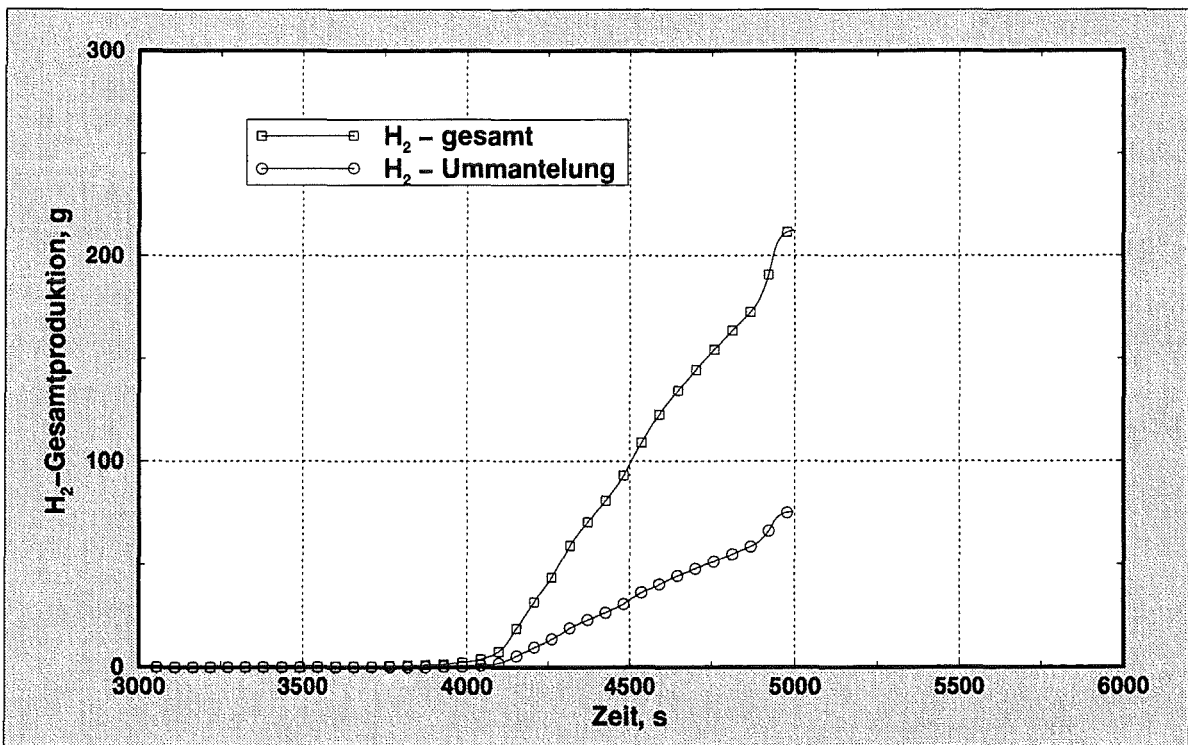


Abbildung 4.20: Anteil der H₂-Produktion, der durch die Ummantelungsoxidation hervorgerufen wird, an der H₂-Gesamtproduktion.

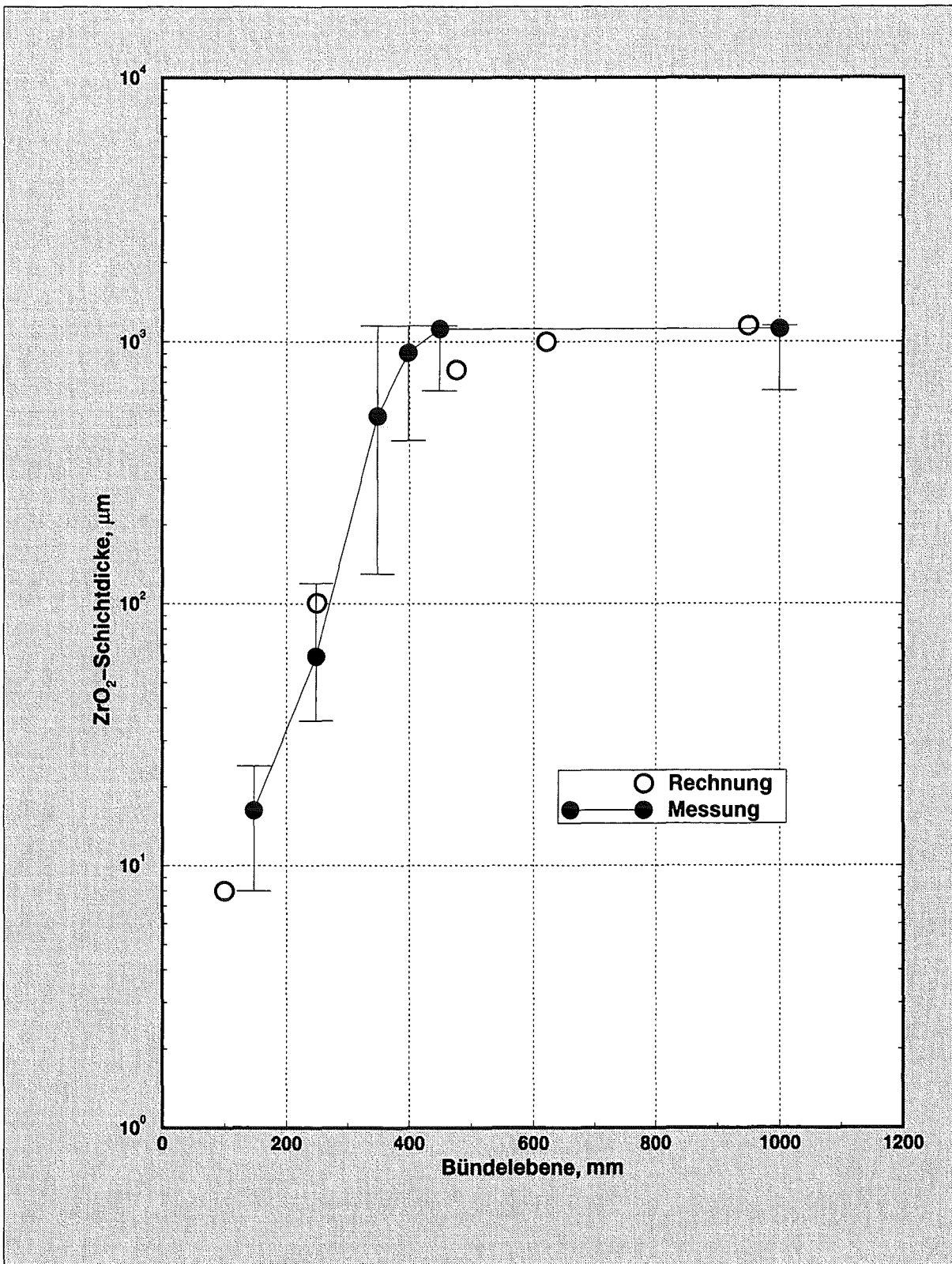


Abbildung 4.21: Axiale Verteilung der ZrO₂-Schichtdicke im CORA-13 Experiment, berechnet mit REFLOX-Programm und vorgegebenen Temperaturen als Eingabedaten.

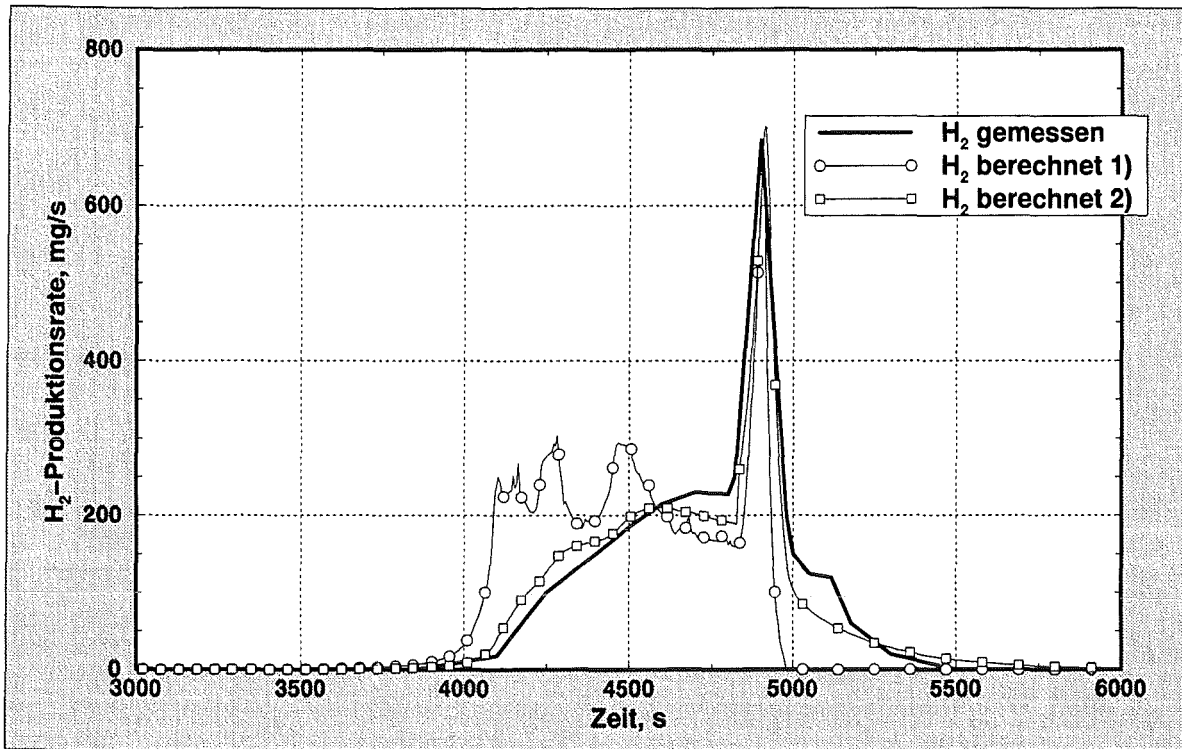


Abbildung 4.22: H₂-Produktionsrate im CORA-13 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.

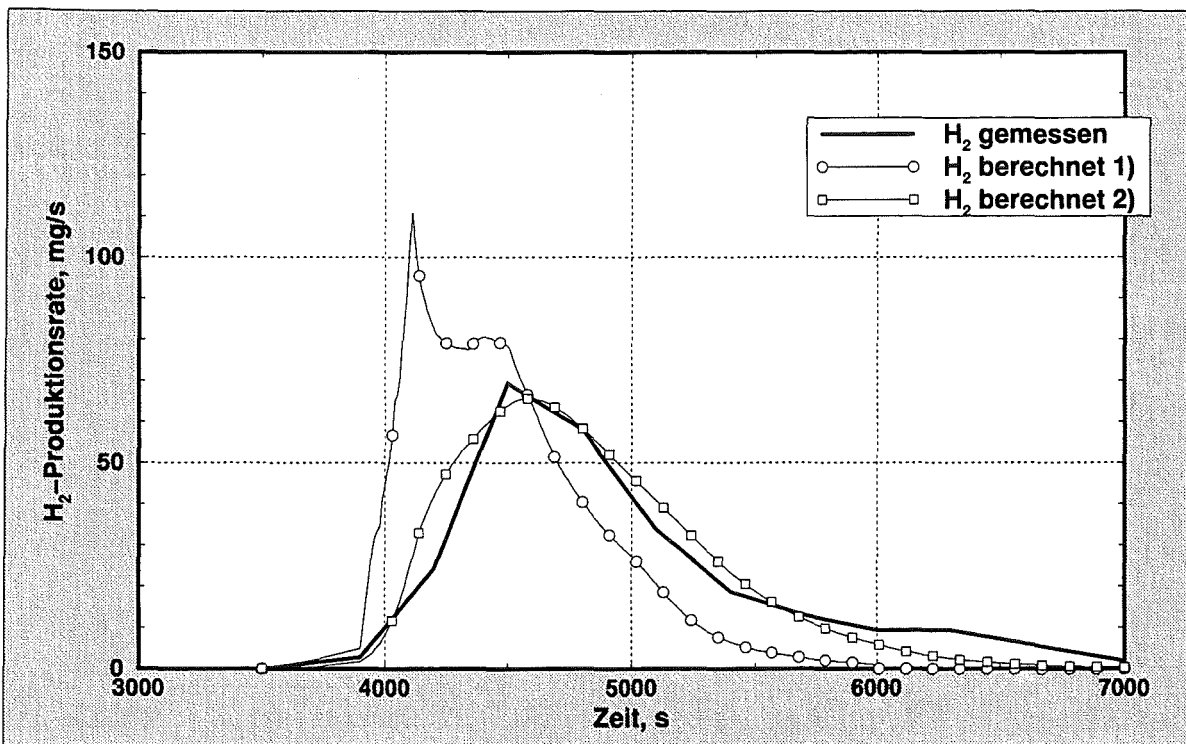


Abbildung 4.23: H₂-Produktionsrate im CORA-2 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.

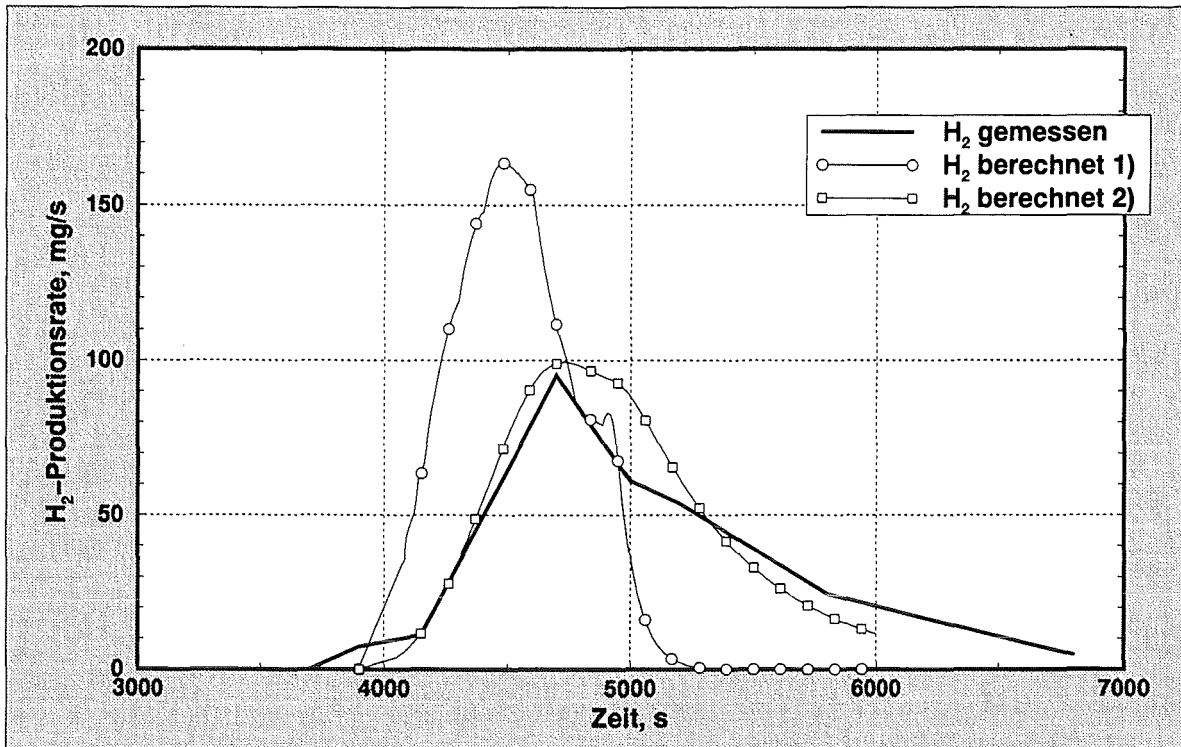


Abbildung 4.24: H₂-Produktionsrate im CORA-3 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.

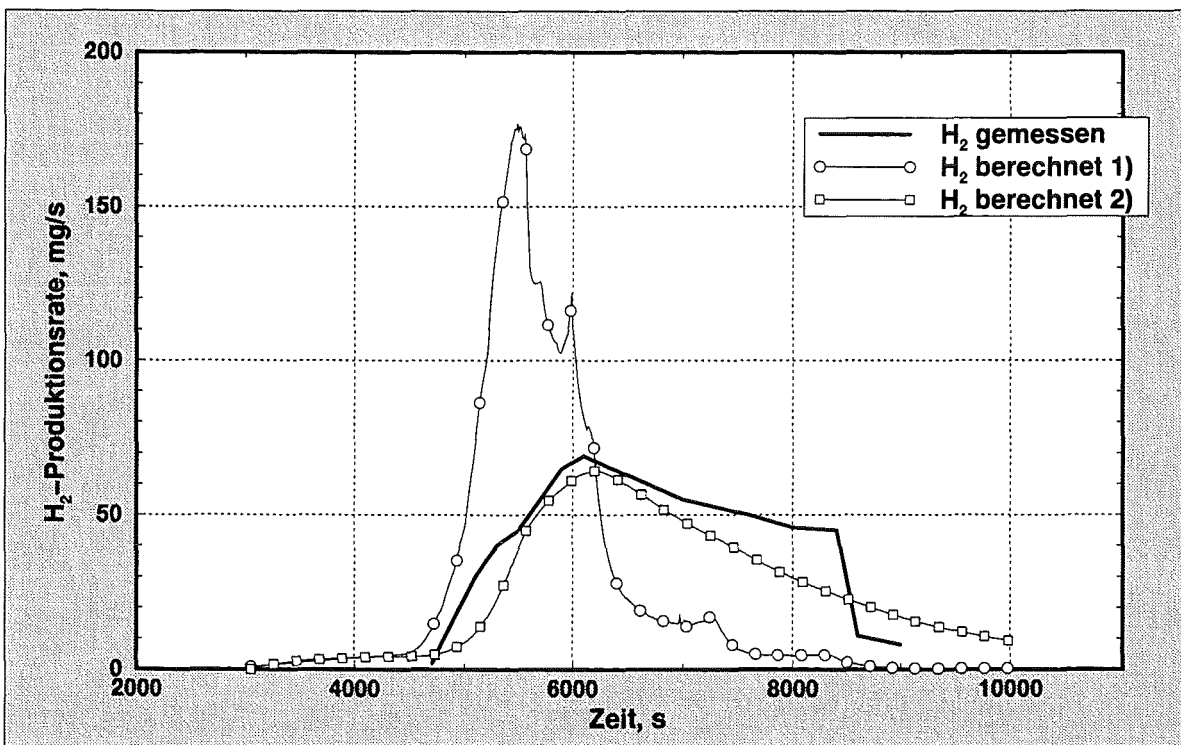


Abbildung 4.25: H₂-Produktionsrate im CORA-31 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.

4.3.2 Rechnungen mit Wärmefluß durch Strahlung als Randbedingung an der Staboberfläche

Eine wichtige Eigenschaft aller gemessener Temperatursignale ist, daß die plötzliche Temperaturerhöhung während der Abschreckphase in allen Bündelebenen gleichzeitig auftritt (5000 s in Abbildung 4.27 und 4870 s in Abbildung 4.28). Diese Temperatureskalation ist für die erhöhte Wasserstoffproduktion beim Abschrecken verantwortlich. Um die tatsächliche Wasserstoffproduktion in der Abschreckphase voraussagen zu können, muß eine Hypothese in das Modell eingeführt werden, die eine solche kohärente Temperatureskalation, die im ganzen Bündel gleichzeitig in allen Ebenen am Anfang der Abschreckphase auftritt, erklären kann. Die neue Hypothese in dieser Arbeit basiert auf der Annahme, daß der erhöhte Dampfpartialdruck während der Abschreckphase Wärmeverluste reduziert und dadurch die plötzliche Temperatureskalation im ganzen Bündel verursacht.

Für eine solche Voraussage der Wasserstoffproduktion in CORA-Experimenten wurden die gekoppelten Massendiffusions- und Wärmeleitungsgleichungen im Stab gelöst. Die Staboberfläche tauscht Wärme mit der inneren Seite der Ummantelung durch Strahlung aus.

Die Ummantelungsisolierung besteht aus 1.9 mm dickem ZrO_2 -Fasermaterial und ist an der äußeren Seite der Ummantelung von 36 bis 1036 mm befestigt. Die vom Hersteller (Fa. Zircar) spezifizierten technischen Daten [80] der Faserisolierung sind in Tabelle 4.3 aufgelistet. Vor der Nutzung dieser Daten im Rechenprogramm wurden diese verifiziert. Im CORA-13 Experiment wurden mehrere Temperaturmessungen an den äußeren und inneren Seiten der Ummantelungsisolierung vorgenommen, aber nur eine (in der 950 mm Ebene) blieb bis zum Ende des Experimentes unbeschädigt. Alle anderen versagten bei etwa 4500 Sekunden. Die Daten aus Tabelle 4.3 wurden benutzt, um das Temperaturprofil in der Isolierung nachzurechnen. Das einfache Wärmeleitungsproblem in planarer Geometrie wurde mit folgenden Randbedingungen gelöst: An der inneren Seite der Isolierung wurde eine in CORA-13 gemessene Temperatur als Zeitfunktion eingesetzt; die äußere Seite tauscht Wärme mit dem Hochtemperaturschirm in Übereinstimmung mit Gleichung 2.36 aus; die Temperatur des Hochtemperaturschirms wurde ebenso den CORA-13 Experiment entnommen. Das Programm rechnet das Temperaturprofil in der Faserisolierung, die Temperatur an der äußeren Seite wird mit den Messungen verglichen.

Die Rechenergebnisse sind in Abbildung 4.29 und 4.30 dargestellt. Mit den vom Hersteller gegebenen Daten schlug der Versuch, die Temperatur an der äußeren Oberfläche der Isolierung nachzurechnen, fehl. Die vom Hersteller angegebene Wärmeleitfähigkeit erwies sich als zu klein, um die Temperaturerhöhung während der Aufheizphase korrekt zu berechnen.

Zusammensetzung, %	
ZrO ₂	92
Y ₂ O ₃	8
SiO ₂	<0.3
Dichte, g/cm ³	0.48
Porosität, %	92
Maximale Arbeitstemperatur, °C	2200
Schmelztemperatur, °C	2590
Wärmekapazität, J/kg K	480
Wärmeleitfähigkeit, W/m K	
400 °C	0.08
800 °C	0.11
1100 °C	0.14
1400 °C	0.19
1650 °C	0.24

Tabelle 4.3: Technische Daten der ZrO₂-Faserisolierung

Da die Ummantelungsisolierung während des gesamten Experimentes eine wichtige Rolle spielt, müssen die technischen Daten korrekt sein, um mit dem Rechenprogramm eine vernünftige Voraussage machen zu können. Verschiedene Studien [77, 78, 79] zeigen, daß die Wärmeaustauschprozesse im Fasermaterial sehr kompliziert sind und die Faserisolierungseigenschaften, insbesondere die Wärmeleitfähigkeit, sich erheblich mit der Temperatur ändert. Diese erhöht sich stark mit der Temperatur durch den Einfluß von Wärmestrahlung zwischen einzelnen Fasern. Die Wärmeleitfähigkeit des Fasermaterials kann näherungsweise durch eine exponentielle Abhängigkeit von der Temperatur beschrieben werden [78]. Ein weiterer Parameter, der die Wärmeleitfähigkeit der Faserisolierung stark beeinflusst, sind die umgebenden Medien [78, 76]. Da in CORA-Experimenten das Fluid aus Wasserstoff, Argon und Wasserdampf zusammengesetzt ist, muß man diese zusätzlich berücksichtigen. Insbesondere Wasserdampf kann bei niedrigen Temperaturen die isolierende Wirkung des Fasermaterials drastisch reduzieren. Auch bei hohen Temperaturen erhöht sich die Wärmeleitfähigkeit der Faserisolierung mit zunehmendem Dampfanteil stark. Argon und Wasserstoff führen in der Regel ebenfalls zu einer Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit der Faserisolierung. Für die Berechnungen des Wärmeaustauschprozesses von Bündel mit Hochtemperaturschirm es ist auch notwendig, die Fenster der Ummantelungsisolierung zu berücksichtigen, deren Anteil ca. 30 % der Ummantelungsgesamtoberfläche beträgt. Diese Fenster tragen zur gemittelten Faserisolierungswärmeleitfähigkeit erheblich bei. Da die Modellierung der Wärmeleitfähigkeit der Faserisolierung sehr kompliziert ist, wird unter Berücksichtigung des Einflusses von Temperatur und Medienzusammensetzung folgende Methode vorgeschlagen: Auf Basis von in CORA gemessenen Temperaturen an den inneren und äußeren Seiten der Faserisolierung wurde die effektive Wärmeleitfähigkeit der

Isolierung so angepaßt, daß diese die besten Ergebnisse für das berechnete Temperaturprofil liefert. Die angepaßte Wärmeleitfähigkeit besteht aus zwei Kurven, die exponentiell von der Temperatur abhängen (vgl. Abbildung 4.31). Die erste Abhängigkeit wird nur für die Phase benutzt, wo kein Wasserdampf im Bündel existiert (vor 3300 s). Diese Abhängigkeit ist den Spezifikationen des Herstellers entnommen (vgl. Tabelle 4.3). Nach der Wasserdampfeinspeisung in das Bündel benutzt das Programm die neue angepaßte Abhängigkeit, die den Einfluß der Fenster und der Fluidzusammensetzung berücksichtigt. Mit diesen angepaßten Daten wird das Temperaturprofil in der Isolierung in der 950 mm-Ebene nachgerechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.32 dargestellt.

Die Wärmeleitungsgleichung in der Ummantelungsisolierung wurde mit dem Wärmefluß durch Strahlung als Randbedingungen an der inneren Oberfläche der Isolationsschicht gelöst. Die Außenseite der Isolierung tauscht Wärme mit dem Hochtemperaturschirm der CORA-Anlage durch Strahlung aus. Die angepaßte Wärmeleitfähigkeit der Faserisolierung wird für die Berechnungen benutzt (vgl. Abbildung 4.31).

Zwei CORA-Experimente wurden für diese Berechnungen ausgewählt: CORA-13 und CORA-29. Beide Versuche waren mit zwei Ausnahmen sehr ähnlich:

- Das CORA-29-Stabbündel wurde nicht abgeschreckt, sondern es wurde mit kaltem Argon gekühlt,
- Das Stabbündel im CORA-29 Versuch war voroxidiert.

Andere Parameter, wie zum Beispiel Argon- und Dampflluß und elektrische Stromleistung waren identisch.

Die Anfangsbedingungen und die Daten, die für Berechnungen benutzt wurden [46], sind in Abbildung 4.26 gezeigt. Die Bündelgeometrie wurde auch in diesen Versuchen so gewählt, wie sie in Tabelle 3.1 beschrieben ist. Das Bündel ist bei beiden Rechnungen in fünf vertikale Abschnitte aufgeteilt. Die Randbedingungen für den Strahlungstransport am Hochtemperaturschirm basieren auf gemessenen Temperaturen.

Das REFLOX-Programm berechnet sowohl die Temperaturverteilung in den Brennstäben als auch die Wasserstoffproduktionsraten der verschiedenen Abschnitte und die gesamte Wasserstoffherzeugung.

Zur Vereinfachung der Darstellung wird nur die Temperaturverteilung für die 900 mm Bündel Ebene in Abbildung 4.33 gezeigt. Das Programm sagt die Anfangszeit der chemischen Zirkaloy/Dampf-Reaktion mit einer Verzögerung voraus, gefolgt mit einer Temperatureskalation nach 4000 s. Die berechneten Temperaturen sind etwas höher als die experimentell bestimmten. In dem CORA-13 Experiment führt die große Menge an Dampf, der durch Kontakt von Wasser mit den heißen Brennstäbe entsteht, zur Reduzierung der Wärmeverluste und zur Temperatureskalation in der Abschreckphase. Für das CORA-29 Experiment ist keine Temperatureskalation zu beobachten, und die Brennstabtemperatur sinkt durch die Abkühlung mit kaltem Argon langsam ab (vgl. Abbildung 4.34). Die gleiche Tendenz wurde für alle fünf Bündel Ebenen beobachtet.

Die berechneten Wasserstoffproduktionsraten für die zwei Experimente sind in den Abbildungen 4.35 und 4.36 verglichen. Wie die Abbildungen zeigen, führt die Temperaturerhöhung in der Abschreckphase in den CORA-13 Berechnungen zu einer Eskalation durch eine chemische Zirkaloy/Dampf-Reaktion, die von einer starken Wasserstofffreisetzung gefolgt ist. Die entsprechenden Berechnungen für das CORA-29 Experiment zeigen keine solche Wasserstoff-Spitze.

Das berechnete Temperaturniveau in der Abschreckphase des CORA-13 Versuches (4870 s) ist niedriger als die gemessenen Werte. Eine mögliche Erklärung ist, daß die berechneten Temperaturen in der Transientenphase etwas höher sind und deswegen die berechnete Menge von oxidiertem Zirkaloy größer als im Experiment ist. Die berechnete ZrO_2 -Schichtdicke im CORA-13 Versuch ist in Abbildung 4.37 dargestellt. Zum Zeitpunkt des Abschreckbeginns ist nicht viel Zirkaloy übrig, das oxidiert werden kann. Dadurch sind die Temperaturen und entsprechenden Wasserstoffproduktionsraten in der Abschreckphase niedriger als die experimentell gemessenen Werte. Die gesamte berechnete Wasserstoffproduktion in CORA-13 Experiment ist folglich auch zu hoch vorhergesagt.

Das CORA-13 Experiment wurde auch mit der vom Hersteller angegebenen Wärmeleitfähigkeit nachgerechnet. Die berechneten Temperatur und Wasserstoffherzeugungsraten sind in Abbildungen 4.38 und 4.39 dargestellt. Der isolierende Effekt, der durch zu kleine Werte der Wärmeleitfähigkeit verursacht wird, führt während der Eskalationsphase zu einer starken Oxidation und zu hohen Wasserstoffherzeugungsraten. Bis zum Ende des Experimentes wird der Hauptanteil von metallischem Zirkaloy oxidiert. Die reduzierten Wärmeverluste an der äußeren Isolierungsoberfläche führen zu keiner Temperaturerhöhung im Bündel und folglich zu keiner starken Wasserstoffherzeugung während der Abschreckphase.

Abbildungen 4.40 und 4.41 zeigen sowohl die berechnete Zeitabhängigkeit des Molenbruches

der erzeugten Gase als auch die resultierende Gaszusammensetzung im CORA-13 Experiment. Wie die Abbildungen zeigen, ist der Dampf-Molenbruch in der Abschreckphase höher als 90 %. Diese Tatsache ist Angesichts der Reaktorsicherheit sehr wichtig, da die Zusammensetzung der Mischung außerhalb oder im Bereich der Entflammbarkeitsgrenze liegen wird, wenn sie im Containment mit Luft gemischt wird. Die hohen Wasserstoffproduktionsraten beim Abschrecken des Kerns stellen keine große sofortige Gefahr für das Containment dar, da sie mit noch höheren Dampfproduktionsraten begleitet werden. Nur nach Kondensation des Dampfes kann sich ein reaktiveres Gemisch einstellen. Da die Zeitskala für Kondensation viel größer als die Zeitskala für Wasserstoffproduktion beim Abschrecken des Kernes ist, ist das Abschrecken nicht so kritisch für die Maßnahmen zur Kontrollierung des Wasserstoffes, wie im allgemeinen angenommen.

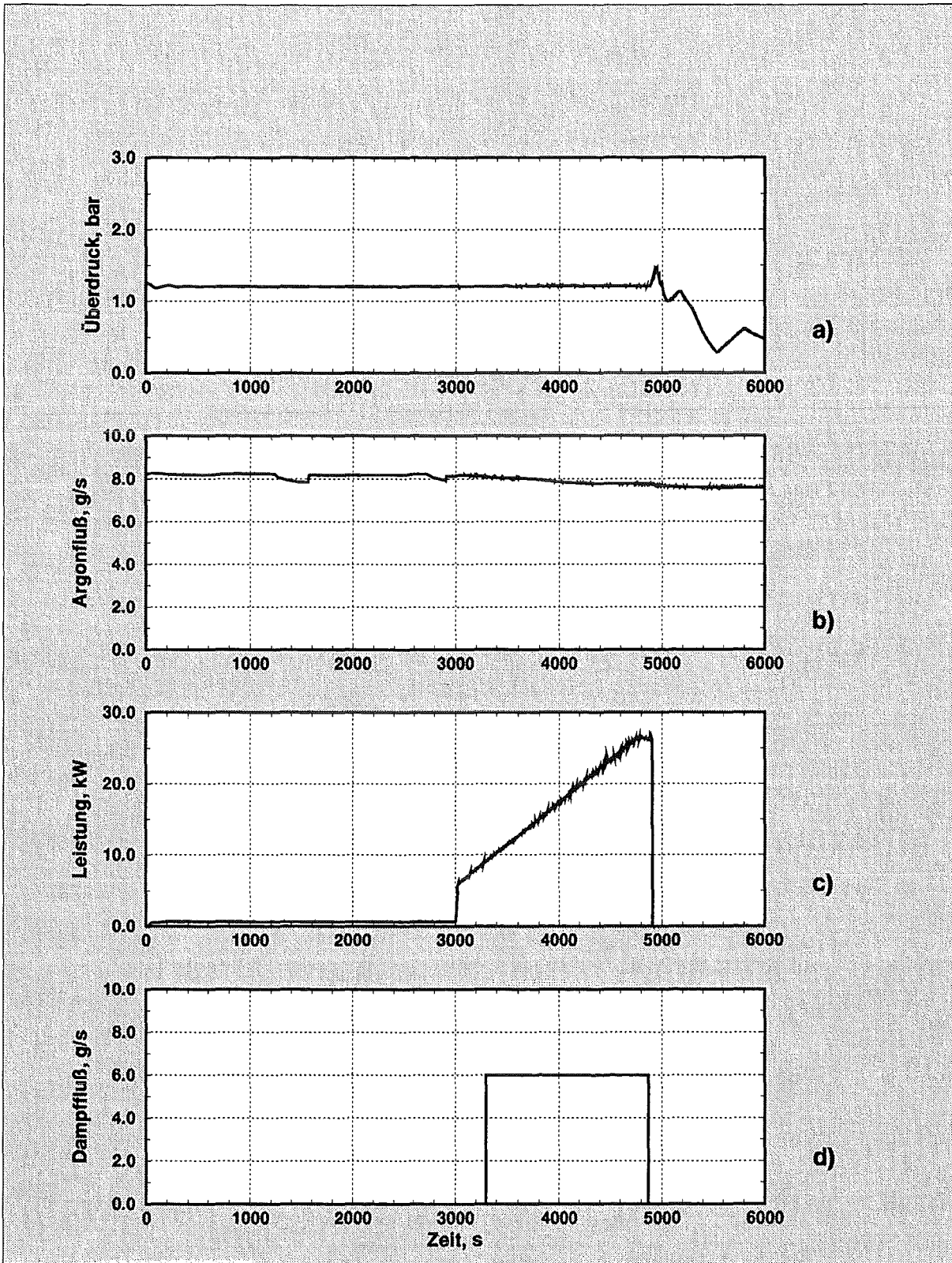


Abbildung 4.26: CORA-13 Test: a) Systemüberdruck; b) Argonfluß; c) zugeführte Leistung; d) zugeführte Dampfflußrate ins Bündel.

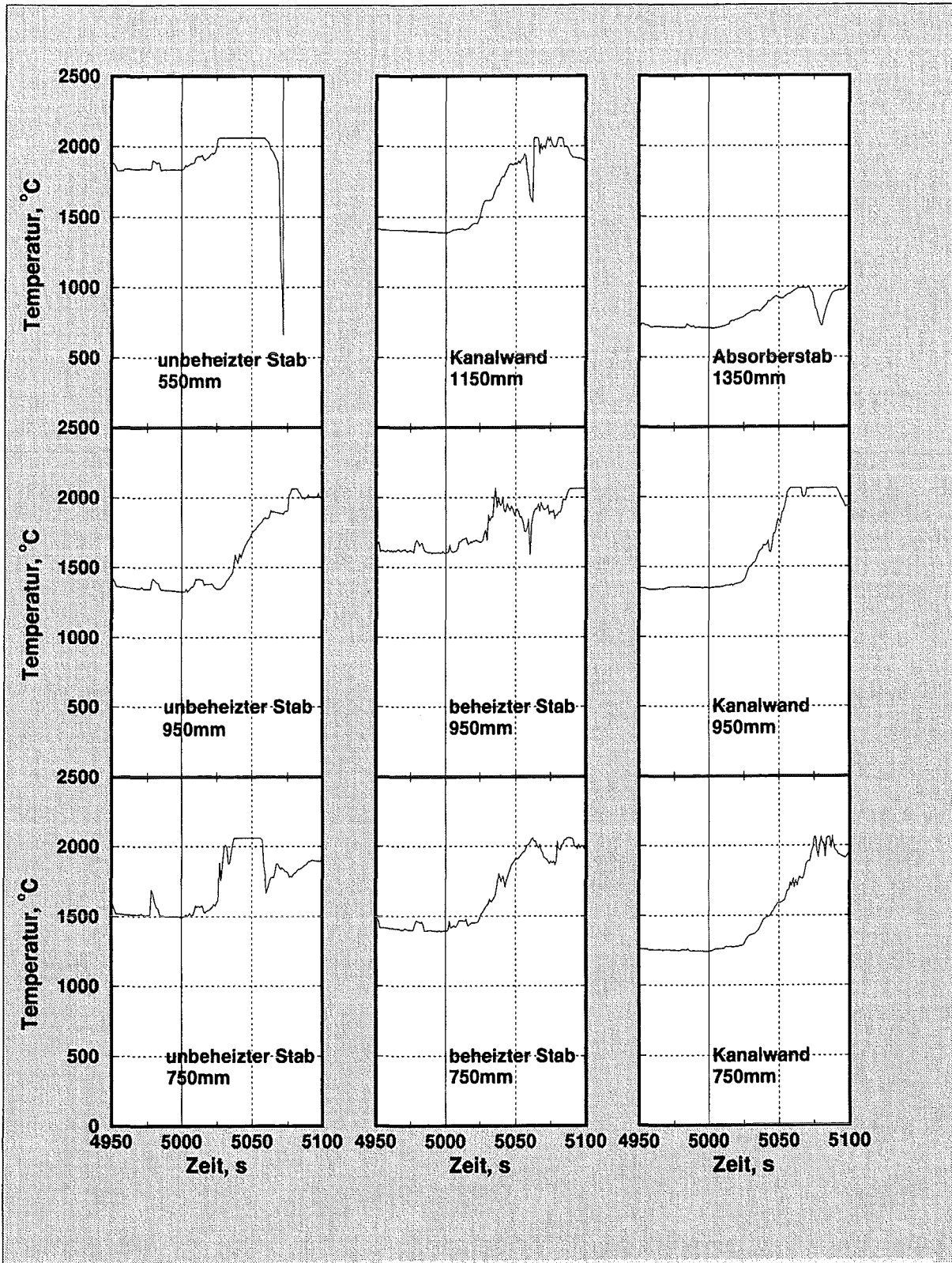


Abbildung 4.27: Temperaturspitzen im CORA-17 Experiment, die durch Fluten verursacht wurden. Flutbeginn bei 5000s.

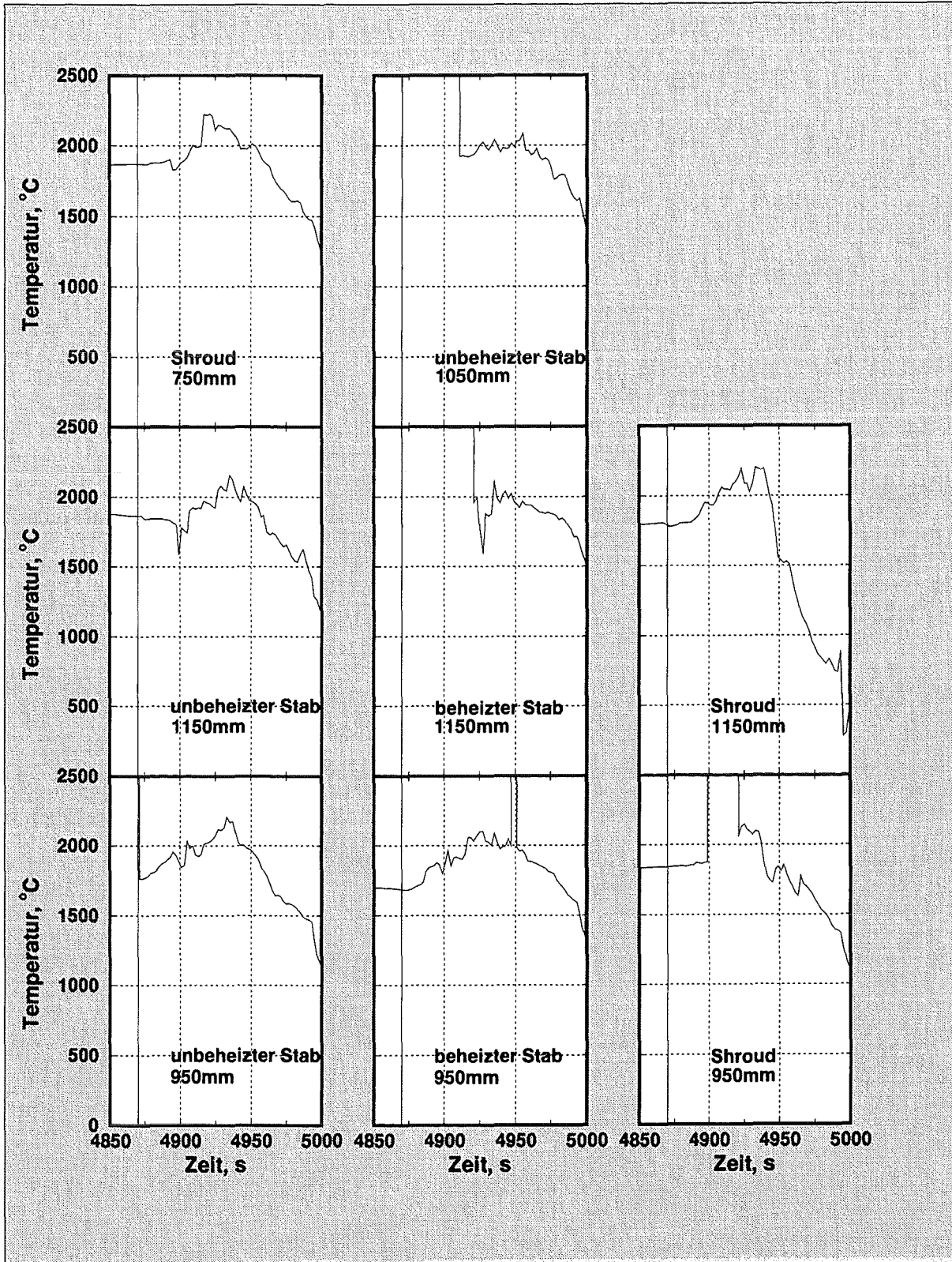


Abbildung 4.28: Temperaturspitzen im CORA-13 Experiment, die durch Fluten verursacht wurden. Flutbeginn bei 4870 s.

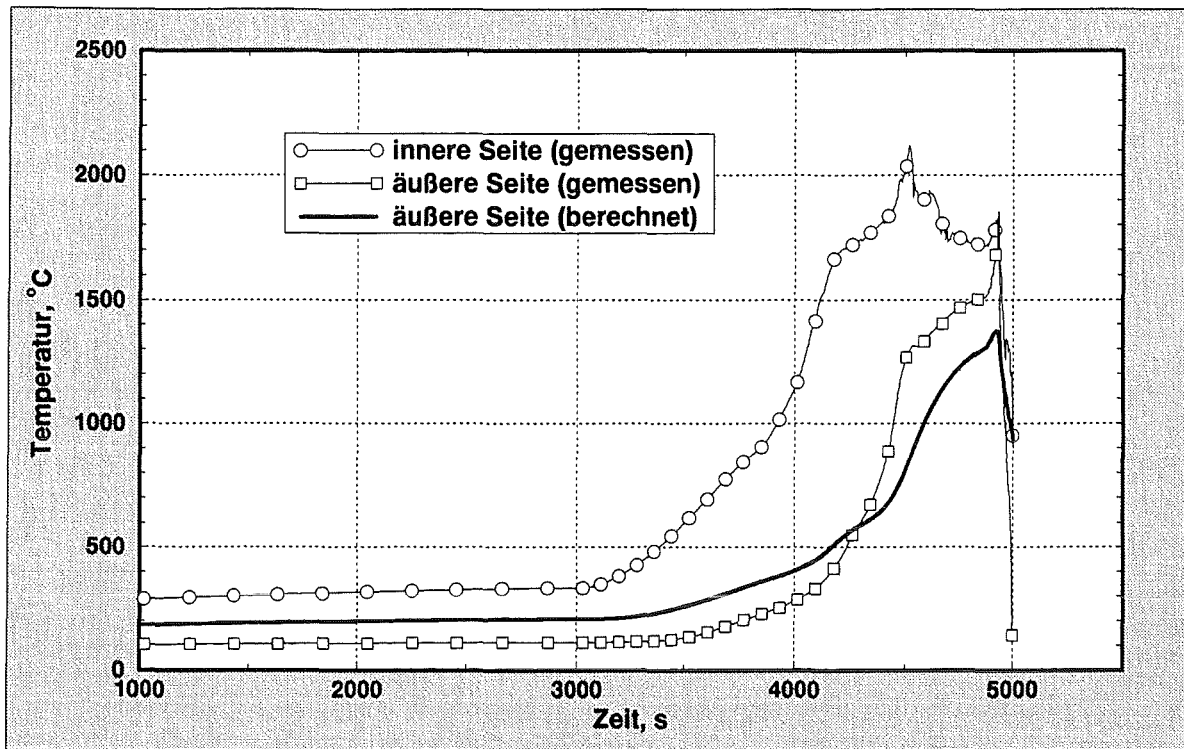


Abbildung 4.29: Vergleich von gemessenen und berechneten Temperaturen an den inneren und äußeren Seiten der Ummantlungsisolierung: Ebene 950 mm.

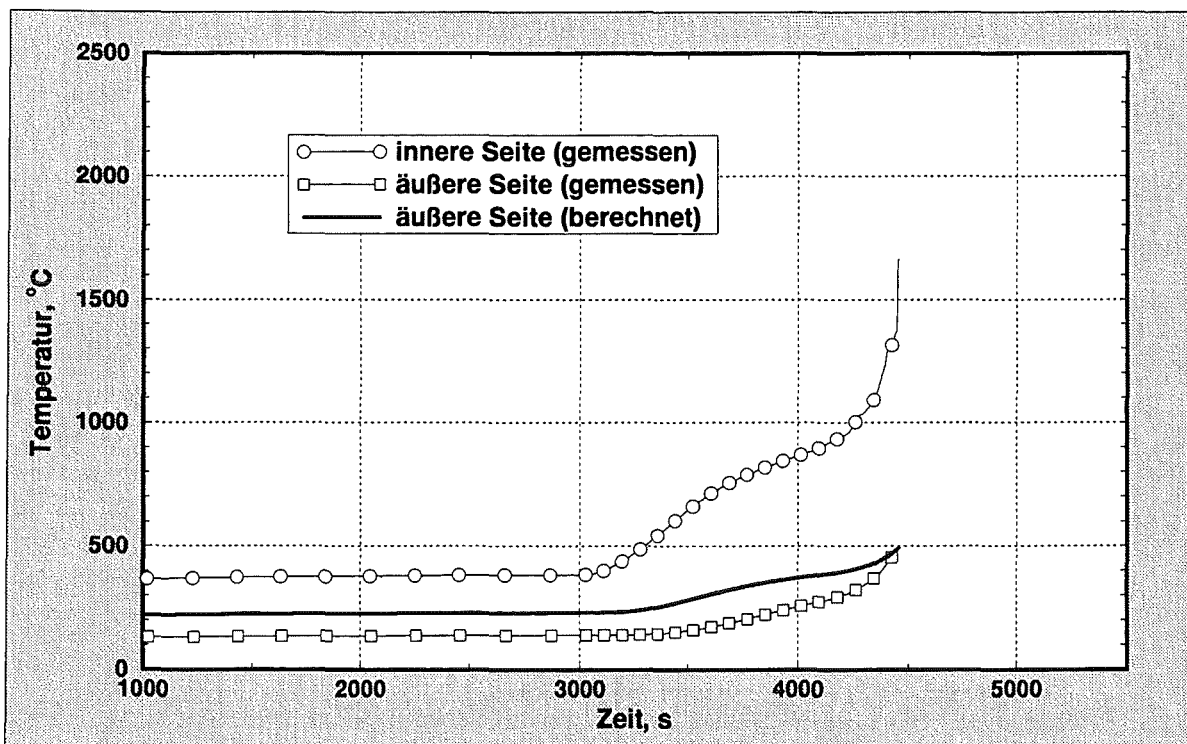


Abbildung 4.30: Vergleich von gemessenen und berechneten Temperaturen an den inneren und äußeren Seiten der Ummantlungsisolierung: Ebene 350 mm.

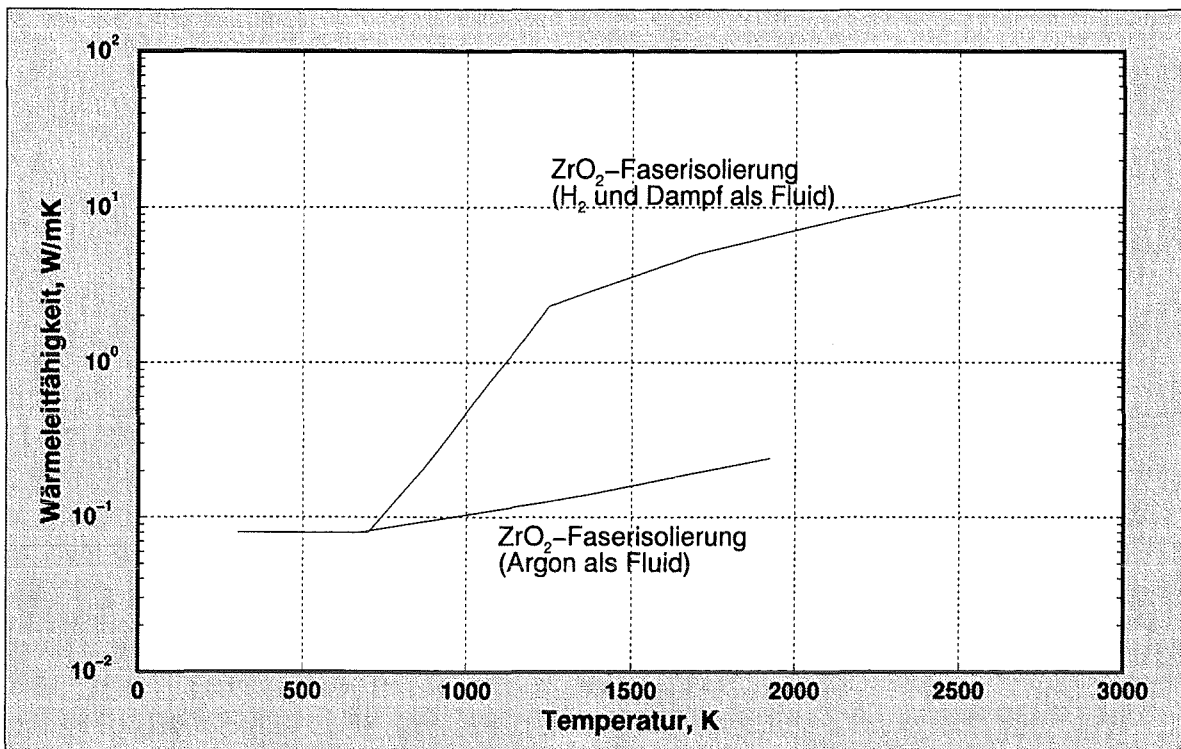


Abbildung 4.31: Wärmeleitfähigkeit der ZrO₂-Faserisolierung

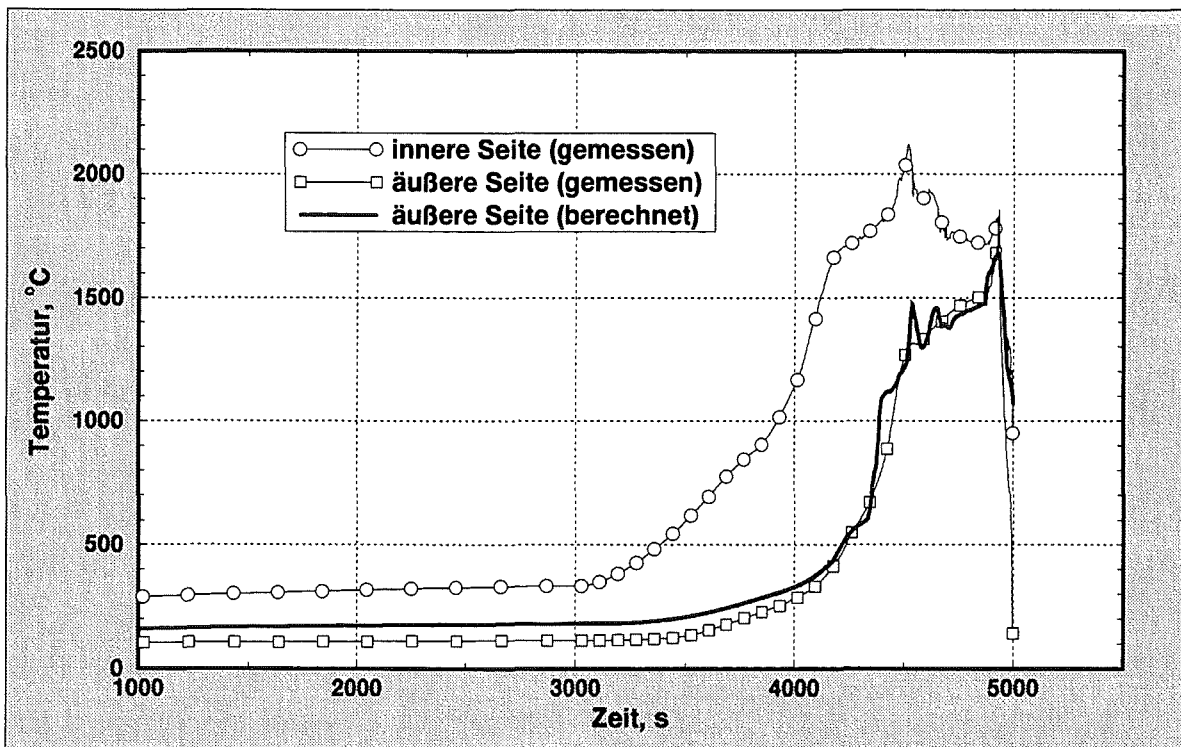


Abbildung 4.32: Vergleich von gemessenen und berechneten Temperaturen an den inneren und äußeren Seiten der Ummantlungsisolierung: Ebene 950 mm, angepaßte Wärmeleitfähigkeit.

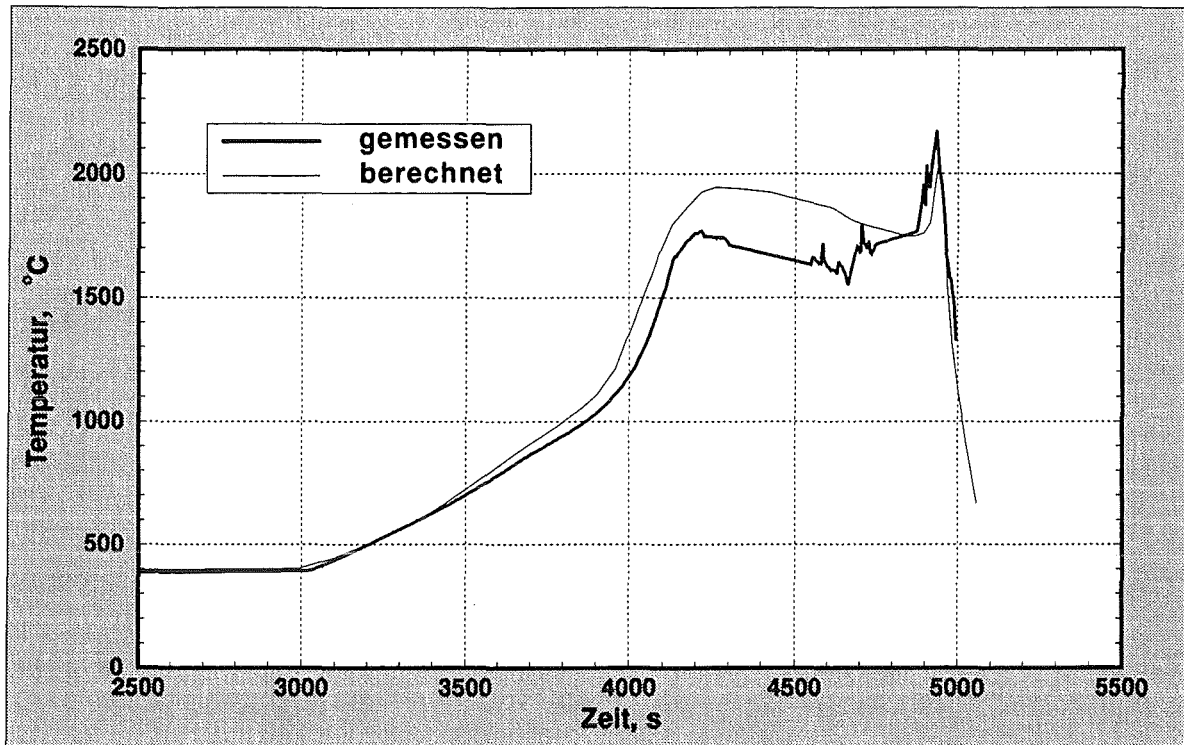


Abbildung 4.33: Temperatur in Ebene 900 mm im CORA-13 Experiment.

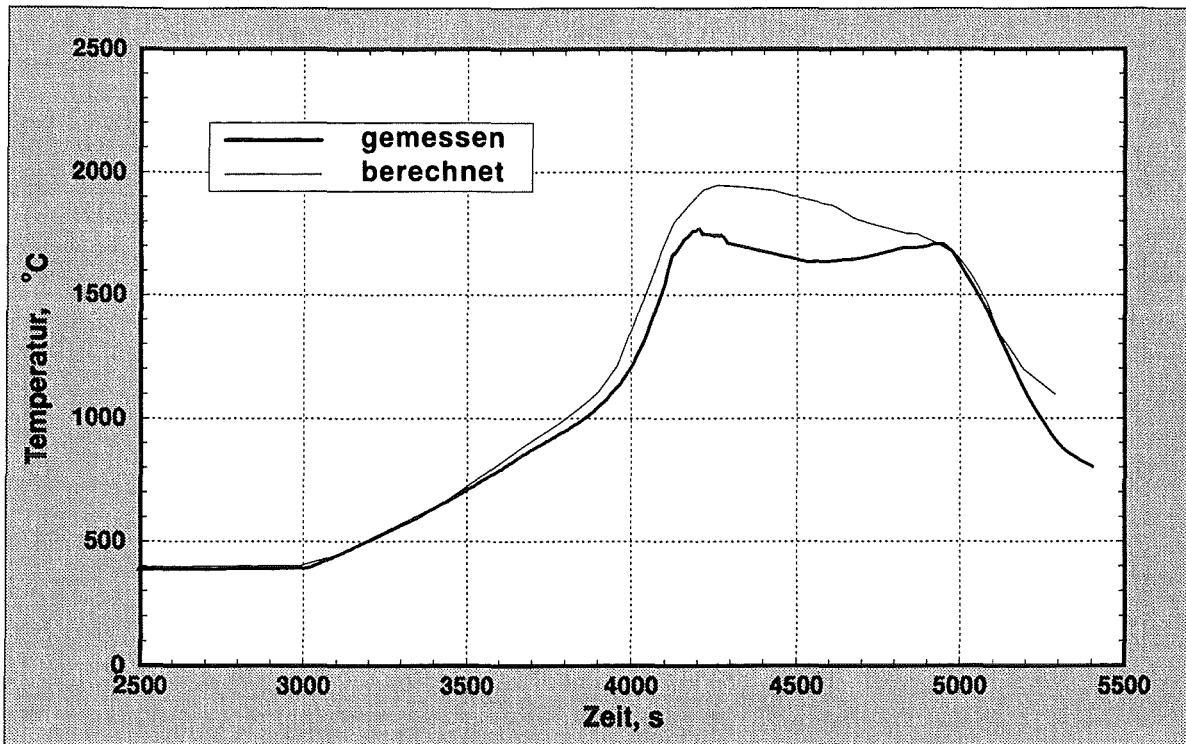


Abbildung 4.34: Temperatur in Ebene 900 mm im CORA-29 Experiment.

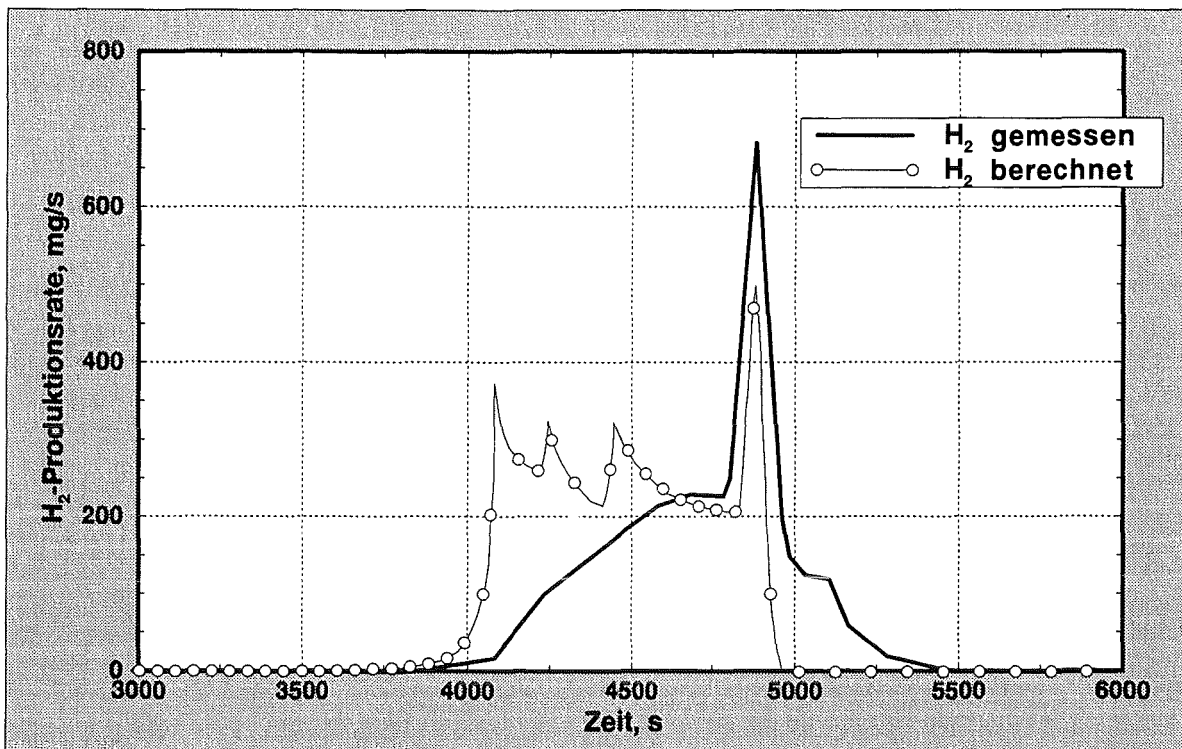


Abbildung 4.35: H₂-Produktionsrate in CORA-13, berechnet mit voll mechanistischem REFLOX-Programm (einschließlich Strahlungswärmeübergang).

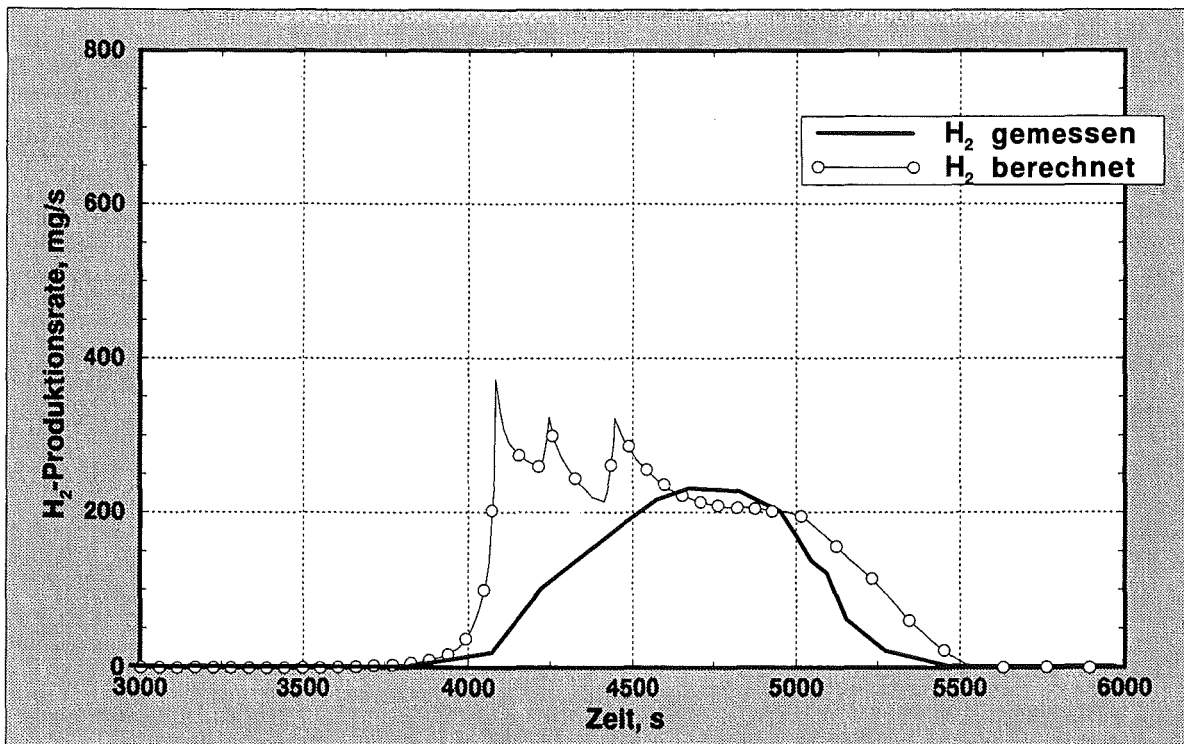


Abbildung 4.36: H₂-Produktionsrate in CORA-29, berechnet mit voll mechanistischem REFLOX-Programm (einschließlich Strahlungswärmeübergang).

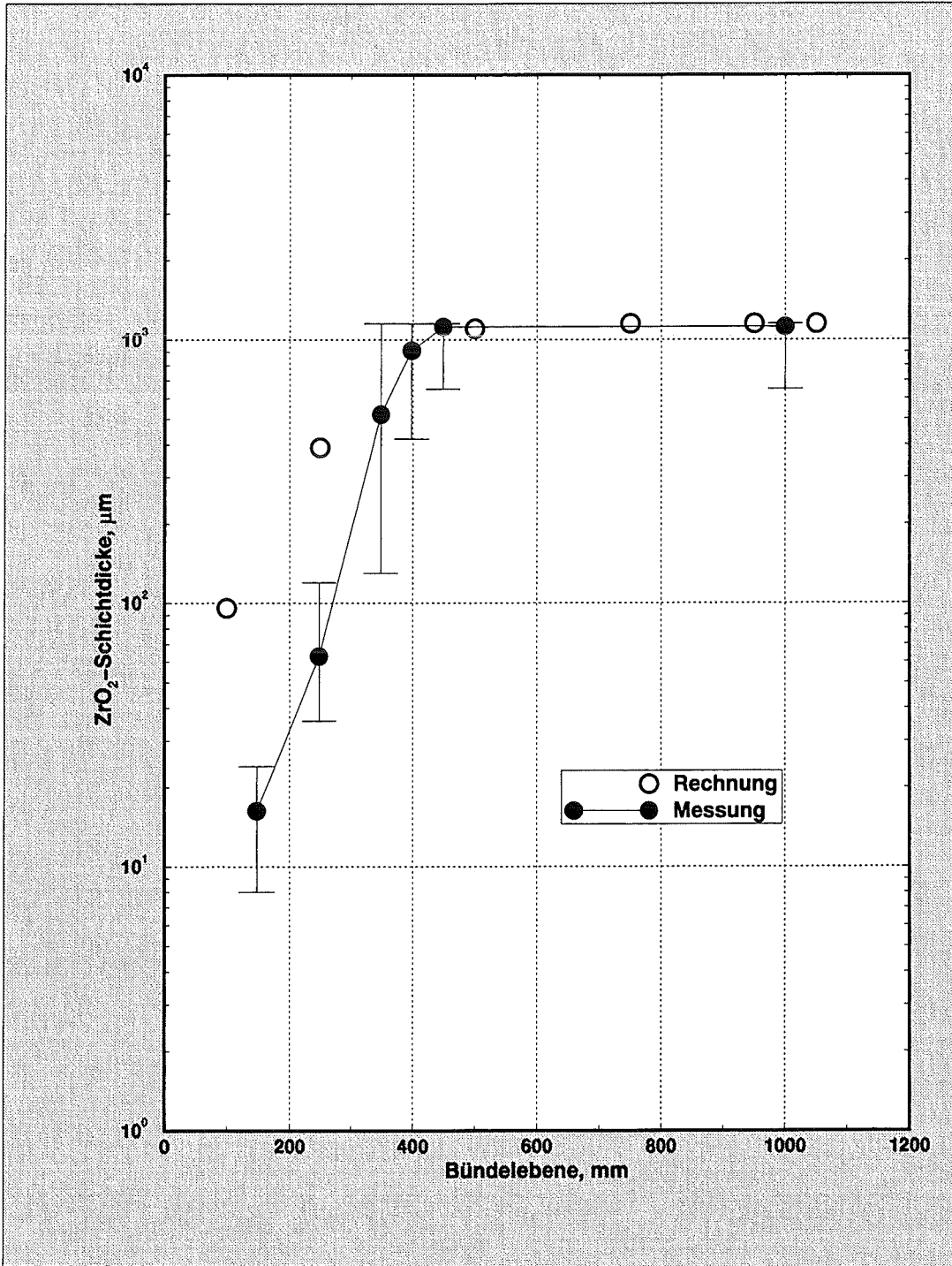


Abbildung 4.37: ZrO₂-Schichtdicke im CORA-13 Experiment, berechnet mit mechanistischem REFLOX-Programm (einschließlich Strahlungswärmeübergang).

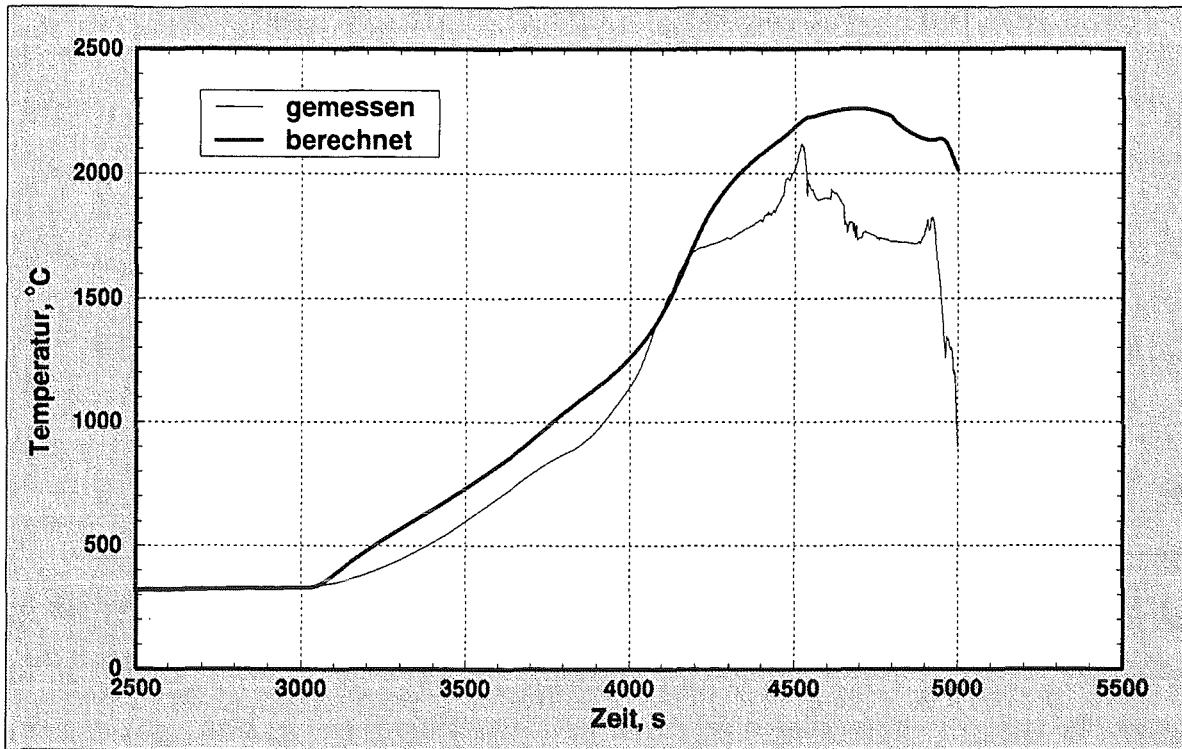


Abbildung 4.38: Temperatur in Ebene 950 mm im CORA-13 Experiment, berechnet mit der vom Hersteller angegebenen Wärmeleitfähigkeit.

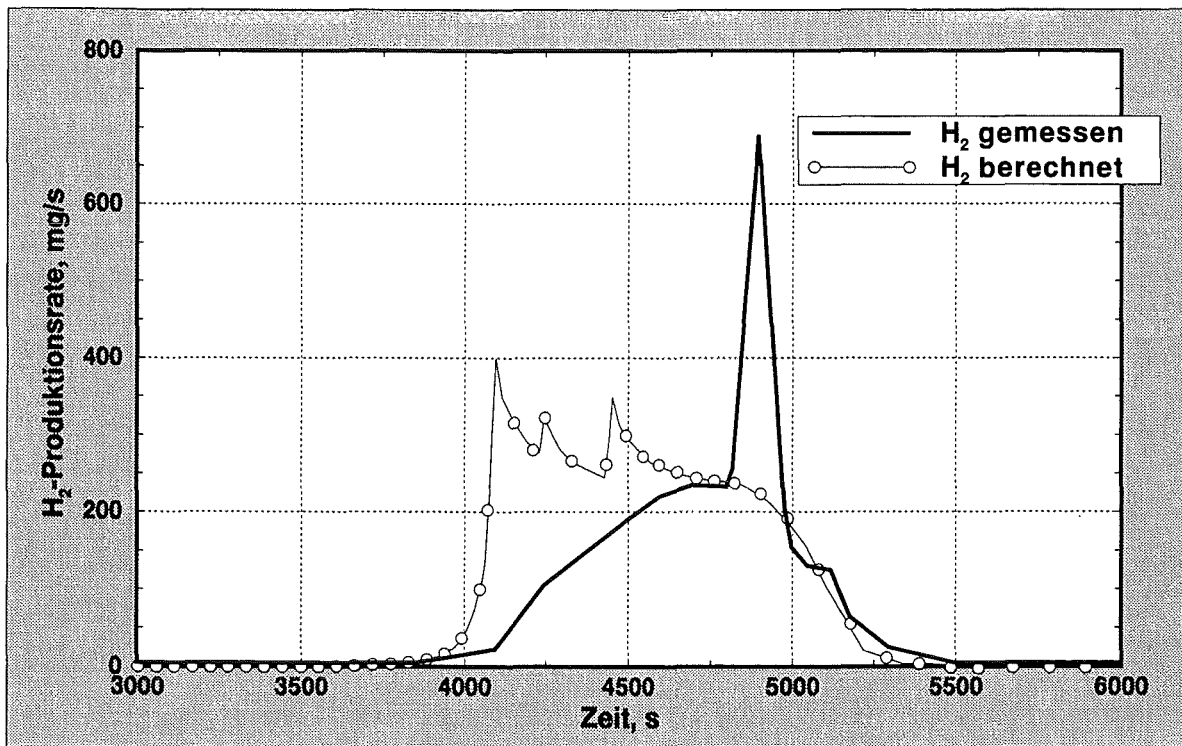


Abbildung 4.39: H₂-Produktionsrate in CORA-13, berechnet mit der vom Hersteller angegebenen Wärmeleitfähigkeit.

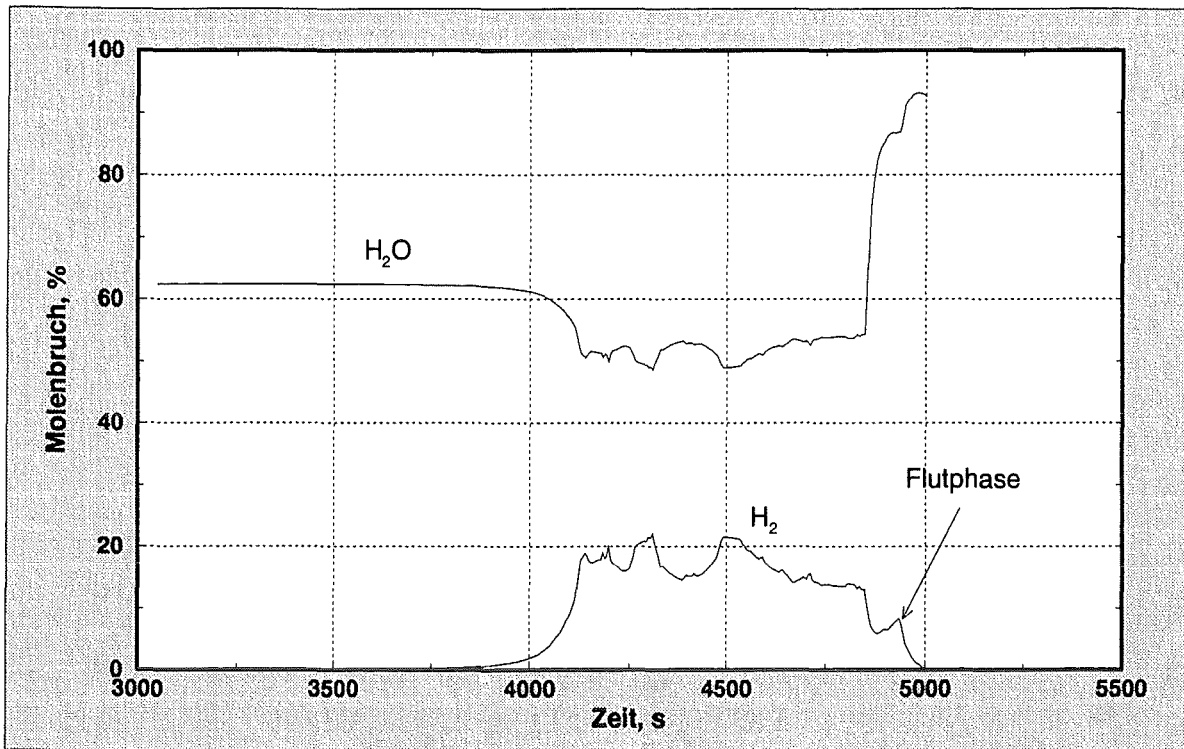


Abbildung 4.40: Berechnete Zeitabhängigkeit der H₂- und H₂O-Molenbrüche im CORA-13 Experiment. Der Restanteil besteht aus Argon.

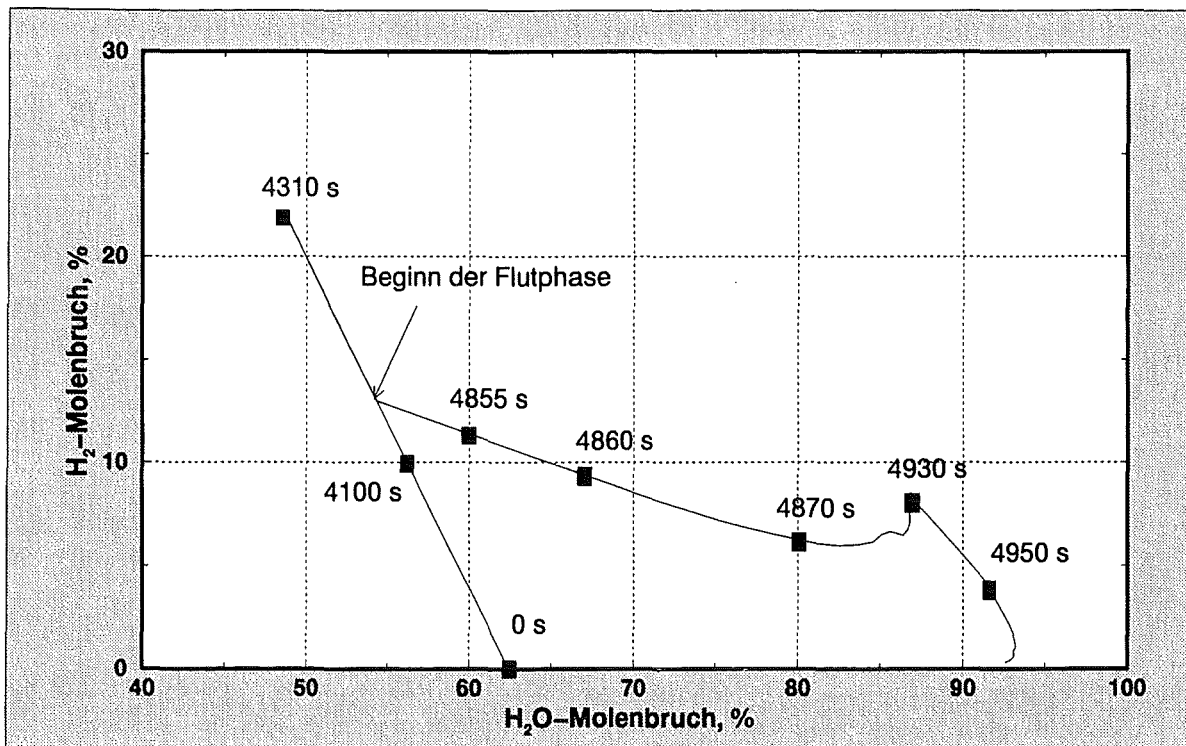


Abbildung 4.41: Berechnete Gaszusammensetzung für das CORA-13 Experiment.

5 Zusammenfassung und Ergebnisse

Das Ziel dieser Arbeit war

- die Aufklärung der dominierenden physikalischen Phänomene, die für die schnelle Wasserstoffzeugung beim Kernfluten verantwortlich sind, ausgehend von den umfangreichen CORA-Daten, die im Forschungszentrum Karlsruhe vorliegen,
- die Entwicklung und Überprüfung eines adäquaten theoretischen und numerischen Modells, das diese Phänomene hinreichend genau beschreibt (REFLOX-Programm).

Physikalische Phänomene

Die durchgeführten detaillierten Analysen der bestehenden CORA-Daten haben zu der neuen Hypothese geführt, daß es überwiegend die verbesserte thermische Isolierung der Brennstäbe durch den stark erhöhten Dampfpartialdruck ist, die die beobachtete schnelle Wasserstoffzeugung auslöst. Die plötzliche Zunahme des Dampfpartialdrucks zu Beginn des Flutvorgangs vermindert die Strahlungswärmeverluste, die bei den vorliegenden hohen Temperaturen dominieren. Dadurch kommt es zu einem plötzlichen Temperaturanstieg im ganzen Reaktorkern, zu höheren Sauerstoff-Diffusionsgeschwindigkeiten in den teiloxidierten Hüllrohren und zu entsprechend höheren Wasserstoffproduktionsraten.

Die anderen zwei Hypothesen, die gegenwärtig zur Erklärung herangezogen werden, nämlich die Ribbildung und Zirkon-Hydrierung, erlauben nach unserem Verständnis keine konsistente Erklärung aller wesentlichen experimentellen Beobachtungen, obwohl sie in bestimmten Zeit- und Raumbereichen vermutlich eine Rolle spielen.

Deshalb wurde in dieser Arbeit eine Modellierung der CORA-Experimente durchgeführt, die allein auf der Sauerstoffdiffusion im Hüllrohr, auf der Wärmeleitung im Brennstab und auf dem Strahlungswärmetransport während der Flutphase basiert.

Modell und Verifizierung

Es wurde ein Programmpaket entwickelt, das die genannten physikalischen Prozesse während der Wassereinspeisung in einen überhitzten Kern beschreibt (REFLOX). Das Modell geht von intakter Stabgeometrie aus. Schmelzeverlagerung und konvektiver Wärmeübergang werden

vernachlässigt, da sie sich als zweitrangige Effekte für den Flutprozess erweisen. Die Anwendung des REFLOX-Modells ergibt deshalb konservative Wasserstoffproduktionsraten, die für abdeckende Unfallstudien benötigt werden.

Das Modell beschreibt die folgenden gekoppelten Hauptphänomene:

- **Sauerstoffdiffusion im Zirkaloy-Hüllrohr**

Das Modell für die Sauerstoffdiffusion besteht aus den Gleichungen für den Sauerstofftransport in den verschiedenen O-Zr-Phasenschichten und den Massenerhaltungsgleichungen an den Grenzflächen. Für jedes axiale Segment in einem Brennstab existiert ein eindimensionales Diffusionsmodell mit sich bewegenden Grenzflächen zwischen den verschiedenen Reaktionsschichten, die sich aus den chemischen Wechselwirkungen der Zirkaloyhülle mit dem UO_2 und mit dem Dampf ergeben.

- **Wärmeleitung und -quellen im Brennstoff/Hüllrohr-System**

Um das radiale Temperaturprofil im Brennstab zu bestimmen, wird das eindimensionale Wärmeleitungsproblem im Stab mit verteilten Wärmequellen gelöst. Drei verschiedene Wärmequellenverteilungen sind möglich: elektrische Heizung durch ein zentrales Heizelement, homogene Energiequelle im UO_2 -Pellet und lokale Freisetzung der Zr/Dampf-Reaktionsenthalpie an der Metall/Oxid-Grenzfläche. Die jetzige Programmversion kann bis zu 100 radialen Punkte im Stab behandeln, was eine gute Auflösung der Temperaturverteilung im Bereich der Zirkaloy/Dampf Reaktionszone erlaubt. Die Randbedingungen für das Wärmeleitungsmodell können erster Art (gegebene Temperaturverteilung an der Staboberfläche) oder dritter Art (Strahlung von der äußeren Oberfläche) sein. Das eindimensionale Problem der Wärmeleitung im Stab mit den verteilten Wärmequellen wird in der gegebenen axialen Sektion des repräsentativen Stabes gelöst. Dieses Teilmodell berechnet die Temperaturverteilung im Stab und liefert die Eingabe für das Diffusionsmodell.

- **Strahlungswärmetransport in der dampfhaltigen Umgebung**

In der Flutphase erhöht sich der Partialdruck des Dampfes im Reaktorkern wegen der starken Verdampfung von Wasser erheblich. Die Wärmeverluste vom Kern (oder Versuchsbündel) an die kalten Umgebungsstrukturen verringern sich dann aufgrund der strahlungsabsorbierenden Wirkung des Dampfes. Dies bewirkt eine rasche Temperaturskalation, eine beschleunigte Sauerstoffdiffusion und eine schnelle Wasserstoffherzeugung.

- **Dampf- und Wasserstofftransport in den CORA-Experimenten**

Für die spezielle Analyse der Wasserstoffherzeugung in den CORA-Experimenten muß der

Wasserstofftransport in der CORA-Anlage modelliert werden. Dies wird in den bisher existierenden Rechenprogrammen nicht berücksichtigt. Auf der Basis der Ergebnisse des CORA-7 Vorversuches wurde ein angemessenes Modell entwickelt. Die Einbindung dieses Modells in die Berechnungen führt zu einer sehr guten Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen H_2 -Flußraten. Die Analyse von CORA-Flutversuchen ohne Transportmodellierung ist nicht sinnvoll.

Das Programm wurde durch Einzeleffektuntersuchungen und durch integrale Vergleiche mit anderen Programmen verifiziert. Der erste Schritt war die Überprüfung des Diffusionsmodells. Die REFLOX Oxidationskinetik zeigte gute Übereinstimmung mit den Vorhersagen von SCD-AP/RELAP und MELCOR. Die Formulierung im REFLOX-Programm ist besser, da sie die Oxidationskinetik in den unterschiedlichen Hüllrohr-Schichten vollständig auflöst und es erlaubt, beliebige Temperaturverläufe zu modellieren. Der Rechenaufwand für diese detailliertere Modellierung ist natürlich größer.

Der zweite Schritt der Modellüberprüfung war die Simulation des CORA-13 Versuches mit den gemessenen Hüllrohr-Oberflächentemperaturen als Eingabedaten. Dieser Fall war ein kombinierter Test des Sauerstoff- und Wärmediffusionsmodells. Das Modell ergab eine sehr gute Reproduktion der gemessenen, schnellen Wasserstofferzeugung, wenn der Gastransport innerhalb der CORA-Anlage berücksichtigt wurde. Es ist deshalb möglich, die Wasserstofferzeugung von CORA-13 allein mit Sauerstoffdiffusion, mit Wärmetransport und mit dem CORA-spezifischen Gastransport zu erklären. Der Grund für die vielen erfolglosen Versuche, CORA-13 in einem internationalen Benchmark zu modellieren, scheint zu sein, daß wenigstens einer dieser drei Prozesse nicht adäquat behandelt wurde. Unsere Berechnungen deuten darauf hin, daß keine weiteren physikalischen Prozesse benötigt werden, um CORA-13 und andere CORA Flutexperimente zu erklären.

Der dritte Schritt bei der REFLOX Überprüfung war, die CORA-13 Wasserstofferzeugung in einem vollständig mechanistischen Modell vorherzusagen. Das wesentliche zusätzliche Modell umfaßt die Behandlung des Strahlungswärmetransports an die kalte Umgebung des Kerns oder den CORA-Versuchsbündels. Die Verringerung der Strahlungsverluste bei erhöhtem Dampfpartialdruck scheint der entscheidende (und neue) Mechanismus zu sein, der die schnelle Wasserstofferzeugung auslöst. Mit diesen Ansatz lassen sich Zeitpunkt und Größe der beobachteten Temperaturverläufe im gesamten CORA-Bündel bei Flutbeginn erklären.

Die berechnete ZrO_2 -Schichtdicke stimmt ebenfalls gut mit den Messungen überein. Die verbleibenden Abweichungen zwischen Rechnung und Messung sind hauptsächlich eine Folge der vernachlässigten Konvektions-Wärmeübertragung in REFLOX, die etwas zu hohe Temperaturen und Hüllrohroxidation vor der Flutphase verursacht. Die Einbeziehung eines Konvektions-Wärmetransportmodells in den REFLOX-Code könnte die Übereinstimmung weiter verbessern.

Ein wichtiges neues Ergebnis der CORA-13-Simulation betrifft die chemische Zusammensetzung des Wasserstoff-Dampf-Gemisches, das während der Flutphase gebildet wird. Obwohl die Wasserstoffproduktionsrate in der Flutphase rasch ansteigt, nimmt die Dampfproduktionsrate sogar noch mehr zu. Wenn die entstehende H_2 -Dampf-Mischung in eine Luftatmosphäre eintritt, bilden sich nur inerte oder langsam brennende H_2 -Luft-Dampf-Gemische. Reaktionsfähige Gasmischungen entwickeln sich nur durch Dampfkondensation an kalten Wänden. Deshalb wird die charakteristische Zeitkonstante für Wasserstoffkontrollsysteme nicht durch die Wasserstofferzeugungsrate beim Fluten definiert, sondern eher durch die charakteristische Zeitkonstante für Dampfkondensation im Containment. Das Gefährdungspotential aus den hohen Wasserstoffproduktionsraten während eines Flutvorganges wird durch die begleitende Dampfungwicklung stark verringert. Die Anforderungen an Wasserstoffkontrollsysteme sind deshalb viel niedriger als bisher angenommen.

Mit dem in der vorliegenden Arbeit entwickelten Programm können die Prozesse der Wasserstofferzeugung in der Flutphase eines Störfalles in der gesamten Bandbreite beschrieben werden, d.h. für beliebige Stabgeometrie, Aufheizgeschichte und Flutgeschwindigkeit des Kerns. Damit kann ein weiter Bereich postulierter Unfallszenarien modelliert werden.

Der wesentliche neue Aspekt des hier entwickelten und an CORA-Versuchen überprüften Modellansatzes besteht in der Behandlung der Strahlungswärmeverluste, die durch den Dampfpartialdruck stark beeinflusst werden. Im REFLOX-Modell konnten jedoch noch nicht allen physikalischen Phänomenen in der wünschenswerten Genauigkeit Rechnung getragen werden. Dies umfaßt im Wesentlichen das Modell der konvektiven Wärmeübertragung in der Dampf-atmosphäre und die Berücksichtigung von Wassertropfen im Strahlungsmodell. Ein weiteres Entwicklungspotential des Programmes liegt in der Implementierung eines adaptiven Gitters im Wärmeleitungsmodell. Mit diesen Erweiterungen wird das Programm in der Lage sein, eine noch bessere Beschreibung von Experimenten und damit eine genauere Vorhersage von Unfallabläufen zu liefern.

Literaturverzeichnis

- [1] Severe Accident Risks: An Assessment for Five U.S. Nuclear Power Plants. Final Summary Report. U.S. Nuclear Regulatory Commission. NUREG-1150, Vol.1. December 1990.
- [2] Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke, Phase B. Köln: Verl. TÜV Rheinland, 1990. ISBN: 3-88585-809-6.
- [3] Gemeinsame Empfehlung von RSK und GPR vom 16.06.1993. Sicherheitsanforderungen an zukünftige Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktor.
- [4] P.Kuan, J.L.Anderson, and E.L.Tolman. Thermal Interactions During the Three Mile Island Unit 2 2-B Pump Transient. Nuclear Technology 87, p.977, 1989.
- [5] N.Aksan, F.D'Auria, H.Glaeser, R.Pochard, C.Richards, A.Sjoeberg. OECD/NEA-CSNI Separate Effects Test Matrix for Thermal-Hydraulic Code Validation. Vols. I and II, OCDE/GD (94) 82, OECD/NEA Publications, September 1994, pp. 76-83.
- [6] R.R.Hobbins and G.D.McPherson. A Summary of Results from the LOFT LP-FP-2 Test and Their Relationship to Other Studies at the Power Burst Facility and of the Three Mile Island Unit 2 Accident. In "The OECD/LOFT Project: Achievements and Significant Results", ISBN 92-64-033339-4, OECD Paris, 1991, pp. 403-413.
- [7] A.D.Knipe, S.A.Ploger and D.J.Osotek. PBF Severe Fuel Damage Scoping Test – Test Results Report. NUREG/CR-4683, March 1986.
- [8] S.Hagen, P.Hofmann, G.Schanz, G.Schumacher, F.Seibert, L.Sepold. Effects of quenching on LWR fuel rod behaviour observed in the CORA sever fuel damage experiments. Proc. of the Internat. Topical Meeting on Safety of Thermal Reactors, *Portland, Or., July 21-25, 1991, @La Grange Park, Ill.:ANS, 1991, pp. 85-91.
- [9] C.Gonnier, G.Geoffroy and B.Adroguer. PHEBUS SFD Programme: Main Results. A.N.S. Int. Meeting on Safety of Thermal Reactors, Portland, USA, July 1991, pp. 76-84.
- [10] P.Hofmann, V.Noack. Experiments on the Quench Behaviour of Fuel Rod Segments. 1st Int. Quench Workshop, FZK Karlsruhe, October 4-6, 1995.
- [11] A.W.Cronenberg, M.S.El-Grenk. An Assessment of Oxygen Diffusion during UO₂-Zircaloy Interacion. J. of Nucl. Mat. 78(1978), pp. 390-407.

- [12] D.R.Olander. The UO_2 /Zircaloy Chemical Interactions. J. of Nucl. Mat. 115 (1983), pp. 271-285.
- [13] B.Lustman. Zirconium-Water Reactions, WAPD-137.
- [14] D.L.Douglass. Atomic Energy Review. Vol. 1, No. 4, Viena. International Atomic Energy Agency, 1963.
- [15] R.F.Domagla, D.J.Mcpherson. Zirconium-Oxygen System. Transactions of the American Institute for Mining Engineers. 200 (1954), p.238.
- [16] E.Gebhardt et al. Journal of Nuclear Materials, 4 (1961), p.255.
- [17] J.P.Pemsler. Electrochemical Technology, 4 (1966), p.128.
- [18] H.H.Klepfer. In Metal-Water Reactions-Effects on Core Cooling and Containment. APED-5454, March 1968.
- [19] G.Yadigaroglu. The Reflooding Phase of the LOCA in the PWRs. Part I: Core Heat Transfer and Fluid Flow. Nuclear Safety, Vol. 19, No. 1 (Jan.-Feb. 1978), p.20.
- [20] E.Elias, G.Yadigaroglu. The Reflooding Phase of the LOCA in the PWRs. Part II: Rewetting and Liquid Entrainment. Vol. 19, No. 2 (March-April 1978), p.160.
- [21] R.A.Nelson. Mechanisms of Quenching Surfaces. In Handbook of Heat and Mass Transfer, Vol. 1, Heat Transfer Operations, pp. 1103-1153. Gulf Publishing Company, Houston, London, Paris, Tokyo, 1986.
- [22] E.Olivero, F.Castiglia, S.Taibi, G.Vella. Predicting Quench Front Velocity in the Rewetting of Hot Surfaces. In Reactors and Industrial Applications, Ch. 44, pp. 1339-1355.
- [23] S.R.Kinnersly, J.N.Lillington, A.Paoracchia, K.Soda, K.Trumbauer, P.Hofmann, Y.Waarenpera, R.A.Bari, C.E.L.Hunt, J.A.Martinez. In-Vessel Core Degradation in LWR Severe Accidents: A State of the Art Report to CSNI, January 1991. NEA/CSNI/R(91)12, November 1991.
- [24] F.A.Schraub, J.E.Leonard. Core Spray and Core Flooding Heat Transfer Effectiveness in a Full-Scale Boiling Water Reactor Bundle. APED-5529, Nuclear Energy Division, General Electric Co., June 1968.
- [25] J.D.Duncan, J.E.Leonard. Emergency Cooling in BWR's Under Simulated Loss-of-Coolant Conditions (BWR-FLECHT Final Report). GEAP-13197, Nuclear Energy Division, General Electric Co., June 1971.

- [26] D.M.Kim, R.Viskanta. Interaction of Convection and Radiation Heat Transfer in High Pressure and Temperature Steam. *Int. J. Heat Mass Transfer*. Vol. 27, No. 6, pp. 939-941, 1984.
- [27] T.J.Haste, B.Adroguer, H.Aksan, C.M.Alison, S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack. Degraded Core Quench: A Status Report. August 1996, Second International QUENCH Workshop, FZK Karlsruhe, September 17-19, 1996.
- [28] G.Schanz, S.Leistikow. Experimental Results on the Hydrogen Pick-up and Storage Potential of Zircaloy-4. 1st Int. QUENCH Workshop, FZK Karlsruhe, 4-6 Oktober, 1995.
- [29] J.Frecska, G.Konczos, L.Maroti, L.Matus. Hydrogen Up-take during Steam Oxidation of Zr1%Nb. 1st Int. QUENCH Workshop, FZK Karlsruhe, 4-6 Oktober, 1995.
- [30] M.Steinbrueck. Hydrogen Absorption of Zircaloy at High Temperatures. 2nd Int. QUENCH Workshop, FZK Karlsruhe, 17-19 September, 1996.
- [31] S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack, L.Sepold, G.Schanz. Comparison of the Quench Experiments CORA-12, CORA-13, CORA-17. FZKA 5679, 1996.
- [32] S.Hagen, P.Hofmann, G.Schanz, L.Sepold. Interactions in Zircaloy/UO₂ Fuel Rod Bundles with Inconel Spacers at Temperatures above 1200 °C (CORA-2 and CORA-3), KfK 4378 (1990).
- [33] S.Hagen, R.Doebele, A.Gruenhagen, R.Heine, W.Hering, H.Malauscek, N.Paroth, L.Sepold, K.P.Wallenfels, K.Vogel. Out-of-pile Bündelexperimente zur Untersuchung schwerer Kernschäden (CORA-Programm): Versuche CORA-5 und CORA-12 zum Einfluß von AgInCd-Absorbern auf das Schadensverhalten. Jahresbericht 1988. KfK-4550 (Juli 1989) pp. 2-27.
- [34] S.Hagen, R.Doebele, A.Gruenhagen, R.Heine, W.Hering, H.Malauscek, N.Paroth, F.Seibert, L.Sepold, K.P.Wallenfels. Out-of-pile-Bündelexperimente zur Untersuchung schwerer Kernschäden (CORA-Programm): Versuche CORA-16 and CORA-17 zum Verhalten von SWR-typischen Bündeln. Jahresbericht 1989. KfK-4700 (November 90) pp. 2-27.
- [35] S.Leistikov, G.Schanz, H.Metzger. Nachuntersuchung und Auswertung der CORA-Experimente. Projekt Nukleare Sicherheitsforschung. Jahresbericht 1994. Wissenschaftliche Berichte, FZKA-5600 (August 95) pp. 301-15.

- [36] S.Hagen, A.Gruenhagen, R.Heine, H.Malauscek, G.Mueller, N.Paroth, F.Seibert, L.Sepold, K.P.Wallenfels, H.Benz. Out-of-pile Bündelexperimente zur Untersuchung schwerer Kernschäden (CORA-Programm): Versuche CORA-7 und CORA-18 mit größeren Bündeln. Sicherheitsorientierte LWR-Forschung. Jahresbericht 1990. KfK-4850 (Juli 91) pp. 2-30.
- [37] S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack, G.Schanz, G.Schumacher, L.Sepold. Results of SFD experiment CORA-13 : (OECD international standard problem 31). KfK-5054 (1993).
- [38] S.Hagen, F.Seibert, L.Sepold, P.Hofmann, G.Schanz, G.Schumacher. Influence of reflood in the CORA severe fuel damage experiments. Yilmaz, S.B. [Hrsg.] Heat Transfer and Fuel Behavior in Nuclear Reactor Accidents : 27th ASME/AIChE/ANS National Heat Transfer Conf., Minneapolis, Minn., July 28-31, 1991 New York, N.Y. : AIChE, 1991. - pp. 120-29
- [39] S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack, G.Schanz, G.Schumacher, L.Sepold. BWR Slow Heatup Test CORA-31: Test Results. KfK-5383 (1994).
- [40] S.Hagen, A.Gruenhagen, R.Heine, H.Malauscek, V.Noack, L.Sepold, K.P.Wallenfels, H.Benz, H.Giessmann, C.Grehl. Out-of-pile Bündelexperimente zur Untersuchung schwerer Kernschäden (CORA-Programm): Quenchversuch CORA-10. Sicherheitsorientierte LWR-Forschung. Jahresbericht 1992. KfK-5200 (September 93) pp. 2-25.
- [41] S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack, G.Schanz, G.Schumacher, L.Sepold. Dry Core BWR Test CORA-33: Test Results. KfK-5261 (1994).
- [42] S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack, G.Schanz, G.Schumacher, L.Sepold. Behavior of a VVER fuel element tested under severe accident conditions in the CORA facility. (Test results of experiment CORA-W1). KfK-5212 (Januar 94).
- [43] S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack, G.Schanz, G.Schumacher, L.Sepold. Behavior of a VVER-1000 fuel element with boron carbide/steel absorber tested under severe fuel damage conditions in the CORA facility. (Results of experiment CORA-W2). KfK-5363 (Oktober 94).
- [44] S.Hagen, K.Hain. Out-of-pile Bundle Experiments on Severe Fuel Damage (CORA-program): Objectives, Test Matrix, and Facility Description. KfK-3677 (1986).
- [45] G.Schumacher, R.Huber, H.Malauscek, B.Schmitt. Gas Analysis in CORA Experiments. CORA Workshop, Karlsruhe, October 5-8, 1992.

- [46] S.Hagen, P.Hofmann, V.Noack, L.Sepold, G.Schanz, G.Schumacher. Comparison of quench experiments CORA-12, 13, 17 and the Possible Influence of B₄C on the Quench Process. Cooperative Severe Accident Research Program. Technical Review Meeting (CSARP), Bethesda, Maryland, USA. May 1-5, 1995, pp. 128-134.
- [47] K.Mueller, M.Bruder, J.Kronenburg. Application of the Further Developed KESS Code System to the CORA-13 Quench Test. First International Quench Workshop, Karlsruhe, October 4-6, 1995.
- [48] SCDAP/RELAP5/MOD2 Code Manual. NUREG/CR-5273, EGG-2555, Vol. 1 R3, September 1989.
- [49] MELCOR 1.8.2. Computer Code Manual. February 1993.
- [50] V.H.Ransom et al., RELAP5/MOD2 Code Manual Volume 1 and 2, NUREG/CR-4312, EGG-2396, Revision 1, April 1987.
- [51] C.M.Allison and G.H. Beers, Comparison of the SCDAP Computer Code with Bundle Data under Severe Accident Conditions." 7th International SMIRT Conference, Chicago, IL, August 22-26, 1983, pp. 91-96.
- [52] H.Jordan and M.R. Kuhlman, TRAP-MELT2 User's Manual, NUREG/CR-4205, BMI-2124, May 1985.
- [53] H.Jordan, J.A.Gieseke, and P.Baybutt, TRAP-MELT User's Manual, NUREG/CR-0623, BMI-2017, February 1979.
- [54] D.L.Hargman, G.A.Reyman, and R.E.Mason, MATRO-Version 11 (Revision 2), A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior, NUREG/CR-0479, TREE-1280, Revision 2, August 1981.
- [55] D.L.Hargman, Materials Properties for Severe Core Damage Analysis, EGG-CDD-5801, May 1982.
- [56] V.F.Urbancic and T.R.Heidrick, "High-Temperature Oxidation of Zircaloy-2 and Zircaloy-4 in Steam", J.Nucl.Matls., 75, pp. 251 - 261, 1978.
- [57] A.S.Benjamin, D.J.McCloskey, D.A.Powers, and S.A.Dupree, Spent Fuel Heatup Following Loss of Water During Storage, SAND77-1371, NUREG/CR-0649, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM, March 1979.
- [58] C.Messainguiral. Private communications.

- [59] P.Schmuck, MELCOR Severe Accident Simulations for a Large Innovative PWR, 1996 Annual MCAP Meeting, Bethesda, MD, May 1 - 3, 1996.
- [60] P.Hofmann, H.J.Neitzel, E.A.Garcia, "Chemical Interactions of Zircaloy-4 Tubing with UO₂ Fuel and Oxygen at Temperatures between 900 and 2000 °C (Experiments and PECLOX Code)". KfK 4422, CNEA NT-36/87, October 1988.
- [61] P.Hofmann, S.Hagen, G.Schanz, A.Skokan, "Chemical Interaction of Reactor Core Materials Up to Very High Temperatures", KfK 4485, 1989.
- [62] S.Leistikow, G.Schanz "Oxidation Kinetics and Related Phenomena of Zircaloy-4 Fuel Cladding Exposed to High Temperature Steam and Steam-Hydrogen Mixtures Under PWR Accident Conditions". Nucl.Eng.Des.103, 65(1987).
- [63] P.Hofmann, D.K.Kerwin-Peck, "UO₂/Zircaloy Chemical Interactions and Reaction Kinetics from 1000 to 1700 °C under Isothermal Conditions". KfK 3552 (1982).
- [64] P.Hofmann, D.K.Kerwin-Peck, "UO₂/Zircaloy Chemical Interactions Under Isothermal and Transient Temperature Conditions". J. of Nucl. Mat. 124 (1984), 80-105.
- [65] A.Denis, E.A.Garcia, "A Model to Describe The Interaction between UO₂ and Zry in the Temperature Range 1000 to 1700 °C". J. of Nucl. Mat. 116 (1983), 44-54.
- [66] A.Denis, E.Moyano, E.A.Garcia, "Model to Simulate High Temperature Oxidation Kinetics of Zircaloy-4: Parabolic and Linear Behaviour". J. of Nucl. Mat. 110, (1982), 11-19.
- [67] S.Malang, "SIMTRAN I – A Computer Code for the Simultaneous Calculation of Oxygen Distribution and Temperature Profiles in Zircaloy During Exposure to High-Temperature Oxidizing Environments". ORNL-5083, 1975.
- [68] H.Uetsuka, P.Hofmann, "Reaction Kinetics of Zircaloy-4 in a (25 vol.% O₂/75 % Ar) Gas Mixture from 900 to 1500 °C under Isothermal Conditions". KfK 3917 (1985).
- [69] F.Kreith, Principles of Heat Transfer. Third Edition. Intext Educational Publishers, New York, 1973.
- [70] B.T.Chao, S.J.Chen, L.S.Yao, Mixed Convection over a Vertical Zircaloy Plate in Steam with Simultaneous Oxidation. Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 26, No.1, pp.73-86, 1983.
- [71] Properites for LMFBR Safety Analysis. Aragon National Laboratory. ANL-CEN-RSD-76-1. April 1976.

- [72] R.Siegel, J.R.Howell. Thermal Radiation Heat Transfer, Third Edition. Hemisphere Publishing Corporation. Washington, Philadelphia, London. 1992.
- [73] C.C.Ferriso, C.B.Ludwig and A.L.Thomson. "Empirically Determined Infrared Absorption Coefficients of H₂O from 300 to 3000 K". J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. Vol.6, pp. 241-273.
- [74] Hottel, Hoyt C., and Adel F. Sarofim. "Radiative Transfer", McGraw-Hill, New-York, 1967.
- [75] Diffusion and Defect Data. Metals and Alloys. Edited by F.H.Woehlbier. Trans Tech S.A.-Trans Tech House-CH-4711 Aedermannsdorf-Switzerland. 1980.
- [76] W.Hering. "Modellierung des Experimentes CORA und Interpretation von Versuchsergebnissen mit dem erweiterten Kernschmelzcode SCDAP/MOD1". Februar 1993, IKE 2-100, Stuttgart.
- [77] E.Hahne, Y.W.Song, U.Gross. "Measurements of Thermal Conductivity in Porous Media". In S.Kakaç et al. (eds.). Convective Heat and Mass Transfer in Porous Media, 849-865. NATO ASI Series, Vol. 196.
- [78] K.Hayashi, M.Fukui, T.Nishikawa. "Thermal Conductivity of Insulating Ceramic Fibers at High Temperatures". Yogyo-Kyokai-Shi. Tokio. 89.1981, Nr.1032, pp. 403-411.
- [79] Shuller Corporation: Product Information.
INTERNET: <http://www.schuller.com/main/products.html>.
- [80] ZIRCAR Products, Inc: Product Information. "Bulletin # ZPI203 Zirconia Insulating Boards and Discs Types ZYFB-6 and ZYFB-3". INTERNET: <http://www.zircar.com/ainterne/products/rigmat/zyfb.htm>.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Darstellung eines Kernbündels mit CORA Geometrie.	6
2.2	Schichtung eines Brennstabes.	6
2.3	Anordnung der externen Zirkaloy/Sauerstoff- und internen UO_2 /Zirkaloy-Reaktionsschichten.	9
2.4	Bewegung der Phasengrenze zwischen den Schichten i und $i + 1$ (Die Sauerstoffquelle befindet sich rechts).	14
2.5	UO_2 /Zirkaloy, Dampf/Zirkaloy Diffusionssystem. Die Sauerstoffkonzentration zum Zeitpunkt $t=0$ ist fett dargestellt.	14
2.6	Geometrische Anordnung der Maschen in der Reaktionsschicht.	16
2.7	Sauerstoffkonzentration im UO_2 -Brennstoff und Zirkaloy-Hüllrohr zum Zeitpunkt $t=0$.	20
2.8	Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800°C zum Zeitpunkt $t=10$ s.	20
2.9	Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800°C zum Zeitpunkt $t=100$ s.	21
2.10	Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800°C zum Zeitpunkt $t=500$ s.	21
2.11	Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800°C zum Zeitpunkt $t=1200$ s.	22
2.12	Sauerstoffkonzentration in den verschiedenen Reaktionszonen bei 1800°C zum Zeitpunkt $t=1600$ s.	22
2.13	Nomenklatur der geometrischen Größen für Wärmeleitung in einem Zylinder mit internen Wärmequellen.	24
2.14	Ein (r, t) Bereich im zylindrischen Koordinatensystem.	25
2.15	Temperaturabhängigkeit der UO_2 -Wärmekapazität.	28
2.16	Temperaturabhängigkeit der ZrO_2 -Emissionskoeffizienten.	32
2.17	Dampfabsorbtionskoeffizienten bei $T = 300$ K	33

2.18	Dampfabsorbtionskoeffizienten bei $T = 600$ K	33
2.19	Dampfabsorbtionskoeffizienten bei $T = 1000$ K	34
2.20	Dampfabsorbtionskoeffizienten bei $T = 1500$ K	34
2.21	Dampfabsorbtionskoeffizienten bei $T = 2000$ K	35
2.22	Dampfabsorbtionskoeffizienten bei $T = 2500$ K	35
3.1	Temperaturverteilung im CORA-13 Experiment, mit SCDAP/RELAP berechnet. Axiale Zonen 1 bis 5.	46
3.2	Temperaturverteilung im CORA-13 Experiment, mit SCDAP/RELAP berechnet. Axiale Zonen 6 bis 10.	46
3.3	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 2.	47
3.4	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 3.	47
3.5	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 4.	48
3.6	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 5.	48
3.7	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 6.	49
3.8	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 7.	49
3.9	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 8.	50
3.10	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 9.	50
3.11	Vergleich der von SCDAP und REFLOX berechneten ZrO_2 -Schichtdicke. Axiale Zone 10.	51
3.12	Geometrie des EPR-Kerns, die in den REFLOX- und MELCOR-Berechnungen benutzt wurde.	54
3.13	Kerntemperaturen in verschiedenen Ebenen, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 1.	54

3.14	Kerntemperaturen in verschiedenen Ebenen, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 2.	55
3.15	Kerntemperaturen in verschiedenen Ebenen, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 3.	55
3.16	Axiale Temperaturverteilung, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 1.	56
3.17	Axiale Temperaturverteilung, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 2.	56
3.18	Axiale Temperaturverteilung, mit MELCOR berechnet. Radiale Zone 3.	57
3.19	Wasserstoffproduktionsrate, mit REFLOX berechnet.	57
3.20	Vollständige Wasserstoffproduktionsrate, Vergleich REFLOX und MELCOR.	58
3.21	ZrO ₂ -Schichtdicke in drei verschiedenen radialen Zonen, Ergebnisse REFLOX.	58
4.1	Systemkomponenten der CORA-Versuchsanlage.	63
4.2	Teststrecke der CORA-Versuchsanlage.	64
4.3	Wasserstoffmessungen in der CORA-Anlage.	67
4.4	Phasen eines CORA-Tests (basierend auf experimentellen Ergebnissen in CORA-13).	69
4.5	H ₂ -Massenflußrate im CORA-13 Versuch, mit KESS Programm berechnet.	70
4.6	CORA-7 Vorversuch Phase 1: Argonfluß 9.52 l/s, H ₂ -Fluß 0.24 l/s.	71
4.7	CORA-7 Vorversuch Phase 2: Argonfluß 5.45 l/s, H ₂ -Fluß 0.24 l/s.	71
4.8	Vereinfachtes Diagramm für die Modellierung von H ₂ -Mischung und -Transport in der CORA-Anlage.	73
4.9	Empfindlichkeit des Modells in Abhängigkeit von der charakteristischen hydrodynamischen Zeit der Systemantwort α . a) $\alpha = 250$ s, b) $\alpha = 100$ s, c) $\alpha = 10$ s.	77
4.10	Empfindlichkeit des Modells bezüglich der Länge der Unterbrechungszeit zwischen zwei Eingangsströmen. a) Unterbrechungszeit 500 s, b) Unterbrechungszeit 100 s, c) Unterbrechungszeit 0 s.	78
4.11	Zeitabhängigkeit des gemessenen H ₂ -Partialdruckes in der Mischkammer im Vergleich mit berechneten Daten für den CORA-7 Vorversuch 1.	79
4.12	Zeitabhängigkeit des gemessenen H ₂ -Partialdruckes in der Mischkammer im Vergleich mit berechneten Daten für den CORA-7 Vorversuch 2.	79
4.13	Axiale Temperaturprofile im CORA-13 Experiment.	83

4.14	Axiale Temperaturprofile im CORA-13 Experiment.	83
4.15	Temperaturverteilung im Brennstab in der CORA-13-Nachrechnung.	84
4.16	Temperaturverteilung im Brennstab in der CORA-13-Nachrechnung.	85
4.17	Wasserstoffproduktionsraten in verschiedenen Ebenen in der CORA-13-Nachrechnung.	86
4.18	Wasserstoffproduktionsraten in verschiedenen Ebenen in der CORA-13-Nachrechnung.	86
4.19	Anteil der H ₂ -Erzeugungsrate, der durch die Ummantelungsoxidation hervorgerufen wird, an der H ₂ -Gesamterzeugungsrate.	87
4.20	Anteil der H ₂ -Produktion, der durch die Ummantelungsoxidation hervorgerufen wird, an der H ₂ -Gesamtproduktion.	87
4.21	Axiale Verteilung der ZrO ₂ -Schichtdicke im CORA-13 Experiment, berechnet mit REFLOX-Programm und vorgegebenen Temperaturen als Eingabedaten.	88
4.22	H ₂ -Produktionsrate im CORA-13 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.	89
4.23	H ₂ -Produktionsrate im CORA-2 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.	89
4.24	H ₂ -Produktionsrate im CORA-3 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.	90
4.25	H ₂ -Produktionsrate im CORA-31 Experiment. REFLOX-Berechnungen mit vorgegebenen Temperaturen als Randbedingungen.	90
4.26	CORA-13 Test: a) Systemüberdruck; b) Argonfluß; c) zugeführte Leistung; d) zugeführte Dampfflußrate ins Bündel.	96
4.27	Temperaturspitzen im CORA-17 Experiment, die durch Fluten verursacht wurden. Flutbeginn bei 5000 s.	97
4.28	Temperaturspitzen im CORA-13 Experiment, die durch Fluten verursacht wurden. Flutbeginn bei 4870 s.	98
4.29	Vergleich von gemessenen und berechneten Temperaturen an den inneren und äußeren Seiten der Ummantelungsisolierung: Ebene 950 mm.	99
4.30	Vergleich von gemessenen und berechneten Temperaturen an den inneren und äußeren Seiten der Ummantelungsisolierung: Ebene 350 mm.	99

4.31	Wärmeleitfähigkeit der ZrO ₂ -Faserisolierung	100
4.32	Vergleich von gemessenen und berechneten Temperaturen an den inneren und äußeren Seiten der Ummantelungsisolierung: Ebene 950 mm, angepaßte Wärmeleitfähigkeit.	100
4.33	Temperatur in Ebene 900 mm im CORA-13 Experiment.	101
4.34	Temperatur in Ebene 900 mm im CORA-29 Experiment.	101
4.35	H ₂ -Produktionsrate in CORA-13, berechnet mit voll mechanistischem REFLOX-Programm (einschließlich Strahlungswärmeübergang).	102
4.36	H ₂ -Produktionsrate in CORA-29, berechnet mit voll mechanistischem REFLOX-Programm (einschließlich Strahlungswärmeübergang).	102
4.37	ZrO ₂ -Schichtdicke im CORA-13 Experiment, berechnet mit mechanistischem REFLOX-Programm (einschließlich Strahlungswärmeübergang).	103
4.38	Temperatur in Ebene 950 mm im CORA-13 Experiment, berechnet mit der vom Hersteller angegebenen Wärmeleitfähigkeit.	104
4.39	H ₂ -Produktionsrate in CORA-13, berechnet mit der vom Hersteller angegebenen Wärmeleitfähigkeit.	104
4.40	Berechnete Zeitabhängigkeit der H ₂ - und H ₂ O-Molenbrüche im CORA-13 Experiment. Der Restanteil besteht aus Argon.	105
4.41	Berechnete Gaszusammensetzung für das CORA-13 Experiment.	105

Tabellenverzeichnis

2.1	Ummantelungs-Geometrie im CORA-13 Experiment	7
2.2	Äquivalenter Stab für die CORA-13 Ummantelung	7
2.3	Sauerstoffphasengrenzkonzentrationen C_1 bis C_{10} , g/cm ³ .	15
2.4	Sauerstoffdiffusionskoeffizienten für verschiedene Schichten (cm ² /s), vgl. Abbildung 2.5.	15
2.5	Für die Wärmeleitungsberechnungen verwendete Materialeigenschaften.	28
3.1	Daten des CORA-Stabbündels.	45
3.2	Parameter des EPR Reaktorkerns.	52
4.1	CORA-Testmatrix.	62
4.2	Die Geometrie des CORA-13-Stabbündels.	80
4.3	Technische Daten der ZrO ₂ -Faserisolierung	92

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit am Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik (INR) des Forschungszentrums Karlsruhe.

Für die Überlassung des Themas möchte ich Herrn Prof. Dr. Dr. G. Kessler meinen Dank aussprechen, der mir die Möglichkeit gab, die vorliegende Arbeit am Institut anzufertigen. Herrn Prof. Dr. Dr. D. G. Cacuci danke ich für die kritische Durchsicht des Manuskriptes und die Übernahme des Korreferates.

Weiterhin möchte ich mich bei meinen Kollegen bedanken, deren ständige Diskussionsbereitschaft ein wesentlicher Bestandteil zum Gelingen dieser Arbeit waren. Insbesondere bin ich Herrn Dr. W. Breitung für die wertvollen Diskussionen sowie für die kontinuierliche Unterstützung während der gesamten Arbeit zu Dank verpflichtet.

Für die Unterstützung bei der Interpretation der komplexen CORA-Versuchsergebnisse danke ich Herrn Dr. P. Hofmann, Dr. S. Hagen, G. Schanz und Dr. V. Noack.

Meinen Kollegen Herrn Dr. A. Kotchourko, Dr. W. Hering und Dr. D. Struwe danke ich für die vielen fachlichen Gespräche sowie für die Durchsicht des Manuskriptes.

Für die große Hilfe bei der Vorbereitung des Manuskriptes danke ich Frau A. Veser und Herrn Dr. H. Rochholz.

Zuletzt möchte ich mich noch besonders bei meiner Frau und meinen Eltern bedanken, die mir bei der Bewältigung der Aufgabe neue Kraft gaben.