

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

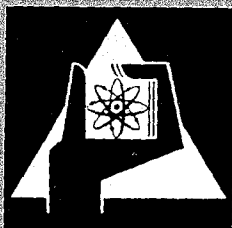
April 1972

KFK 1580

Institut für Reaktorentwicklung
Projekt Nukleare Sicherheit

**Berechnung der zeitabhängigen Spaltprodukt-Wärmequellstärken
in zwei gekoppelten Systemen
unter Berücksichtigung von Spaltproduktentweichen**

zusammengestellt von
E. Waibel



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

**GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.
KARLSRUHE**

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Reaktorentwicklung
Projekt Nukleare Sicherheit

April 1972

KFK 1580

Berechnung der zeitabhängigen Spaltprodukt-Wärmequellstärken
in zwei gekoppelten Systemen unter Berücksichtigung von
Spaltproduktentweichen

von

N. Henzel ¹⁾, J. Simon-Weidner ²⁾, E. Waibel ³⁾

zusammengestellt von

E. Waibel ³⁾

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

- 1) AEG-Telefunken, Großwelzheim
- 2) Labor für Reaktorregelung und Anlagensicherung, Garching
- 3) Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe

Der vorliegende Bericht entstand im Rahmen des EMBW-Reaktorsicherheit-Forschungsprojekts Kernschmelzen und wurde im Auftrag des Projektausschusses Kernschmelzen, Vorsitz F. Mayinger / TH Hannover, erstellt. Außer den Autoren waren an der bearbeitenden Arbeitsgruppe beteiligt

M. Schneider, Institut für Reaktorsicherheit
der TÜV, Köln

H. Ch. Sobottka, AEG-Telefunken, Frankfurt

H. Weber, Siemens AG, Erlangen

H. Unger, Institut für Kernenergetik der TU
Stuttgart

Als Manuskript vervielfältigt.

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor.

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Zusammenfassung	I 1
Liste der Tabellen	I 4
Liste der Abbildungen	I 6
2. Einleitung	II 1
3. Theoretische Ermittlung von Spaltprodukt-Entweichkoeffizienten aus einer Brennstoffschmelze	III 1
3.1 Zusammenfassung	III 1
3.2 Einleitung und Aufgabenstellung	III 3
3.3 Spaltproduktfreisetzung bis zum Schmelzen des Brennstoffs	III 5
3.4 Spaltproduktfreisetzung aus geschmolzenem Brennstoff	III 7
3.4.1 Chemisch-thermodynamische Berechnung des wahrscheinlichsten chemischen Zustands von Spaltprodukten im Gleichgewicht mit Urandioxid	III 10
3.4.2 Abschätzung von Dampfdrücken der in der Brennstoffschmelze vorherrschenden Spaltproduktspezies	III 25
3.4.3 Ermittlung von Entweichkoeffizienten für die in der Brennstoffschmelze verbliebenen Spaltprodukte	III 29
3.5 Diskussion der Ergebnisse	III 33
3.6 Literatur	III 36
Abbildungen	III 39
4. Experimentelle Ermittlung temperaturabhängiger Spaltprodukt-Entweichkoeffizienten aus Urandioxid (Literaturstudie)	IV 1
4.1 Zusammenfassung	IV 1
4.2 Einleitung und Aufgabenstellung	IV 1
4.3 Out of Pile-Versuche zur experimentellen Bestimmung der Spaltproduktfreisetzung (Beschreibung experimenteller Methoden)	IV 2
4.3.1 Induktionserhitzung bei niedriger Frequenz	IV 3
4.3.2 Anordnung zur Bestimmung der Spaltproduktfreisetzung während der Oxydation und Schmelze von Uran oder anderer metallischer Brennstoffe	IV 3

	<u>Seite</u>
4.3.3 Die Thermobalance-Methode	IV 3
4.3.4 Lichtbogenofen zur Erschmelzung von UO_2 und anderer keramischer Brennstoffe	IV 4
4.3.5 Induktionsofen zur Messung der Spaltpro- duktfreisetzung durch Diffusion aus UO_2 in einer He-Atmosphäre	IV 4
4.3.6 Wolfram-Widerstandsofen für UO_2 Schmelzen unter Helium	IV 5
4.3.7 Der Doppelfrequenzofen	IV 5
4.3.8 Induktionsofen unter Druckbeanspruchung der Probe	IV 5
4.4 Spaltproduktfreisetzung aus Oxidbrennstoff	IV 6
4.4.1 Spaltproduktfreisetzung durch Diffusion	IV 6
4.4.2 Oxydation des Urandioxids	IV 9
4.4.3 Spaltproduktfreisetzung infolge UO_2 -Oxyda- tion	IV 9
4.4.4 Spaltproduktfreisetzung infolge UO_2 - Schmelzen	IV 10
4.5 Zusammenfassende Tabellen	IV 16
Abbildungen	IV 20
4.6 Literaturverzeichnis	IV 39
5. Modell und Programmerstellung für die Berechnung der zeitabhängigen Wärmequellstärke im Brennstoff (bzw. in einer Coreschmelze) aus dem Spaltproduktzerfall nach partieller oder vollständiger Austreibung einzelner chemischer Elemente oder Elementgruppen	V 1
5.1 Zusammenfassung	V 1
5.2 Einleitung	V 1
5.3 Entweichmodell	V 2
5.3.1 Stoßweise Spaltproduktentweichung	V 3
5.3.2 Kontinuierliche Spaltproduktentweichung	V 4
5.4 Berechnung der Wärmequellstärke	V 4
5.4.1 Rechenprogramme	V 4
5.4.2 Rechenbeispiel ohne Entweichen von Spaltpro- dukten für SWR Brunsbüttel und DWR BASF Mitte	V 7
5.4.3 Rechenbeispiel mit Entweichen von Spaltpro- dukten für SWR Brunsbüttel und DWR BASF Mitte	V 8

	<u>Seite</u>
5.5 Diskussion der Ergebnisse	V 11
5.5.1 Druck- und Siedewasserreaktor	V 11
5.5.2 Beitrag einzelner chemischer Elemente (Summe der Spaltnuklide gleicher Kernladungszahl zur Wärmequellstärke)	V 12
5.5.3 Reduzierung der Wärmequellstärke durch Spaltproduktaustreibung	V 12
5.5.4 Empfehlungen für durchzuführende Experimente	V 14
5.6 Literatur	V 15
Abbildungen	V 16

Zusammenfassung

Im vorliegenden Bericht wird der Versuch unternommen, mit dem heutigen (unvollständigen) Kenntnisstand Aussagen zu machen über die Spaltprodukt-Wärmequellstärke im Oxidbrennstoff eines LWR nach einem GAU, bei dem theoretisch entgegen besserem technischen Wissen ganzes oder teilweises Notkühlversagen postuliert wurde. Bei der Berechnung des Zeitverlaufs der Wärmequellstärke ist neben dem natürlichen radioaktiven Zerfall auch das individuelle Entweichen von Spaltprodukten beachtet, das u. a. von der Temperatur und damit der Struktur und dem Aggregatzustand des Brennstoffs abhängt.

Abschnitt 3 dieses Berichts befaßt sich mit der theoretischen Ermittlung von Spaltproduktentweichkoeffizienten vom Se bis Eu. Zuerst wird berechnet, in welcher chemischen Form die Spaltprodukte bevorzugt im interessierenden Temperaturbereich im Gleichgewicht mit stöchiometrischem Uranoxid vorliegen. Dann erfolgt über die Siedepunkte eine Einteilung in solche Spaltprodukte oder Verbindungen, die bis zum Eintritt des Brennstoffschmelzens oder kurz danach entwichen sind und solche die höhere Siedepunkte haben. Die letzte Gruppe wird anhand abgeschätzter Dampfdrücke in 7 Flüchtigkeitsgruppen eingeteilt. Für diese werden mit Hilfe eines vereinfachten Modells über die Knudsen-Langmuir Gleichung Ausdampfkoeffizienten in der Form $g/sec \cdot cm^2$ Oberfläche errechnet.

Abschnitt 4 enthält eine Literaturstudie über die experimentelle Ermittlung von Spaltproduktentweichkoeffizienten. Im wesentlichen wurden amerikanische Arbeiten gesichtet. Die Ergebnisse sind in zwei Tabellen zusammengefaßt. Sie erlauben allerdings nur einen qualitativen Vergleich, da zu viele Parameter schwanken und es sich fast ausschließlich um integrale Messungen handelt, die keine Aussage über eine Entweichrate geben. Außerdem ist die Auswahl der untersuchten Nuklide bzw. chemischen Elemente begrenzt und offensichtlich unter anderen als den hier anstehenden Gesichtspunkten getroffen.

In Abschnitt 5 wird ein Entweichmodell vorgestellt mit den zugehörigen Entweichkoeffizienten. Am Beispiel des SWR Brunsbüttel und des DWR BASF Mitte werden Rechnungen angestellt über das Spaltproduktinventar nach 1000 d Vollast und Reaktorabschaltung (dargestellt als Einzelnuclide, chemische Elemente und Gesamtsummen) sowie über die

zeitabhängige Wärmequellstärke im Brennstoff ohne und mit Entweichen von Spaltprodukten. Im letzteren Fall werden die entwichenen Spaltprodukte verfolgt und in einem zweiten System weitergerechnet (Zerfall sowie Zuwachs aus System 1 durch Entweichen). Falls das Entweichmodell mit seinen Koeffizienten nicht sehr falsch sein sollte, kann man mit einer Reduzierung der Wärmequellstärke im Brennstoff durch Entweichen bis zu 50 % des Augenblickwerts rechnen. Das Minimum liegt dabei im Bereich bis 30 min nach Eintritt der Brennstoffschmelztemperatur.

Besonders untersucht wurde der zeitabhängige Beitrag einzelner chemischer Elemente (Summe der Nuklide gleicher Kernladungszahl) zur Wärmequellstärke. Dabei wurde festgestellt, daß im Zeitraum größer 6 min nach Störfalleintritt (d. h. nach dem Hüllenbruch) nur Nb, J, La und nach 2 d Pr jeweils mehr als 10 % der Restwärmequellstärke ausmachen.

Anhand der gewonnenen Ergebnisse werden Empfehlungen für durchzuführende Experimente ausgesprochen. Vereinfacht besagen sie, daß in einer ersten Stufe qualitativ das Entweichmodell und seine Gruppeneinteilung überprüft bzw. verifiziert, und daß erst nach Vorliegen von Ergebnissen aus Stufe 1 quantitative Versuche zur Bestimmung von Entweichkoeffizienten einzelner Nuklide (chemischer Elemente) eingeleitet werden sollten. Eine Reihenfolge ihrer Bedeutung für die Wärmequellstärke wird angegeben.

Wegen der Abfassung der Hauptabschnitte 3, 4 und 5 dieses Berichts durch verschiedene Autoren wurden diesen Abschnitten jeweils eigene Zusammenfassungen vorangestellt.

Abstract

The report tries to give an answer on the fission product heat source within the oxide fuel of a LWR after a MCA with malfunction of the ECC system, hypothetically postulated against better technical knowledge. The calculation of the time dependent heat source includes both radioactive decay and individual escape of fission products which is related to temperature and therefore the structure or the physical state of the fuel.

Section 3 describes a theoretical investigation of fission product

escape coefficients for the elements Se to Eu. First it is calculated which chemical form the fission products will most probable have at the temperatures in question and in equilibrium with stoichiometric UO_2 . Then two groups are formed: The one with vaporisation temperature below the melting point of UO_2 and the other above the MP of UO_2 . It is assumed that the first group of fission products is released before or shortly after melting of the UO_2 occurs. The other group is separated into 7 volatility groups by the criterium of estimated or extrapolated vapor pressures. For these 7 groups of fission products evaporation coefficients in the form $g/sec \cdot cm^2$ surface are calculated using the Knudsen-Langmuir equation for a simplified model.

Section 4 is a literature search on the experimental investigation of fission products escape coefficients. Results are comprehended in two tables. Since the experimental parameters were seldom fixed and measurements have been usually on an integral basis only qualitative comparisons are possible. Escape rates could not be established. Furthermore, the usually noted fission products are obviously selected by other purposes than the ones in question here.

Section 5 presents an escape model including the necessary escape coefficients. BWR Brunsbüttel and PWR BASF Mitte are used as an example to calculate fission product inventory and decay heat source without and with fission product escape after 1000 d of full power and shut down. Given are the single nuclides, the chemical elements and the totals. Escaped fission products are released into a second system (outside the fuel), and their decay and increase is calculated separately.

The model gives a maximum reduction of the heat source within the fuel by escape of fission products up to 50 % of the momentary value. This maximum reduction occurs shortly after fuel melting.

Special consideration was given to the time dependent contribution of the single chemical elements (total of the nuclides with the same atomic number) to the heat source. It was found that after more than 6 min after the assumed accident (cladding failure will occur at this time) only Nb, J, La and after 2 d Pr will contribute more than 10 % to the total decay heat source.

The results of the calculations are interpreted and recommendations are given for an experimental program aimed at the investigation of the fission product escape model where it is important to the rest-heat source problem.

<u>Liste der Tabellen</u>	<u>Seite</u>
3.4.1 Bei 2500 ° C unabhängig von der chemischen Form flüchtige Spaltprodukte	III 9
3.4.2 Reaktionspotentiale für Umsätze von 1 °/o, 50 °/o und 99 °/o als Funktion der Spaltproduktwertigkeit (Molares Spaltprodukt-Urandioxid-Verhältnis 10^{-4})	III 22
3.4.3 Im Gleichgewicht mit stöchiometrischem UO_2 bei 3000 ° C vorherrschende Spaltproduktspezies und deren Siedepunkte	III 23
3.4.4 Aus Literaturdaten extrapolierte Dampfdrücke im Gleichgewicht mit stöchiometrischem UO_2 vorherrschender schwerflüchtiger Spaltproduktspezies	III 27
3.4.5 Einteilung schwerflüchtiger Spaltproduktspezies in Flüchtigkeitsgruppen	III 28
3.4.6 Entweichkoeffizienten für verschiedene Temperaturen und Flüchtigkeitsgruppen	III 31
4.4.1 Diffusion of Fission Products from UO_2 into Purified Helium	IV 7
4.4.2 Effect of Burnup Level and Temperature on Diffusion of Fission Products from UO_2 Heated 5.5 Hours in Pure Helium	IV 8
4.4.3 Fission-Product Release from PWR-Type UO_2 Irradiated to 7000 Mwd/T and Heated in Air for 90 min	IV 10
4.4.4 Fission-Product Release from PWR-Type UO_2 Irradiated to 4000 Mwd/T and Heated in Air	IV 11
4.4.5 Fission Product Release from UO_2 Oxidized in Air	IV 11
4.4.6 Fission Product Release from UO_2 Melted in Helium	IV 12
4.4.7 Effect of Burnup Level and Atmosphere on the Release of Fission Products During the Melting of UO_2	IV 12
4.4.8 Fission Product Release from UO_2 Melted in Helium by the Tungsten-Crucible Method	IV 14
4.4.9 Fission Product Release from Trace-Irradiated PWR-Type UO_2 Melted in a Single Element Tungsten-Resistor Furnace Filled with Helium	IV 14
4.4.10 Release From Center-Resistor-Heated Bare UO_2 Fuel Pins Corrected to 100 °/o of Melting	IV 15
4.4.11 Release of Fission Products From Stainless-Steel-Clad UO_2 Melted in Air by Direct Coupling Induction Heating	IV 15

	<u>Seite</u>
4.4.12 A Comparison of Fission-Product Release by Different Methods of Melting UO ₂ in Helium	IV 17
4.4.13 Effect of Furnace Air Velocity on Deposition of Fission Products by Melting Modified UO ₂ Specimens at 2650 ° C	IV 17
4.5.1 Freisetzung von 500 ° C bis 2260 ° C	IV 18
4.5.2 Freisetzung bei 2800 ° C	IV 19
5.1 Datenvergleich REST - ZERGI	V 6
5.2 β -Zerfallsenergie des U-239 und Np-239	V 5
5.3 Reaktordaten SWR Brunsbüttel und DWR BASF	V 7
5.4 Einteilung der Spaltprodukte in Gruppen nach ihrem Entweichverhalten	V 10
5.5 Radionuklide, die bei t = 100 h mehr als 1 % Wärmequellstärke beitragen (Beispiel DWR BASF Mitte, Rest-Zerfallsleistung 152.37 kW/t UO ₂ , Rechnungen mit REST 2)	V 13

<u>Liste der Abbildungen</u>	<u>Seite</u>
3.4.1 Reaktionspotential für die thermische Zersetzung von Wasserdampf als Funktion der Temperatur bei 1 atm Systemdruck	III 39
3.4.2 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Strontium bzw. Barium	III 40
3.4.3 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Yttrium	III 41
3.4.4 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Lanthan	III 42
3.4.5a Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Cer	III 43
3.4.5b Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Cer	III 44
3.4.6a Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Praseodym	III 45
3.4.6b Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Praseodym	III 46
3.4.7 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Neodym	III 47
3.4.8 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Samarium	III 48
3.4.9 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Zirkonium	III 49
3.4.10a Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Niob	III 50
3.4.10b Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Niob	III 51
3.4.10c Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Niob	III 52
3.4.11a Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Molybdän	III 53
3.4.11b Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Molybdän	III 54
3.4.12 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Ruthenium	III 55
3.4.13a Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Rhodium	III 56
3.4.13b Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Rhodium	III 57
3.4.14 Reaktionspotential für die Umsetzung von stöchiometrischem Urandioxid mit Palladium	III 58

	<u>Seite</u>
3.4.15 Reaktionspotential für die thermische Zer- setzung von Urandioxid als Funktion der Tempe- ratur bei 1 atm Systemdruck	III 59
3.4.16 Dampfdruck von Strontiumoxid in Abhängigkeit von der Temperatur nach /15/	III 60
3.4.17 Dampfdruck von Yttriumoxid in Abhängigkeit von der reziproken Temperatur, berechnet aus /16/ im Gleichgewicht mit verschiedenen Sauer- stoff-Partialdrücken	III 61
3.4.18 Entweichkoeffizienten von Spaltprodukten ver- schiedener Flüchtigkeitsgruppen als Funktion der Temperatur für isotherme und isokinetische Verdampfung unter vereinfachten Annahmen (vgl. Text)	III 62
4.3.1 Induction Heating Furnace and Fission-Product Traps for Air Melting Experiments	IV 20
4.3.2 Induction Heating Furnace and Fission-Product Traps for Melting Fuel Capsules in Steam	IV 21
4.3.3 Schematic Diagram of Fission Product Release Apparatus	IV 22
4.3.4 Furnace and Thermobalance Arrangement for Uranium Oxidation in Steam with Fission Pro- duct Collection Train	IV 23
4.3.5 Schematic Diagram of Arc-Image Furnace and Fission-Product Collection Train	IV 24
4.3.6 Induction Furnace and Apparatus for Fission- Product Diffusion Studies with UO_2 in Helium	IV 25
4.3.7 Single Element Tungsten Resistor Furnace for Melting UO_2 Pellets in Helium	IV 26
4.4.1 Rare Gas Diffusion from PWR UO_2 in Helium	IV 26
4.4.2 Release of Fission Products by Diffusion from Trace-Level Irradiated UO_2 Heated in Pure Helium for Five Hours	IV 27
4.4.3 Release of Fission Products by Diffusion from Highly-Irradiated PWR-Type UO_2 Heated 5.5 Hours in Purified Flowing Helium	IV 27
4.4.4 Comparison of Rate of Release of Rare Gas from Trace-Irradiated and High-Burnup UO_2	IV 28
4.4.5 Effect of Density on Rate of Oxidation of UO_2	IV 29
4.4.6 Rate of Oxidation of UO_2 in Air at 400 to 700 °C	IV 29
4.4.7 Rate of Oxidation of UO_2 in Air at 800 to 1100 °C	IV 30

	<u>Seite</u>
4.4.8 Rate of Oxidation of UO_2 in Air at 1200 to 1400 °C	IV 30
4.4.9 Fission Product Release by the Oxidation of UO_2 to U_3O_8 in Air, Showing Discontinuity Between 600 °C and 900 °C	IV 31
4.4.10 Effect of Burnup on Fission-Product Release by Oxidation at 1000 °C and 1200 °C	IV 31
4.5.1 Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von Edelgasen $\frac{1}{2}$	IV 32
4.5.2 Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von Jod $\frac{1}{2}$	IV 33
4.5.3 Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von Tellur $\frac{1}{2}$	IV 34
4.5.4 Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von Cäsium $\frac{1}{2}$	IV 35
4.5.5 Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von Ruthenium $\frac{1}{2}$	IV 36
4.5.6 Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von Strontium $\frac{1}{2}$	IV 37
4.5.7 Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von Barium $\frac{1}{2}$	IV 38
5.1 Eingabedaten für Rechenbeispiel KKW Brunsbüttel	V 16
5.2 Eingabedaten für Rechenbeispiel KKW BASF Mitte	V 16
5.3 Spaltproduktinventar und Zerfallsenergie für SWR Brunsbüttel nach 1000 d Vollast	V 17
5.4 Spaltproduktinventar und Zerfallsenergie für SWR Brunsbüttel nach 1000 d Vollast und 0,5 h Zerfall	V 18
5.5 Spaltproduktinventar und Zerfallsenergie für SWR Brunsbüttel nach 1000 d Vollast und 24 h Zerfall	V 19
5.6 Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für SWR Brunsbüttel ohne n- γ Prozesse	V 20
5.6a Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für SWR Brunsbüttel mit Spaltproduktaktivierung	V 21
5.7 Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für SWR Brunsbüttel ohne n- γ Prozesse	V 22

	<u>Seite</u>
5.7a Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für SWR Brunsbüttel mit Spaltproduktaktivierung	V 23
5.8 Spaltproduktinventar und Zerfallsenergie für DWR BASF Mitte nach 1000 d Vollast	V 24
5.9 Spaltproduktinventar und Zerfallsenergie für DWR BASF Mitte nach 1000 d Vollast und 0.5 h Zerfall	V 25
5.10 Spaltproduktinventar und Zerfallsenergie für DWR BASF Mitte nach 1000 d Vollast und 24 h Zerfall	V 26
5.11 Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für DWR BASF Mitte ohne n- γ Prozesse	V 27
5.11a Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für DWR BASF Mitte mit Spaltproduktaktivierung	V 28
5.12 Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe der radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für DWR BASF Mitte ohne n- γ Prozesse	V 29
5.12a Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für DWR BASF Mitte mit Spaltproduktaktivierung	V 30
5.13 Eingabedaten für Rechenbeispiel KKW Brunsbüttel mit Temperatur-Zeitverlauf und Spaltproduktentweichkoeffizienten	V 31
5.14 Graphische Darstellung der Entweichkoeffizienten	V 32
5.15 Mittlere Wärmequellstärke im Brennstoff mit Spaltproduktentweichen für SWR Brunsbüttel (Summenkurve und Beitrag der Elemente Se bis In)	V 33
5.16 Mittlere Wärmequellstärke im Brennstoff mit Spaltproduktentweichen für SWR Brunsbüttel (Summenkurve und Beitrag der Elemente Sn bis Sm)	V 34
5.17 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 0.1 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 35

	<u>Seite</u>
5.18 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 0.2 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 36
5.19 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 0.5 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 37
5.20 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 1.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 38
5.21 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 2.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 39
5.22 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 5.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 40
5.23 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 10.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 41
5.24 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 24.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 42
5.25 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 72.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 43
5.26 Eingabedaten für Rechenbeispiele KKW BASF Mitte mit Temperatur-Zeitverlauf und Spaltproduktentweichkoeffizienten	V 44
5.27 Mittlere Wärmequellstärke im Brennstoff mit Spaltproduktentweichen für DWR BASF Mitte (Summenkurve und Beitrag der Elemente Se bis In)	V 45

	<u>Seite</u>
5.28 Mittlere Wärmequellstärke im Brennstoff mit Spaltproduktentweichen für DWR BASF Mitte (Summenkurve und Beitrag der Elemente Sn bis Sm)	V 46
5.29 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 0.1 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 47
5.30 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 0.2 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 48
5.31 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 0.5 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 49
5.32 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 1.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 50
5.33 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 2.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 51
5.34 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 5.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 52
5.35 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 10.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 53
5.36 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 24.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 54
5.37 Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASF Mitte 72.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)	V 55

Seite

5.38 Summenkurve der mit REST 3 errechneten Zerfallsleistung mit und ohne Spaltproduktentweichen

v 56

2. Einleitung

Im Rahmen des BMBW Forschungsprogramms Sicherheit von Leichtwasserreaktoren beauftragte der Projektausschuß Kernschmelzen eine Arbeitsgruppe aus Vertretern der Gesellschaften AEG - Telefunken, Großwelzheim, Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, Institut für Reaktorsicherheit der TÜV, Köln, Institut für Kernenergetik der TU Stuttgart, Labor für Reaktorregelung und Anlagensicherung, Garching und Siemens AG, Erlangen die Frage der Wärmequellstärke aus dem Spaltproduktzerfall einer hypothetischen Kernschmelze theoretisch zu untersuchen.

Die Arbeitsgruppe tagte erstmals am 8. 6. 1971 im Kernforschungszentrum Karlsruhe. Sie vereinbarte folgende Aufgabendefinition, die der Projektausschuß auf seiner 4. Sitzung am 26. 7. 1971 in Großwelzheim guthieß:

Erarbeitung des derzeitigen Kenntnisstands und von Empfehlungen über das weitere, besonders experimentelle Vorgehen zur Erlangung quantitativer Angaben über die zeitabhängige Wärmequellstärke in einem abgeschmolzenen Kern, soweit sie aus der Zerfallswärme der Spaltprodukte hervorgeht (d. h. exotherme chemische Reaktionen sind nicht Gegenstand dieser Studie).

Die Studie wurde in die folgenden drei Hauptpunkte gegliedert:

- a) Theoretische Ermittlung von Spaltproduktentweichkoeffizienten
- b) Experimentelle Ermittlung von Spaltproduktentweichkoeffizienten
- c) Entweichmodell und Berechnung der Restwärmequellstärke im Brennstoff (bzw. der Schmelze).

Unter Berücksichtigung der bei den o. g. beteiligten Gesellschaften bereits laufenden Arbeiten sowie des möglichen Personaleinsatzes wurde vereinbart, daß die Bearbeitung

- von a) bei AEG - Telefunken
- von b) beim LRA
- von c) bei GfK mit AEG - Telefunken

liegen sollte unter der Gesamt-Federführung durch GfK.

Im Verlauf der Überlegungen wurde deutlich, daß der von a) bis c) gegebene Rahmen das Problem nicht voll abdeckt, sondern daß auch Wärmequellen außerhalb des Brennstoffs (ausgetretene Spaltprodukte) sowie deren mögliche Rückführung in den Brennstoff z. B. durch abschmelzende Strukturteile verfolgt werden müssen, wenn eine Systembilanz vollständig sein soll.

In Anbetracht dessen, daß die vorliegende Studie jedoch im Zusammenhang mit weiteren Untersuchungen zum Komplex des hypothetischen Notkühlversagens zu sehen ist, an denen andere Arbeitsgruppen z. Z. arbeiten, die Ergebnisse dieser Studie als Arbeitsunterlage benötigen, wurde beschlossen, die Arbeit im vorgesteckten Rahmen abzuschließen. Die Frage des Verbleibs der aus dem Brennstoff ausgetretenen Spaltprodukte soll in einem zweiten Teil untersucht werden.

Die Ausgangssituation für diese Studie z. B. aus dem Kern-Abschmelzmodell ist als spekulativ anzusehen bis theoretische oder experimentelle Ergebnisse der anderen Arbeitsgruppen vorliegen. Die Notwendigkeit einer Überprüfung der getroffenen Annahmen bzw. von Korrekturen je nach Ergebnis der anderen Arbeiten sollte im Auge behalten werden.

Im Hauptpunkt a) wird der Versuch unternommen, Entweichkoeffizienten einzelner Spaltprodukte bzw. von Spaltproduktgruppen mit der Brennstofftemperatur als Parameter zu berechnen oder besser, abzuschätzen. Methode und getroffene Annahmen sind unter 3.2 beschrieben.

Hauptpunkt b) enthält die Ergebnisse einer Literaturrecherche über Experimente, die zur Bestimmung von Spaltproduktentweichkoeffizienten aus Urandioxid durchgeführt wurden.

Unter Hauptpunkt c) wird ein Spaltproduktentweichmodell vorgestellt und mit Hilfe von Rechenprogrammen untersucht, welchen Einfluß einzelne Spaltprodukte (bzw. Spaltproduktgruppen) sowie die verschiedenen Entweichphasen auf die Restwärmequellestärke im Brennstoff

haben. Die Parameterrechnungen sollen auch Schwerpunkte für ein geplantes experimentelles Programm liefern.

Es wurde angestrebt, die genannten drei Hauptpunkte in sich geschlossen zu halten. Wiederholungen die dadurch auftreten, wurden in Kauf genommen.

3. Theoretische Ermittlung von Spaltprodukt-Entweichkoeffizienten aus einer Brennstoffschmelze (von N. Henzel, AEG - Telefunken).

3.1 Zusammenfassung

Gegenstand dieses Abschnitts ist die Abschätzung der Freisetzung (Menge und Aktivität) wichtiger Spaltprodukte für den hypothetischen Fall, daß sich das Core eines wassergekühlten Leistungsreaktors mit oxidischem Kernbrennstoff als Folge eines extremen Kühlmittelverlustunfalls bei gleichzeitigem Versagen der Notkühlsysteme unkontrolliert aufheizt und schließlich als Schmelze am Boden des Druckgefäßes vorliegt.

Wie sich aus Literaturangaben entnehmen bzw. ableiten läßt, werden bei dem ab etwa 1200 ° C zu erwartenden Bruch der Zircaloy-Brennstabhüllen rund 30 % des Edelgas- und Halogeninventars spontan freigesetzt. In der sich daran anschließenden, mehrere Minuten dauernden Phase bis zum Schmelzen des Brennstoffs, das ab etwa 2500 ° C einsetzt, ist mit einer nennenswerten Spaltproduktfreisetzung nur dann zu rechnen, wenn der Brennstoff fragmentiert wird; eine signifikante Freisetzung durch Diffusion findet während dieses kurzen Zeitintervalls nicht statt.

Im Vordergrund der hier durchgeführten theoretischen Arbeiten steht das Spaltproduktentweichen aus der 10 bis 60 min nach dem Primärereignis anfallenden Brennstoffschmelze bei Temperaturen zwischen etwa 2500 ° C (Schmelzbeginn) und etwa 3200 ° C (UO₂-Siedepunkt). Dabei wird vereinfachend angenommen, daß das betrachtete System nur aus stöchiometrischem Urandioxid und Spaltprodukten besteht, die das System - praktisch ungehemmt durch Lösungs- und Diffusionsvorgänge - allein durch Verdampfen verlassen. Das abgeschmolzene Struktur- und Hüllenmaterial bleibt also bei der Betrachtung ausgeklammert.

Entsprechend diesem Freisetzungsmodell entweichen beim Schmelzen des Brennstoffs diejenigen Spaltprodukte rasch, deren sämtliche in Frage kommenden chemischen Formen - Elemente, Oxide sowie Alkali- und möglicherweise Uranhalogenide - Siedepunkte unterhalb etwa 2500 ° C haben. Das ist für die restlichen 70 % der Edelgase

und Halogene sowie für Selen, Tellur, Rubidium, Caesium, Silber, Antimon und Zinn der Fall.

Für die übrigen Spaltprodukte wurde die im Gleichgewicht mit stöchiometrischem Uranoxid bevorzugte chemische Form thermodynamisch berechnet. Diesen Rechnungen zufolge liegen Ruthenium, Rhodium und Palladium vorzugsweise elementar vor, während bei Strontium, Barium, Yttrium, den Seltenen Erden, Zirkon und Niob die Oxide dominieren. Bei Molybdän und Technetium konnte die Gleichgewichtslage nicht hinreichend genau bestimmt werden. Für diese Spaltproduktelemente bzw. -oxide wurden anhand zum Teil erheblich differierender Literaturangaben wahrscheinliche Dampfdruckwerte bis zu etwa 3500 ° K extrapoliert. Diese Werte legen es nahe, die genannten Spaltprodukte zu sieben Flüchtigkeitsgruppen zusammenzufassen. Aus den Dampfdrücken der verschiedenen Gruppen wurden schließlich für isotherme und isokinetische Verdampfung geltende Entweichkoeffizienten abgeleitet und von 2500 bis 3500 ° K graphisch gegen die Temperatur aufgetragen. Diese Koeffizienten liegen zwischen $1 \cdot 10^{-11}$ bis $2 \cdot 10^{-7} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ bei 2500 ° K und $6 \cdot 10^{-8}$ bis $8 \cdot 10^{-4} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ bei 3500 ° K.

Das hier zugrundegelegte grobe Modell des Entweichverhaltens von Spaltprodukten, das - wenigstens der Größenordnung nach - quantitative Anhaltspunkte liefert, bedarf sicher noch der Modifizierung. So wird es zweckmäßig sein, Stöchiometrieverschiebungen im UO_2 , Brennstabhüll- und Konstruktionsmaterialien sowie die Umgebungsatmosphäre als zusätzliche Reaktionsteilnehmer als auch - das Spaltproduktentweichen verzögernde - Lösungs- und Diffusionsvorgänge in die Überlegungen einzubeziehen. Selbst dann jedoch sind der theoretischen Ermittlung von Spaltproduktentweichkoeffizienten beim komplexen Gesamtvorgang "Kernschmelzen" wahrscheinlich Grenzen gesetzt, die gezielte experimentelle Untersuchungen erforderlich machen.

3.2 Einleitung und Aufgabenstellung

Es wird akzeptiert, daß als größter anzunehmender Unfall (GAU) in einem wassergekühlten Leistungsreaktor der durch Bruch der Primärwasserleitung induzierte vollständige Kühlmittelverlust anzusehen ist. Als Folge des Hauptleitungsbruchs wird zunächst der größte Teil des Kühlmittels als Wasserdampf aus dem Druckgefäß ausgeblasen, bis sich annähernd Druckausgleich mit der Umgebung, d. h. primär mit dem Containment, eingestellt hat. Dieser als Blowdown bezeichnete Vorgang dauert zumindest so lange, bis der Wasserspiegel im Druckgefäß bis unter den Kern abgesunken ist und die Nachverdampfung des Kühlmittels zum Stillstand kommt. Das ist größenordnungsmäßig 1 Minute nach dem Primärereignis der Fall. In dieses Zeitintervall fällt auch der Abbruch der Spaltungsreaktion durch Schnellabschaltung bzw. als Folge des fehlenden Neutronenmoderators Wasser. Der Kern, von dem angenommen wird, daß er während des Blowdowns intakt geblieben ist, würde sich bei Erschöpfung der Kühlwirkung durch Restwasser durch die Zerfallswärme der in ihm gespeicherten Spaltprodukte erhitzen; im Verlauf dieser Erhitzung käme noch die Metall-Wasser-Reaktion zwischen Hüllrohrmaterial und restlichem Kühlmittel als weitere Wärmequelle hinzu. Diese Wärmeproduktion würde ausreichen, um dem Kern nachhaltigen Schaden zuzufügen.

Diesen Schaden abzuwenden, ist die Aufgabe der in allen Druck- und Siedewasserreaktoren eingebauten redundanten Notkühlsysteme. Deren Funktionssicherheit - entsprechend dem vorstehend Gesagten ein eminent wichtiger Sicherheitsfaktor - steht hier nicht zur Diskussion. Diese Studie geht vielmehr von der hypothetischen Annahme aus, daß die Notkühleinrichtungen eines Kernreaktors versagen.

In diesem Fall wird eine komplexe Ereignisfolge ablaufen, die gemäß /1/ mit einem von oben nach unten fortschreitenden, wechselweisen Schmelzen und Erstarren zunächst der Brennstabhüllen, später auch des Brennstoffs, in einzelnen Kernbereichen beginnt und unter Umständen zu einem allmählichen Abschmelzen des Kerns führt. Der gesamte Vorgang sollte - ebenfalls nach /1/ - 10 bis 60 Minuten in Anspruch nehmen. Sieht man von Sekundäreffekten ab, wie z. B.

eventuellen Dampfexplosionen durch Kontakt zwischen herabfallenden Kernschmelzteilen und restlichem Wasser am Druckgefäßboden, so wird das weitere Geschehen (möglicherweise Durchschmelzen von Druckgefäß und Containment, Verdampfen der Schmelze) beeinflusst von der Wärmeproduktion in der Schmelze sowie der Wärmeabfuhr und Kühlmöglichkeit. Die Wärmeproduktion (Quellstärke) ist abhängig von der Entweichrate der in der Schmelze vorhandenen Spaltprodukte.

Das Ziel der folgenden Überlegungen ist die theoretische Abschätzung von Entweichkoeffizienten für die wichtigsten Spaltprodukte in Abhängigkeit von der Temperatur und von der Zeit. Eine derartige Abschätzung ist nur unter vereinfachenden Annahmen möglich und führt allenfalls zu größenordnungsmäßigen Angaben.

Die angestellte Betrachtung beschränkt sich auf einen Leichtwasserreaktorkern, dessen Brennelemente aus Uranoxid in Zircaloyhüllen bestehen. Sie umfaßt Spaltprodukte mit Kernladungszahlen zwischen 34 (Selen) und 47 (Silber) sowie zwischen 50 (Zinn) und 64 (Gadolinium), die den überwiegenden Wärmebeitrag liefern. Die Freisetzung dieser Spaltprodukte aus der Matrix Uranoxid soll annahm gemäß in vier diskreten Schritten ablaufen:

- Phase 1 Stoßweises Entweichen der im Plenum und im Hüllrohrspalt angereicherten Spaltprodukte beim Hüllenbruch,
- Phase 2 Kontinuierliches Entweichen von Spaltprodukten aus freigelegtem festem Brennstoff durch Diffusion,
- Phase 3 Stoßweises Entweichen von im Brennstoff verbliebenen Spaltprodukten beim Schmelzen,
- Phase 4 Kontinuierliches Entweichen von Spaltprodukten aus der Brennstoffschmelze.

Im folgenden werden in erster Linie die - quantitativ sicher bedeutendsten - Phasen 3 und 4 betrachtet. Die Fragestellung lautet dabei: Um wieviel und wie schnell nimmt bei einer gegebenen Temperatur die Restwärmequelle bzw. die Menge der Spaltprodukte in der Schmelze ab? Der aus der Gesamtwärmebilanz resultierende, tatsächliche Temperaturverlauf wird bei dieser Abschätzung nicht berück-

sichtigt. Vernachlässigt wird auch der Einfluß von Hüllrohr- und anderen Strukturmaterialien, die zusammen mit dem Brennstoff die Schmelze bilden, sowie der Einfluß etwaiger Wasserreste am Druckgefäßboden bzw. der Gasatmosphäre (Luft, Wasserstoff, Wasserdampf) oberhalb der Schmelze. Das hier betrachtete System umfaßt somit ausschließlich Urandioxid und die genannte Spaltproduktauswahl. Ausdrücklich ausgeklammert ist beim gegenwärtigen Stand der Arbeiten die Frage, was mit den Wärmequellen geschieht, nachdem sie dieses System verlassen haben.

Es muß späteren Untersuchungen vorbehalten bleiben, das skizzierte Bild zu verfeinern. Im Augenblick geht es darum, erste Angaben über Entweichkoeffizienten zu machen, d. h. die isotherm pro Zeit- und Oberflächeneinheit aus einer Urandioxidschmelze freigesetzte Menge einzelner Spaltprodukte zu ermitteln. Dies erlaubt - zusammen mit anderweitig bekannten Daten über das Spaltproduktinventar und den individuellen Wärmebeitrag der Isotope - die für eine bestimmte vorgegebene Temperatur zu erwartende Reduktion der Restwärmequellstärke in der Schmelze zu berechnen.

3.3 Spaltproduktfreisetzung bis zum Schmelzen des Brennstoffs

Die im Spalt zwischen Brennstoff und Stabhülle sowie im Plenum während des Reaktorbetriebs angereicherten leichtflüchtigen Spaltprodukte - ein vergleichsweise geringer Anteil des Inventars an Edelgasen und Halogenen - werden bei dem ab etwa 1200 ° C zu erwartenden Bruch der Zircaloyhüllen /2/ spontan entweichen (Phase 1).

Laut einem auf Literaturangaben /3/, /4/, /5/ basierenden Gutachten des Instituts für Reaktorsicherheit beträgt dieser Anteil bei einer mittleren volumetrischen Brennstofftemperatur von 1300 ° C etwa 30 %/o. Eine nennenswerte Freisetzung anderer Spaltprodukte findet nach /1/ während dieser Phase nicht statt.

In der sich anschließenden und vermutlich mehrere Minuten dauernden Zeitspanne zwischen Freilegung und dem laut /2/ ab etwa 2500 ° C einsetzenden Schmelzen des Brennstoffs werden Spaltprodukte, von Nebeneffekten wie z. B. Brennstofffragmentierung abgesehen, über-

wiegend durch Diffusion freigesetzt (Phase 2). Die durch diesen Mechanismus entweichenden Spaltproduktmengen werden je nach Element unterschiedlich sein und machen gemäß /1/ allenfalls bei den Edelgasen, den Halogenen, Tellur (vermutlich auch Selen) und Caesium (vermutlich auch Rubidium) einen ins Gewicht fallenden Teil des Inventars aus. Eine Quantifizierung dieses Inventarteils ist schwierig. Folgende grobe Abschätzung wird versucht.

Nach /6/ diffundiert Yttriumoxid aus einer Brennstoffschmelze mit $6,8 \cdot 10^5 \text{ cm}^2$ Oberfläche und 34,2 cm Dicke bei 3000° K und einem Diffusionskoeffizienten von $D = 5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ innerhalb von etwa 55 Tagen zur Hälfte und innerhalb von etwa 3 Tagen zu 10 % heraus.^{+) Überträgt man diese Angaben beispielsweise auf den Kern des Kernkraftwerks Würgassen, dessen UO_2 -Pelletsäulen einen Radius von 0,62 cm und eine Gesamtoberfläche von $3,1 \cdot 10^7 \text{ cm}^2$ haben /7/, so ergibt sich bei gleichem Diffusionskoeffizienten für 10 %iges Entweichen von Yttriumoxid eine Zeit von ungefähr 100 Sekunden. Nun ist aber $D = 5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$, in /6/ für eine Schmelze angenommen, für festes UO_2 sicher ein viel zu hoher Wert. Nach /8/ liegen die Diffusionskoeffizienten in Gasen in der Größenordnung $1 \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$, in Flüssigkeiten in der Größenordnung $10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ und in festen Stoffen in der Größenordnung $10^{-10} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$; zwischen Flüssigkeit (oder Schmelze) und Feststoff wäre demnach ein Unterschied um etwa vier Größenordnungen zu erwarten. Tatsächlich berechnet man aus /2/, wo für einige Spaltprodukte experimentell ermittelte Werte für die Diffusionskonstante D_0 und die Aktivierungsenergie E_A angegeben sind, nach der bekannten Arrhenius-Gleichung}

$$D = D_0 \cdot e^{-\frac{E_A}{R \cdot T}}$$

(3.3.1)

selbst bei Temperaturen um 2700° K erst Diffusionskoeffizienten von beispielsweise $D = 1,0 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ (Zirkon) und $D = 2,5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ (Jod), bei 2200° K für Xenon nur

^{+) Die tatsächliche Entweichrate ist aufgrund interner thermischer Konvektion der Schmelze wesentlich, d. h. mindestens um eine Größenordnung, höher.}

$D = 3,5 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ und bei 1700° K für Yttrium sogar nur $D = 7,3 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$. Es erscheint daher angebracht, in festem Urandioxid nicht $D = 5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ anzunehmen, sondern einen um etwa vier Größenordnungen kleineren Wert. Mit $D = 5 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$ würde ein Spaltprodukt, das in ähnlicher Menge vorliegt wie Yttrium und ebenfalls als Oxid diffundiert, statt 100 Sekunden in der Größenordnung 10 Tage brauchen, um - linearen Zusammenhang zwischen Diffusionskoeffizient und Entweichzeit vorausgesetzt - zu 10 % den Brennstoff zu verlassen.

Unter der Annahme einer Proportionalität $t \sim \frac{1}{\sqrt{D}}$, wie durch /8/ nahegelegt, ergäbe sich immer noch ein Zeitbedarf von etwa drei Stunden für das Entweichen von 10 % des Inventars eines mit Yttrium vergleichbaren Spaltprodukts. Selbst wenn man annimmt, daß der Diffusionskoeffizient $D = 5 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2 \cdot \text{sec}^{-1}$, der hier zugrundegelegt wurde, für ein weitgehend ungestörtes Kristallgitter gilt, für Urandioxid mit bestrahlungsbedingten Gitterdefekten also wahrscheinlich zu klein ist, so ergibt sich immer noch keine Entweichrate, die innerhalb eines nur wenige Minuten dauernden Zeitraums (vgl. Abschnitt 3.2) signifikant zu nennen wäre.

Insgesamt folgt aus den vorstehenden Betrachtungen, daß während der in Abschnitt 3.2 definierten Phase 1 etwa 30 % des Inventars an Edelgasen und Halogenen spontan entweichen, in der Phase 2 jedoch keine nennenswerte Spaltproduktfreisetzung stattfindet.

3.4 Spaltproduktfreisetzung aus geschmolzenem Brennstoff

In Abschnitt 3.3 wurde referiert, wieviel Zeit Angaben in /6/ zufolge Yttriumoxid brauchen sollte, um aus einer Brennstoffschmelze vorgegebener Oberfläche und Dicke zu entweichen. Je nach den geometrischen Verhältnissen ergaben sich für 3000° K Freisetzungzeiten für 10 % des Inventars von der Größenordnung 1 Tag bzw. 1 Stunde bei reiner Diffusion bzw. durch thermisch induzierte interne Zirkulation unterstützter Diffusion. Nun ist Yttriumoxid (Y_2O_3 , Schmelzpunkt 2400° C , Siedepunkt 4300° C) bei 3000° K sicher noch als schwerflüchtig anzusehen, während andere Spaltproduktverbindungen

bei dieser Temperatur bereits beträchtliche Dampfdrücke haben können. Sobald sich innerhalb der Schmelze Gasblasen ausbilden, trifft der in /6/ angenommene Freisetzungsmechanismus nicht mehr zu; die Entweichrate vergrößert sich dann mit hoher Wahrscheinlichkeit und wird - abgesehen von Löslichkeitseffekten - hauptsächlich von der Zähigkeit der Schmelze bestimmt.

Im Sinne des angestrebten ersten groben Bildes wird deshalb angenommen, daß die Viskositätshemmung und auch die Löslichkeit von Spaltprodukten in der Schmelze vernachlässigbar sind, d. h. daß beim Schmelzen des Urandioxids diejenigen Spaltprodukte praktisch verzögerungsfrei und weitgehend vollständig entweichen, deren jeweilige unter den gegebenen physikalisch-chemischen Bedingungen vorherrschende chemische Form einen Siedepunkt unterhalb von etwa 2500 ° C hat. Analog sollten höher siedende Spezies zu einem ihrem Dampfdruck entsprechenden Teil freigesetzt werden.

Es gilt also zunächst festzustellen, welche chemische Form der einzelnen Spaltprodukte im Temperaturbereich zwischen ca. 2500 ° C (einsetzendes Brennstoffschmelzen) und ca. 3200 ° C (Siedepunkt von Urandioxid) in Gegenwart von Urandioxid als Matrix stabil ist.

Als chemische Form kommen neben Alkali- und möglicherweise Uranhalogeniden praktisch nur Elemente und Oxide in Frage. Aus einschlägigen Handbüchern, z. B. aus /9/, ergibt sich, daß in einigen Fällen sämtliche in Betracht kommenden Verbindungen des betreffenden Spaltprodukts unterhalb 2500 ° C sieden bzw. sublimieren oder aufgrund bekannter thermischer Zersetzung bzw. inerten Charakters nur die bei 2500 ° C flüchtigen Elemente vorliegen können. Tabelle 3.4.1 enthält diejenigen Spaltprodukte, bei denen unter dem Gesichtspunkt der raschen Verdampfung aus einer Urandioxidschmelze die vorliegende chemische Form keine Rolle spielt.

Tabelle 3.4.1 : Bei 2500°C unabhängig von der chemischen Form flüchtige Spaltprodukte

Kernladung Z	Mögliche chemische Formen im Urandioxid- Spaltprodukt-Gemisch	Siedepunkt (°C)
34	Se	685
	SeO ₂	Subl. 340 - 350
35	Br ₂	59
	UBr ₄	792
	RbBr	1340
	CsBr	1300
36	Kr	-152
37	Rb	688
	RbBr	1340
	RbJ	1300
47	Ag	2212
	Ag ₂ O	Zers. 300
50	Sn	2260
	SnO ₂	Subl. 1800-1900
51	Sb	1380
	Sb ₂ O ₃	1550
52	Te	990 bzw. 1390 ¹⁾
	TeO ₂	1245
53	J ₂	184
	UJ ₄	759
	RbJ	1300
	CsJ	1280
54	Xe	-107
55	Cs	690
	CsBr	1300
	CsJ	1280

1) Je nach Modifikation unterschiedliche Eigenschaften

Bei den übrigen Spaltprodukten ist entweder die chemische Form zur Einstufung für einen Siedepunkt unterhalb oder oberhalb von 2500°C nicht gleichgültig oder es liegen für eine mögliche Form keine verlässlichen Angaben über den Siedepunkt vor. So siedet z.B. Molybdän erst bei 5560°C, während sein Trioxid bereits bei 1155°C sublimiert; umgekehrt siedet Strontium schon bei 1384°C, Strontiumoxid jedoch erst in der Gegend von 3000°C. Die Angabe ~ 2000°C für den Siedepunkt von Bariumoxid muß bezweifelt werden; dieser Wert ist wahrscheinlich zu niedrig.

In diesen und anderen Fällen muß die Frage nach der vorherrschenden chemischen Form also gestellt werden. Eine Klärung ist dabei mangels experimentell ermittelter Hochtemperaturdaten nur durch chemisch-thermodynamische Rechnung möglich.

3.4.1 Chemisch-thermodynamische Berechnung des wahrscheinlichsten chemischen Zustands von Spaltprodukten im Gleichgewicht mit Urandioxid

Bei der Berechnung von Reaktionsgleichgewichten aus thermodynamischen Daten macht man von der Tatsache Gebrauch, daß die freie Energie einer Reaktion bei Normaldruck - üblicherweise ΔG° genannt - , die sich gemäß der Gibbs-Helmholtzschen Gleichung

$$(3.4.1) \quad \Delta G_T^\circ = \Delta H_T^\circ - T \cdot \Delta S_T^\circ \quad (\text{cal})$$

aus der Reaktionsenthalpie ΔH° und der Reaktionsentropie ΔS° bei der betrachteten Temperatur T ergibt, mit der aus dem Massenwirkungsgesetz folgenden Gleichgewichtskonstanten für konstanten Druck K_p zusammenhängt:

$$(3.4.2) \quad \Delta G_T^\circ = - RT \cdot \ln K_{p,T} \quad (\text{cal}).$$

./.

Für Zimmertemperatur ($T = \vartheta = 298^{\circ}\text{K}$) sind solche Berechnungen meist einfach, da in diesem Fall lediglich die Standardwerte für die Enthalpien H_{ϑ}° (= Bildungswärmen) und die Entropien S_{ϑ}° , der einzelnen Reaktionspartner benötigt werden. Für andere Temperaturen liegen die Verhältnisse komplizierter: Die bekannte Ulich'sche Näherungsmethode führt dann grundsätzlich nur zu Abschätzungen, deren Genauigkeit unter anderem von der benutzten Näherungsformel, d.h. vom rechnerischen Aufwand, abhängt.

In der vorliegenden Arbeit wird deshalb die Methode von K.H. Bloss et al./10/ vorgezogen, die auf der statistischen Thermodynamik von G.N. Lewis und M. Randall /11/ beruht. Diese Methode erfordert einen wesentlich geringeren rechnerischen Aufwand als die herkömmlichen Verfahren. Genauigkeit und Zuverlässigkeit der Ergebnisse hängen hier allein von den experimentellen Fehlern ab, mit denen die thermodynamischen Ausgangswerte behaftet sind. Darüber hinaus gestattet die Methode von Bloss et al. - und das ist ihr entscheidender praktischer Vorteil - besser als ältere Verfahren bis in Temperaturbereiche zu extrapolieren, für die thermodynamische Daten bislang noch nicht vorliegen.

Bloss et al. ordnen jeder Substanz eine in Entropieeinheiten ausgedrückte, d.h. statistische Labilität (= negative Stabilität) zu, für deren Zahlenwert bei Normaldruck p_0 und der Temperatur T gilt:

$$(3.4.3) \quad L_T^{\circ} = \frac{H_T^{\circ}}{T} - S_T^{\circ} \quad (\text{Clausius}).$$

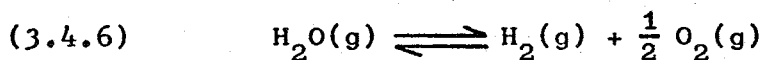
./.

Dabei sind H_T° und S_T° Enthalpie (= Wärmeinhalt) und Entropie des betreffenden Elementes bzw. der betreffenden Verbindung bei der Temperatur T. Beide Werte können entweder unmittelbar aus einschlägigen Tafeln entnommen oder aus den jeweiligen Standardwerten und Temperaturinkrementwerten additiv zusammengesetzt werden, die oft anstelle der H_T° - bzw. S_T° -Werte tabelliert sind:

$$(3.4.4) \quad H_T^{\circ} = H^{\circ} + H_{\text{inkr}}^{\circ} \left| \begin{matrix} T \\ \nu \end{matrix} \right. \quad (C1),$$

$$(3.4.5) \quad S_T^{\circ} = S^{\circ} + S_{\text{inkr}}^{\circ} \left| \begin{matrix} T \\ \nu \end{matrix} \right. \quad (C1).$$

Zur Berechnung der Reaktionslabilität ΔL_T° werden die Labilitätswerte der einzelnen Komponenten in der üblichen Weise auf der rechten Seite der Reaktionsgleichung addiert, auf der linken Seite subtrahiert. Zum Beispiel erhält man für die thermische Dissoziation von Wasserdampf gemäß



bei $p_0 = 1 \text{ atm}$ und $T = 2000^{\circ}\text{K}$:

$$\begin{aligned} L_{2000}^{\circ}(\text{H}_2\text{O}) &= \frac{-57800 + 17370}{2000} - (45,11 + 18,13) \\ &= \underline{\underline{-83,45 \text{ Cl}}} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} L_{2000}^{\circ}(\text{H}_2) &= \frac{0 + 12650}{2000} - (31,21 + 13,79) \\ &= \underline{\underline{-38,68 \text{ Cl}}} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} L_{2000}^{\circ}(\text{O}_2) &= \frac{0 + 14150}{2000} - (49,01 + 15,21) \\ &= \underline{\underline{-57,14 \text{ Cl}}} \end{aligned}$$

./.

und daraus:

$$L_{2000}^{\circ} = -38,68 - \frac{1}{2} \cdot 57,14 + 83,45 = +16,20 \text{ Cl.}$$

In dieser Schreibweise ist eine Substanz dann thermodynamisch stabil, wenn ihr Labilitätswert negativ, ihre Stabilität also positiv ist. Entsprechend - und analog zu der Bedeutung der freien Reaktionsenthalpie, der die Reaktionslabilität gemäß der Beziehung

$$(3.4.7) \quad \Delta L_T^{\circ} = \frac{\Delta G_T^{\circ}}{T}$$

proportional ist - liegt ein Gleichgewicht überwiegend auf der rechten (linken) Seite der Reaktionsgleichung, wenn der Wert für ΔL_T° negativ (positiv) ist. In unserem Beispiel der Wasserdampfzersetzung ist demnach $\text{H}_2\text{O}(\text{g})$ der stabilere Zustand als $\text{H}_2(\text{g}) + \frac{1}{2} \text{O}_2(\text{g})$.

Bezieht man nicht auf einen Formelumsatz, sondern auf eine chemische Bindung, so erhält man aus der Reaktionslabilität ΔL_T° das zugehörige entropische Reaktionspotential ΔP_T° nach

$$(3.4.8) \quad \Delta P_T^{\circ} = \frac{\Delta L_T^{\circ}}{n} \quad (\text{Gibbs}),$$

indem man durch die Zahl der bei der Reaktion gesprengten und neu gebildeten Bindungen dividiert, d.h. durch die Zahl der transportierten Elektronen. Im Falle des Wassergleichgewichts (2.6) ist $n = 2$, also:

$$\Delta P_{2000}^{\circ} = +8,10 \text{ Gibbs.}$$

./.

Es erweist sich als vorteilhaft, das entropische Reaktionspotential ΔP° graphisch gegen T oder gegen $\log T$ aufzutragen, denn eine solche Darstellung erlaubt eine einigermaßen sichere Kurvenextrapolation bis zu sehr hohen Temperaturen, in der Regel bis 5.000 oder gar 10.000 °K (vgl. Bild 3.4.1). Im Gegensatz zu dem extensiven ΔL° ist das intensive ΔP° von der Zahl der in einer Reaktionsgleichung formulierten Mole unabhängig und läßt sich daher auch anschaulich quantifizieren. Bei $\Delta P_T^\circ = 0$ ist das Produkt der Komponentenkonzentrationen auf der rechten Gleichungsseite gleich demjenigen auf der linken ("totales" Gleichgewicht). Bei Vorliegen stöchiometrischer Verhältnisse läßt sich als Faustregel formulieren: "Präparatives" Gleichgewicht (sämtliche Reaktionspartner sind in vergleichbaren Mengen vorhanden) wird durch $-5 < \Delta P_T^\circ < +5$ charakterisiert; $-10 < \Delta P_T^\circ < +10$ bedeutet normalerweise, daß sämtliche Reaktionspartner im Rahmen typischer analytischer Nachweisgrenzen anwesend sind ("analytisches" Gleichgewicht); bei $\Delta P_T^\circ \begin{matrix} \lesssim \\ (\gtrsim) \end{matrix} -10 \text{ (+10)}$ liegt das Gleichgewicht der Reaktion praktisch ausschließlich rechts (links).

Diese Faustregel soll anhand der Wasserdampfdissoziation erläutert werden. Kombiniert man (3.4.2) und (3.4.7), so folgt

$$(3.4.9) \quad \Delta L_T^\circ = -R \cdot \ln K_{p,T}.$$

./.

Für K_p ergibt sich demnach hier bei $T = 2000^\circ\text{K}$:

$$\log K_p = - \frac{\Delta L_{2000}^\circ}{2,303 \cdot R} = - \frac{16,20}{4,574} = -3,47,$$

also:
$$\underline{K_p = 3,4 \cdot 10^{-4}.}$$

Wendet man das Massenwirkungsgesetz auf (3.4.6) an, so erhält man:

$$(3.4.10) \quad \frac{p(\text{H}_2) \cdot p(\text{O}_2)^{\frac{1}{2}}}{p(\text{H}_2\text{O})} = K_{p,T}.$$

Für $p(\text{H}_2\text{O}) + p(\text{H}_2) + p(\text{O}_2) = 1 \text{ atm}$, d.h. hier $p(\text{H}_2\text{O}) \approx 1 \text{ atm}$, und $T = 2000^\circ\text{K}$ ist:

$$p(\text{H}_2) \cdot p(\text{O}_2)^{\frac{1}{2}} = 3,4 \cdot 10^{-4}.$$

Da $p(\text{H}_2) = 2 p(\text{O}_2)$, gilt:

$$(3.4.11) \quad p(\text{O}_2) = \left(\frac{K_{p,T}}{2}\right)^{\frac{2}{3}},$$

hier also: $p(\text{O}_2) = 3,07 \cdot 10^{-3} \text{ atm}$ ($T = 2000^\circ\text{K}$)
und $p(\text{H}_2) = 6,14 \cdot 10^{-3} \text{ atm}$ ($T = 2000^\circ\text{K}$).

Die Dissoziationsprodukte $\text{H}_2(\text{g})$ und $\text{O}_2(\text{g})$ liegen bei Normaldruck und $T = 2000^\circ\text{K}$ demnach tatsächlich nur in Mengen unterhalb 1 Vol.-% neben $\text{H}_2\text{O}(\text{g})$ vor.

Der Vollständigkeit halber sei darauf hingewiesen, daß die Analogie zwischen der freien Reaktionsenthalpie und der Reaktionslabilität natürlich auch dann erhalten bleibt, wenn der Systemdruck von Normalbedingungen abweicht. Dieser Fall ist selbstverständlich nur dann von praktischer Bedeutung, wenn die Reaktionsgleichung gasförmige Komponenten enthält. Bezeichnet man die Differenz der Gas-Molzahlen auf der rechten und der linken Gleichungsseite mit ν , so gilt analog zu

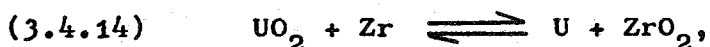
$$(3.4.12) \quad \Delta G_T^P - \Delta G_T^O = \int_{p_0}^P \frac{\nu \cdot RT}{p} dp = \nu \cdot RT \ln \frac{p}{p_0}$$

$$(3.4.13) \quad \Delta L_T^P - \Delta L_T^O = \nu \cdot R \ln \frac{p}{p_0} .$$

Im Falle der als Beispiel gewählten Reaktionsgleichung (3.4.6) ergibt sich, da $\nu = + 1/2$, anstelle von $\Delta L_{2000}^O = +16,20$ Cl für $p_0 = 1$ atm: $\Delta L_{2000}^{10} = +18,49$ Cl für $p = 10$ atm Systemdruck. Daraus folgt für das Reaktionspotential $\Delta P_{2000}^{10} = +9,25$ Gibbs statt $\Delta P_{2000}^O = +8,10$ Gibbs. Entsprechend dem Prinzip des kleinsten Zwangs wird also die thermische Wasserdampfzersetzung, die zu einer Volumenvermehrung führt, bei Druckerhöhung thermodynamisch weniger wahrscheinlich, d.h. das Reaktionsgleichgewicht liegt stärker auf der Seite des Wasserdampfs.

Für den Gegenstand dieser Studie - das System Urandioxid/ Spaltprodukte in einer Schmelze am Boden eines Reaktor-druckgefäßes - sind Überlegungen zur Druckabhängigkeit des Reaktionsgleichgewichts bedeutungslos, denn im Anschluß an den Blowdown (vgl. Abschnitt 3.2) wird der Systemdruck von 1 atm nicht sehr verschieden sein.

Dem Versuch, die tatsächlich in dem hier betrachteten Fall gegebenen komplexen Verhältnisse durch analoge Behandlung einfacher Reaktionsgleichgewichte wie beispielsweise

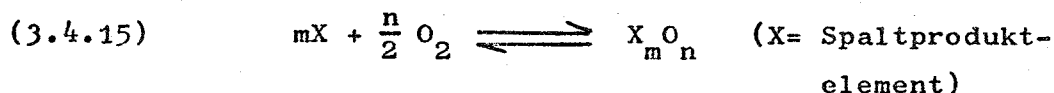


also unter der Annahme exakt stöchiometrischen Urandioxids, zu beschreiben, liegt folgende Überlegung zugrunde:

./.

Bei der Kernspaltung des Brennstoffs UO_2 zerfällt pro Spaltprozeß ein Atom Uran unter Bildung von zwei Kernbruchstücken. Die zuvor an dieses Uranatom gebundenen Sauerstoffatome gehen dem System natürlich nicht verloren, sie werden aber auch nicht frei in dem Sinne, daß sie quantitativ als O_2 für Reaktionen mit Spaltprodukten zur Verfügung stehen. Im Bereich kleiner Abbrände wird dieser Sauerstoff vielmehr zum Teil in das Urandioxidgitter eingebaut, sofern er sich nicht mit solchen Spaltproduktelementen verbindet, die - wie etwa Zirkon - eine höhere Sauerstoffaffinität besitzen als Uran. Mit der Bildung von hyperstöchiometrischem Urandioxid UO_{2+x} geht bis etwa $x = 0,3$ keine Phasenumwandlung einher. Allerdings ist der Sauerstoffpartialdruck über hyperstöchiometrischem Urandioxid höher als über $UO_{2,0}$. Aus Angaben von K. Hagemark und M. Broli /12/ über die partielle freie Enthalpie des Sauerstoffs in UO_{2+x} berechnet man beispielsweise bei $1400^\circ C$ für $UO_{2,01}$ $p_{O_2} = 2,5 \cdot 10^{-8}$ atm und für $UO_{2,10}$ $p_{O_2} = 9,0 \cdot 10^{-6}$ atm. Diese Stöchiometrieänderung würde bei vollständiger Sauerstofffreisetzung einen Sauerstoffpartialdruck von $p_{O_2} = 5 \cdot 10^{-2}$ atm ergeben. Demnach liegen unter den genannten Bedingungen höchstens etwa $1,8 \cdot 10^{-2}$ % des vorhandenen Sauerstoffs als O_2 vor. Zwar wird sich dieser Anteil mit steigender Temperatur erhöhen, so daß diejenigen Spaltprodukte, die im Gleichgewicht mit Urandioxid als Element stabil sind, schließlich ausreichende Mengen freien Sauerstoffs vorfinden, mit denen sie zu den entsprechenden Oxiden reagieren können. Da dies jedoch vermutlich erst bei relativ hohen Temperaturen in stärkerem Maße der Fall ist, dürften Störreaktionen des Typs

./.



sich den Reaktionsgleichgewichten des Typs (3.4.14) nur in untergeordnetem Umfang überlagern. Inwieweit diese Annahme zulässig ist, läßt sich allerdings erst aufgrund bislang offenbar nicht vorliegender Messungen des Sauerstoffpartialdrucks in Abhängigkeit von der stöchiometrischen Zusammensetzung im Bereich hoher Temperaturen (um 3000°C) entscheiden. Sofern freier Sauerstoff vernachlässigt werden darf, können die Reaktionsgleichgewichte des Typs (3.4.14) auf die beschriebene einfache Weise behandelt werden, ohne daß man Fehler befürchten muß, die über das als Folge zum Teil nur ungenau bekannter thermodynamischer Ausgangsdaten unvermeidliche Maß hinausgehen.

Liegen die Ausgangssubstanzen einer Reaktion in anderen als stöchiometrischen Verhältnissen vor, so bleibt der berechnete Wert ΔP_T^O bzw. ΔP_T^D davon unberührt. Die Gleichgewichtskonzentration der Reaktionspartner, die mit dem zugehörigen Partialdruck durch die Beziehung

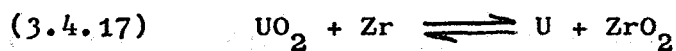
$$(3.4.16) \quad K_c = K_p (RT)^{-\sum \nu}$$

korreliert ist, wird demgegenüber von einer Änderung der Anfangsmengen um einige Größenordnungen erheblich beeinflusst. Die oben für den Zusammenhang zwischen Reaktionspotential und Formelumsatz angegebene Faustregel gilt in diesem Fall nicht mehr, d.h. der Nullpunkt der ΔP -Achse (vgl. Bild 3.4.1), der unter stöchiometrischen Bedingungen für beide Seiten einer Reaktionsgleichung Konzentrationsprodukte im Verhältnis 1 : 1 bedeutet, wird mehr oder minder weit vertikal verschoben.

./.

Im oxidischen Brennstoff eines Leistungsreaktors der Druck- oder Siedewasserlinie entstehen nach /13/ je 1000 MWt pro Jahr ungefähr 300 kg Spaltprodukte, im Falle des Kernkraftwerks Würgassen (1912 MWt $\hat{=}$ 612 MWe) also rund 600 kg. Da dessen Erstkern laut /7/ rund 100 t UO_2 mit einer mittleren Anreicherung von 2,2 % enthält, würden bei vollständigem Abbrand etwa 1900 kg Spaltprodukte gebildet, was einer Betriebszeit von ca. drei Jahren entspräche. Da die hier interessierenden Spaltproduktelemente gemäß /14/ zwischen etwa 0,1 und maximal etwa 12 At.-% auftreten, im Mittel also in der Größenordnung von 1 At.-%, ist jedes Element in Mengen zwischen 0,6 und 200 kg, im Mittel also in der Größenordnung von 10 kg vertreten. 100 t UO_2 entsprechen $3,7 \cdot 10^5$ Mol, 10 kg eines Elementes mit einem Atomgewicht um oder etwas über 100 ungefähr 10^2 Grammatomen, so daß sich ein molares Spaltprodukt-Urandioxid-Verhältnis von im Mittel einigen 10^{-4} ergibt.

Wie wichtig dieser Parameter ist, zeigt die folgende, am Beispiel der Reaktionsgleichung



durchgeführte Rechnung. Entsprechend dem Massenwirkungsgesetz gilt hierfür

$$(3.4.18) \quad K_p = K_c = \frac{[ZrO_2] \cdot [U]}{[Zr] \cdot [UO_2]}$$

(Da sich in (3.4.17) die Molzahl nicht ändert, sind gemäß (3.4.16) K_p und K_c identisch).

./.

Im stöchiometrischen Gleichgewicht, d.h. wenn Ausgangsmengen von 1 Mol UO_2 und 1 Grammatom Zr miteinander umgesetzt werden, ist $[\text{ZrO}_2] = [\text{U}]$ und $[\text{UO}_2] = [\text{Zr}]$, so daß man erhält:

$$(3.4.19) \quad K_c = \frac{[\text{ZrO}_2]^2}{[\text{Zr}]^2}$$

Unter dem von links nach rechts gerechneten Umsatz u der Reaktion (3.4.17) soll verstanden werden:

$$(3.4.20) \quad u = \frac{[\text{ZrO}_2]}{[\text{Zr}] + [\text{ZrO}_2]} \cdot 100 \quad (\%).$$

Verwendet man Gleichung (3.4.19), (3.4.9) und (3.4.8), so folgt für 1%igen, 50%igen bzw. 99%igen Umsatz, also für die ungefähren Grenzen des "präparativen Gleichgewichts" in guter Übereinstimmung mit der vorstehend erwähnten Faustregel:

$$u = 1 \%: \quad K_c = \frac{0,01^2}{0,99^2} = 1,02 \cdot 10^{-4} \quad \Delta P^\circ = +4,6 \text{ Gibbs}$$

$$u = 50\%: \quad K_c = \frac{0,5^2}{0,5^2} = 1 \quad \Delta P^\circ = 0 \text{ Gibbs}$$

$$u = 99\%: \quad K_c = \frac{0,99^2}{0,01^2} = 9,8 \cdot 10^3 \quad \Delta P^\circ = -4,6 \text{ Gibbs}$$

Nimmt man jedoch an, daß UO_2 in so großem Überschuß vorliegt, daß seine Konzentration während der Umsetzung praktisch unverändert bleibt, und gibt man zugleich

$$\frac{[\text{Zr}] + [\text{ZrO}_2]}{[\text{UO}_2]} = 10^{-4} \text{ vor, so wird aus}$$

$$(3.4.18) \quad K_c = \frac{[\text{ZrO}_2] \cdot [\text{U}]}{[\text{Zr}] \cdot [\text{UO}_2]},$$

da $[\text{ZrO}_2] = [\text{U}]$ dann auch gilt,

$$(3.4.21) \quad K_c = \frac{[\text{ZrO}_2]^2}{[\text{Zr}] \cdot [\text{Zr}] + [\text{ZrO}_2] \cdot 10^4}$$

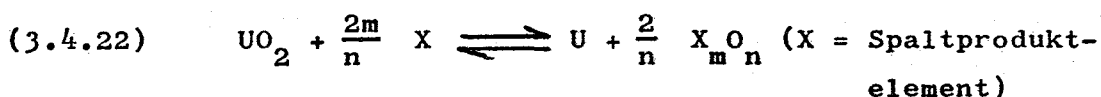
Hier ergibt sich folgendes Bild:

$$u = 1\%: \quad K_c = \frac{(1 \cdot 10^{-6})^2}{0,99 \cdot 10^{-4}} = 1,02 \cdot 10^{-8} \rightarrow \Delta P^{\circ} = +9,1 \text{ Gibbs}$$

$$u = 50\%: \quad K_c = \frac{(5 \cdot 10^{-5})^2}{5 \cdot 10^{-5}} = 5 \cdot 10^{-5} \rightarrow \Delta P^{\circ} = +4,9 \text{ Gibbs}$$

$$u = 99\%: \quad K_c = \frac{(0,99 \cdot 10^{-4})^2}{1 \cdot 10^{-6}} = 9,8 \cdot 10^{-3} \rightarrow \Delta P^{\circ} = +2,3 \text{ Gibbs}$$

Man sieht an diesem Rechenbeispiel, daß ein und derselbe Wert für das Reaktionspotential je nach dem molaren Verhältnis der Ausgangssubstanzen unterschiedlichen Umsätzen entspricht. Überträgt man die vorstehende Rechnung auf andere Reaktionsgleichungen, so ergeben sich in Abhängigkeit von der Wertigkeit des betrachteten Spaltproduktelements mehr oder minder starke Unterschiede zwischen den ΔP° -Werten für gleichen Umsatz im stöchiometrischen Gleichgewicht und denjenigen bei einem anderen molaren Spaltprodukt-Urandioxid-Verhältnis. Tabelle 3.4.2 verdeutlicht dies für Reaktionen des Typs



wobei das Spaltproduktelement X in seinen Verbindungen Wertigkeiten zwischen +1 und +6 annimmt und ein molares Spaltprodukt-Urandioxid-Verhältnis von 10^{-4} vorgegeben ist. Gibt man stattdessen ein molares Spaltprodukt-Urandioxid-Verhältnis von 10^{-5} bzw. 10^{-3} vor, so ändern sich die Werte der Tabelle 3.4.2 nicht wesentlich. Es kann demnach darauf verzichtet werden, die - um etwa eine Größenordnung nach oben und unten um den angenommenen mittleren Wert von 1 At.-% schwankenden - individuellen Elementausbeuten einzelner Spaltprodukte zu berücksichtigen.

Tabelle 3.4.2: Reaktionspotentiale für Umsätze von 1 %, 50 % und 99 % als Funktion der Spaltproduktwertigkeit (Molares Spaltprodukt-Urandioxid-Verhältnis 10^{-4})

Spaltprodukt-Kation	ΔP° (Gibbs) für		
	u = 1 %	u = 50 %	u = 99 %
X ¹⁺	+ 2,6	- 4,6	- 13,3
X ²⁺	+11,8	+ 5,3	+ 0,4
X ³⁺	+ 5,1	+ 1,4	- 1,7
X ⁴⁺	+ 9,1	+ 4,9	+ 2,3
X ⁵⁺	+ 5,5	+ 2,5	+ 0,5
X ⁶⁺	+ 8,2	+ 4,7	+ 2,9

Die Werte von Tabelle 3.4.2 ermöglichen, zusammen mit den in Bild 3.4.2 bis 3.4.14 dargestellten Reaktionspotentialkurven, - im Rahmen der dem hier vorgestellten Verfahren anhaftenden Ungenauigkeiten - eine Entscheidung darüber, welche Seite bei den Reaktionsgleichungen des Typs 3.4.22 unter den angenommenen Konzentrationsverhältnissen bei einer bestimmten Temperatur begünstigt ist.

In Tabelle 3.4.3 sind die jeweils vorherrschenden Spaltproduktspezies zusammen mit ihrem Siedepunkt - soweit bekannt - zusammengestellt.

Aus Bild 3.4.15 ergibt sich im übrigen, daß bis zu den hier interessierenden Temperaturen eine thermische Zerlegung des Urandioxids in die Elemente nicht in merklichem Maße stattfindet.

./.

Tabelle 3.4.3: Im Gleichgewicht mit stöchiometrischem UO_2 bei $\sim 3000^\circ C$ vorherrschende Spaltproduktspesies und deren Siedepunkte

Kernladung Z	Element	Vorherrschende Spezies	Siedepunkt ($^\circ C$)
38	Sr	SrO	~ 3000
39	Y	Y_2O_3	~ 4300
40	Zr	ZrO_2	~ 5000
41	Nb	NbO; NbO_2	?
42	Mo	MoO_3 ; $Mo^{1)}$	Subl. 1155; 5560
43	Tc	$(Tc_2O_7; Tc)^{2)}$?
44	Ru	Ru	3900
45	Rh	Rh	3727
46	Pd	Pd	2927
56	Ba	BaO	≥ 2000
57	La	La_2O_3	4200
58	Ce	CeO_2 ; Ce_2O_3	?
59	Pr	Pr_6O_{11} ; Pr_2O_3	?
60	Nd	Nd_2O_3	?
61	Pm	Pm_2O_3 3)	?
62	Sm	Sm_2O_3 3)	?
63	Eu	Eu_2O_3 3)	?
64	Gd	Gd_2O_3 3)	?

1) Infolge unsicherer graphischer Extrapolation (vgl. Bild 3.4.11b) sowohl Oxid als auch Element möglich

2) Annahme (thermodynamische Daten nicht bekannt)

3) Analogieschluß, da die Seltenen Erden in ihren Eigenschaften sehr ähnlich sind.

./.

Aus Tabelle 3.4.3 folgt, daß - entsprechend dem eingangs in Abschnitt 3.4 Gesagten - außer den bereits in Tabelle 3.4.1 aufgeführten Spaltprodukten Selen, Brom, Krypton, Rubidium, Silber, Zinn, Antimon, Tellur, Jod, Xenon und Caesium beim Schmelzen des Brennstoffs, also in Phase 3 (vgl. Abschnitt 3.2), auch die Spaltprodukte Molybdän und Technetium, soweit sie oxidisch vorliegen, mehr oder weniger rasch, in erster Näherung spontan, freigesetzt werden: Molybdäntrioxid sublimiert bereits bei 1155°C , und auch Technetiumheptoxid ist leichtflüchtig.

Der in /9/ mit $\sim 2000^{\circ}\text{C}$ angegebene Siedepunkt von Bariumoxid ist vermutlich in Wirklichkeit höher: Die übrigen Erdalkalioxide Berylliumoxid, Magnesiumoxid, Calciumoxid und Strontiumoxid sieden bei 3900, 3600, 2850 und $\sim 3000^{\circ}\text{C}$. Die Nioboxide sind wahrscheinlich ähnlich schwerflüchtig wie Zirkonoxid, und die Oxide der Seltenen Erden sind näherungsweise mit Lanthanoxid vergleichbar. In diesen Fällen lassen sich demnach - ebenso wie bei Yttriumoxid und den in elementarer Form bevorzugten Metallen Ruthenium, Rhodium und Palladium - Aussagen über das Entweichverhalten, hier während der Phase 4 (vgl. Abschnitt 3.2), im Rahmen der dieser Studie zugrundegelegten vereinfachten Vorstellungen dann gewinnen, wenn es gelingt, die Flüchtigkeit der betreffenden Spezies quantitativ zu beschreiben.

3.4.2 Abschätzung von Dampfdrücken der in der Brennstoffschmelze vorherrschenden Spaltproduktspezies

Eine quantitative Beschreibung des Entweichens schwerflüchtiger Spaltproduktspezies aus einer Urandioxid-schmelze im Sinne der in Abschnitt 3.4 skizzierten Vorstellung setzt die Kenntnis von Dampfdrücken voraus. Dampfdruckdaten sind jedoch nur in einigen der hier interessierenden Fälle hinreichend zuverlässig bekannt. Meist ist man auf Abschätzungen angewiesen, sei es, daß berechnete Werte benutzt, sei es, daß experimentell ermittelte Dampfdruckkurven in den Bereich höherer Temperaturen hinein extrapoliert werden müssen.

Interpolation und Extrapolation von Dampfdruckkurven können entweder auf die in /15/ gewählte Weise erfolgen, die in Bild 3.4.16 am Beispiel des Strontiumoxids wiedergegeben ist, oder anhand der graphischen Darstellung von $\log p$ als Funktion von $1/T$, wie es in Bild 3.4.17 am Beispiel des Yttriumoxids auf der Grundlage von Werten aus /16/ geschehen ist. Die zweite Variante ist im allgemeinen vorzuziehen, da sich hierbei gemäß der bekannten Clausius-Clapeyron'schen Dampfdruckgleichung

$$(3.4.23) \quad \log p \text{ (atm)} = - \frac{H_{\text{vap}}^{\circ}}{2,303 \cdot R T} + \frac{S_{\text{vap}}^{\circ}}{2,303 \cdot R}$$

über einen relativ großen Temperaturbereich hinweg Geraden oder nur schwach gekrümmte Kurven ergeben. Allerdings wirken sich bei dieser Darstellung geringe Änderungen der Krümmung bereits stark auf den einer bestimmten Temperatur zuzuordnenden Dampfdruck aus, so daß die Extrapolationsfehler unter Umständen beträchtlich sind.

./.

In Tabelle 3.4.4 sind für die in Tabelle 3.4.3 genannten schwerflüchtigen Spaltprodukte aus mehreren Quellen gewonnene Dampfdrücke angegeben und wertend miteinander verglichen.

Wie man aus Tabelle 3.4.4 entnimmt, stimmen die auf der Grundlage verschiedener Angaben erhaltenen Dampfdruckwerte zum Teil gut überein, zum Teil differieren sie allerdings um einige Größenordnungen. Deshalb sind in der letzten Spalte diejenigen Werte gesondert aufgeführt, die vom Autor als wahrscheinlich angenommen wurden. Diese Wertung basiert unter anderem auf Erwägungen folgender Art: Wenn sich für den Dampfdruck von Yttriumoxid bei 3500°K aus /16/ 0,15 atm, aus /17/ aber 1 atm ergeben, und wenn ferner aus anderen Quellen ein Siedepunkt von etwa 4300°C zu entnehmen ist (vgl. Tabelle 3.4.3), so folgt daraus für den Dampfdruckwert aus /16/ die höhere Wahrscheinlichkeit.

Da es sich bei den in Tabelle 3.4.4 aufgeführten Werten entsprechend den streuenden Literaturdaten nur um größenordnungsmäßige Angaben handelt, liegt es nahe, die betrachteten 15 Spaltproduktspezies, wie in Tabelle 3.4.5 vorgeschlagen, zu Flüchtigsgruppen zusammenzufassen.

./.

Tabelle 3.4.4: Aus Literaturdaten extrapolierte Dampfdrücke im Gleichgewicht mit stöchiometrischem UO_2 vorherrschender schwerflüchtiger Spaltproduktspezies.

Spaltprodukt- verbindung	T (°K)	Dampfdrücke (atm) nach Daten						angenommener Wert
		aus /15/	aus /16/*	aus /17/	aus /18/	aus /19/	aus /20/	
SrO	2500	2,3 (-3)	8 (-4)	7 (-3)				1 (-3)
	3000	1,5 (-1)	8 (-2)	3 (-1)				1 (-1)
	3500	4 (0)	1,5 (0)	1 (+1)				5 (0)
Y_2O_3	2500		1,8 (-6)	7 (-3)				1 (-6)
	3000		1,5 (-3)	1 (-1)				1 (-3)
	3500		1,5 (-1)	1 (0)				1 (-1)
ZrO_2	2500		3,3 (-7)	1 (-4)				1 (-6)
	3000		4 (-4)	5 (-3)				1 (-3)
	3500		4 (-2)	1 (-1)				5 (-2)
NbO_x	2500		4,6 (-5)	1 (-8)				1 (-5)
	3000		1 (-3)	3 (-6)				1 (-3)
	3500		1,3 (-2)	5 (-4)				1 (-2)
Mo	2500	6 (-7)			6,0 (-7)	1,7 (-7)		5 (-7)
	3000	3 (-5)			8,0 (-5)	2,6 (-5)		5 (-5)
	3500	8 (-4)			2,3 (-3)	7,9 (-4)		1 (-3)
Ru	2500	3,5 (-6)	5,1 (-6)	1 (-6)	1,3 (-6)			1 (-6)
	3000	5 (-4)	2 (-3)	1 (-4)	2,3 (-4)			1 (-4)
	3500	?	4 (-2)	7 (-3)	8 (-3)			1 (-2)
Rh	2500		1,1 (-4)	3 (-5)	2,4 (-5)	1 (-4)		5 (-5)
	3000		7 (-3)	1 (-3)	3,6 (-3)	7 (-3)		5 (-3)
	3500		1,2 (-1)	7 (-2)	8,2 (-2)	1 (-1)		1 (-1)
Pd	2500		1,3 (-1)		7,6 (-3)	1 (-2)		1 (-2)
	3000		3 (0)		1,4 (-1)	1,7 (-1)		1 (-1)
	3500		6 (+2)		1,2 (0)	1,3 (0)		1 (0)
BaO	2500		8 (-2)	1 (-2)				1 (-2)
	3000		7 (0)	1 (-1)				1 (0)
	3500		2 (+2)	1 (0)				5 (+1)
La_2O_3	2500	5,0 (-4)	5,9 (-4)	5 (-2)			3,2 (-4)	5 (-4)
	3000	?	3 (-2)	5 (-1)			2,0 (-2)	5 (-2)
	3500	?	4 (-1)	4 (0)			4,5 (-1)	5 (-1)
CeO_x	2500		5,1 (-5)	3 (-1)			4,5 (-3)	5 (-3)
	3000		2 (-2)	3 (0)			1,3 (-1)	1 (-1)
	3500		1 (0)	4 (+1)			1,5 (0)	1 (0)
PrO_x	2500		4,5 (-5)				1,4 (-3)	1 (-3)
	3000		9 (-3)				9,0 (-2)	1 (-1)
	3500		4 (-1)				1,9 (0)	1 (0)
Nd_2O_3	2500		2,4 (-4)				2,7 (-4)	1 (-4)
	3000		2 (-2)				2,0 (-2)	1 (-2)
	3500		5 (-1)				4,6 (-1)	5 (-1)
Sm_2O_3	2500		1,7 (-6)				4,0 (-5)	1 (-5)
	3000		1 (-4)				3,6 (-3)	1 (-3)
	3500		2 (-3)				8,5 (-2)	5 (-2)
Eu_2O_3	2500						9,0 (-5)	1 (-4)
	3000						7,0 (-3)	5 (-3)
	3500						1,4 (-1)	1 (-1)
Gd_2O_3	2500						1,3 (-5)	1 (-5)
	3000						1,6 (-3)	1 (-3)
	3500						4,6 (-2)	5 (-2)

* für einen Sauerstoff-Partialdruck von 10^{-5} atm im Gleichgewicht mit der kondensierten Phase aus thermodynamischen Daten berechnete Werte bis 2500 °K, oberhalb 2500 °K daraus anhand von Clausius-Clapeyron-Diagrammen extrapolierte Werte.

Allgemeine Erläuterungen: 1. Für Promethiumoxid waren keinerlei Angaben auffindbar
2. Die Dampfdrücke der Tabelle sind in verkürzter Schreibweise wiedergegeben; 2,3 (-3) z.B. steht für $2,3 \cdot 10^{-3}$

Tabelle 3.4.5 : Einteilung schwerflüchtiger Spalt-
produktspezies in Flüchtigkeits-
gruppen.

Gruppe	Einzuzuordnende Spezies	angenommener Dampfdruck (atm) bei		
		2500°K	3000°K	3500°K
I	BaO	1 (-2	1 (0	5 (+1
II	SrO	1 (-3	1 (-1	5 (0
III	Pd	1 (-2	1 (-1	1 (0
IV	La ₂ O ₃ , CeO _x , PrO _x	1 (-3	5 (-2	1 (0
V	Rh, Nd ₂ O ₃ , Pm ₂ O ₃ , ¹⁾ Sm ₂ O ₃ , Eu ₂ O ₃ , Gd ₂ O ₃	5 (-5	5 (-3	1 (-1
VI	Y ₂ O ₃ , ZrO ₂ , NbO _x	1 (-6	1 (-3	5 (-2
VII	Ru, (Mo) ²⁾	1 (-6	1 (-4	5 (-3

1) Analogieschluß, da keinerlei Daten bekannt

2) Hier können auch Oxide vorliegen. Es wird daher empfohlen,
die Gruppe VII auf Ruthenium zu beschränken und Molybdän als
leichtflüchtiges Oxid anzunehmen (vgl. Abschnitt 3.5)

./.

3.4.3 Ermittlung von Entweichkoeffizienten für die in der Brennstoffschmelze verbliebenen Spaltprodukte.-----

Unter der Annahme, daß die betrachteten Spaltprodukte in der Brennstoffschmelze weitgehend unlöslich sind - was sicher nicht streng gilt -, also unter isothermen Bedingungen entsprechend dem jeweiligen Dampfdruck in zeitlich konstanter Menge bis zur Erschöpfung des Reservoirs entweichen, läßt sich die Freisetzung des einzelnen Spaltprodukts durch die Knudsen-Langmuir-Gleichung beschreiben:

$$(3.4.24) \quad \dot{m}_T = \left(\frac{1}{2\pi R} \right)^{1/2} \cdot p \cdot \left(\frac{M}{T} \right)^{1/2}$$

Dabei bedeutet \dot{m}_T die als Entweichkoeffizient zu bezeichnende, bei der Temperatur T pro Oberflächen- und Zeiteinheit das System verlassende Masse einer bestimmten Spaltproduktspezies in $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$, R die allgemeine Gaskonstante in $\text{erg}\cdot\text{grad}^{-1}\cdot\text{Mol}^{-1}$, p den Dampfdruck des kondensierten Stoffes in $\text{dyn}\cdot\text{cm}^{-2}$, M das Molgewicht der verdampfenden Spezies in $\text{g}\cdot\text{Mol}^{-1}$ und T die Temperatur in $^{\circ}\text{K}$. Drückt man p statt in $\text{dyn}\cdot\text{cm}^{-2}$, wie bei Dampfdruckdaten fester und flüssiger Stoffe üblich, in atm aus, so wird aus Gleichung (3.4.24)

$$(3.4.25) \quad \dot{m}_T = 7,65 \cdot 10^{-5} \cdot p \cdot \sqrt{\frac{M}{T}}$$

Diese Beziehung hat streng nur Gültigkeit für die Verdampfung in ein unendlich ausgedehntes Vakuum außerhalb des betrachteten kondensierten Systems. Sie sollte jedoch auch im vorliegenden Fall in hinreichender Näherung anwendbar sein, da der Partialdruck der verdampften Spalt-

produktspezies infolge Kondensation außerhalb des Systems "Urandioxidschmelze" stets nahe null ist. Die Festlegung der im Einzelfall im Gaszustand vorliegenden Spaltproduktspezies ist oft nicht völlig eindeutig möglich. Zwar ist, z.B. aus /20/, bekannt, daß die meisten Seltenen Erdoxide in Form von MeO verdampfen, doch liegt Cerdioxid auch gasförmig als CeO_2 vor, und in anderen Fällen, etwa bei Palladium, müssen Dimerisierungsgleichgewichte vermutet werden. Die tatsächlich gegebenen Verhältnisse beeinflussen den resultierenden Wert für m_T jedoch nicht wesentlich, da M in Gleichung (3.4.25) nur als Quadratwurzelwert eingeht. Bei 3000°K erhielte man für $(M/T)^{1/2}$ im Falle von $\text{Pd}(\text{g})$ beispielsweise $\sqrt{\frac{106,4}{3000}} = 0,1883$, im Falle von $\text{Pd}_2(\text{g})$ $\sqrt{\frac{212,8}{3000}} = 0,2663$, bei Annahme von $\text{YO}(\text{g})$ ergibt sich $\sqrt{\frac{104,9}{3000}} = 0,1870$, während bei $\text{Y}_2\text{O}_3(\text{g})$ $\sqrt{\frac{225,8}{3000}} = 0,2743$ resultiert. Es ergeben sich demnach allenfalls Diskrepanzen um etwa den Faktor 1,5, die im Sinne der hier angestrebten Abschätzung noch tolerierbar sind. Da m_T in Gleichung (3.4.25) $M^{1/2}$ proportional ist, wird die das System gasförmig verlassende Stoffmenge umso geringer, je kleiner M angenommen wird. Umgekehrt wird der Nachwärme produzierende, in der Brennstoffschmelze verbleibende Anteil eines Spaltprodukts umso größer sein, je kleiner M wird. Eine - wie anzustreben - pessimistische Abschätzung der Restwärmequellstärke erfordert demnach, als verdampfende Spezies generell bei den Elementen die einatomige Form und bei den Oxiden die Zusammensetzung MeO vorzugeben.

Tabelle 3.4.6 enthält die aus Gleichung (3.4.25) damit und mit den Dampfdrücken von Tabelle 3.4.5 berechneten Entweichkoeffizienten für die dort definierten Flüchtigkeitsgruppen.

Tabelle 3.4.6: Entweichkoeffizienten für verschiedene Temperaturen und Flüchtigsgruppen.

Gruppe ¹⁾	angenommener Dampfdruck (atm) bei			Entweichkoeffizient (g·cm ⁻² ·sec ⁻¹)		
	2500°K	3000°K	3500°K	2500°K	3000°K	3500°K
	I	1 (-2	1 (0	5 (+1	2 (-7	2 (-5
II	1 (-3	1 (-1	5 (0	2 (-8	1 (-6	7 (-5
III	1 (-2	1 (-1	1 (0	2 (-7	2 (-6	1 (-5
IV	1 (-3	5 (-2	1 (0	2 (-8	9 (-7	2 (-5
V	5 (-5	5 (-3	1 (-1	1 (-9	9 (-8	2 (-6
VI	1 (-6	1 (-3	5 (-2	2 (-11	1 (-8	7 (-7
VII	1 (-6	1 (-4	5 (-3	1 (-11	1 (-9	6 (-8

1) Zur Gruppeneinteilung siehe Tabelle 3.4.5

Entweichkoeffizienten für Temperaturen unterhalb 2500°K anzugeben, erscheint wenig sinnvoll, weil entsprechend dem in Abschnitt 3.2 Gesagten in diesem Bereich noch keine Schmelze vorliegt. Angaben für Temperaturen oberhalb 3500°K sind auch uninteressant, da Urandioxid selbst bei etwa 3200°C $\hat{=}$ etwa 3500°K siedet und dann ohnehin die in der Schmelze vorhandenen Spaltprodukte mitreißt. Nach Angaben in /2/ hat UO₂ bei 2500°K einen Dampfdruck von etwa $2 \cdot 10^{-4}$ atm; für 3000°K ergibt sich rechnerisch etwa $3 \cdot 10^{-2}$ atm und für 3500°K etwa 1,4 atm. Das bedeutet, daß dieser Mitreißeffekt auch unterhalb des Siedepunkts schon bis zu einem gewissen Grad gegeben ist, nämlich immer dann, wenn der Dampfdruck des UO₂²⁾ höher ist als der Dampfdruck einer

2) Der Dampfdruck von UO_{2+x} ist immer höher als derjenige des stöchiometrischen Produkts.

./.

bestimmten Spaltproduktspezies. Wo immer das der Fall ist, erfolgt die Verdampfung eines Spaltprodukts vermutlich rascher, als der entsprechende Entweichkoeffizient in Tabelle 3.4.6 angibt. Damit verringert sich zugleich die Wahrscheinlichkeit, daß die Verfeinerung des in dieser Studie entwickelten groben Freisetzungsbildes, etwa durch ein Blasendiffusionsmodell für die Brennstoffschmelze, das Verständnis des Gesamtvorgangs entscheidend verbessert.

Entweichkoeffizienten von Spaltprodukten verschiedener Flüchtigkeitsgruppen für Temperaturen zwischen 2500 und 3500°K lassen sich aus einer graphischen Darstellung als Funktion der Temperatur interpolieren (vgl. Bild 3.4.18).

Es versteht sich, daß die in Tabelle 3.4.6 aufgeführten und in Bild 3.4.18 veranschaulichten Entweichkoeffizienten mit mindestens den gleichen Ungenauigkeiten behaftet sind wie die Dampfdruckdaten, aus denen sie berechnet wurden. Aus diesem Grund ist eine Fehlerabschätzung derzeit nicht sinnvoll.

3.5 Diskussion der Ergebnisse

Wie bereits einleitend in Abschnitt 3.2 gesagt, gehen die im Rahmen dieses Kapitels erarbeiteten Resultate - zeit- und temperaturabhängige Entweichkoeffizienten von Spaltprodukten während verschiedener Phasen eines Kühlmittelverlustunfalls - von stark vereinfachenden Annahmen aus, die hinsichtlich ihrer Zulässigkeit fallweise geprüft werden müssen.

Über die Freisetzung von Spaltprodukten aus noch nicht geschmolzenem, also festem, Brennstoff (Phase 1 und 2), die hier nur am Rande behandelt wurde, wird man sich aufgrund einer an anderer Stelle zeitlich parallel durchgeführten, ausführlichen Literaturrecherche ein hinreichend treffendes Bild machen können.¹⁾

Im Abschnitt 3 stand die Ermittlung von Entweichkoeffizienten aus einer Brennstoffschmelze (Phase 3 und 4) im Vordergrund. Der Hauptmangel des dabei beschrittenen theoretischen Weges ist zweifellos die Vernachlässigung von Diffusionsvorgängen in der Schmelze. Die Annahme spontaner Verflüchtigung von Spaltprodukten allein nach Maßgabe des jeweiligen Dampfdrucks kann die berechneten Entweichraten in durchaus unerwünschter Richtung, nämlich nach oben, verfälschen, so daß sich zu niedrige Restwärmequellstärken in der Schmelze ergeben. Um dieser Tendenz entgegenzuwirken, wurden die Dampfdrücke und die daraus abgeleiteten Entweichkoeffizienten, etwa durch Vorgabe des kleinsten denkbaren Molgewichts der jeweils verdampfenden Spaltproduktverbindung, möglichst nach unten abgeschätzt.

Daneben gibt es noch andere, zunächst unberücksichtigt gebliebene Effekte, die eine Korrektur der in Abschnitt 3.4.3 angegebenen Entweichkoeffizienten erforderlich machen können. Einmal beziehen sich die als Ausgangspunkt der Abschätzungen dienenden chemisch-thermodynamischen Gleichgewichtsberechnungen sämtlich auf stöchiometrisches UO_2 , während als gesichert gilt, daß sich mit zunehmendem Abbrand in Wirklichkeit Stöchiometrieverschiebungen ergeben. Über Ausmaß und Richtung dieser Verschiebung gehen die Meinungen auseinander; eigenen Überlegungen zufolge sollte der bei der Uranspaltung primär

1) siehe Abschnitt 4

frei werdende Sauerstoff nur zu rund 90^o /o zur Bildung von Spaltproduktoxiden verbraucht werden, so daß bei etwa 2^o /o Abbrand das Sauerstoff-Uran-Verhältnis insgesamt von 2,0 auf 2,004 wachsen müßte. Als Folge dieser Hyperstöchiometrie ergäbe sich dann thermodynamisch eine stärkere Begünstigung von Spaltproduktoxiden, als in Abschnitt 3.4.1 angenommen, in den Fällen, wo dort eine Bevorzugung der Elemente konstatiert wurde. So erklärt sich vermutlich der Widerspruch zwischen der hier erhaltenen geringen Flüchtigkeit des theoretisch elementar vorliegenden hochsiedenden Rutheniums und der experimentell, z. B. in /2/, gefundenen, auf das wesentlich leichter flüchtige RuO₂ zurückgehenden, stärkeren Freisetzung dieses Spaltprodukts. Auch bei dem ohnehin eine Grenzstellung einnehmenden Molybdän wird die vorliegende chemische Form sicher von UO₂-Stöchiometrieänderungen entscheidend mitbestimmt. Da auch hier das Oxid flüchtiger ist als das Element, erreicht man eine gewisse Fehlerkompensation am einfachsten, indem man bei Ruthenium die elementare und bei Molybdän die oxidische Form annimmt.

Zum anderen können sich ähnliche Verschiebungen der Gleichgewichtsverhältnisse ergeben, wenn außer Uranoxid und Spaltprodukten auch andere mögliche Bestandteile der Schmelze, insbesondere Zirkon und Stahl, und der darüber befindlichen Gasatmosphäre, sei es Wasserdampf, Wasserstoff oder Sauerstoff, als zusätzliche Systemparameter berücksichtigt werden, was in einer folgenden, weiteren Studie versucht werden soll.

Wenn auch solche Feinheiten vorerst außer acht gelassen werden, so sind die unter vereinfachenden Annahmen ermittelten, in Abschnitt 3.4.3 angegebenen Entweichkoeffizienten im Hinblick auf die Bestimmung von Restwärmequellstärken in einer Brennstoffschmelze doch gegenüber den bisher benutzten Pauschalaussagen sicher ein Fortschritt.

Den Wert der in Tabelle 3.4.6 aufgeführten Entweichkoeffizienten soll die Anwendung auf einen individuellen Fall demonstrieren: Wie in Abschnitt 3.4.1 bereits erwähnt, entstehen beispielsweise im Brennstoff des Kernkraftwerkes Würgassen während rund zweijähriger Betriebszeit mit Nennlast insgesamt etwa 1000 kg Spaltprodukte. Nach /14/ sind daran Barium mit 6,33 At.-% ($\hat{=}$ 87 kg), Cer mit 8,50 At.-% ($\hat{=}$ 119 kg) und Yttrium mit 3,15 At.-% ($\hat{=}$ 28 kg) beteiligt. Da laut /7/

das Druckgefäß einen Innendurchmesser von 5,45 m hat, kann man sich die Brennstoffschmelze als einen "See" mit $23,3 \text{ m}^2$ Oberfläche vorstellen. Unter der - sicherlich nicht ganz zutreffenden - Annahme zeitlich konstanter, d. h. konzentrationsunabhängiger, Ausdampfgeschwindigkeit würde dann mit den für 3000° K berechneten Entweichkoeffizienten von $2 \cdot 10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ (Barium), $9 \cdot 10^{-7} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ (Cer) und $7 \cdot 10^{-9} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ (Yttrium) - alle als Oxid vorliegend - das Reservoir an Barium in 5,2 Stunden, das Reservoir an Cer in 6,6 Tagen und das Reservoir an Yttrium in 198 Tagen erschöpft sein, immer isotherme Verhältnisse vorausgesetzt. Der Fall isothermer und isokinetischer Spaltproduktfreisetzung ist natürlich hypothetisch; trotzdem sind die genannten Zeitaussagen zumindest als erste Anhaltspunkte wertvoll.

Derartige Angaben über das Entweichverhalten von Spaltprodukten und daraus ableitbare Angaben über die mit dem Temperaturverlauf in der Schmelze gekoppelten Restwärmequellstärken lassen sich durch Verfeinerungen des Freisetzungmodells sicher noch verbessern. Beispielsweise scheint es geboten zu sein, den Einfluß von Stöchiometrieverschiebungen bei der Spaltung oxidischen Brennstoffs sowie von zusätzlichen Reaktionspartnern (Zirkon, Stahl, Wasserdampf, Wasserstoff, Sauerstoff) auf die Systemgleichgewichte zu studieren und soweit möglich auch - das Ausdampfen verzögernde - Lösungs- und Diffusionsprozesse innerhalb der Schmelze in das Bild mit einzubeziehen. Eine weitgehende Approximation an praktische Fälle wird jedoch wohl nicht ohne Einschluß gezielter experimenteller Untersuchungen möglich sein, denn es ist wenig wahrscheinlich, daß die komplexen Vorgänge in einer Kernschmelze allein durch theoretische Modellvorstellungen - und seien sie noch so perfekt und damit notwendigerweise kompliziert - mit hinreichender Exaktheit beschrieben werden können.

3.6 Literatur

/1/ W.K. Ergen et al.

Emergency Core Cooling -
Report of Advisory Task Force on Power Reactor
Emergency Cooling
USAEC Report (1967)

/2/ D.L. Morrison et al.

An Evaluation of the Applicability of Existing Data
to the Analytical Description of a Nuclear-Reactor
Accident
BMI - 1779 (1966)

/3/ R.C. Nelson et al.

Fission Gas Release from UO_2 Fuel Rods with Gross
Control Melting
GEAP - 4572 (1964)

/4/ T.P. Hoffmann et al.

The Release of Fission Gases from Uranium Dioxide
Pellet Fuel Operated at High Temperatures
GEAP - 4596 (1964)

/5/ W.A. Bezella

Analyses of the Fission Gases Released Within Spent
Yankee Fuel Rods
WCAP - 6087 (1968)

/6/ M.H. Fontana

An Estimate of the Enhancement of Fission Product
Release from Molten Fuel by Thermally Induced
Internal Circulation
Nucl. Appl. Techn. 9 (1970), 364

- /7/ Sicherheitsbericht zum 600-MW-Kernkraftwerksblock
mit einem AEG-Siedewasserreaktor im Kernkraftwerk
Würgassen
Stand: 1.7.1967
- /8/ L.F. Epstein
Metal-Water Reactions
VI. Analytical Formulations for the Reaction Rate
GEAP - 3272 (1959)
- /9/ R.C. Weast
Handbook of Chemistry and Physics, 49th Edition (1968/69)
The Chemical Rubber Co., Cleveland, Ohio, 1968
- /10/ K.H. Bloss et al.
Titel-Autoren, Paper No. 125, SE-SW Regional Meeting,
Am. Chem. Soc., Memphis, Tenn., Dec. 1965
- /11/ G.N. Lewis, M. Randall
Thermodynamics, 2nd Edition (Rev. by K.S. Pitzer,
L. Brewer)
McGraw-Hill Book Comp., Inc., New York, 1961
- /12/ K. Hagemark, M. Broli
Equilibrium Oxygen Pressures over the Non-stoichiometric
Uranium Oxides UO_{2+x} and U_3O_{8-z} at Higher Temperatures
Clearinghouse Report PB 172 856 (1966)
- /13/ W. Mialki
25 Jahre Reaktorsicherheit
Untersuchungen zur Schadensanalyse und Schadensbewertung
atw 12, H. 12 (1967), 573

/14/ B. Barre, R. de Turreil

Concentration des produits de fission après une fission thermique de ^{235}U et ^{239}Pu , et après une fission rapide ($E \approx 1 \text{ MeV}$) de ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu
CEA-N-1309 (Juin 1970)

/15/ Y.S. Touloukian

Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials, Vol. 1,4
The MacMillan Comp., New York, 1967

/16/ R.G. Bedford, D.D. Jackson

Volatilities of the Fission Product and Uranium Oxides
UCRL - 12314 (Jan. 1965)

/17/ G.E. Creek, W.J. Martin, G.W. Parker

Experiments on the Release of Fission Products from Molten Reactor Fuels
ORNL - 2616 (July 1959)

/18/ R.L. Loftness

A Vapor Pressure Chart for Metals
NAA-SR-132 (July 1952)

/19/ R.E. Honig, RCA Laboratories

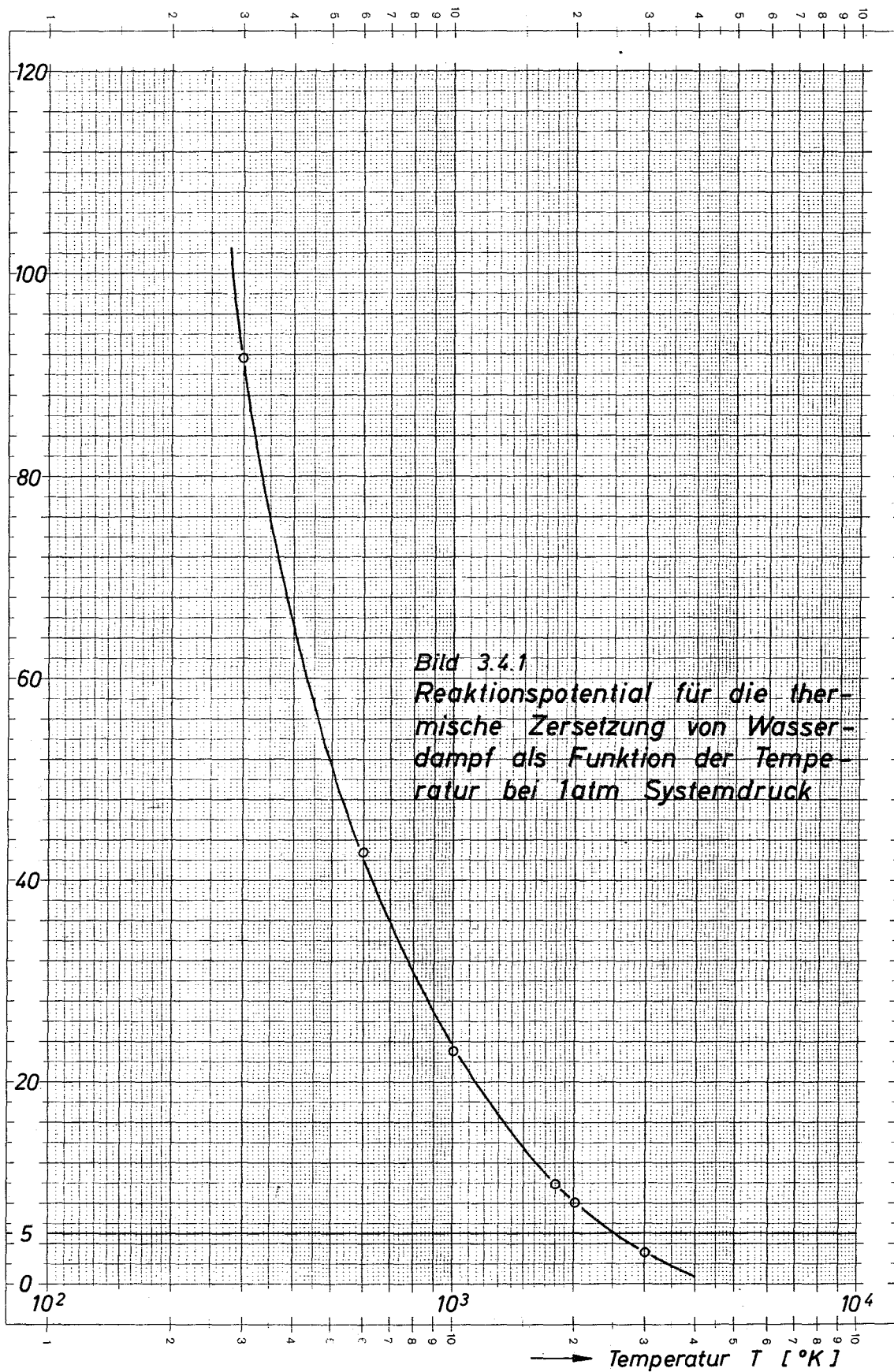
Vapor Pressure Curves for the More Common Metals, Sheet A

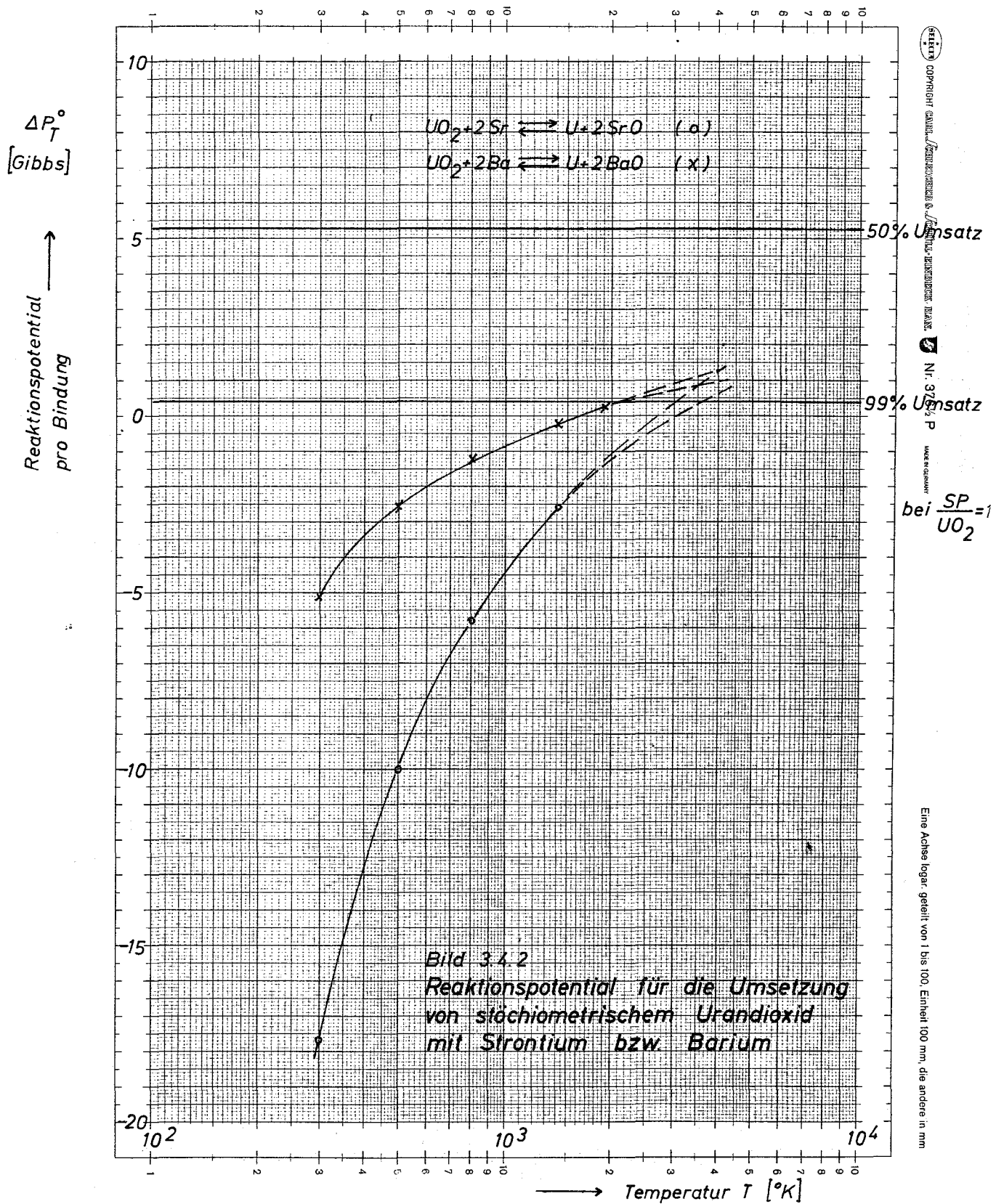
/20/ G. Benezech, M. Foëx

Mesures de pressions de vapeur des oxydes de lanthanides entre 2000 et 2400°C
Compt. rend. 268 C, No. 26 (1969), 2315

ΔP_T^0
[Gibbs]

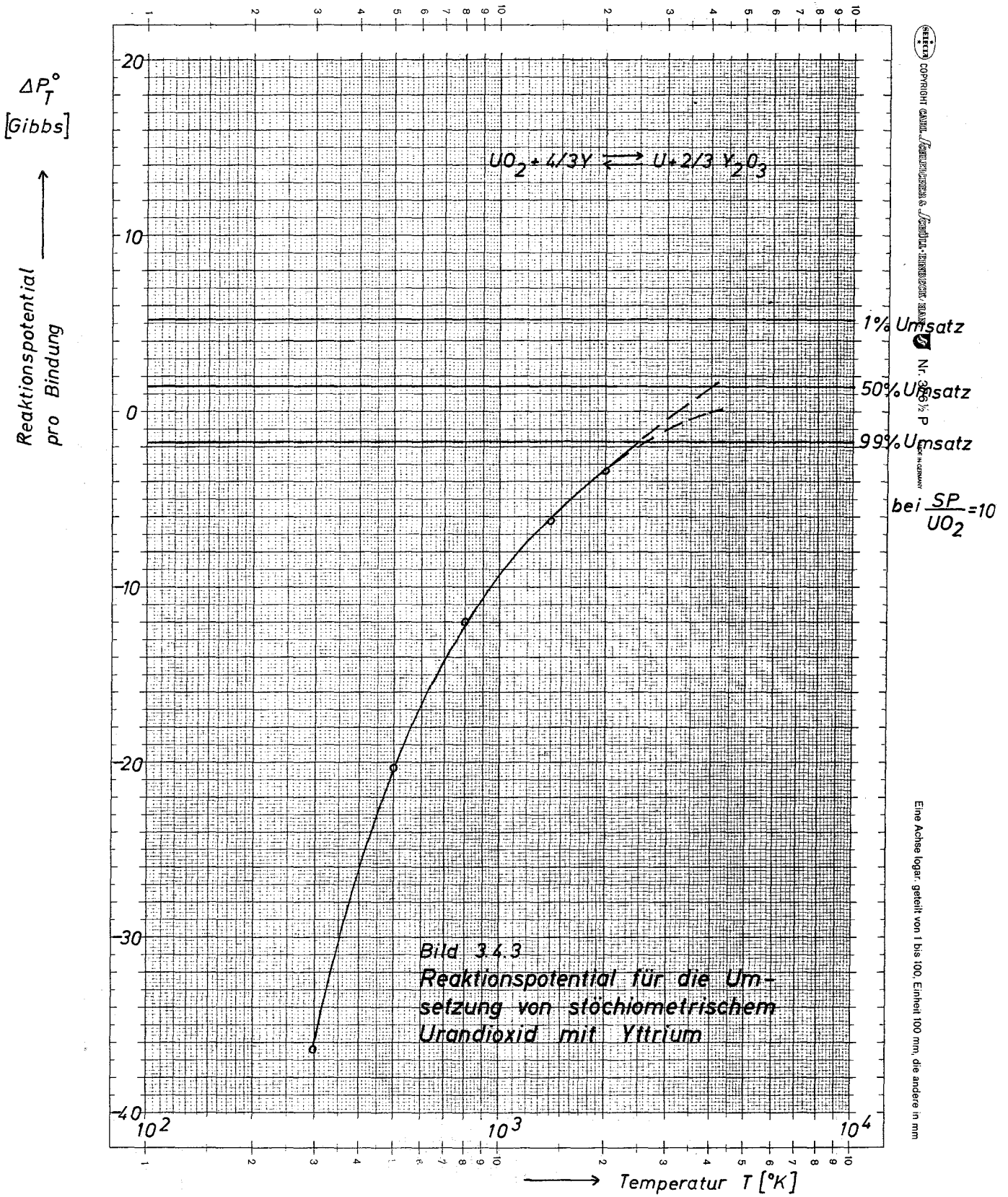
Reaktionspotential
pro Bindung

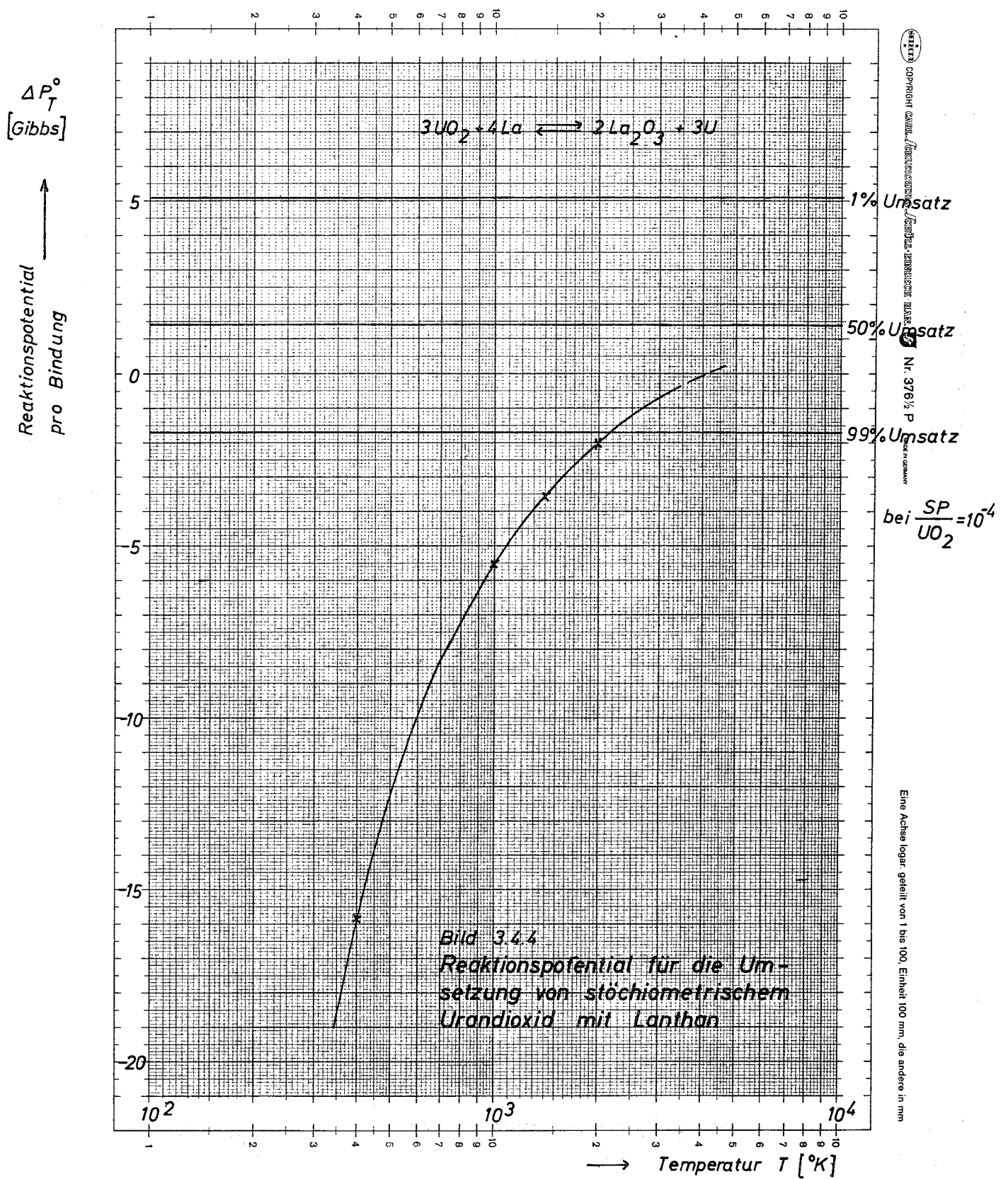




SEITZ
 COPYRIGHT CARL SEITZ-VERLAGS- & VERLAGS-ANSTALTEN G.M.B.H.
 Nr. 375 P
 MADE IN GERMANY

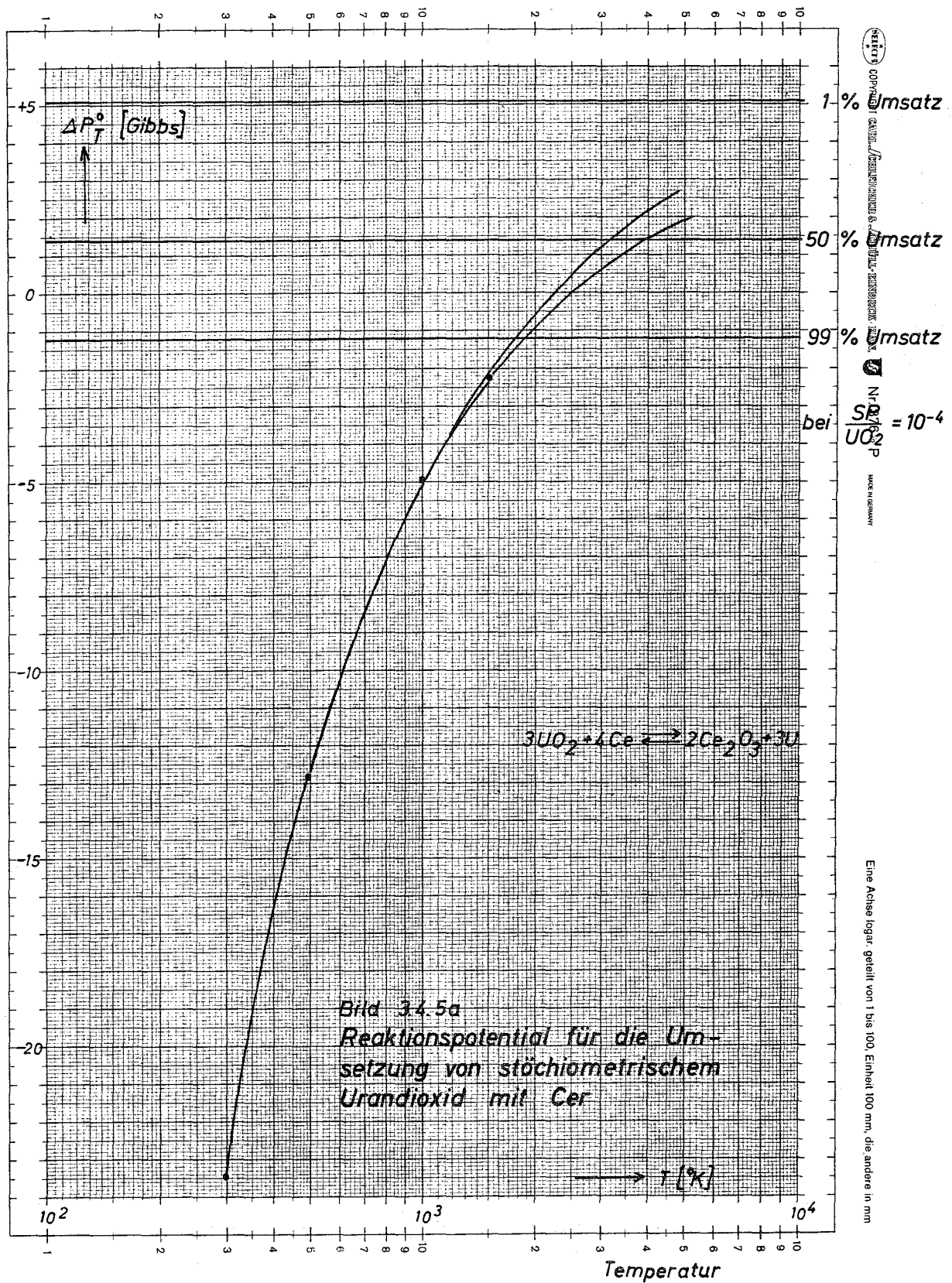
Eine Achse logar. geteilt von 1 bis 100, Einheit 100 mm, die andere in mm





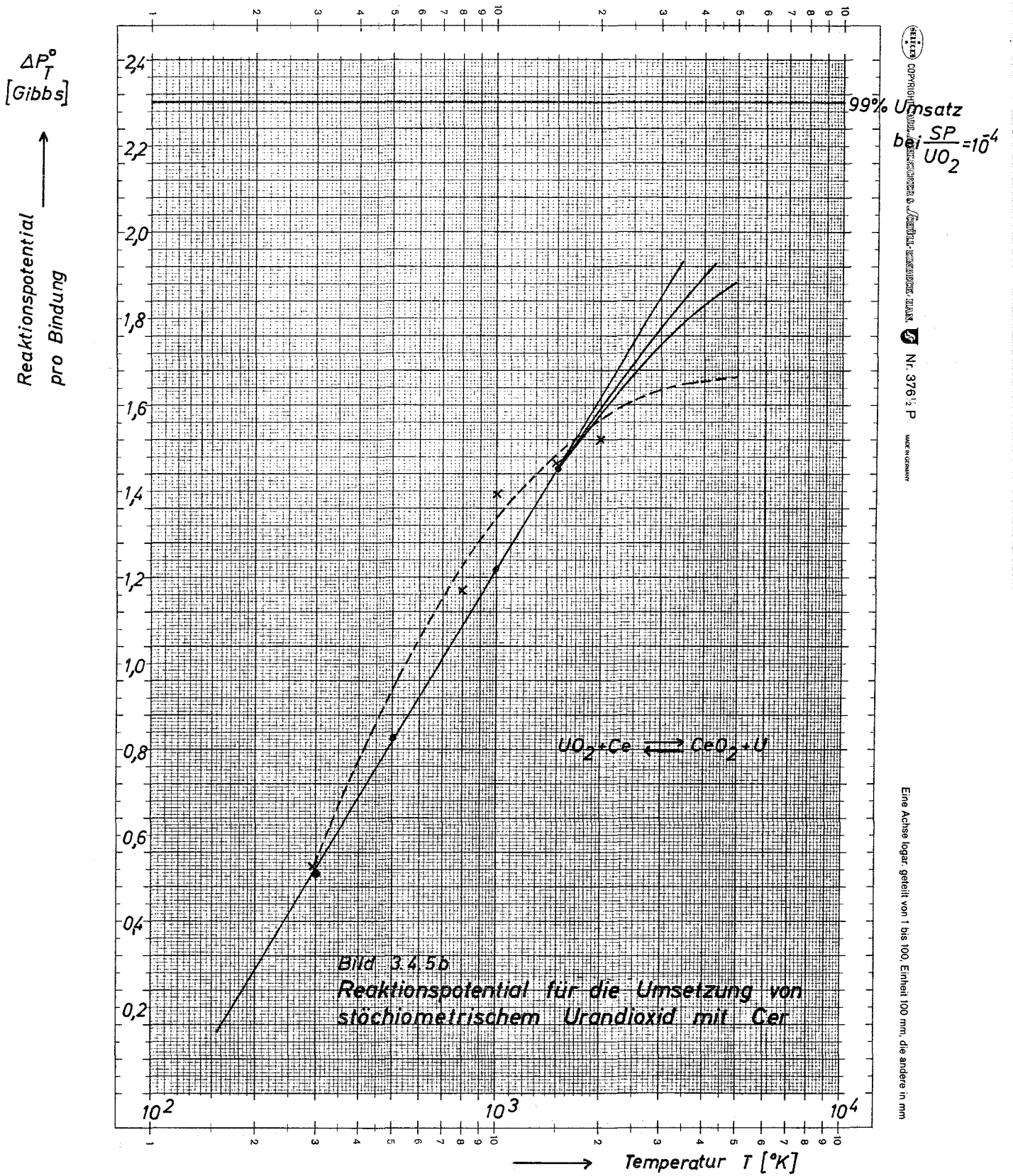
Copyright Carl Zeiss Jena, Nr. 3761/P

Reaktionspotential
pro Bindung

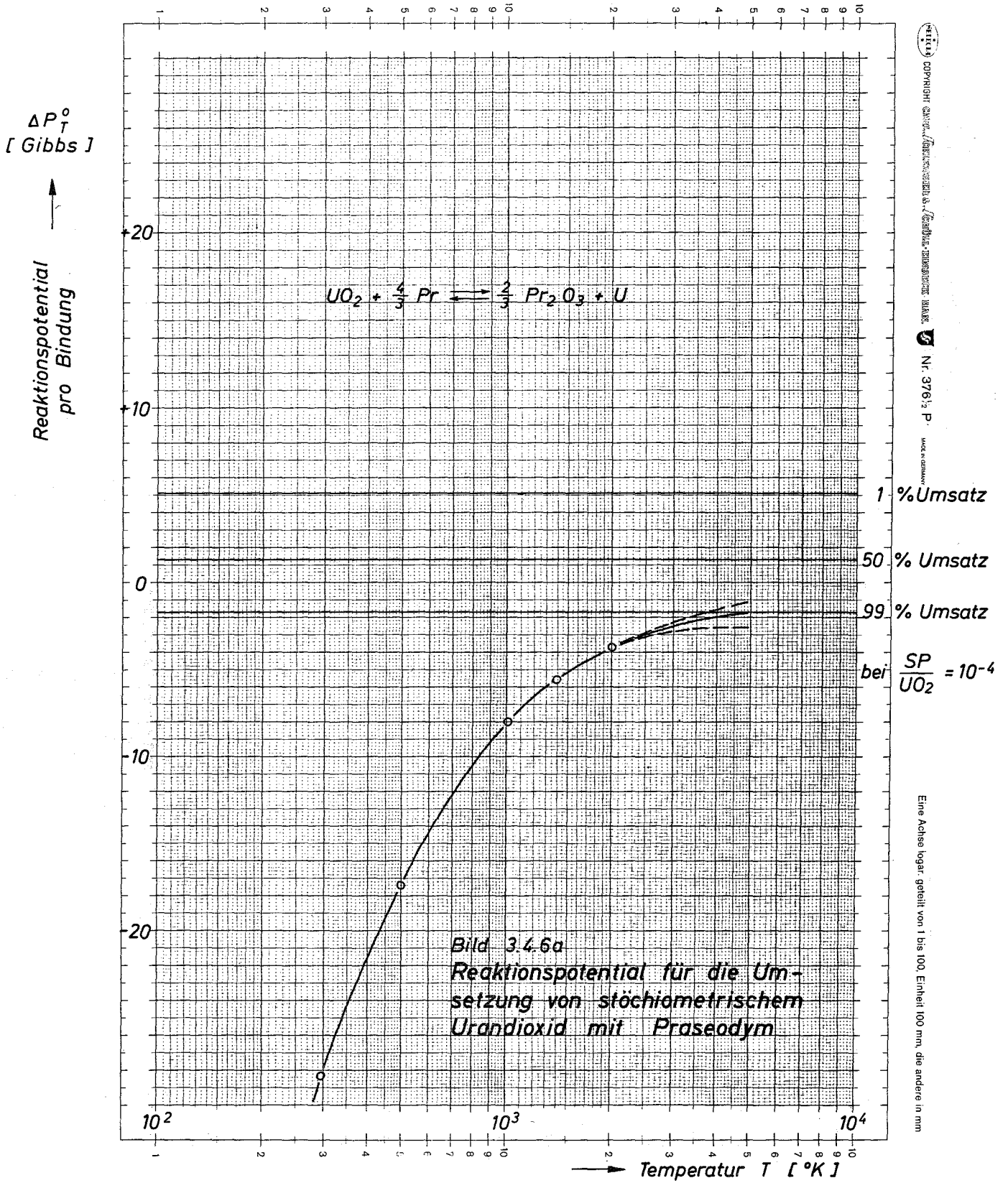


MADE IN GERMANY

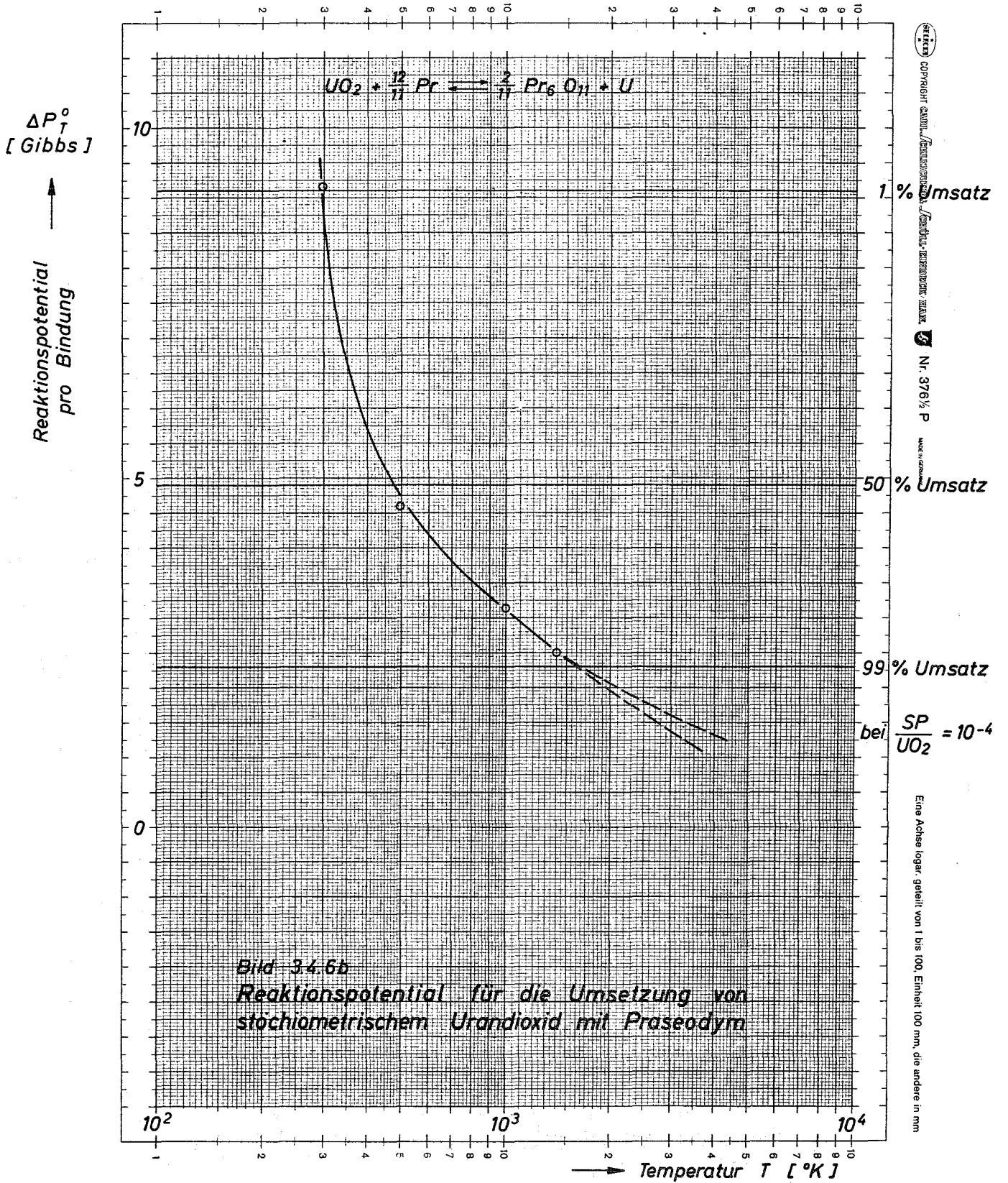
Eine Achse logar. geteilt von 1 bis 100, Einheit 100 mm, die andere in mm

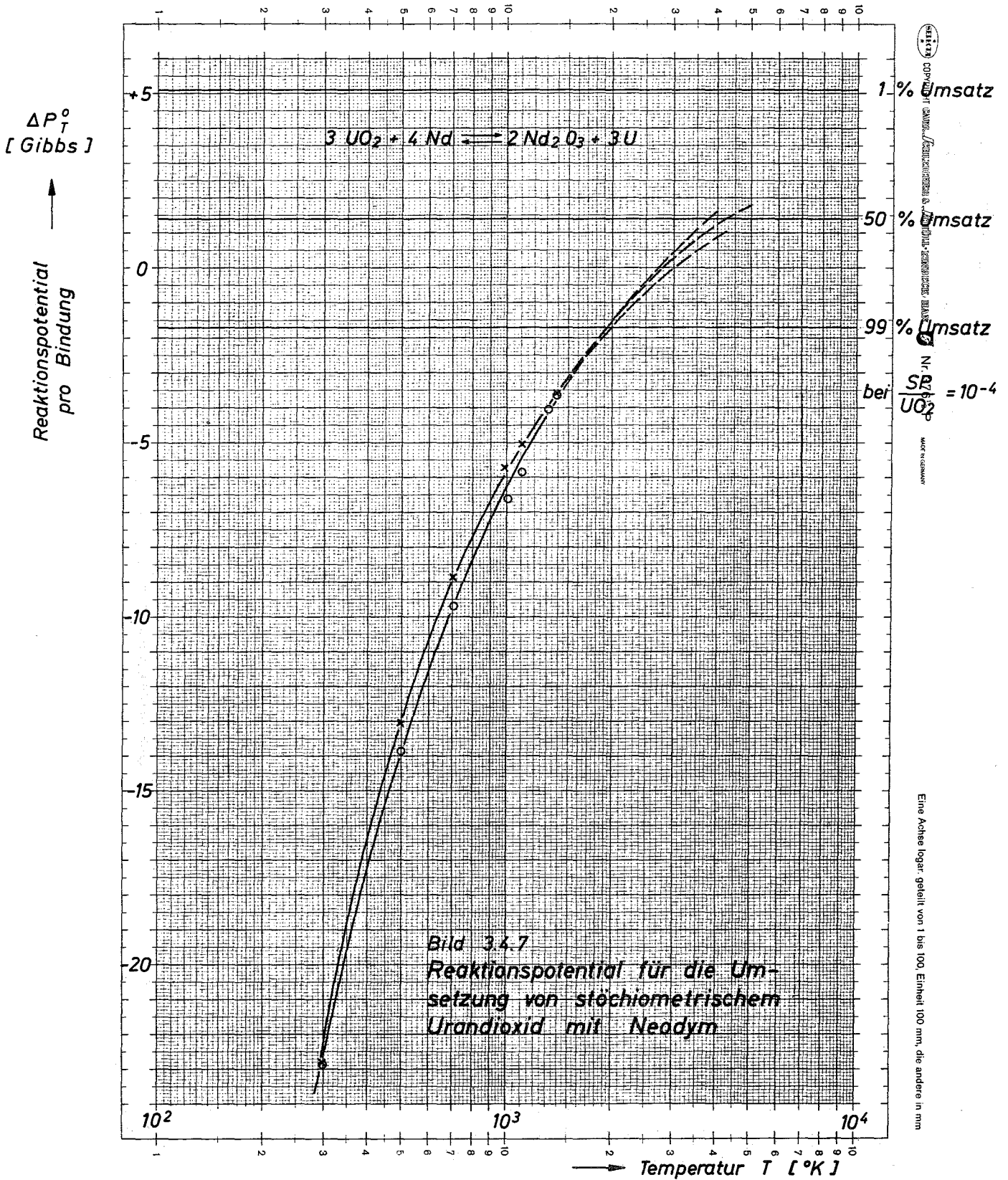


COPRODUR
 Nr. 3761/2 P

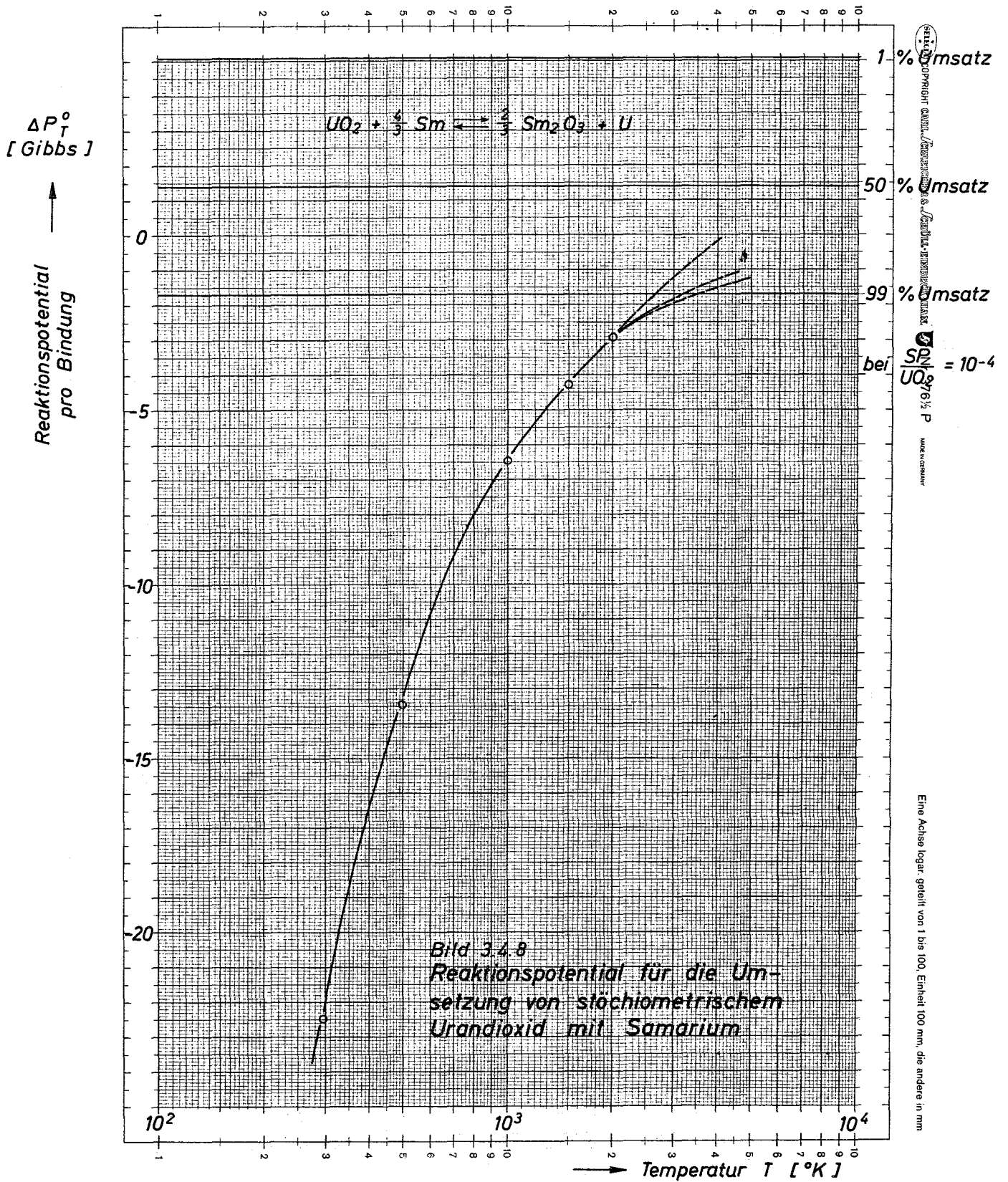


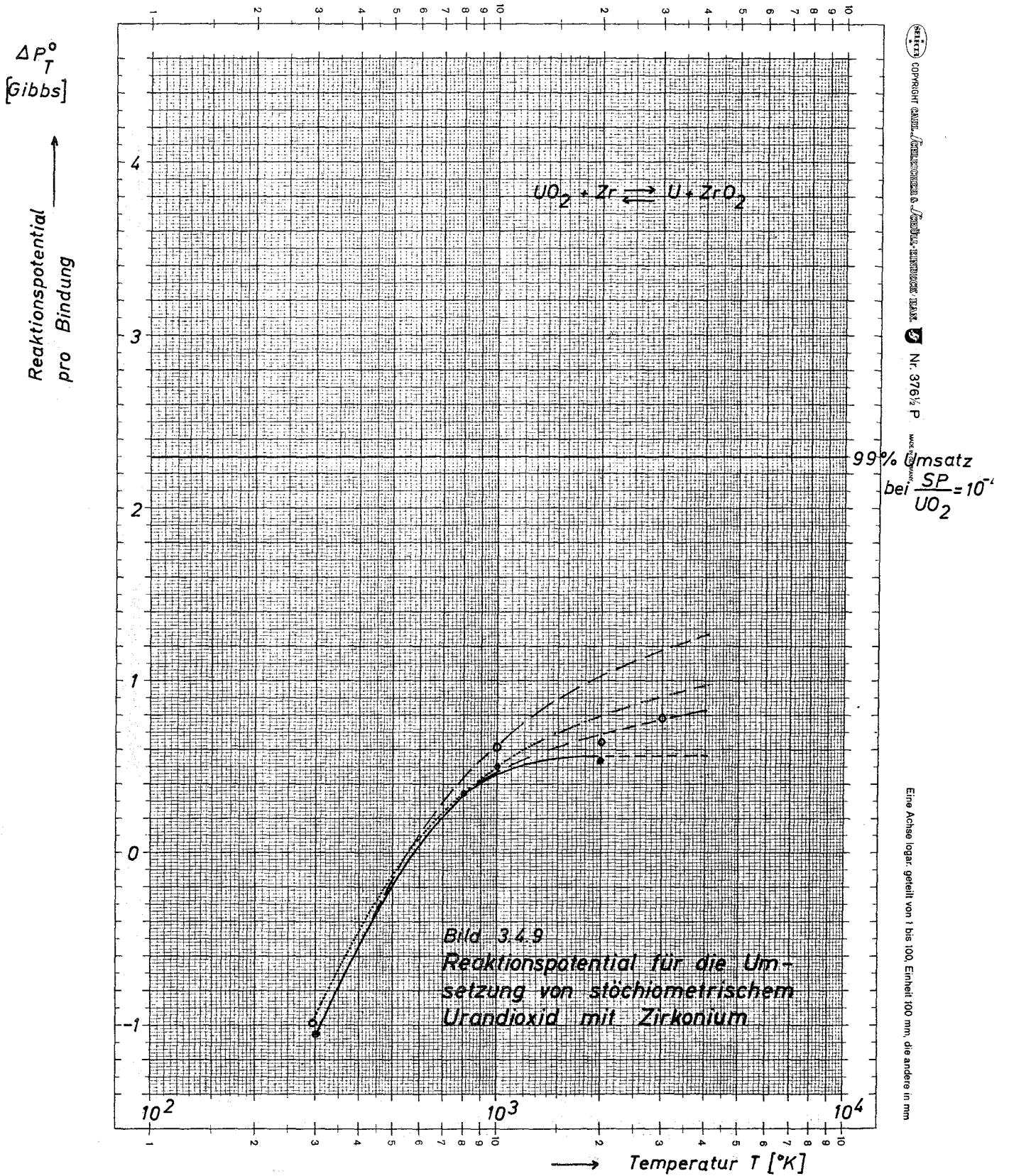
D. 1113
 COPYRIGHT © 1964 by American Nuclear Society, Inc. All rights reserved. No part of this publication may be reproduced without the prior written permission of the American Nuclear Society, Inc.
 No. 37612 P
 MADE IN GERMANY





Institut für Metallurgie, Universität Stuttgart
 Nr. 27
 bei $\frac{SR}{UO_2} = 10^{-4}$

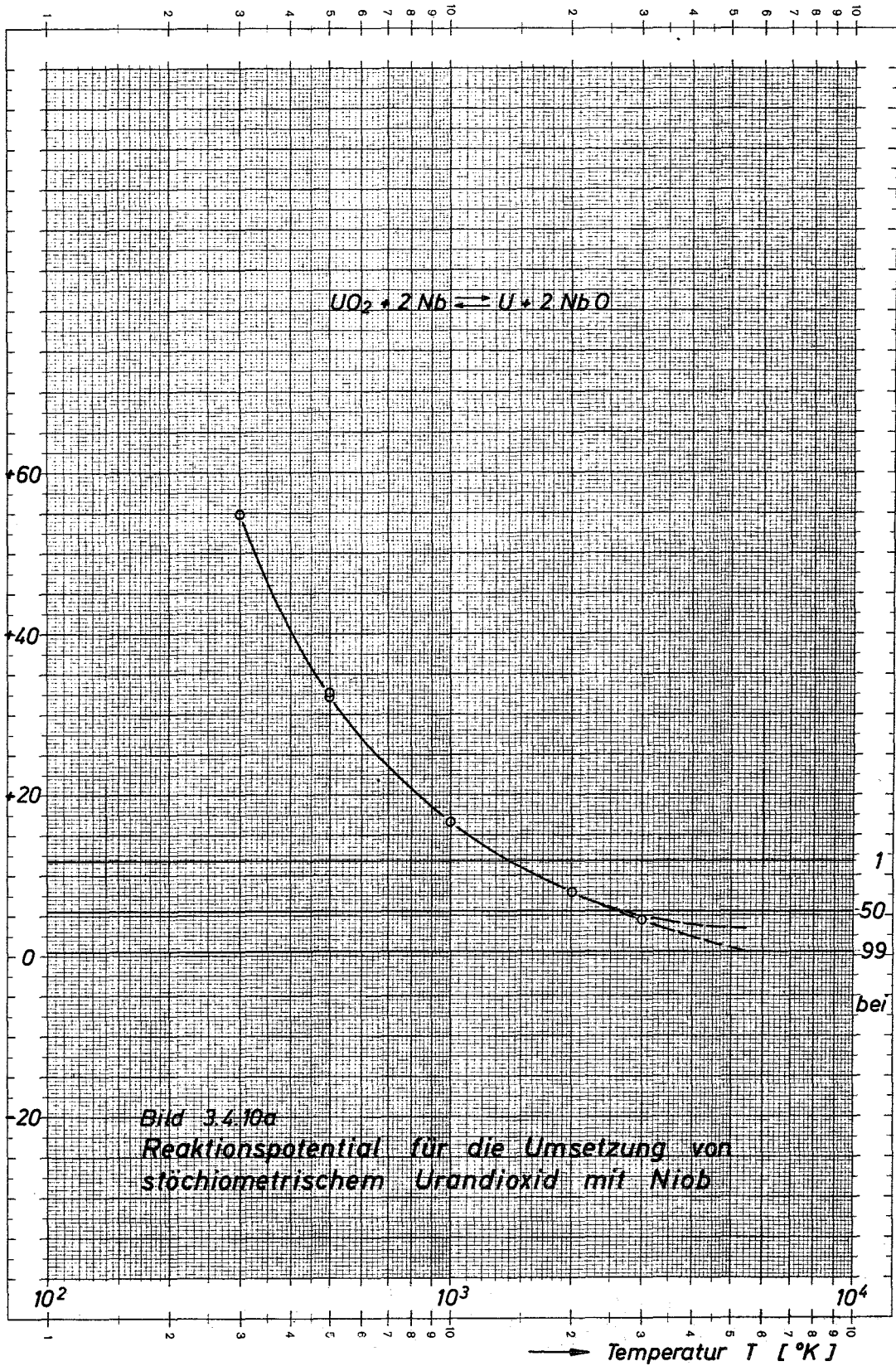




SEITZ COPENHAGEN GABRIEL VERLAGS-ANSTALT & VERLAGS-ANSTALT DR. MAX Nr. 376 1/2 P

ΔP_T^0
[Gibbs]

Reaktionspotential
pro Bindung



SEITZ & CO. PATENT-ANWÄLTE, INGENIEURE, ARCHITECTEN, VEREINIGTE VERLAGS-ANSTALTEN, Nr. 3761 P, WAG. K. G. 1900

ΔP_T^0
[Gibbs]

Reaktionspotential
pro Bindung

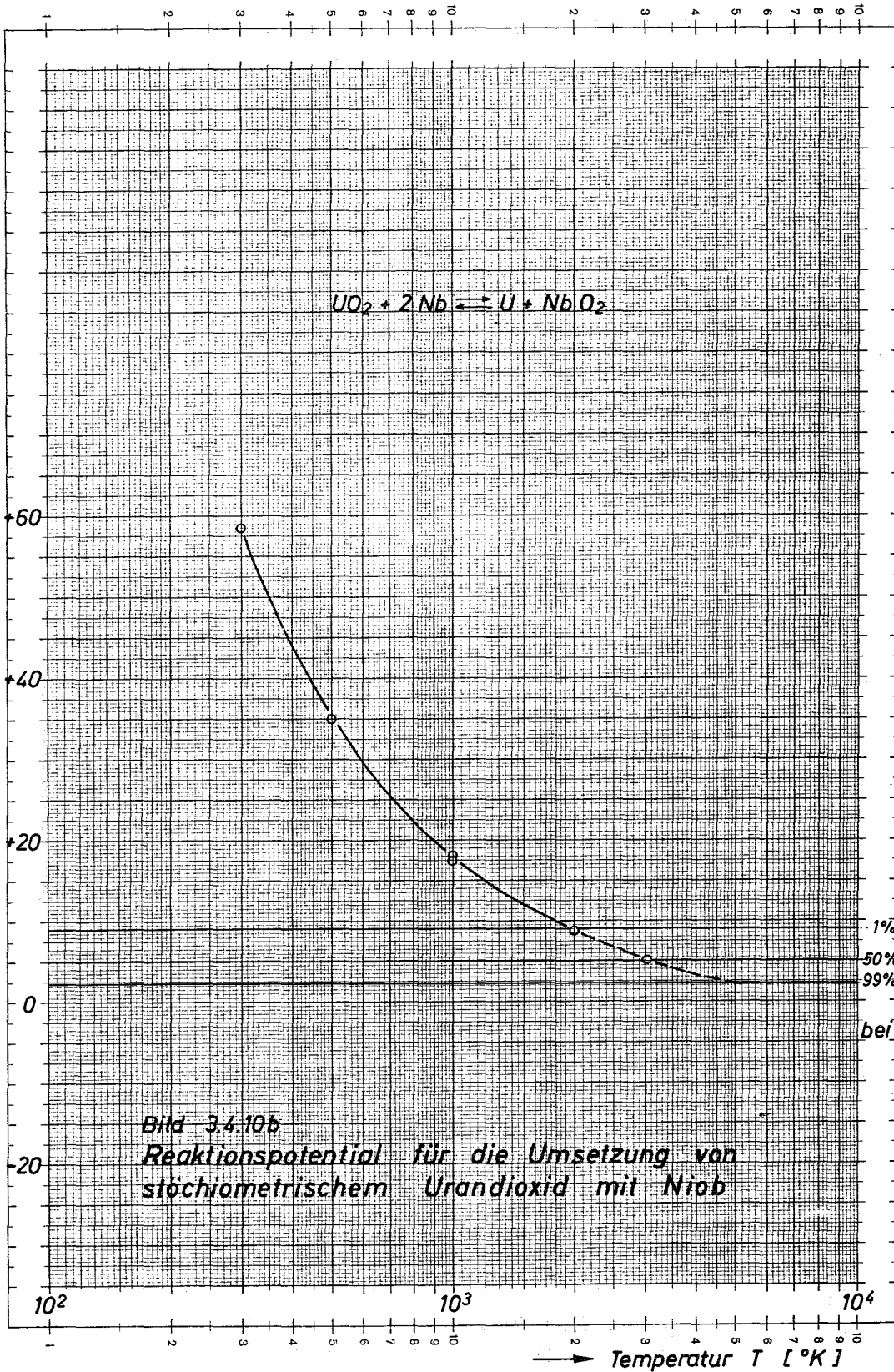


Bild 3.4.10b
Reaktionspotential für die Umsetzung von
stöchiometrischem Urndioxid mit Niob

KERN 100 COPYRIGHT KERN, UNIVERSITÄT DUISBURG ESSEN & TECHN. HOCHSCHULE MANNHEIM Nr. 3761/2 P MADE IN GERMANY

Umsatz
 1%
 50%
 99%
 bei $\frac{S}{U} = 10^{-4}$
 von 1 bis 100 Einheit 100 mm, die andere in mm

Eine Achse logar. gest. 1 bis 100, Einheit 100 mm, die andere in mm
 Umsatz
 $\frac{SP}{UO_2} = 10^{-4}$
 bei

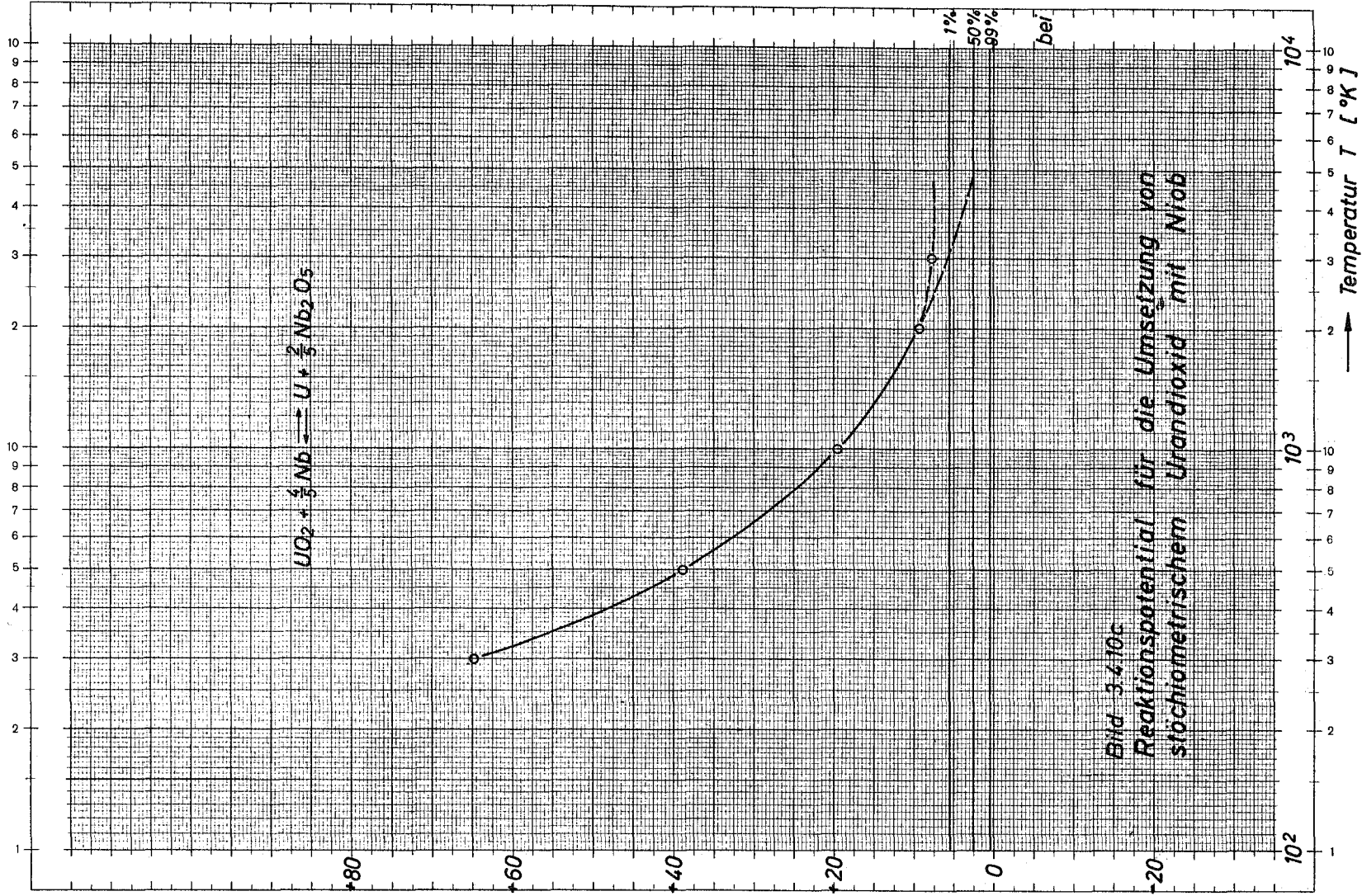


Bild 3-4-10c
 Reaktionspotential für die Umsetzung von
 stöchiometrischem Uranoxid mit Niob

ΔP_T°
 [Gibbs] ←
 Reaktionspotential
 pro Bindung

Temperatur T [°K] →

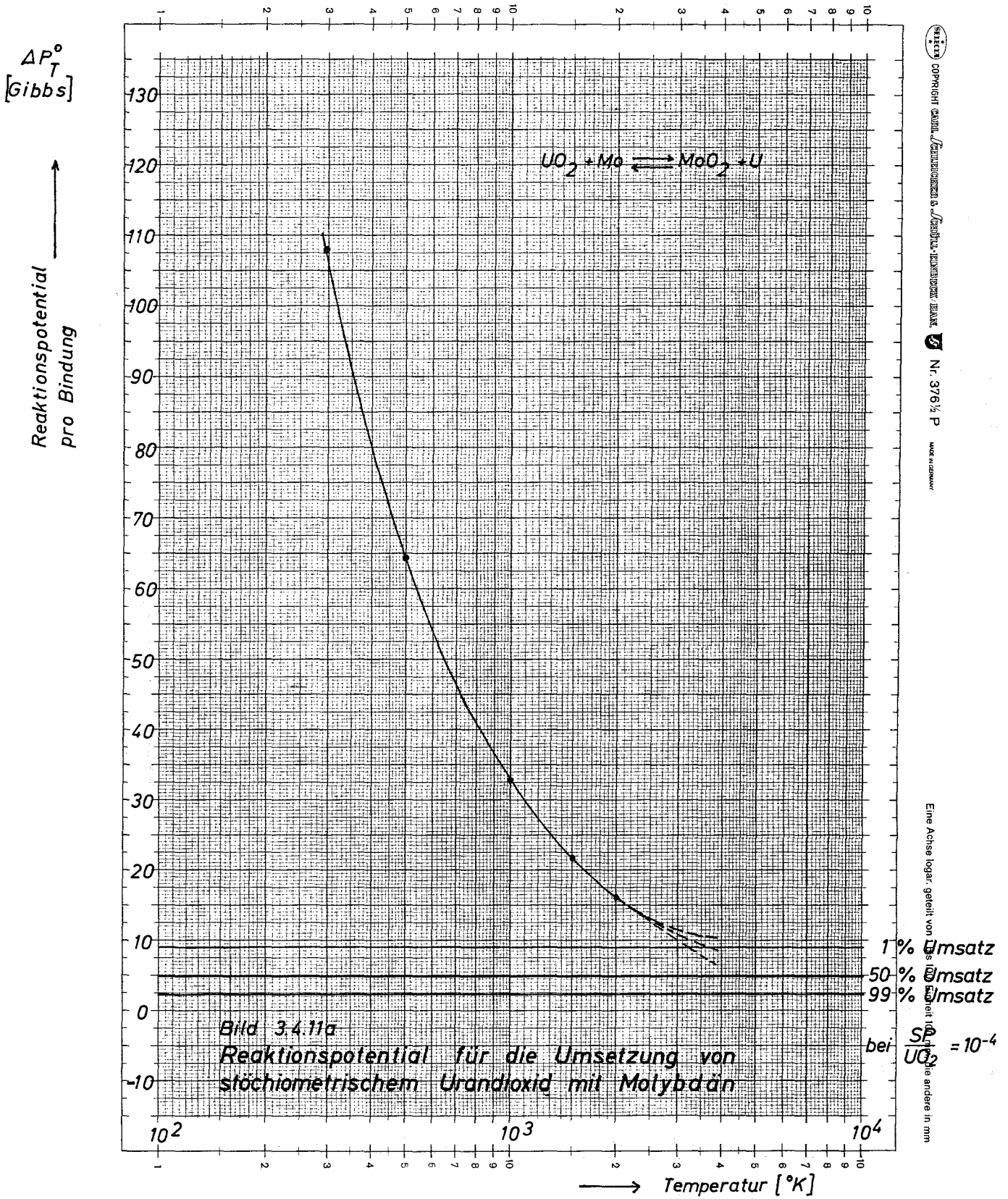
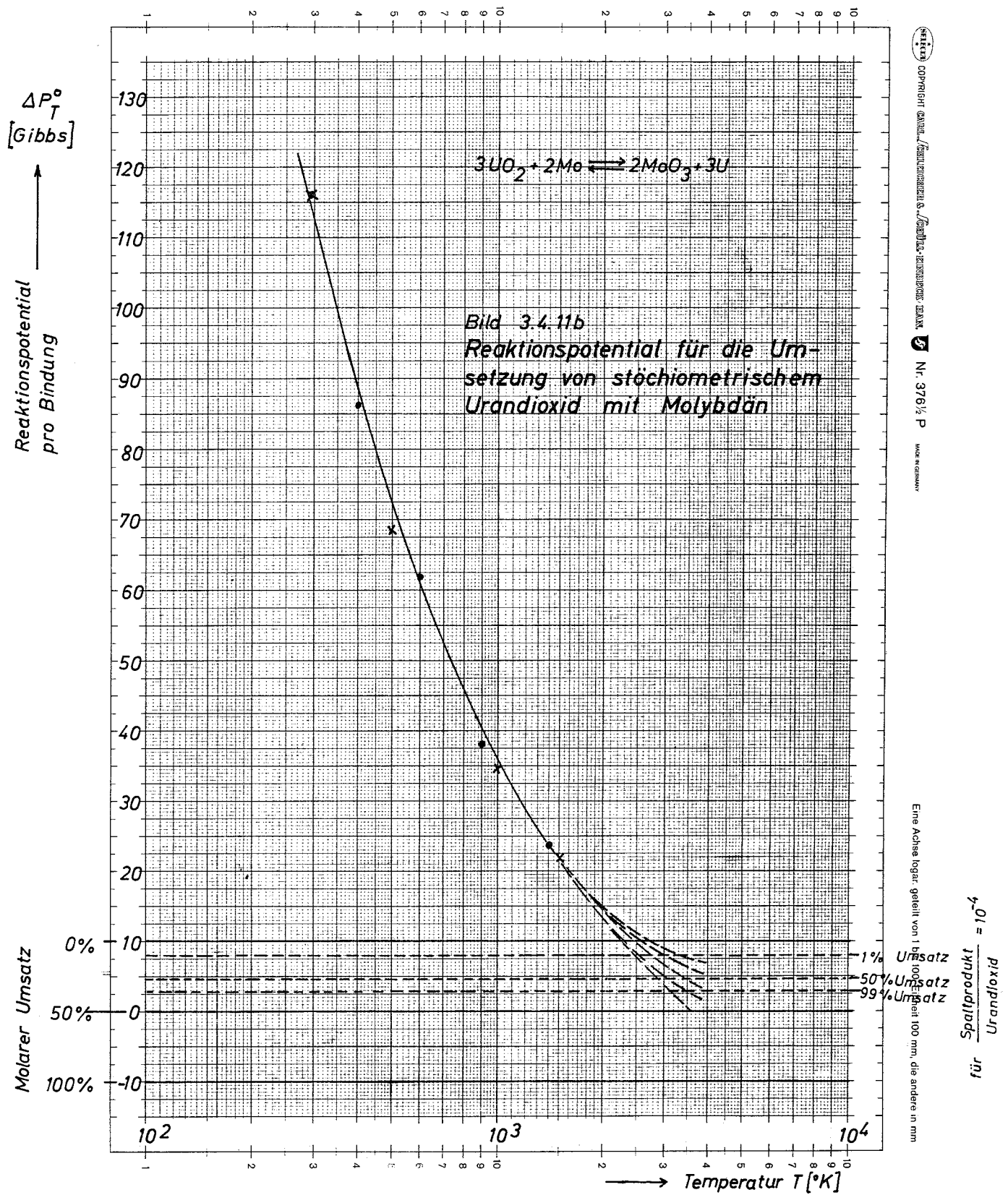


Bild 3.4.11a
Reaktionspotential für die Umsetzung von
stöchiometrischem Urndioxid mit Molybdän

STATIK OBERMICH GAMBEL, VERLAGSRECHENUNGEN & VERBUNDL. TECHNISCHE ZEITUNG Nr. 37/6 1/2 P MADE IN GERMANY



Copyright © 1978 by McGraw-Hill, Inc. All rights reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording, or by any information storage and retrieval system, without the prior written permission of McGraw-Hill, Inc.

Eine Achse logar. geteilt von 1 bis 10000, die andere in mm

ΔP_T^0
[Gibbs]

Reaktionspotential
pro Bindung

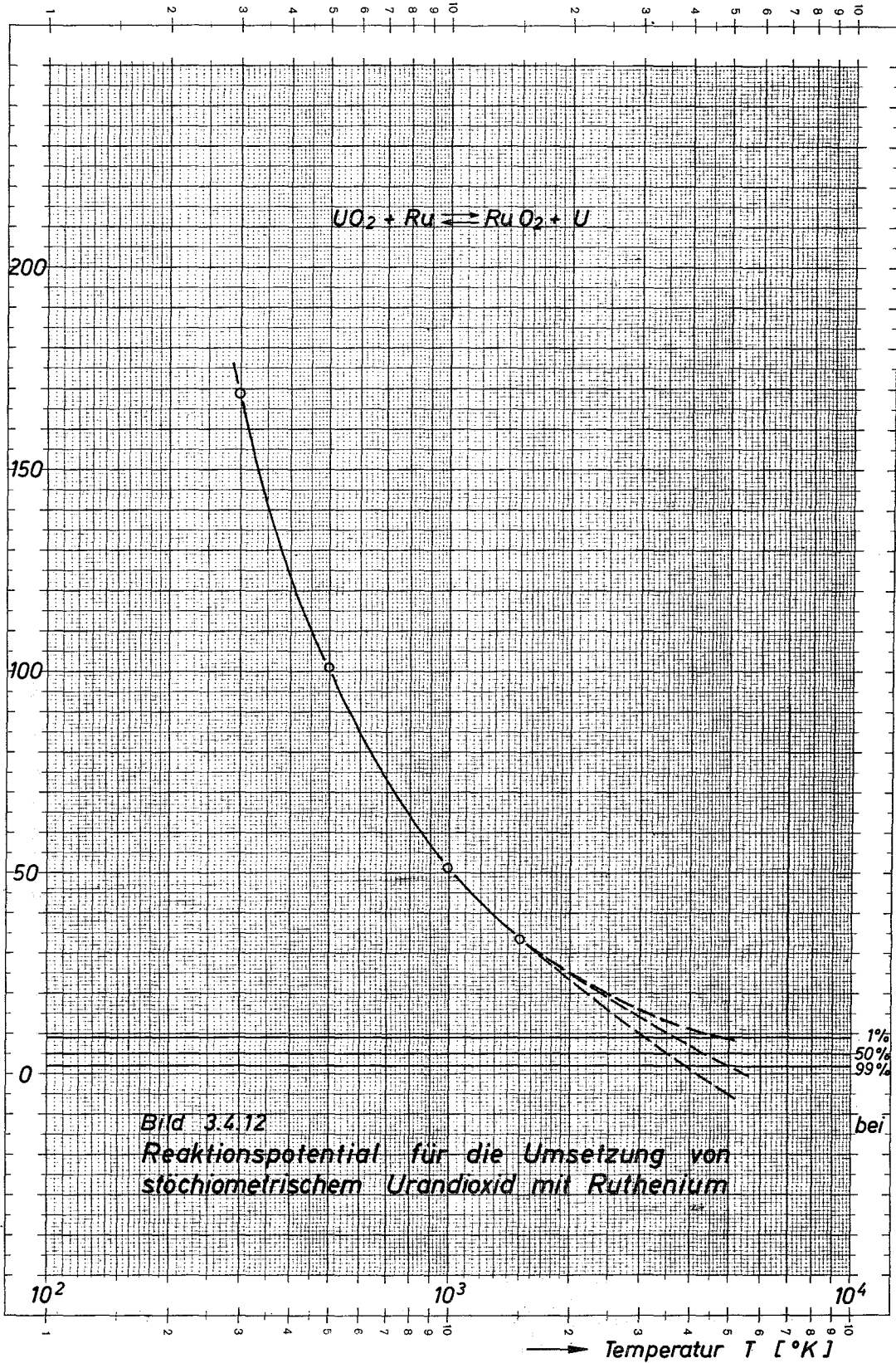
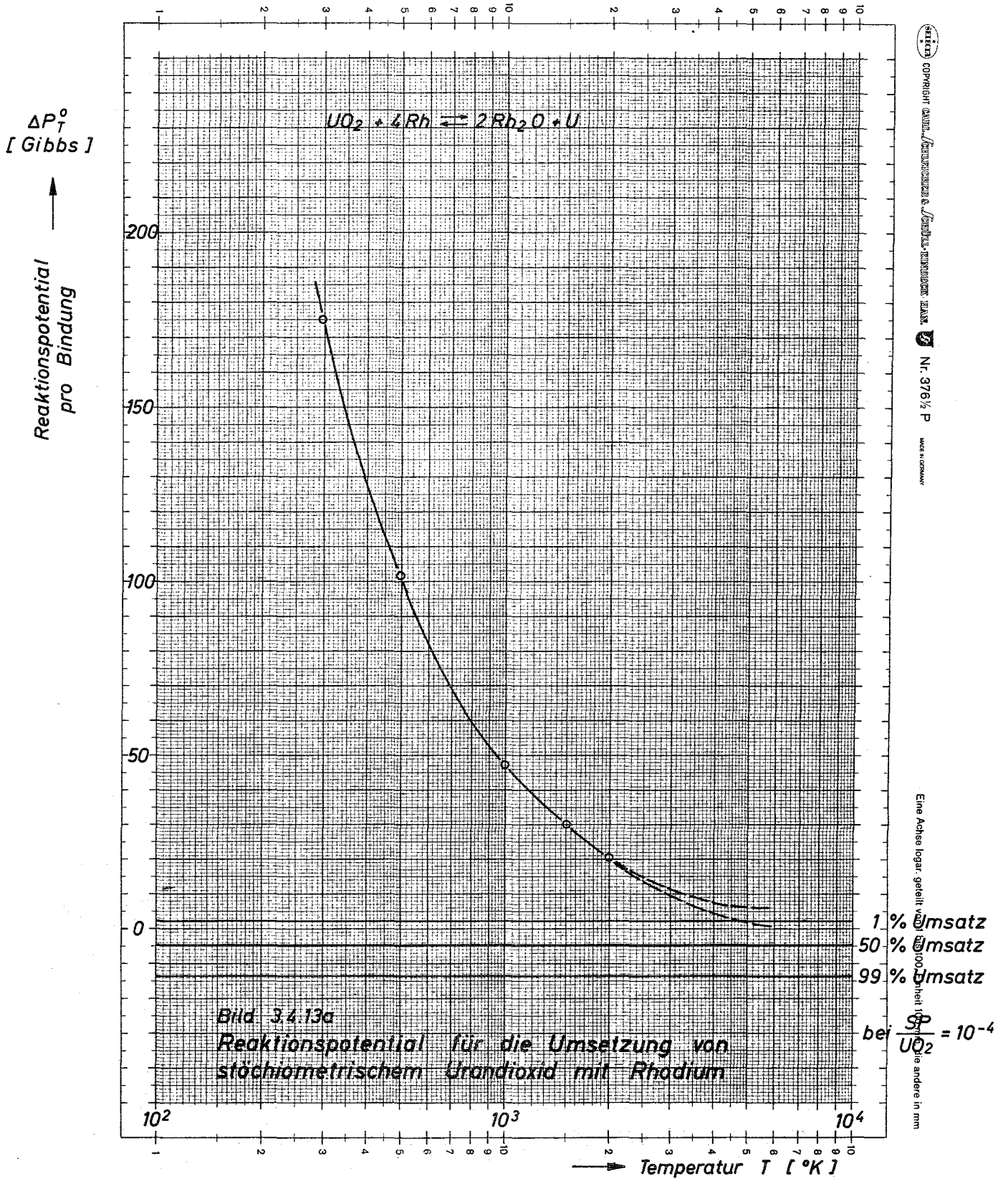


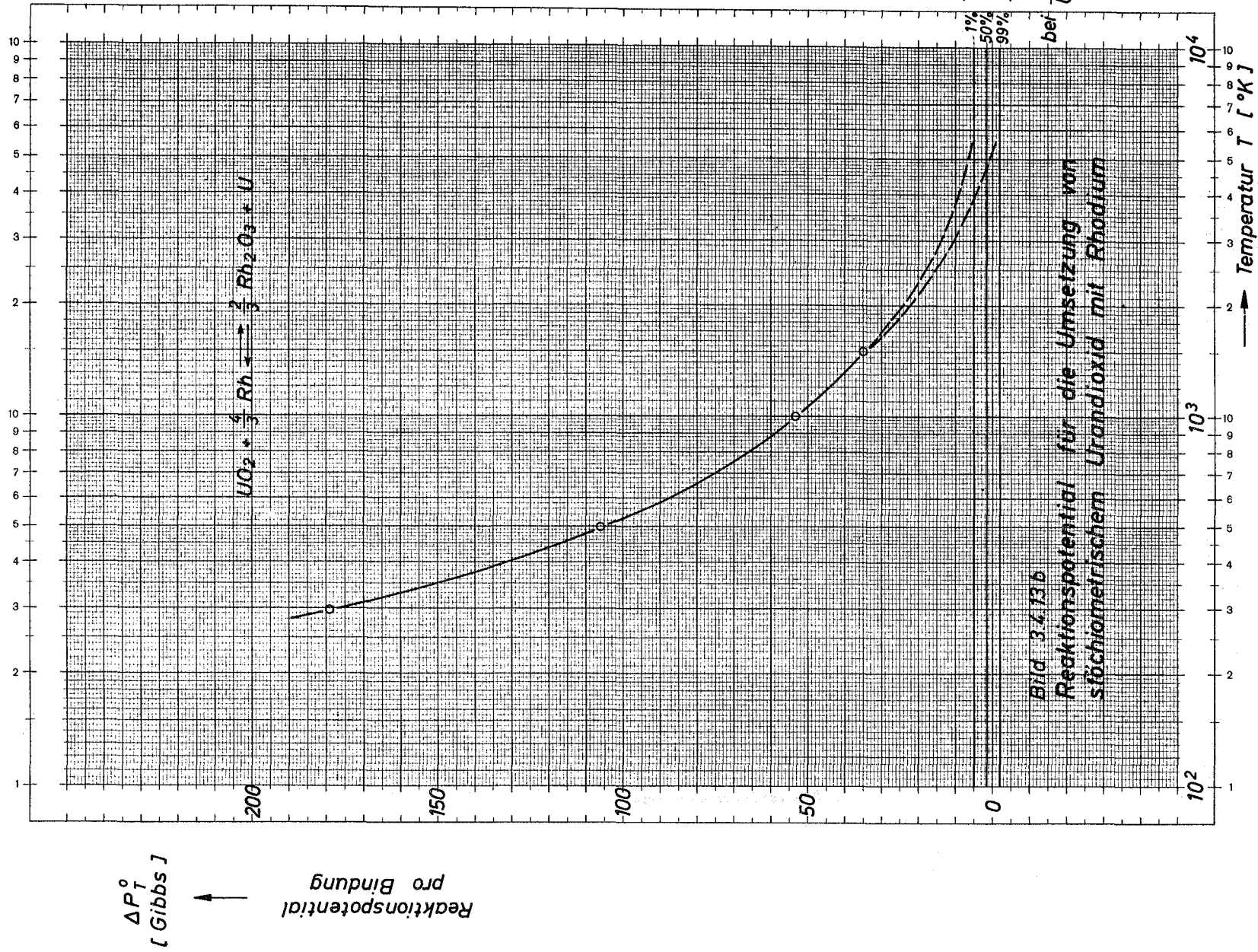
Bild 3.4.12
Reaktionspotential für die Umsetzung von
stöchiometrischem Urandioxid mit Ruthenium

HEIMAT COPPOLIGHT GEMALDENE, VERMISCHTENSIBEL & GEMALTEN, ZEHNLEUCHTER, HILANX, Nr. 378 1/2 P MADE IN GERMANY

Eine Achse logar. geteilt
Umsatz
1% }
50% }
99% }
bei $\frac{SP}{UO_2} = 10^{-4}$
mit 100 mm, die andere in mm



Eine Achse logar. geteilt von bis 10⁴ bis 10², die andere in mm



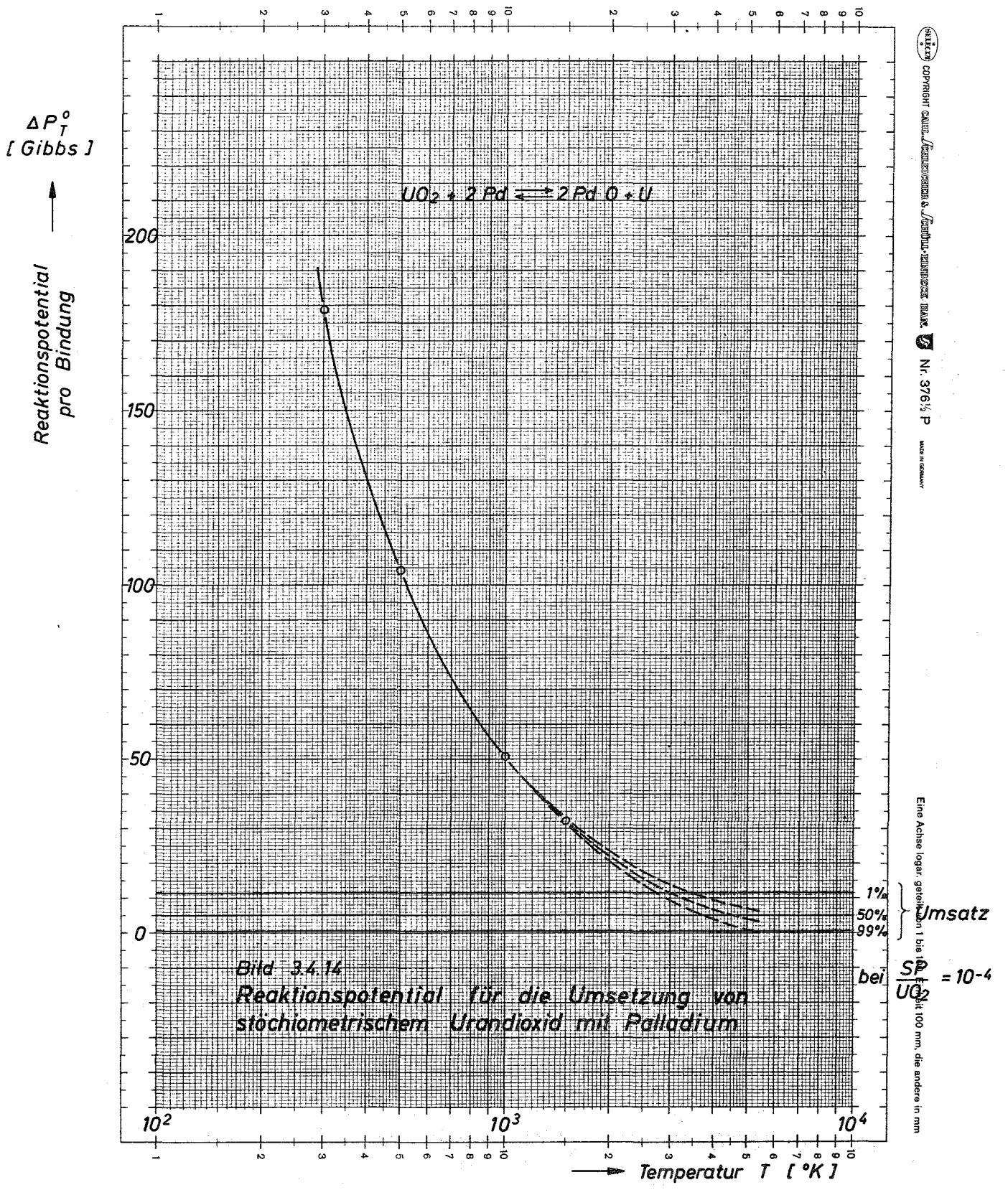
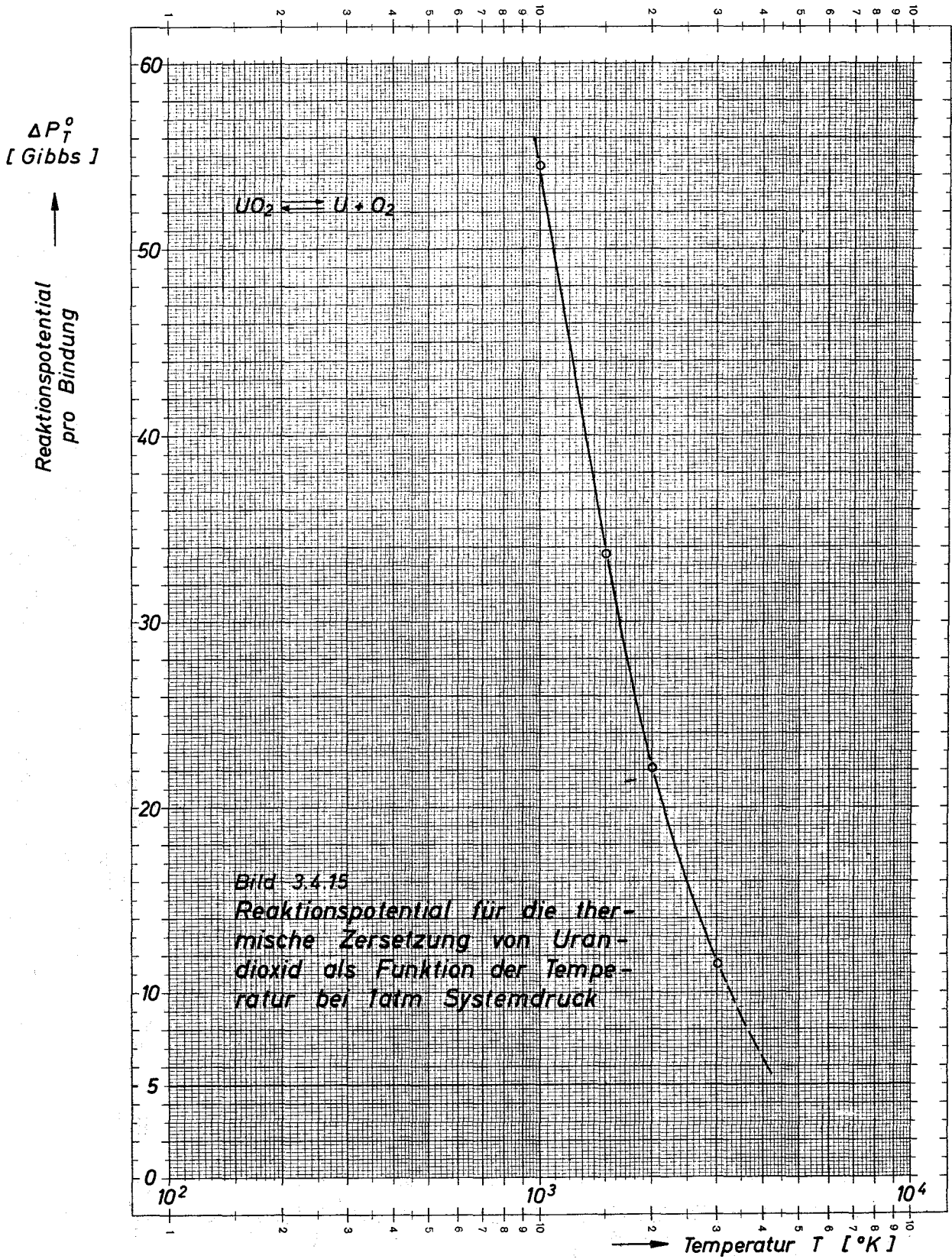


Bild 3.4.14
 Reaktionspotential für die Umsetzung von
 stöchiometrischem Urndioxid mit Palladium

SEITZ
 COPYRIGHT © Walter de Gruyter GmbH & Verlagsgesellschaft mbH
 Nr. 376 1/2 P
 MADE IN GERMANY



SEITZ
COPYRIGHT GAMBEL, FRIEDRICHSEN & SCHMIDT-KRENNBERG, HAMBURG
N. 376 1/2 P
MADE IN GERMANY

Eine Achse logarithmisch geteilt von 1 bis 100, Einheit 100 mm, die andere in mm

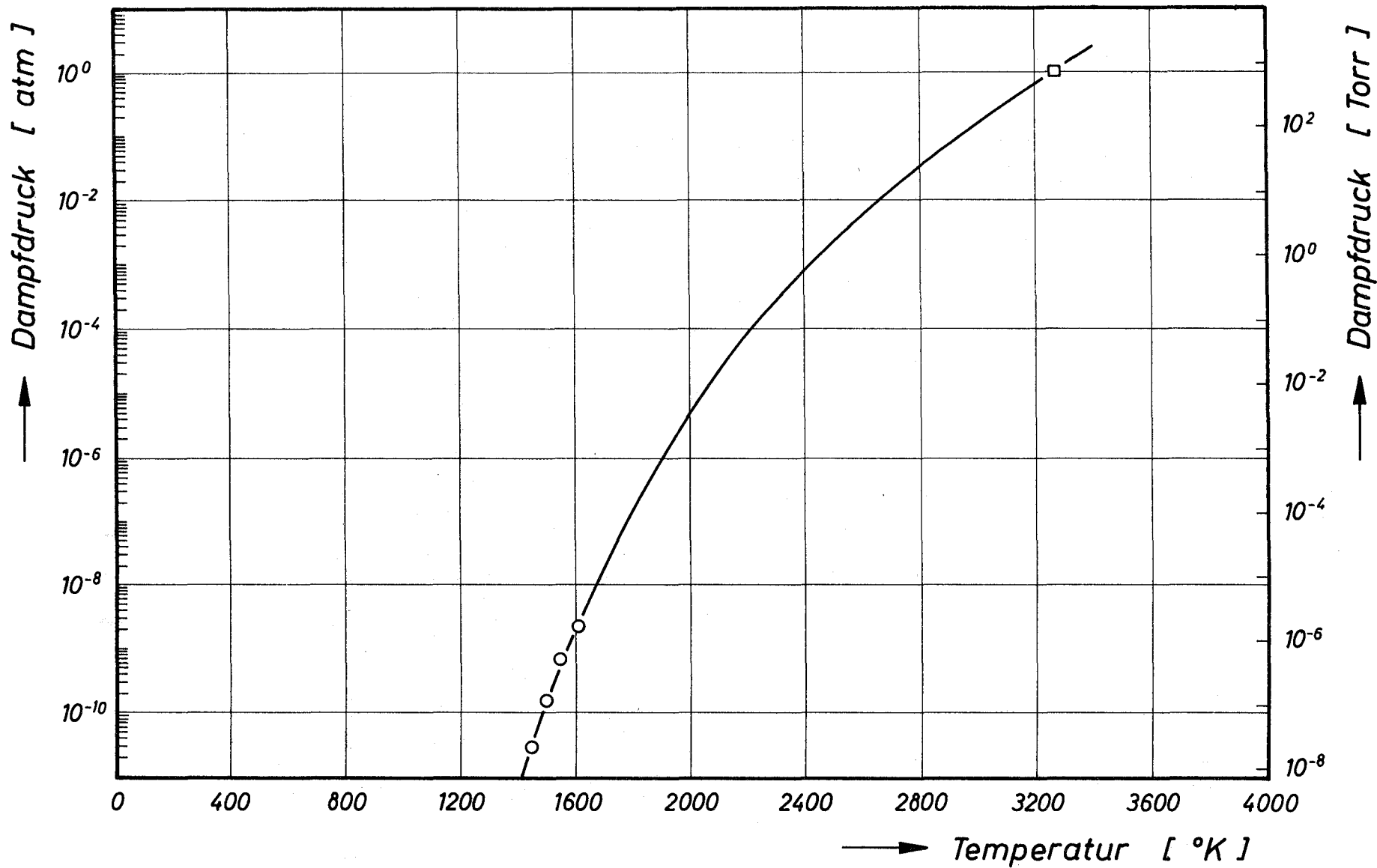
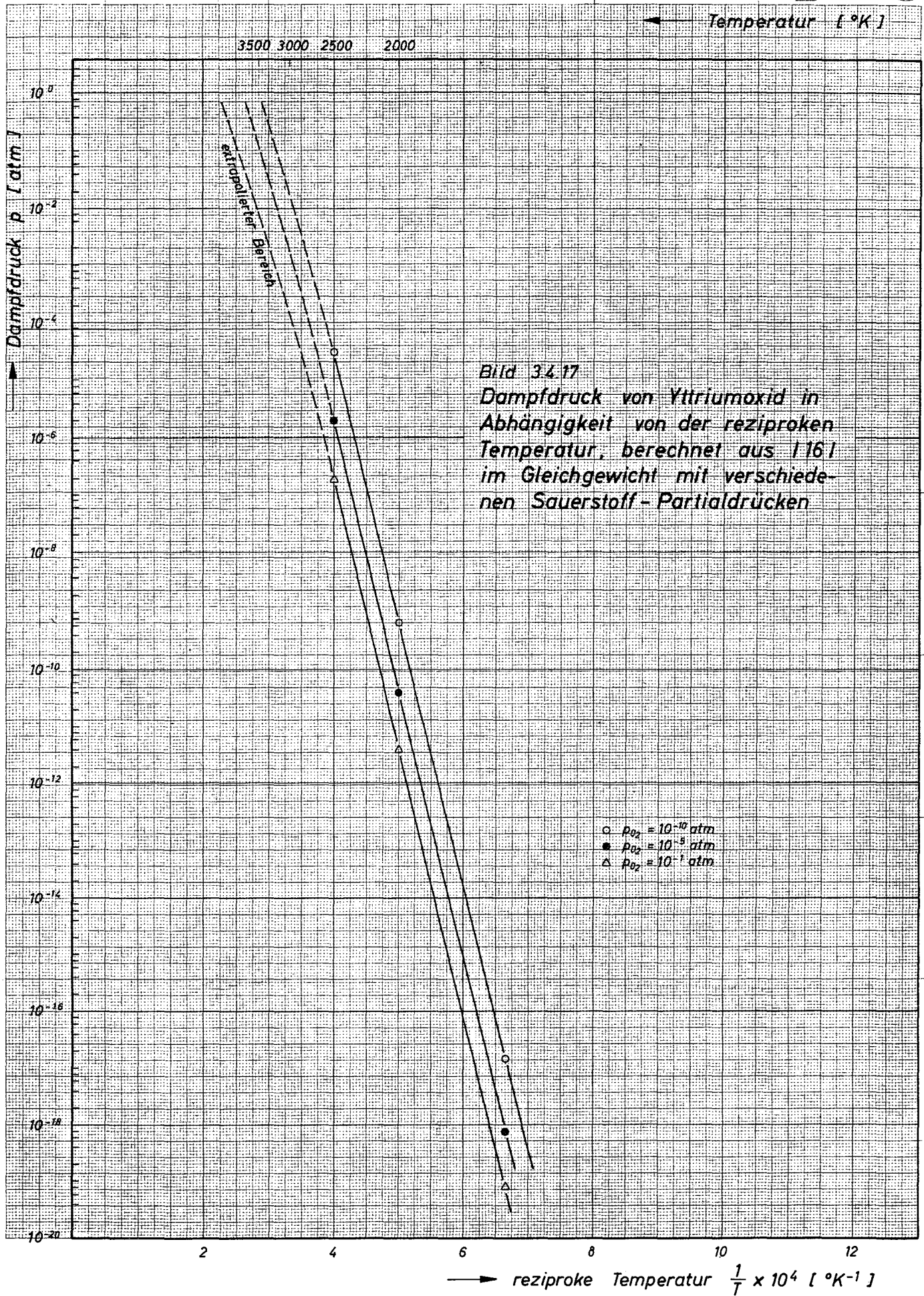
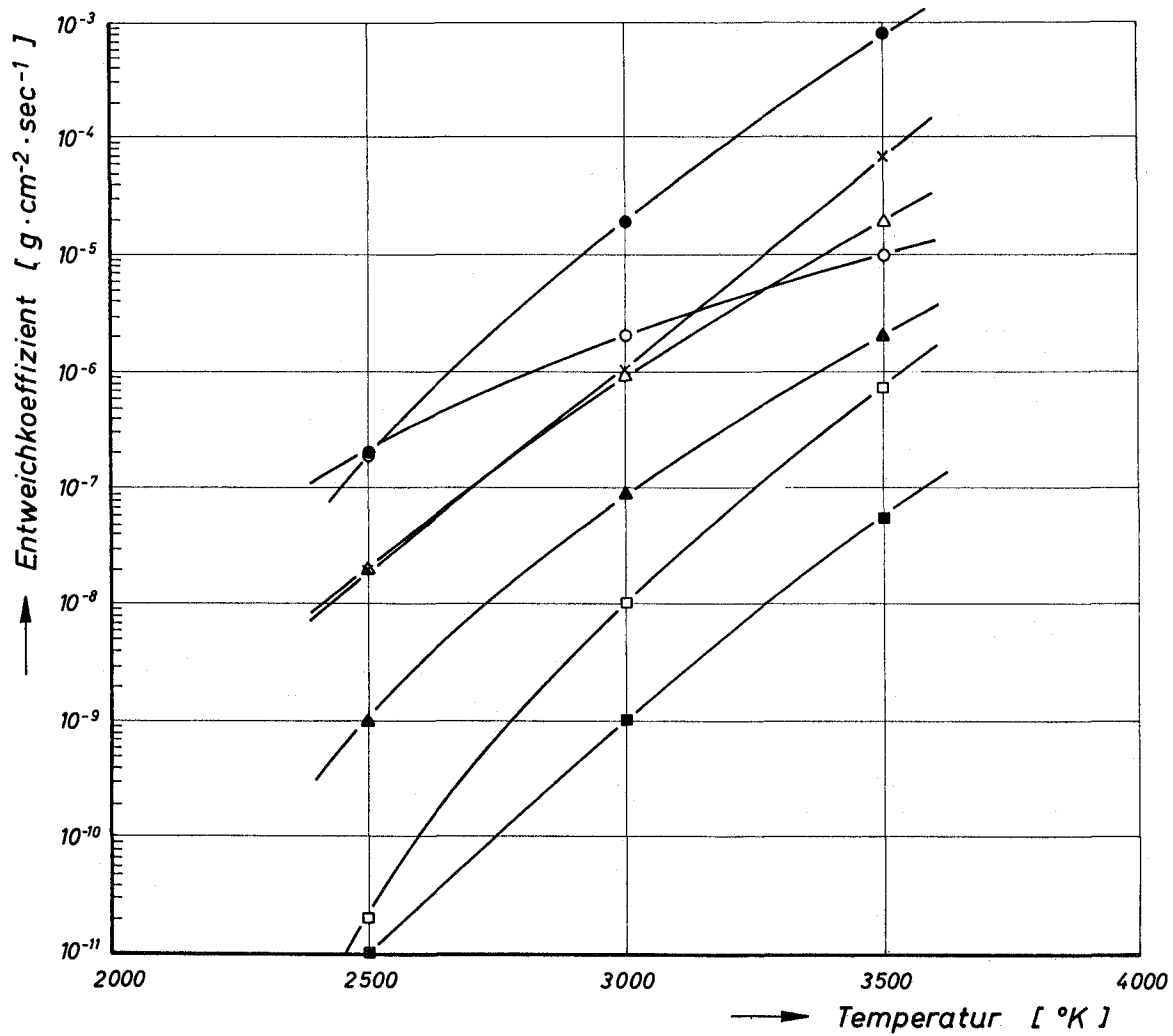


Bild 3.4.16 Dampfdruck von Strontiumoxid in Abhängigkeit von der Temperatur nach [151]





Zeichen	Gruppe
●	I
×	II
○	III
△	IV
▲	V
□	VI
■	VII

Bild 3.4.18

Entweichkoeffizienten von Spaltprodukten verschiedener Flüchtigkeitsgruppen als Funktion der Temperatur für isotherme und isokinetische Verdampfung unter vereinfachten Annahmen (vgl. Text)

4. Experimentelle Ermittlung temperaturabhängiger Spaltprodukt-Entweichkoeffizienten aus Urandioxid (Literaturstudie von J. Simon-Weidner, Laboratorium für Reaktorregelung und Anlagensicherung. Auszug aus MRR-94)

4.1 Zusammenfassung

Der Literaturstudie lagen fast ausschließlich amerikanische Berichte zugrunde. Die Sichtung ergab, daß verwertbare Ergebnisse aus gezielten Versuchen nur von out of pile Untersuchungen vorliegen. Diese waren im wesentlichen auf Oak Ridge konzentriert und als Grundlagenversuche ausgerichtet, d. h. Spaltproduktfreisetzung aus UO_2 Matrix und nicht aus Brennelementen. Selbst dabei waren die Variationen der Versuchsbedingungen so zahlreich (Pellets verschiedener Größe, Pulver verschiedener Körnung, Atmosphäre, Heizzeit-Temperaturkombinationen usw.), daß eine vergleichende Auswertung der Meßergebnisse eigentlich nur qualitativ möglich ist. Vor allem liegen keine parameterbelegten Freisetzungsraten von Spaltprodukten vor, sondern praktisch nur Integralwerte, die über Parameterveränderungen hinweggehen und so der Interpretation kaum zugänglich sind. Angaben fehlen vor allem über die Freisetzung während des Abschmelzens eines Bündels sowie aus einer Kernschmelze (im Gegensatz zu einer UO_2 -Schmelze). Die erhältlichen Daten sind in den Tabellen 4.5.1 und 4.5.2 zusammengefaßt.

4.2 Einleitung und Aufgabenstellung

Schon Ende der 50-iger Jahre und verstärkt dann im nächsten Jahrzehnt wurden im Rahmen der Entwicklung von Kernkraftwerken auch Störfalluntersuchungen vorgenommen. Da es das zentrale Sicherheitsproblem bei allen Reaktoren ist, die radioaktiven Spaltprodukte jederzeit, d. h. auch bei Störfällen, unter Kontrolle bzw. eingeschlossen zu halten, wurde diesem Thema von Anfang an größte Aufmerksamkeit gewidmet.

UO_2 als Brennstoff setzte sich für wassergekühlte Reaktoren schnell durch, wobei seine gute Rückhaltefähigkeit für Spaltprodukte als Positivum eingeschätzt wurde. Die frühen Überlegungen und Untersuchungen sind recht gut im UO_2 -Handbuch /25/ zusammengestellt. Bereits damals wurden von Lustmann mit Hilfe eines Diffusionsmodells Spaltpro-

duktentweichkoeffizienten definiert.

Das Hauptaugenmerk galt dabei der Spaltproduktfreisetzung ins Kühlmittel, d. h. dem Normalbetrieb mit wenigen schadhaften Hüllrohren. Aber selbst für diese einfachen Fälle konnte die Theorie die experimentellen Ergebnisse nicht ausreichend bestätigen, da offensichtlich das Freisetzungmodell und die Kenntnis der wichtigsten Parameter unzulänglich waren.

Besonders in Oak Ridge wurde dann langfristig an der Entwicklung eines Spaltproduktrückhalte- und Freisetzungmodells gearbeitet. Dieses Programm wurde begleitet von sehr umfangreichen Versuchsserien.

Im folgenden werden die Ergebnisse einer umfangreichen Literaturstudie über Versuche zur Spaltproduktfreisetzung aus UO_2 wiedergegeben, die sich auf die Oak Ridge Ergebnisse konzentriert, obwohl zahlreiche andere Beiträge von 1955 - 1970 ebenfalls gesichtet wurden (siehe Literaturanhang). Die grundlegenden Beiträge stammen dabei aus /1/ und /18/.

Die erhältlichen Daten sind in den Tabellen 4.5.1 und 4.5.2 zusammengefaßt.

4.3 Out-of-Pile Versuche zur experimentellen Bestimmung der Spaltproduktfreisetzung (Beschreibung experimenteller Methoden)

Um die Auswirkungen von Reaktorstörfällen beurteilen zu können, wurde bereits 1955 bei ORNL mit der Messung der Spaltproduktfreisetzung aus überhitztem Brennstoff begonnen /1/. Die verschiedenen Methoden, die seit dieser Zeit verwendet werden, werden in zeitlicher Reihenfolge beschrieben und anschließend die erzielten Ergebnisse der Untersuchungen aufgeführt.

4.3.1 Induktionserhitzung bei niedriger Frequenz:

Bei früheren Brennstoffschmelzversuchen (Metall) wurden zur Erzeugung der erforderlichen Temperaturen Graphitzylinder im Inneren einer Induktionsschleife verwendet /2/. Durch Veränderung der Zylindergeometrie konnten die Temperaturbereiche variiert werden. Die Temperatur wurde optisch mit einem Pyrometer bestimmt. NaOH-Pellets und NaOH-Lösung wurden verwendet, um das freigesetzte Jod aufzufangen. Ein Teil des entstandenen Cäsiums wurde ebenfalls bei den NaOH-Pellets eingefangen und der Rest im anschließenden Filter gesammelt. Die Edelgase wurden in einer Kältefalle abgeschieden (Bild 4.3.1). Eine ähnliche Versuchsanordnung zeigt Bild 4.3.2. Hier wurde mit Wasserdampf-atmosphäre gearbeitet /2/.

4.3.2 Anordnung zur Bestimmung der Spaltproduktfreisetzung während der Oxydation und Schmelze von Uran oder anderer metallischer Brennstoffe /3/:

Unter Helium-Durchsatz wird ein Platin-Widerstandsofen bis zu einer gewünschten Temperatur (etwa 1550 ° C) vorgeheizt. Zur Einleitung des Oxydationsprozesses wird Luft oder ein anderes oxydierendes Gas eingelassen, kurz nachdem der Ofen über die Probenhalterung gefahren wurde (Bild 4.3.3). Nach einer bestimmten Zeit wird die Reaktion durch Abstellen der Luft bei weiterströmendem Helium und Wegfahren des Ofens aus seiner Position unterbunden. Damit ist gleichzeitig ein rascher Abkühlvorgang der Probe gewährleistet. Anschließend wird das nicht oxydierte Uran in HCl gelöst und die U^{+4} -Ionen in einer Standard-Dichrom-Lösung titriert, um den Anteil des oxidierten Urans zu bestimmen. Die luftgetragenen Partikel werden in Millipore-Filtern aufgefangen, Jod im erhitzten Aktivkohlefilter und die Edelgase in einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Kältefalle. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wird die Anordnung auseinandergenommen und radiochemisch analysiert.

4.3.3 Die Thermobalance-Methode:

Oxydationsraten können genauer durch die Thermobalance-Methode /3/ erfaßt werden: Prinzipiell wird hierbei die Gewichtszunahme der Probe gemessen, während sie einer oxydierenden Atmosphäre ausgesetzt ist (Bild 4.3.4). Der an einer Waage befestigte Draht mit angehängter

Probe wird durch eine Verengung zwischen zwei DMS-Streifen mit einem Strömungswiderstandsbereich von 0 bis 25 mm WS geführt. Oberhalb des engen Querschnitts wird Helium mit einem Durchsatz von $150 \text{ cm}^3/\text{min}$ gegeben, wobei sich in diesem ein Druck von 10 mm WS einstellt, während am Ende der Spaltprodukt-Abscheidungsstrecke Vakuum herrscht. Auf diese Weise kann eine kontinuierliche Helium-Strömung in die Apparatur sichergestellt und ein Falschlufzutritt während der Oxidations- bzw. Schmelzphase vermieden werden (Wasserdampfatmosphäre). Hauptproblem bei dieser Anordnung ist die berührungsfreie Aufhängung des an der Waage befestigten Drahtes, an dem die Probe hängt und die Arbeit in unmittelbarer Nähe des radioaktiven Brennstoffes während des Ein- und Ausfahrens der Probe in bzw. aus der Apparatur. Wiegeeinrichtung, Ofen und die Spaltprodukt-Abscheidestrecke werden abgeschirmt. Bei Arbeiten mit Dampf ergibt sich die zusätzliche Schwierigkeit, daß vor Erreichen des Kondensators kein Dampfniederschlag auftreten soll. Die Spaltproduktverteilung wird radiochemisch bestimmt.

4.3.4 Lichtbogenofen zur Erschmelzung von UO_2 und anderer keramischer Brennstoffe:

Dieses Verfahren wurde verwendet, um UO_2 und BeO-UO_2 Brennstoff zu erschmelzen /4/. Ein Schema der Anordnung ist in Bild 4.3.5 gegeben. Mit Hilfe dieses Verfahrens kann man sehr hohe Temperaturen in einem allerdings kleinen Bereich (etwa 1 cm im Durchmesser, es ist eine kleine Wandstärke der Probe erforderlich!) erhalten.

Kleine zylindrische oder oktagonale Proben werden eingesetzt zur Erschmelzung von 25 bis 60 mg UO_2 hohen Abbrandgrades, das in einem BeO -Zylinder eingeschlossen ist, der zusammen mit dem Brennstoff schmilzt.

4.3.5 Induktionsofen zur Messung der Spaltproduktfreisetzung durch Diffusion aus UO_2 in einer Helium-Atmosphäre:

Eine Anordnung zum Aufheizen von etwa 30 g Urandioxid in Helium ist schematisch im Bild 4.3.6 dargestellt. Der Schmelztiegel aus Tantal oder Wolfram mit UO_2 -Pulver dient als Kurzschlußwicklung, er ist umgeben von einem Aluminiumreflektor /5/. Temperaturmessungen werden pyrometrisch vorgenommen. Über erhitztes Zirkonium wird Helium bes-

ser gereinigt als durch Kupfer, wie es in früheren Geräten der Fall war. Das ausströmende Gas wird über einen mit NaOH-Pellets gefüllten Abscheider, ein erhitztes Aktivkohlefilter und durch zylindrische Kammern geführt, die mit Zählrohren kontinuierlich auf radioaktive Spaltgase überwacht werden. Krypton und Xenon werden in einer durch flüssigen Stickstoff gekühlten Falle gesammelt. Oxydierende Atmosphären können nicht verwendet werden, da sonst der Schmelztiegel mit dem Gas reagieren würde.

4.3.6 Wolfram-Widerstandsofen für UO_2 -Schmelzen unter Helium:

Ein zentraler Wolfram-Widerstandsdraht /5/ befindet sich in der Mitte hohler UO_2 -Brennstoffproben. Durch Wolfram-Hitzeschilde in einem Aluminiumoxyd-Behälter wird der radiale Hitzeverlust klein gehalten. Die Zentraltemperatur liegt höher als die Wandtemperatur der Brennstoffproben. Dadurch wird der im Reaktor auftretende Temperaturverlauf besser als bei den meisten anderen out-of-Pile-Versuchen simuliert. Auch Anordnungen mit mehreren Stäben sind möglich. Nachteilig ist, daß aufgrund der Wolfram-Widerstände mit Helium gearbeitet werden muß (Bild 4.3.7).

4.3.7 Der Doppel-Frequenz-Ofen:

Der Sinn dieses Verfahrens liegt darin, die Hülle der UO_2 -Brennstoffproben zunächst bei niedriger Frequenz (50 KW Leistung im Bereich von KHz) aufzuheizen und nach Schmelzbeginn der Hülle das UO_2 selbst bei höherer Frequenz (26 KW Leistung im Bereich von 2 bis 5 MHz) zu erschmelzen, da es bei höheren Temperaturen leitend wird /6/. In der Praxis hat sich gezeigt, daß man mit dem Aufheizen bei höherer Frequenz allein auskommt und damit der Induktionsofen im KHz-Bereich überflüssig ist.

4.3.8 Induktionsofen unter Druckbeanspruchung der Probe:

Das Erschmelzen von UO_2 durch Induktionserwärmung findet hier unter Druck statt, da die Spaltprodukte zur Aerosolforschung in einen Tank mit Dampf-Luft-Gemisch bei etwa 2 atm geleitet werden sollen /7/. In einem inneren Quarzrohr befindet sich die umhüllte UO_2 -Probe. Die Außenseite des Rohres wird durch Luft gekühlt, die unter einem höheren Druck steht, so daß sich im Falle eines Bruches des Rohres

ein nach innen gerichteter Gasstrom einstellt und die Spaltprodukte nicht austreten. Der Ofen ist für wiederholtes Beladen mit hoch abgebranntem Brennstoff gebaut.

4.4 Spaltproduktfreisetzung aus Oxidbrennstoff

Die Hauptphasen der Spaltproduktfreisetzung aus Urandioxid im Falle eines Reaktorstörfalls sind Entweichen durch Diffusion, Oxydation und Schmelzen. Jeder Entweichprozeß ist von einer Reihe von Größen abhängig. Die experimentellen Untersuchungen beschränken sich daher meistens darauf, die relative Bedeutung der einzelnen Parameter und ihren Einfluß auf die Spaltproduktfreisetzung zu bestimmen.

4.4.1 Spaltproduktfreisetzung durch Diffusion:

Untersuchungen der Entweichvorgänge durch Diffusion wurden zahlreich durchgeführt. Dennoch sind bei diesen Vorgängen nicht alle Fragen geklärt.

Die Ergebnisse der Experimente /8, 9/, bei denen UO_2 -Pellets leichten Abbrandgrades (trace-level = 10^{-4} Atom $\%$) in reinem Helium 5,5 Stunden lang aufgeheizt wurden, sind in der Tabelle 4.4.1 zusammengestellt. Bei diesen Versuchen wurden die in Abschnitt 4.3.6 dargestellten Anordnungen verwendet.

Ein Diagramm der Diffusionskonstanten von Xenon in diesem UO_2 (trace-level-irradiated) ist im Bild 4.4.1 gezeigt. Der Knickpunkt bei diesem Verlauf bei etwa 1800 ° K ist auf Kernwachstum zurückzuführen und daher zeit- und temperaturabhängig.

Der Kurvenverlauf des temperaturabhängigen Entweichens bei obigem Versuch (Tabelle 4.4.1) ist im Bild 4.4.2 dargestellt. Eine ähnliche Darstellung bei höher bestrahltem Material enthält Bild 4.4.3.

Den Einfluß des Abbrandgrades auf die Freisetzung der Spaltprodukte durch Diffusion bei 4 Temperaturen zeigt Tabelle 4.4.2. Die Daten der Tabelle 4.4.1 wurden aus Vergleichszwecken mit eingetragen, obwohl es sich nicht um identisch dieselben Proben handelt. Bei niedrigen Temperaturen oder bei niedrigen Abbrandgraden ist ein eindeutiger Zusammenhang mit dem Abbrandgrad nicht erkennbar, in allen Fällen zeigt sich jedoch offensichtlich eine verstärkte Diffusion bei höherem Abbrandgrad mit Ausnahme der leichtflüchtigen Elemente.

Tab. 4.4.1 /1/ : Diffusion of Fission Products from UO_2^a into Purified Helium^b

Temp. (°C)	Rare Gases	Gross γ	Percent Release							
			I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	Zr	U
1515	1.3	0.9	5.8	2.9	1.4	0.9	0.1			
1610	2.7	2.1	6.5	12	1.7	1.5	0.1			
1710	2.6	6.3	9.6	20	2.7	3.8	0.4	1.3		
1800	3.7	5.2	12	21	3.2	6.9	1.0			
1900	9.7	12	16	48	8.6	8.5	2.3			
1980	12	12	42	76	15	13	4.2	8.7	1.8	
2105	25	23	40	81	24	22	13	21	0.5	0.5
2150	59	18	74	95	53	49	28	40	12	0.4
2200	65	33	75	96	70	50	36	59	18	
2260	87	38	84	96	65	90	55	75	35	1.3

^aTrace-level irradiated PWR- UO_2 samples heated 5.5 hours in tantalum crucibles by RF induction.

^bHelium purified by contact with hot zirconium sponge; flow rate 50 cc/min.

Daten über Diffusion bei höheren Temperaturen zwischen 2260 ° C und dem Schmelzpunkt von UO_2 gibt es sehr wenige. Die einzigen Ergebnisse wurden bei Transient-Reactor-Experiments /10, 11/ gewonnen, bei denen Temperaturen oberhalb von 2600 ° C innerhalb von Sekunden erreicht wurden, ohne daß ein Schmelzen der Probe einsetzte.

Da bei diesen Versuchen keine eindeutige Temperatur zugeordnet werden kann, sind die Daten hier nicht relevant.

Parker et al. /12/ stellten einen interessanten Vergleich über die Entweichung von Edelgas bei 1600 ° C zwischen einer Probe niedrigen (trace-level) und hohen Abbrandgrades an. Das Ergebnis ist im Bild 4.4.4 zu sehen. Auffallend ist die Lage der beiden Peaks. Naheliegende Schlüsse auf ein Spaltprodukt-Rückhaltmodell sind offen.

Tab. 4.4.2 /1/ : Effect of Burnup Level and Temperature on Diffusion of Fission Products from UO_2 Heated 5.5 Hours in Pure Helium

Temperature (°C)	Irradiation Level (Mwd/ton)	Percent of Individual Fission Products Released ^a						
		Xe-Kr	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba
1400	~1 ^b	0.8	4.0	3.9	0.02	0.02	0.001	
	1005 ^c	0.8	0.9	0.8	2.6	0.001	0.1	
	1000 ^b	0.5	1.6	1.2	0.5	0.001	0.06	1.8
	4000 ^b	6.1	23	16	21	0.006	0.08	0.5
1610	~1 ^b	2.7	6.5	12	1.7	1.5	0.1	
	1005 ^c	2.6	3.7	12	12	0.1	2.0	17
	1000 ^b	6.0	5.5	27	20	0.3	0.2	12
	4000 ^b	14	25	48	43	0.2	0.5	15
1780	~1 ^b	3.7	12	21	3.2	6.9	1.0	
	1005 ^c	12	24	67	27	0.4	9.0	39
	1000 ^b	14	26	35	22	0.4	3.7	21
	4000 ^b	42	59	60	40	5.7	5.8	18
1980	~1 ^b	12	41	75	15	13	4.2	8.7
	1005 ^c	29	53	74	84	6.0	15	57
	1000 ^b	49	63	90	70	4.8	~10	51
	4000 ^b	71	81	81	98	15	33	60

^aIncludes that portion adsorbed on crucible and reflector parts.

^bPWR-type UO_2 (93 to 94% of theoretical density) - only the 1 Mwd/T pellets were full size (7 gm). The high-burnup samples were 0.1-0.2 gm fragments with a total weight of 1 to 2 gm.

^cEGCR-type UO_2 (97% of theoretical density). Samples were similar to PWR samples in total weight and fragment size.

4.4.2 Oxydation des Urandioxid:

Ein Vergleich der anfänglichen Oxydationsraten zweier Proben, die sich in ihrer Dichte nur wenig unterscheiden, ist im Bild 4.4.5 wiedergegeben. Daraus geht auch hervor, daß die Oxydationsraten unmittelbar von der Dichte und der Oberfläche (Oberflächenbeschaffenheit) abhängen.

Der Einfluß der eingestellten Ofentemperatur auf die Oxydationsrate von UO_2 spiegelt sich in den Bildern 4.4.6, 4.4.7 und 4.4.8 wieder.

In Wasserdampfatmosfera wurde keine starke Oxydation von UO_2 beobachtet /1/. Oxydationswerte in Dampf-Luft-Gemischen wurden nicht gefunden.

4.4.3 Spaltproduktfreisetzung infolge UO_2 -Oxydation:

Parker und seine Mitarbeiter /4/ hatten ursprünglich Untersuchungen an schwach bestrahlten UO_2 Pellets (PWR Typ) mit 94 % theoretischer Dichte und später /13/ an dem gleichen Material bei Abbrandgraden bis zu 7000 MWd/t durchgeführt. Die Entweichkoeffizienten mit den Proben schwachen Abbrandgrades (trace-level = ca. 1 MWd/t) sind im Bild 4.4.9 gezeigt, die Daten bei 7000 MWd/t Abbrandgrad wurden in der Tabelle 4.4.3 zusammengestellt. Diese Werte zeigen, daß der Oxydations-Entweichprozeß keine einfache, nur von der Temperatur abhängige Funktion ist.

Der Einfluß verschiedener Aufheizzeiten bei verschiedenen Temperaturen ist in den Tabellen 4.4.4 und 4.4.5 erfaßt. Bei den hier verwendeten Proben handelt es sich ebenfalls um PWR-typischen Brennstoff mit einer Dichte von 93 bis 94 % der theoretischen. Der Abbrand beträgt 4000 MWd/t. Unter 800 °C hat eine längere Heizzeit unter Luft keinen sichtlichen Einfluß auf das Entweichen, bei Temperaturen ab 800 °C werden jedoch manche Elemente bei längerer Heizzeit verstärkt freigesetzt.

Der Einfluß des Abbrandgrades auf das Entweichen der flüchtigen Elemente ist grafisch im Bild 4.4.10 bei 2 Temperaturen gezeigt. Bei Jod und Ruthenium spielt bis 1000 MWd/t der Abbrandgrad eine sehr starke Rolle.

Tab. 4.4.3 /1/ : Fission-Product Release from PWR-Type UO_2 ^a
Irradiated to 7000 Mwd/T and Heated in Air^b for 90 min.

Temp. (°C)	Percent of Individual Fission Products Released						
	Rare Gases	I	Te	Cs	Ru	Sr	Bz
500	3.1	4.1	<0.5	0.0006	0.1	<0.0007	<0.0004
600	4.2	3.1	<0.1	<0.002	0.7	<0.0004	<0.009
700	6.1	15	<0.08	<0.005	0.1	<0.0005	<0.007
800	9.4	9.0	<0.3	0.002	9.8	<0.0005	0.03
850	15	34	1.4	0.02	35	<0.005	<0.08
900	34	29	80	<0.01	78	<0.03	<0.8
1000	86	78	37	<0.03	93	<0.04	<0.3

^aSamples 0.5 to 0.9g of 96% density material in porous alundum cups, preheated for 13 to 16 min. in helium.

^bAir flow, 100 cc/min.

Bemerkenswert ist bei dem Entweichen der Spaltprodukte aufgrund der Oxydation von UO_2 , daß ein großer Anteil des Jods und Rutheniums im Temperaturbereich 1000 - 1200 ° C freigesetzt wird.

4.4.4 Spaltproduktfreisetzung infolge Urandioxidschmelzen:

Der dritte und hier bedeutendste Mechanismus für das Entweichen von Spaltprodukten aus Urandioxid ist die Freisetzung aus der Schmelze des Brennstoffes. Die beim Entweichen einwirkenden Parameter sind in diesem Fall Abbrandgrad, Probengröße, Schmelzdauer, Atmosphäre, Art der Erschmelzung und Zusammensetzung der Hülle. Die meisten Untersuchungen wurden unter Helium durchgeführt, um unerwünschte Reaktionen mit dem Sauerstoff auszuschließen. Nur wenige Experimente wurden in CO_2 , Luft oder Dampf-Luft-Gemischen unternommen. Die meisten Schmelzversuche wurden bei ORNL angestellt.

Die ersten Untersuchungen /14/ wurden im Lichtbogenofen mit dünnwandigen trace-level bestrahlten UO_2 Proben gemacht, deren Ergebnisse sich in der Tabelle 4.4.6 wiederfinden. Probengewicht und Schmelzdauer

Tab. 4.4.4 /1/ : Fission-Product Release from PWR-type UO₂^a
Irradiated to 4000 Mwd/T and Heated in Air^b

Temp. (°C)	Time at Temp. (min.)		Percent of Individual Fission Products Released							
	He	Air	Rare Gases	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	U
500	16	23	1.5	3.6	<0.007	<0.0004	<0.005	<0.0004		
	18	90	2.9	3.2	<0.01	<0.0007	<0.01	<0.0004	<0.0008	
600	14	18	4.4	10	<0.006	0.002	0.08	<0.001		
	15	90	4.5	8.0	8.4	<0.001	1.8	<0.001	<0.004	
700	14	12	9.3	9.6	0.01	0.001	1.7	<0.0002	<0.0004	
	13.5	15	7.0	10	0.004	<0.001	0.4	<0.0003	<0.0006	
	14	90	6.8	6.5	<0.05	<0.0005	2.3	<0.0004	<0.002	
800	13	15	14	7.1	0.007	0.015	1.0	<0.0004	<0.0007	
	14	90	14	16	<0.06	<0.01	12	<0.0004	<0.001	
900	14	19	21	49	0.4	0.009	17	<0.001	0.01	
	15	90	22	47	6.0	0.015	53	<0.0008	<0.004	
1000	16	15	40	84	12	0.09	72	<0.0003	<0.02	
	13.5	90	44	75	32	0.37	92	0.1	0.08	0.06
1100	14	14	66	79	16	<0.02	91	<0.05	<0.003	
	14	90	73	84	39	0.2	99	0.006	0.01	<0.003
1200	14	16.5	71	82	37	0.8	99	<0.01	<0.001	
	13	90	80	95	66	6.4	99.6	0.007	0.7	<0.003

^aSample approximately 1 g of intermediate density (93 to 94%) material in porous alundum cups.

^bAir flow, 100 cc/min.

Tab. 4.4.5 /1/ : Fission Product Release from UO₂ Oxidized in Air

Sample: Intermediate density PWR UO₂ (93-94%)
Irradiation: 1000 Mwd/ton
Air flow: 100 cc/min

Temp. (°C)	Time at Temperature (min)		Percentage of Individual Fission Products Released								
	He	Air	Rare Gases	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	U	
500		9	4.4	4.6	<0.014	0.02	0.013	<0.001	<0.0009		
		15	13	4.0	2.5	<0.003	<0.0008	<0.014	<0.004	<0.001	
		15	90	4.0	4.7	0.008	<0.002	0.36	<0.004	<0.0008	
600		11	6.6	3.4	0.003	0.004	0.33	0.003			
		15	13	6.0	5.6	<0.003	<0.0007	<0.23	<0.001	0.0009	
		12	90	5.5	6.0	0.005	0.003	0.9	<0.0009	<0.0009	
700		12	8.5	9.4	0.01	0.001	0.63	0.001			
		12	7.2	10.1	<0.003	<0.003	1.25	<0.0009	<0.001		
		13	90	8.3	10.0	<0.003	0.02	3.8	<0.0008	<0.0007	
800		15	10.5	9.1	0.05	0.016	5.2	0.0006			
		13	14	8.56	11.2	0.033	0.038	6.6	0.008	0.0006	
		13.5	90	15.1	14.1	0.08	<0.007	35.3	<0.001	<0.002	
900		15	11.2	15.2	<0.4	0.005	18.9	<0.001			
		10	14	11.9	14.4	<0.85	0.03	11.5	<0.002	<0.01	
		12.5	90	13.7	26.9	0.41	<0.002	30.3	<0.001	<0.0015	
1000		26	30.3	55.2	<7.7	0.07	81.5	<0.001	<0.007		
		18	22.2	42.2	<0.6	~0.03	69.8	<0.001	0.002	0.007	
		12	90	30.5	73.3	31.3	0.02	97.9	0.002	0.005	<0.0012
1100		8	10	60.0	70.4	75.3	2.8	85.7	<0.001	<0.002	0.002
		12.5	11	49.9	64.1	28.0	<0.01	95.5	0.001	<0.016	
		12.5	90	52.7	71.2	58.0	<0.4	99.9	<0.2	<0.2	0.19
1200		17	15	79.6	86.6	59.4	<0.1	97.8	<0.03	0.1	
		14.5	90	77.0	83.4	75.9	4.5	99.7	0.14	0.14	0.142

Tab. 4.4.6 /1/ :

Fission Product Release from UO_2 ^a Melted in Helium^b

Run No.	Sample Weight (g)	Time at Temp. (sec)	Percent Release								
			Rare Gases	Gross γ	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	TRE ^d
1	0.57	120	64	9.4	71	60	59	28	0.18		
2	0.34	120	91	13	70	72	25	60	0.07	0.8	0.2
3	0.56	120	93	6.0	84	86	34	32	0.16	0.9	1.1
4	0.56	180	56	7.7	67	63	24	75	0.11	1.3	0.7
5	0.58	180	63	14	46	54	12	36	0.11	2.6	0.5
6	0.37	120	69	10	51	43	7.1	20	0.26	0.5	0.3
7	0.18	120	99.4	30	84	86	90	72	0.20	2.0	0.7
8	0.25	90	99.6	31	95	96	93	76	3.9	7.3	3.8

^aTrace-irradiated pellet melted simultaneously with BeO support tube in arc-image furnace.

^bHelium flow rate, 100 cc/min.

Tab. 4.4.7 /17/ :

Effect of Burnup Level and Atmosphere on the Release of Fission Products During the Melting of UO_2 ^a

Atmosphere	Irradiation Level (Mwd/ton)	Sample Weight (g)	Number of Results	UO_2 Vaporized (%)	Percent of Individual Fission Products Released							
					Xe-Kr	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	Rare Earths
Helium (impure)	Tracer	0.22	2		99.5	89.7	92.0	91.3	61.0	2.1	4.6	2.2
	2,800	0.03	3	21.2	99.9	92.2	98.2	98.5	90.4	2.1	6.6	5.1
	11,000	0.03	2	18.0	100.0	99.7	99.6	98.7	88.1	1.7	6.5	4.1
Air	Tracer	0.2	2		98.4	94.9	79.1	37.7	67.7	0.2	0.5	0.5
	2,800	0.04	3		100.0	99.7	93.6	92.5	95.0	0.4	1.8	3.0
	11,000	0.04	3	24.7	100	99.8	99.3	97.4	92.5	0.4	1.8	3.9
CO_2	Tracer	0.2	3	14.1	80.6	76.8	71.2	60.9	44.9	0.3	1.1	0.25
	2,800	0.02	3		99.9	98.7	98.6	90.2	74.3	0.5	2.5	2.8
	11,000	0.05	3		99.9	99.9	99.0	96.6	79.1	0.6	2.9	2.3

^aEGCR UO_2 with an O/U ratio of 2.04 and an average density of 95% of theoretical.

sind hier als Parameter angesehen worden. Das Resultat anderer Versuche in verschiedenen Atmosphären und bei 3 Abbrandgraden ist in der Tabelle 4.4.7 zusammengefaßt. Zwischen trace-level und 2800 MWd/t als Abbrandgrad findet ein beachtlicher Zuwachs bei der Freisetzungsrates statt, zwischen 2800 und 11000 MWd/t sind die Unterschiede nur geringfügig. Ein Einfluß der umgebenden Atmosphäre kann hier nicht festgestellt werden.

Die Ergebnisse, die bei Verwendung größerer UO_2 -Proben niedrigen Abbrandgrades (trace-level) erhalten wurden, sind in der Tabelle 4.4.8 zusammengefaßt /9/. Bei den flüchtigen Elementen scheint die Freisetzung proportional zu der Zeit zu sein, in der sich das UO_2 in geschmolzenem Zustand befindet. Darin stimmen die Werte auch mit früheren Ergebnissen gut überein.

Bei einer weiteren Versuchsreihe /9, 15/ wurden hohle UO_2 -Proben durch einen Wolfram-Widerstand zentral aufgeheizt und erschmolzen (Tabelle 4.4.9). Bei diesen Experimenten wurden Proben mit und ohne Hülle /13/ untersucht, wobei man an eine Heliumatmosphäre gebunden war. Wegen der hohen Temperatur im Zentrum und der kühleren Oberfläche können so die Temperaturverhältnisse in einem Reaktor besser als durch andere Verfahren simuliert werden. Deswegen sind diese Ergebnisse auch recht informativ.

In Tabelle 4.4.10 sind die Auswertungen einer Ein-Stab-Anordnung mit denen verglichen, die bei Anordnung von 7 Stäben erreicht wurden. Der Zentralstab wurde schwach bestrahlt (trace-level = 10^{14} fissions/gram of UO_2).

Die Daten der Tabelle 4.4.9 (UO_2 -Proben ohne Hülle) unterscheiden sich nicht stark von den Werten anderer Schmelzversuche, wenn man von Strontium und Barium absieht, deren Entweichkoeffizienten relativ hoch liegen. Die geringen Freisetzungsrates bei Ruthenium erklären sich aus der Heliumatmosphäre.

Die Proben mit Stahl als Hüllmaterial weisen ähnliche Freisetzungen auf wie die reinen UO_2 -Proben, erst die zirkoniumumhüllten Proben weichen in den Ergebnissen stark ab. Die Daten weisen auf eine Benetzung der UO_2 -Oberfläche mit dem schmelzenden Zirkonium hin, das als Sauerstoffabsorber für den hohen Anteil entweichenden Strontiums und Bariums verantwortlich ist. Cäsium, Jod und die Edelgase zeigen sich durch die Art des Hüllmaterials unbeeinflusst.

Tab. 4.4.8 /1/ : Fission Product Release from UO_2^a Melted in Helium^b
by the Tungsten-Crucible Method

Molten Time (min.)	Percent UO_2 Vaporized	Gross γ Release (%)	Percent of Individual Fission Product Released							
			Xe-Kr	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	Ce
1.0	0.10	23	93	77	90	63	0.45	0.33	4.8	0.05
1.5	0.16	15 ^c	98	98	98	66	0.05	0.47	2.6	0.07
2.0	0.16	26	99	99	99	60	0.32	0.41	3.0	0.17
2.5	0.25	13 ^c	99	95	99	72	0.33	0.53	2.4	0.13
1.5 ^d	-	14 ^c	99	88	92	80	0.20	0.26	2.6	0.40
2.5 ^d	-	13 ^c	99	93	96	89	0.70	0.50	3.6	0.10

^aSample: 29g PWR UO_2 irradiated at tracer level and preheated in helium for 4.5 to 5.0 min.

^bAtmosphere: purified helium flowing at a rate of 700 cc/min.

^cDecayed 4 to 7 days longer than previous sample.

^d UO_2 sample had a slightly higher density than the first four samples.

Tab. 4.4.9 /1/:

Fission Product Release^a from Trace-Irradiated PWR-Type UO_2 Melted in a Single Element Tungsten-Resistor Furnace Filled with Helium^b

Element	Heat Duration (min.)	UO_2 Vaporized (%)	Gross γ Release (%)	Percent of Individual Fission Product Released							
				Xe-Kr	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	Ce/RE
UO_2	5.0	0.8	7.1	63	47	56	44	1.6	1.6	5.3	<0.6
UO_2	4.0	0.2	5.7	50	30	42	41	0.4	0.8	2.9	<0.5
UO_2	4.4	0.3	6.9	34	25	33	<40	0.05	1.2	4.3	0.5
UO_2 (SS clad)	4.7	0.2	5.0	56	52	31	46	0.5	1.0	4.2	0.3
UO_2 (Zr clad)	7.0	0.1	2.6	52	24	1.1	28	0.1	10.1	10.6	0.5
UO_2 (Zr clad)	6.7	0.04	5.2	41	50	0.6	32	0.2	10.0	7.5	0.5

^aResults are not corrected for the fraction of the sample melted which is approximately equal to the percent rare gas release. Release is from fuel and cladding.

^bHelium flow rate, 400 cc/min.

Tab. 4.4.10 /1/ : Release From Center-Resistor-Heated Bare UO₂ Fuel Pins Corrected to 100% of Melting

No. of Fuel Pins	Release %							
	UO ₂	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	Ce
1	0.8	70	90	82	1.1	2.5	9.0	<1.0
7	3.1	60	45	37	6.3	1.1	1.9	0.1

Tab. 4.4.11 /1/ : Release of Fission Products From Stainless-Steel-Clad UO₂^(a) Melted in Air by Direct Coupling Induction Heating

Total Release (%)											
Iodine			Tellurium			Cesium			Plutonium		
A	B	C	A	B	C	A	B	C	A	B	C
84	64		12	12	55	29	37	37			0.005

^a Runs A and B were made with tracer-level-irradiated UO₂. Run C was made with 20g of UO₂ irradiated to 7000 Mwd/ton.

Bei Containment-Mockup-Facility (CMF)-Versuchen /16/ wurden stahlumhüllte UO_2 -Proben mit einem 25 kW, 5-MHz-Induktionsofen in Zirkontiegeln innerhalb eines Quarzrohres (siehe Abschnitt 4.3.8) erhitzt. In der Tabelle 4.4.11 wurden die Ergebnisse zusammengefaßt, die von zwei Proben leichten (tracer-level) und einer Probe hohen Abbrandgrades (7000 MWd/t) erhalten wurden.

Ein Vergleich der Freisetzungsraten, die durch die verschiedenen Arten des UO_2 -Erschmelzens gewonnen wurden, beinhaltet Tabelle 4.4.12.

Die Tabelle 4.4.13 schließlich veranschaulicht, in welchem Maße der Luftdurchsatz das Entweichen der Spaltprodukte aus dem schmelzenden Urandioxid beeinflusst /18/.

4.5 Zusammenfassende Tabellen

Auf den folgenden Seiten sind die Ergebnisse zusammengefaßt worden, die bei der Messung der Spaltproduktentweichungskoeffizienten bei Freisetzungen aus Urandioxid gewonnen wurden. Es handelt sich dabei um die Out of pile-Versuche, die im Abschnitt 4.4 beschrieben worden sind. Die Versuchsbedingungen können dort entnommen werden, soweit sie in der Originalveröffentlichung genannt waren.

Tabelle 4.5.1 enthält den Temperaturbereich von $500^{\circ}C$ bis $2260^{\circ}C$, Tabelle 4.5.2 Angaben für $2800^{\circ}C$.

Die Tabellen wurden ausgewertet in den Bildern 4.5.1 bis 4.5.7, wo die Freisetzung der Spaltprodukte über der Temperatur aufgetragen ist. Aus diesen Bildern ist der starke Einfluß der Atmosphäre erkennbar. Insbesondere zeigt sich auch der starke Streubereich der Daten.

Tab. 4.4.12 /1/ : A Comparison of Fission-Product Release
by Different Methods of Melting UO₂ in Helium

Method of Melting	Sample Weight (grams)	Percent UO ₂ Vaporized	Gross γ	Percent Release							
				Xe-Kr	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	Ce
Arc-image ^a	0.25	~2.0	~30	99.5	95.2	96.2	92.9	78.3	3.9	7.3	3.8
Tungsten crucible	29.0	0.16	15.1	98.0	98.3	97.6	66.0	0.05	0.47	2.57	0.07
Tungsten resistor (unclad) ^b	39	0.8	14	~100	70	90	82	1.1	2.5	9.0	1.0
Tungsten resistor (SS clad) ^c	39	0.4	9	~100	93	55	83	0.9	1.7	7.4	0.5
Tungsten resistor (Zr clad) ^d	39	0.17	8	~100	83	1.8	66	0.4	22	20	1.2
In-pile (ORR) ^e	6	1			90	75	77	4	1.5	1	0.3
In-pile (TREAT) ^f	30	0.01			5.4	0.8	3.8	0.03	3.2	2.2	0.01

Induction

- ^aImpure helium atmosphere.
- ^bAverage of three runs, data normalized to 100% Xe-Kr release.
- ^cActual data normalized to 100% Xe-Kr release. The numbers of release from fuel and cladding. The retained Te was equally divided between cladding and fuel.
- ^dAverage of two runs, data normalized to 100% Xe-Kr release.
- ^eRelease from high-temperature zone.
- ^fRelease from high-temperature zone during ~0.1 sec transient.

Tab. 4.4.13 /18, :
Effect of Furnace Air Velocity on Deposition of Fission Products Released by Melting Modified UO₂ Specimens at 2650°C*

	Percent of Total Activity and Its Location, with Velocity of Furnace Air as Indicated (lin ft/min) ^a							
	Furnace Tubes		Filters		Charcoal Trap		Total	
	0.3	5.0	0.3	5.0	0.3	5.0	0.3	5.0
Gross gamma	10.1	8.8	1.2	6.2	0.4	3.4	11.7	18.4
Rare gases					77.1	69.5	77.1	69.5
Iodine, γ	62.3	12.1	5.4	9.8	11.3	56.9	79.0	78.8
Tellurium, β^-	64.8	28.6	8.3	43.2			75.1	71.8
Cesium, γ	34.5	18.3	15.6	30.9			50.1	49.2
Ruthenium, γ	63.6	33.0	0.8	24.6			64.4	57.6
Caesium, β^-	0.24	0.17	0.11	0.37			0.35	0.54
Strontium, β^-	0.1	0.05	0.01				0.11	0.05
Barium, β^-	0.55	0.08	0.01	0.07			0.56	0.15
Zirconium, γ	0.02	0.02	0.01	0.01			0.03	0.03
Uranium ^b	6.4		1.4				7.8	

^aAir flow = 200 cm³/min or 0.3 lin ft/min or 3000 cm³/min or 5 lin ft/min across sample; heating time = 90 sec.

^bVaporized as UO₃.

*From Parker et al., ref. 28, p. 18

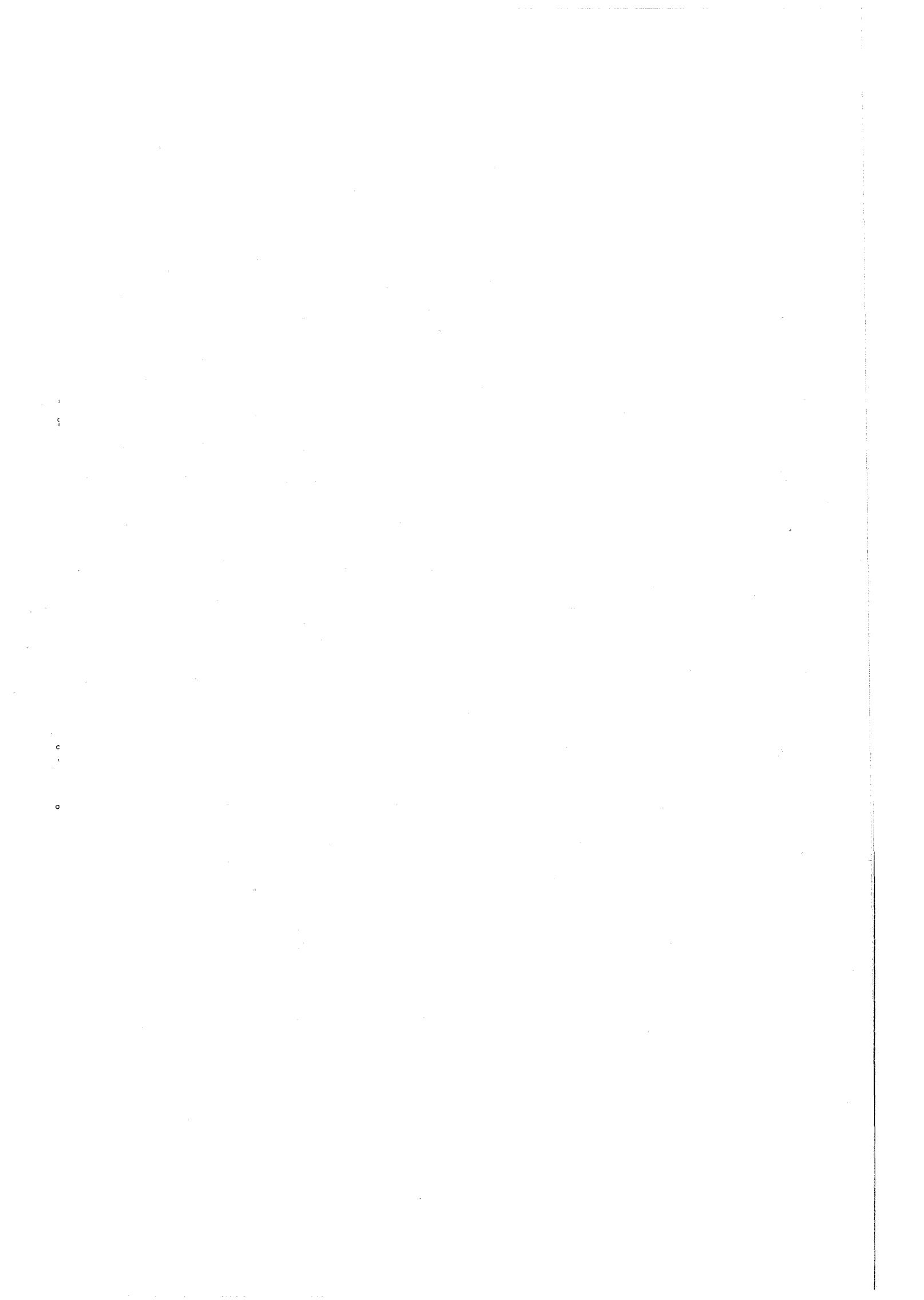


Tabelle 4.5.2: Freisetzung bei UO₂ Schmelztemperatur

Freisetzung einzelner Komponenten [%]

Temperatur [°C]	Prozent d.theor. Dichte [%]	Materi- al der Hülle	Abbrand- grad [MWd/t]	Atmos- phäre	Durch- satz [cm ³ /min]	Heizzeiten [min]	Lite- ratur	Gross Gamma (X: korr. zu 100 % Schmelze)	ver- dampf- tes UO ₂	Edel- gase	I	Te	Cs	Ru	Sr	Ba	Ce
			1	Helium	100	He: 2	(1)	9,4		64	71	60	59	28	0,18	,	
			1	Helium	100	He: 2	(1)	13		91	70	72	25	60	0,07	0,8	
			1	Helium	100	He: 2	(1)	6,0		93	84	86	34	32	0,16	0,9	
			1	Helium	100	He: 3	(1)	7,7		56	67	63	24	75	0,11	1,3	
			1	Helium	100	He: 3	(1)	14		63	46	54	12	36	0,11	2,6	
			1	Helium	100	He: 2	(1)	10		69	51	43	7,1	20	0,26	0,5	
			1	Helium	100	He: 2	(1)	30		99,4	84	86	90	72	0,20	2,0	
			1	Helium	100	He: 1,5	(1)	31		99,6	95	96	93	76	3,9	7,3	
	95		1	Helium			(17)			99,5	89,7	92,0	91,3	61,0	2,1	4,6	
	95		2800	Helium			(17)	21,2		99,9	92,2	98,2	98,5	90,4	2,1	6,6	
	95		11000	Helium			(17)	18,0		100	99,7	99,6	98,7	88,1	1,7	6,5	
	95		1	Luft			(17)			98,4	94,9	79,1	37,7	67,7	0,2	0,5	
	95		2800	Luft			(17)			100	99,7	93,6	92,5	95,0	0,4	1,8	
	95		11000	Luft			(17)	24,7		100	99,8	99,3	97,4	92,5	0,4	1,8	
	95		1	CO ₂			(17)	14,1		80,6	76,8	71,2	60,9	44,9	0,3	1,1	
	95		2800	CO ₂			(17)			99,9	98,7	98,6	90,2	74,3	0,5	2,5	
	95		11000	CO ₂			(17)			99,9	99,9	99,0	96,6	79,1	0,6	2,9	
	93-94		1	Helium	700	He: 4,75 + 1,0	(5)	22,6	0,097	92,9	98,1	81,0	62,5	0,45	0,33	4,8	0,05
	93-94		1	Helium	700	He: 5,0 + 1,5	(5)	15,1	0,157	98,0	98,3	82,8	66,0	0,05	0,47	2,57	0,07
	93-94		1	Helium	700	He: 4,75 + 2,0	(5)	25,6	0,156	99,3	98,8	99,1	59,6	0,32	0,41	2,95	0,17
	93-94		1	Helium	700	He: 4,5 + 2,5	(5)	12,6	0,246	99,0	95,0	98,9	72,0	0,33	0,53	2,4	0,13
	93-94		1	Helium	700	He: 4,5 + 1,5	(5)	13,7		98,7	88,4	91,8	80,2	0,20	0,26	2,6	0,40
	93-94		1	Helium	700	He: 4,5 + 2,5	(5)	12,6		99,3	92,9	96,2	89,4	0,70	0,50	3,6	0,10
	93-94		1	Helium	400	He: 5,0	(5)	7,1	0,8	63	47	56	44	1,6	1,6	5,3	
	93-94		1	Helium	400	He: 4,0	(5)	5,7	0,2	50	30	42	41	0,4	0,8	2,9	
	93-94		1	Helium	400	He: 4,4	(5)	6,9	0,3	34	25	33	40	0,05	1,2	4,3	
	93-94	Stahl	1	Helium	400	He: 4,7	(5)	5,0	0,2	56	52	31	46	0,5	1,0	4,2	
	93-94	Zr	1	Helium	400	He: 7,0	(5)	2,6	0,1	52	24	1,1	28	0,1	10,1	10,6	
	93-94	Zr	1	Helium	400	He: 6,7	(5)	5,2	0,04	41	50	0,6	32	0,2	10,0	7,5	
		Stahl	1	Dry He, 60 fpm			5 (22)	X			86	86	71	4		Sr-Ba: 1,4	Zr-Ce: 0,4
		Stahl	1	Moist He, 60 fpm			5 (22)	X	0-20		86	63	71	0,21		Sr-Ba: 0,79	Zr-Ce: 0,24
		Stahl	1	Moist Air, 40 fpm			5 (22)	X			95	95	92	22		Sr-Ba: 1,4	Zr-Ce: 0,75
		Stahl	1	Dry Air, 6 fpm			5 (22)	X			68	60	53	0,21		Sr-Ba: 1,6	Zr-Ce: 0,11
		Stahl	1	87%Dampf, 13%Luft, 60 fpm			5 (22)	X			67	92	42	0,79		Sr-Ba: 0,83	Zr-Ce: 0,13
		Stahl	1	87%Dampf, 12%He, 1%H, 60 fpm			5 (22)	X			73	87	30	1,2		Sr-Ba: 3,6	Zr-Ce: 0,47
		Stahl	1	Moist Air, 60 fpm			5 (22)	X			94	82	74	11		Sr-Ba: 1,4	Zr-Ce: 0,46
			1	Helium	360		(23)	X	0,81		70	90	82	1,1	2,5	9,0	1,0
			1	Helium	450		(23)	X	3,1		60	45	37	6,3	1,1	1,9	0,12
		Stahl	1	Luft			(1)				84	12	29				
		Stahl	1	Luft			(1)				64	12	37				
		Stahl	7900	Luft			(1)				55	37					
			1	Helium	2,4 fpm	He: 1,5 *	(24)				88,4	91,8	80,2			2,6	
			1	Helium	2,4 fpm	He: 2,5 *	(24)				92,9	96,2	89,4			3,6	
			1	Helium	2,4 fpm	He: 5,0 *	(24)				99,5	99,2	91,5			3,5	
			1	Helium	2,4 fpm	He: 10,0 *	(24)				98,5	99,9	95,0			6,6	
			1	Helium	12 fpm	He: 1 *	(24)				42,1	83,3	51,1			1,5	
			1	Helium	12 fpm	He: 5 *	(24)				84,1	84,4	63,7			2,5	
			1	Helium	24 fpm	He: 0,4 *	(24)				96,8	98,9	93,8			4,7	
			1	Helium	24 fpm	He: 4 *	(24)				80,2	91,7	41,9			3,8	

* Schmelzdauer

ORNL-LR-DWG. 27162A

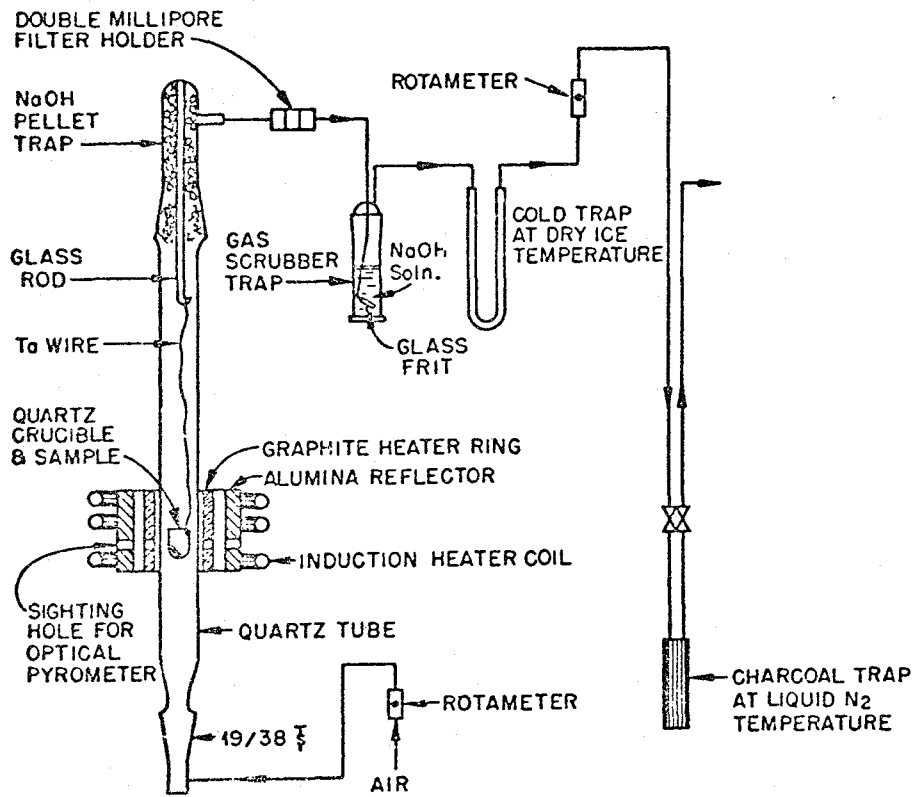


Bild 4.3.1 /1/ : Induction Heating Furnace and Fission-Product Traps for Air Melting Experiments.

ORNL-LR-DWG. 33662

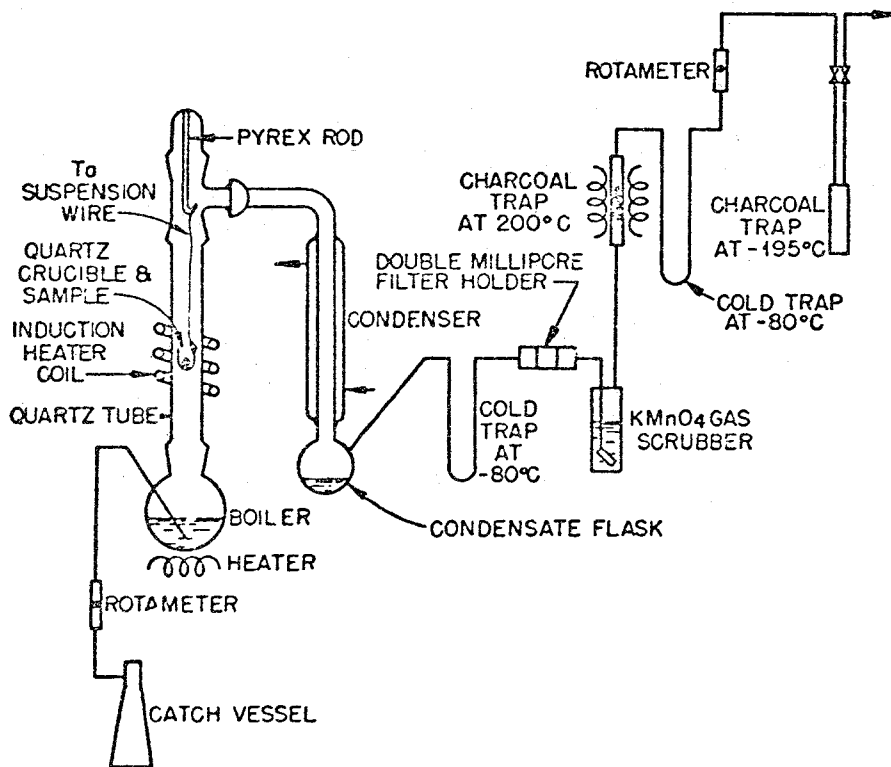


Bild 4.3.2 /1/ : Induction Heating Furnace and Fission-Product Traps for Melting Fuel Capsules in Steam.

ORNL-LR-OWG 50068A

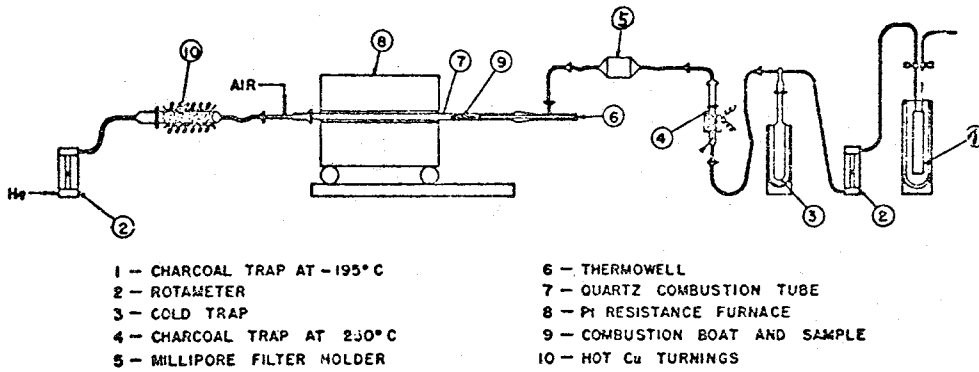


Bild 4.3.3 /1/ : Schematic Diagram of Fission Product Release Apparatus.

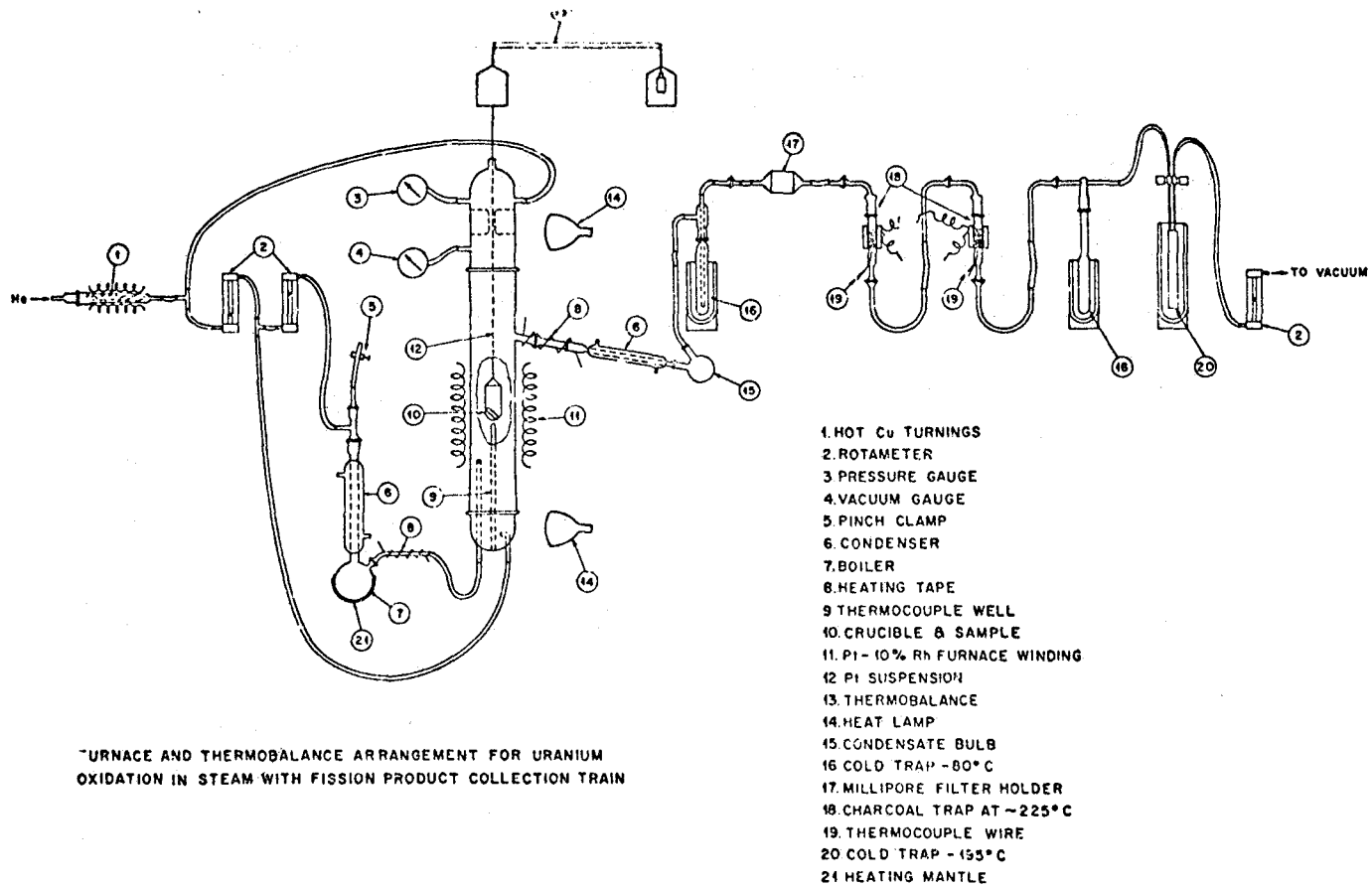


Bild 4.3.4 /1/ : Furnace and Thermobalance Arrangement for Uranium Oxidation in Steam with Fission Product Collection Train.

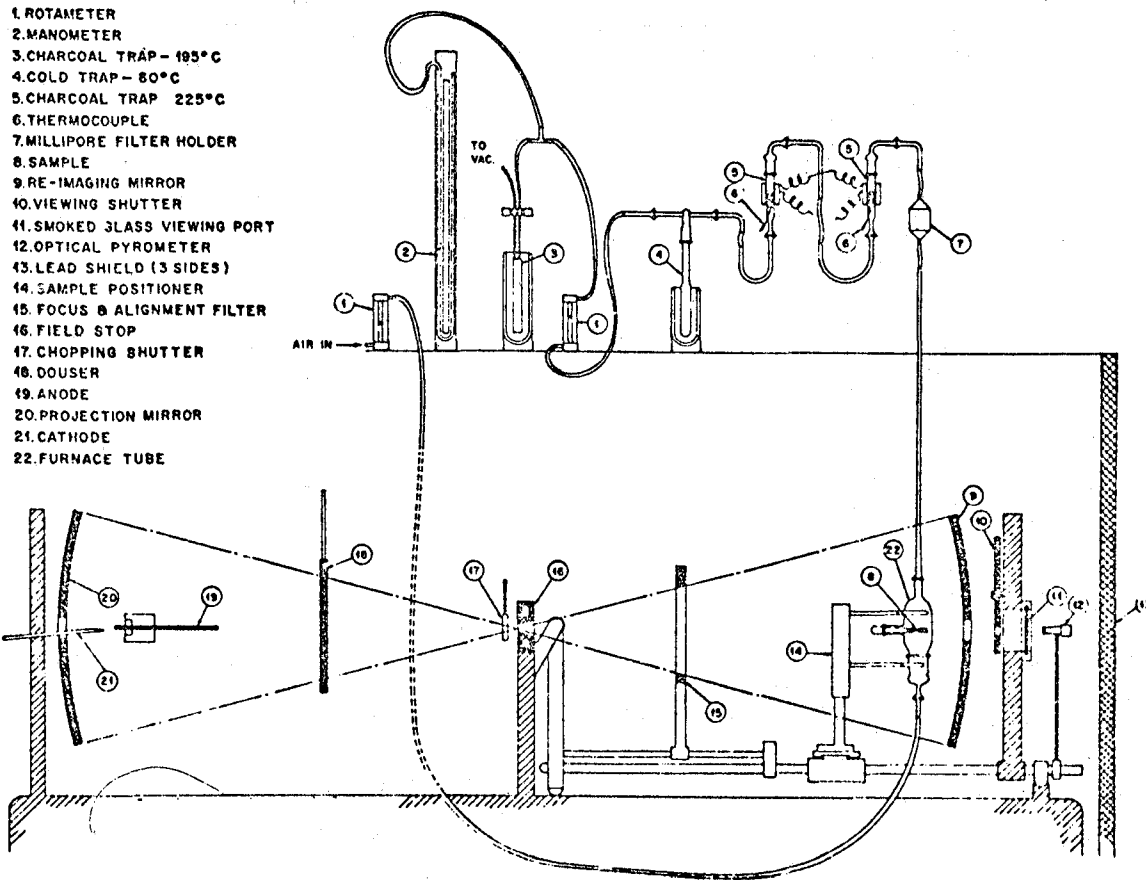


Bild 4.3.5 /1/ : Schematic Diagram of Arc-Image Furnace and Fission-Product Collection Train.

ORNL-LR-DWG. 54771

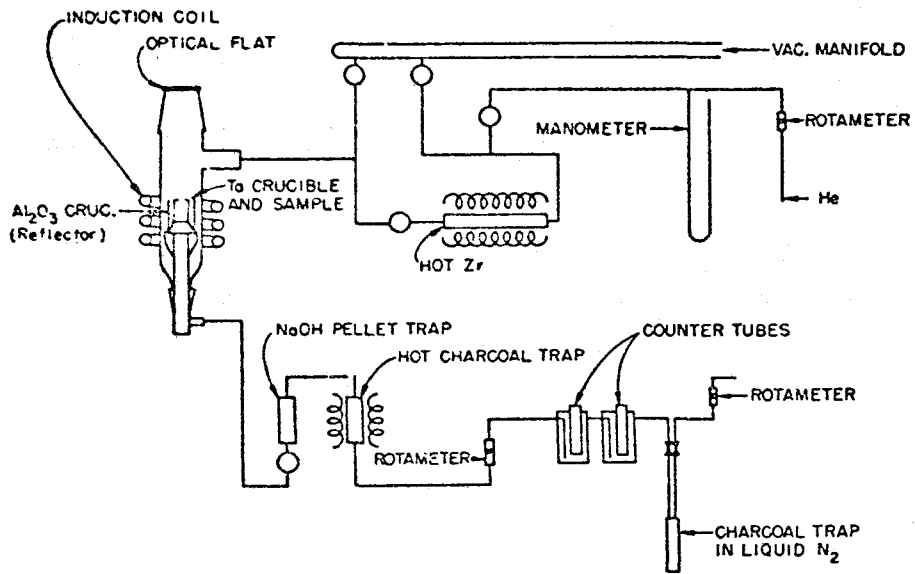


Bild 4.3.6 /1/ : Induction Furnace and Apparatus for Fission-Product Diffusion Studies with UO_2 in Helium.

ORNL-LR-DWG 7298C

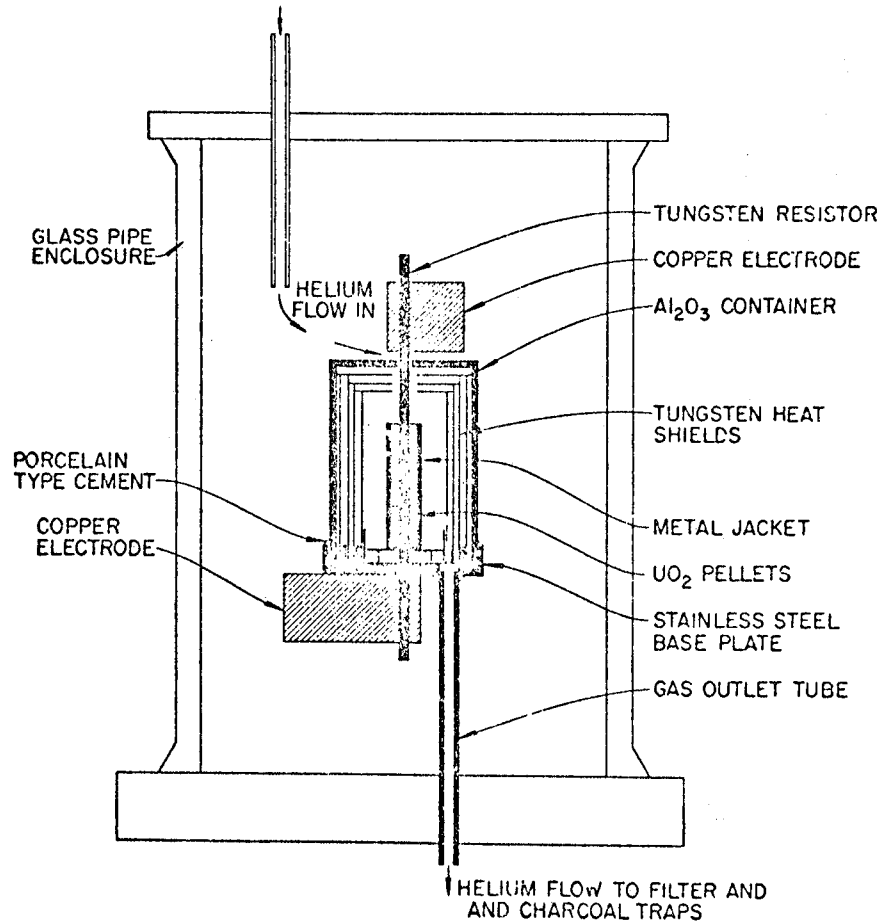


Bild 4.3.7 /1/ : Single Element Tungsten Resistor Furnace for Melting UO₂ Pellets in Helium.

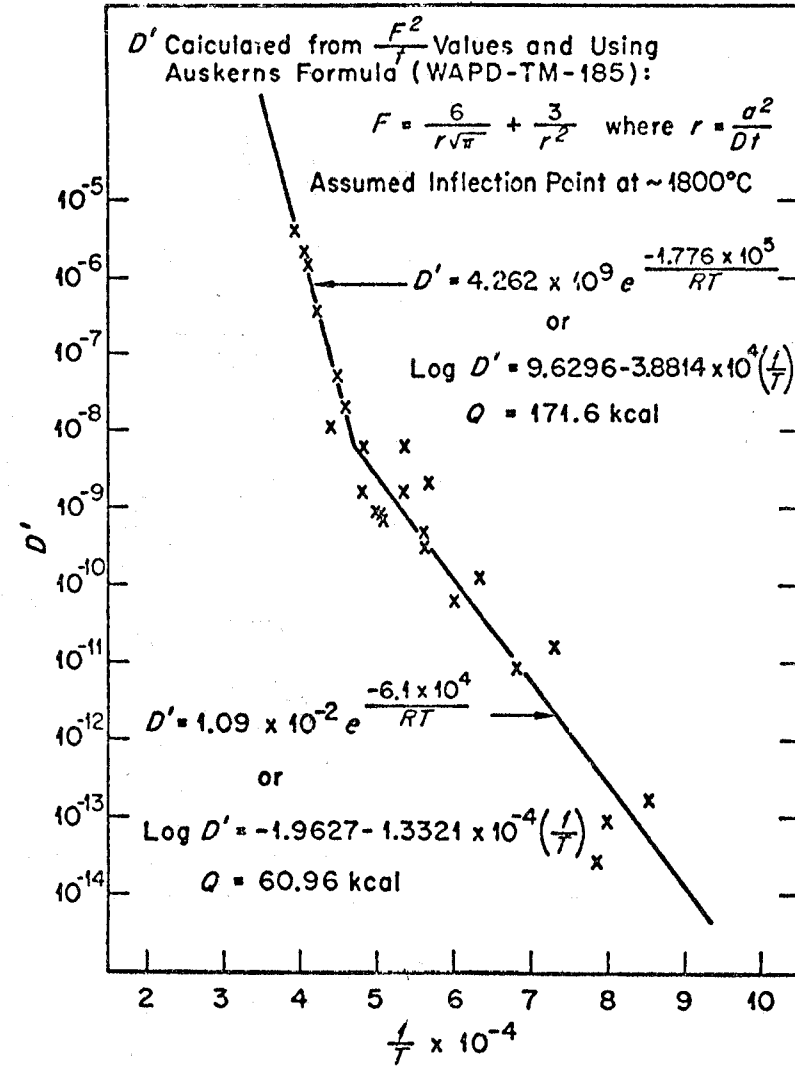


Bild 4.4.1 /1/ : Rare Gas Diffusion from PWR UO₂ in Helium.

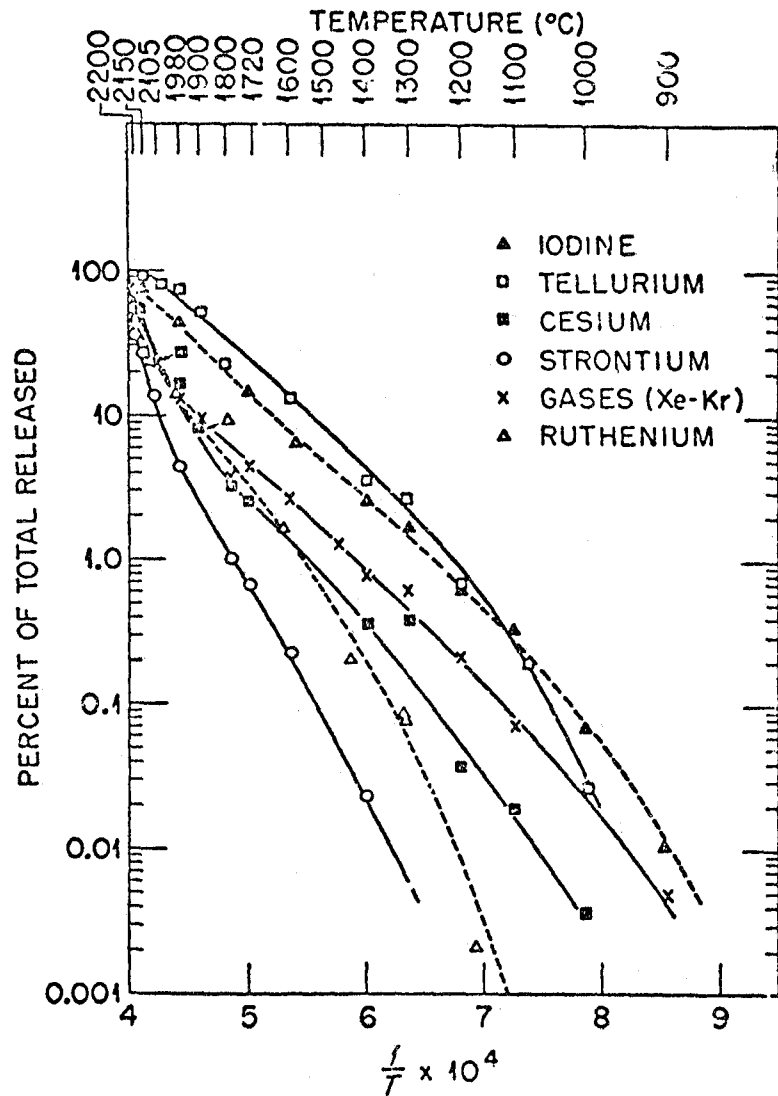


Bild 4.4.2 /1/ : Release of Fission Products by Diffusion from Trace-Level Irradiated UO_2 Heated in Pure Helium for Five Hours.

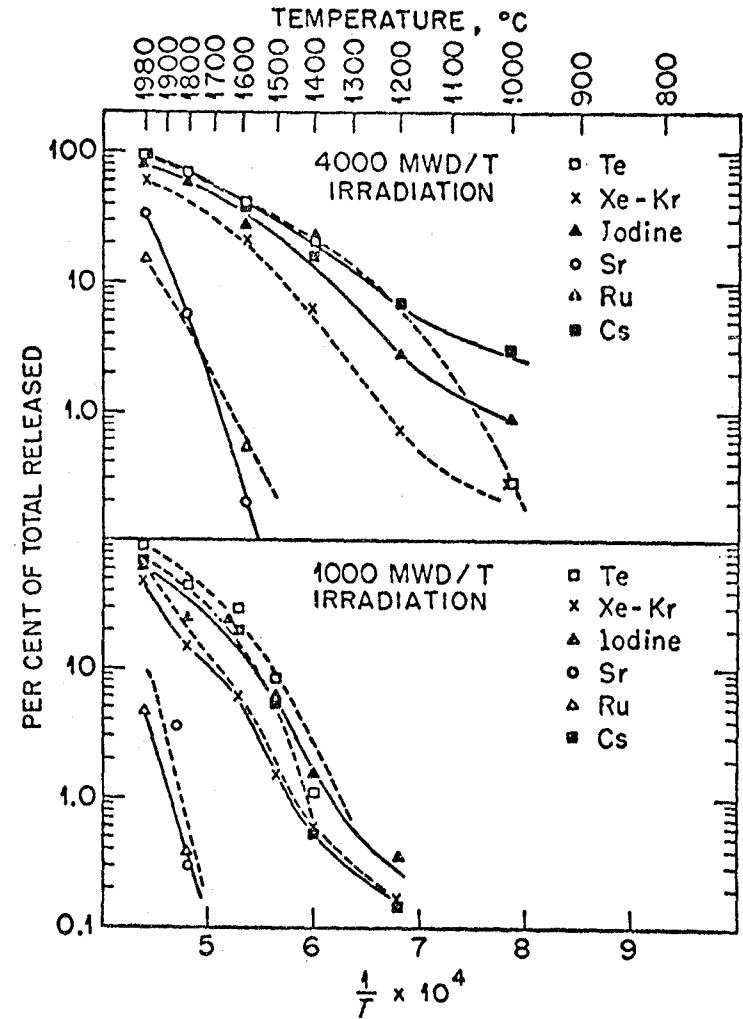


Bild 4.4.3 /1/ : Release of Fission Products by Diffusion from Highly-Irradiated PWR-Type UO_2 Heated 5.5 Hours in Purified Flowing Helium.

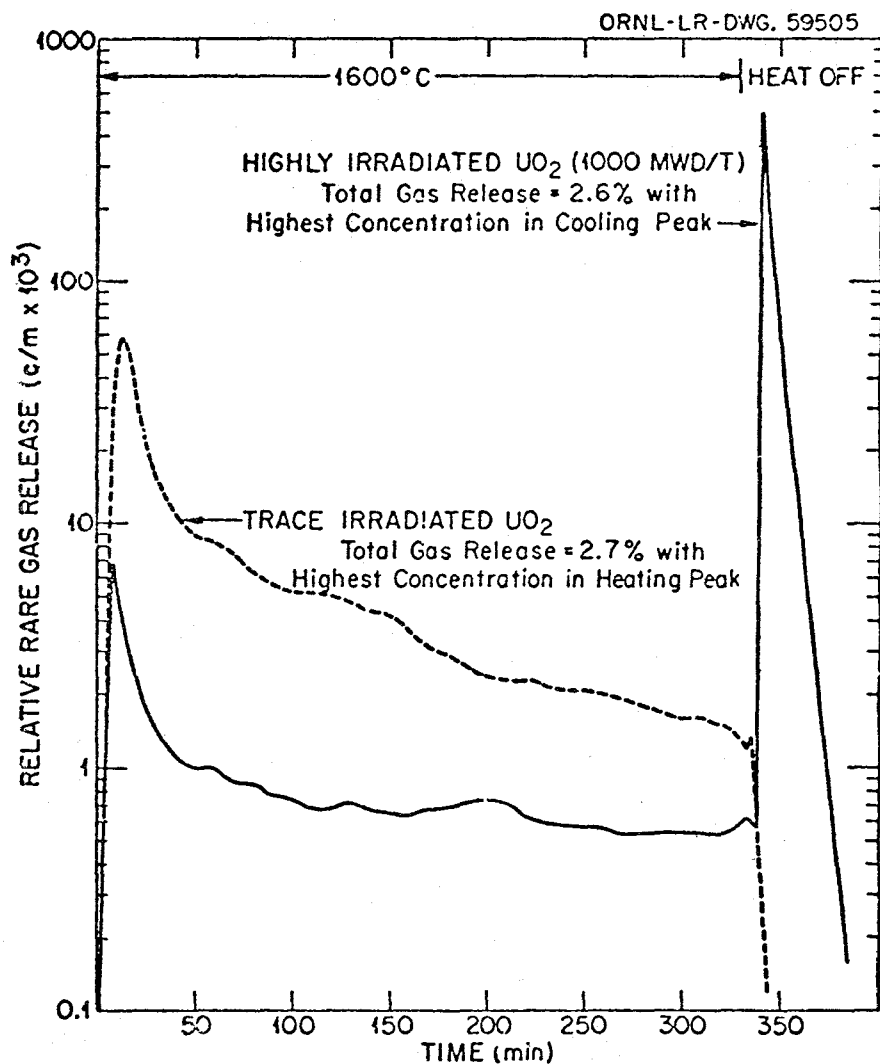


Bild 4.4.4 /1/ : Comparison of Rate of Release of Rare Gas from Trace-Irradiated and High-Burnup UO_2

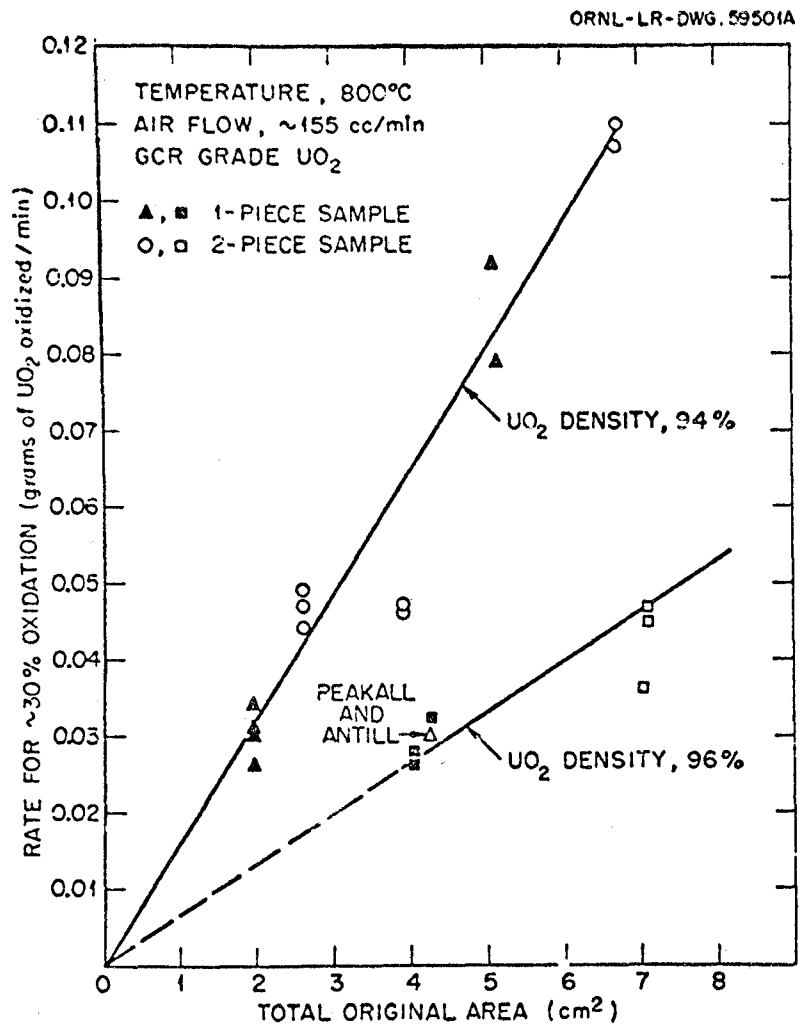


Bild 4.4.5 /1/ : Effect of Density on Rate of Oxidation of UO₂.

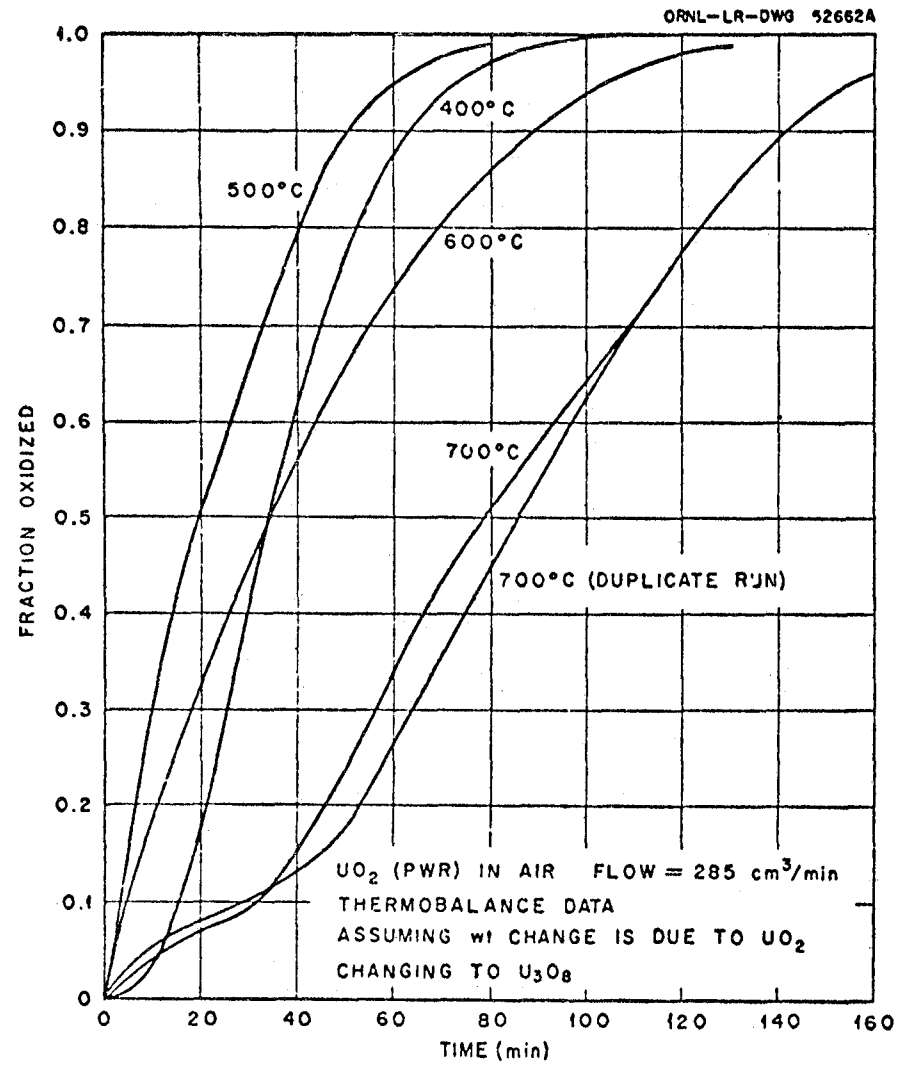


Bild 4.4.6 /1/ : Rate of Oxidation of UO₂ in Air at 400 to 700°C.

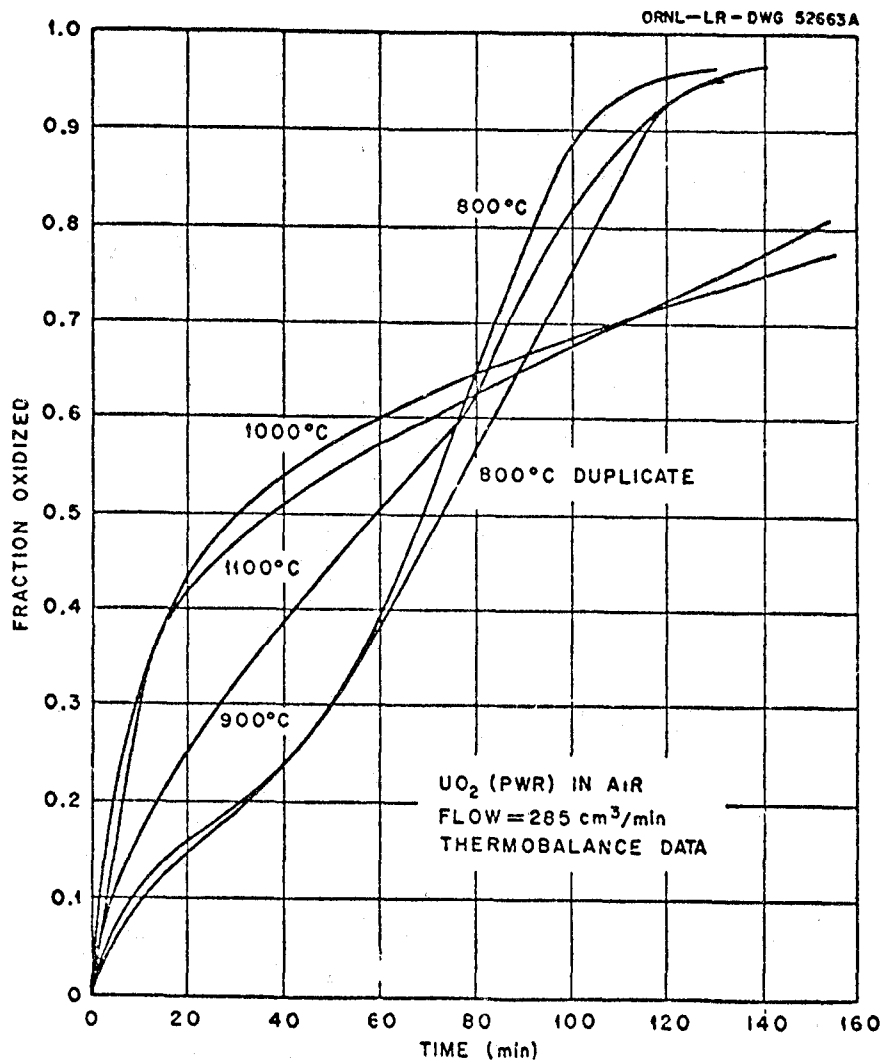


Bild 4.4.7 /1/ : Rate of Oxidation of UO_2 in Air at 800 to 1100°C.

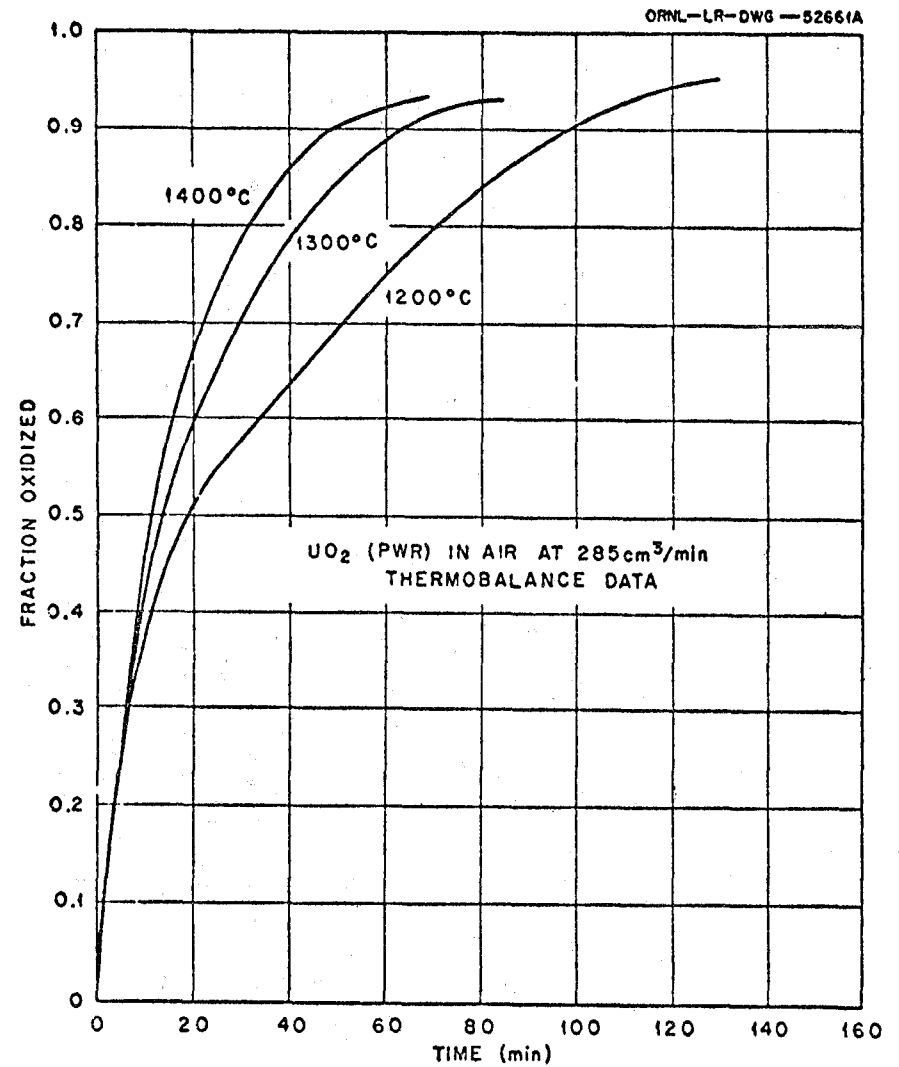


Bild 4.4.8 /1/ : Rate of Oxidation of UO_2 in Air at 1200 to 1400°C.

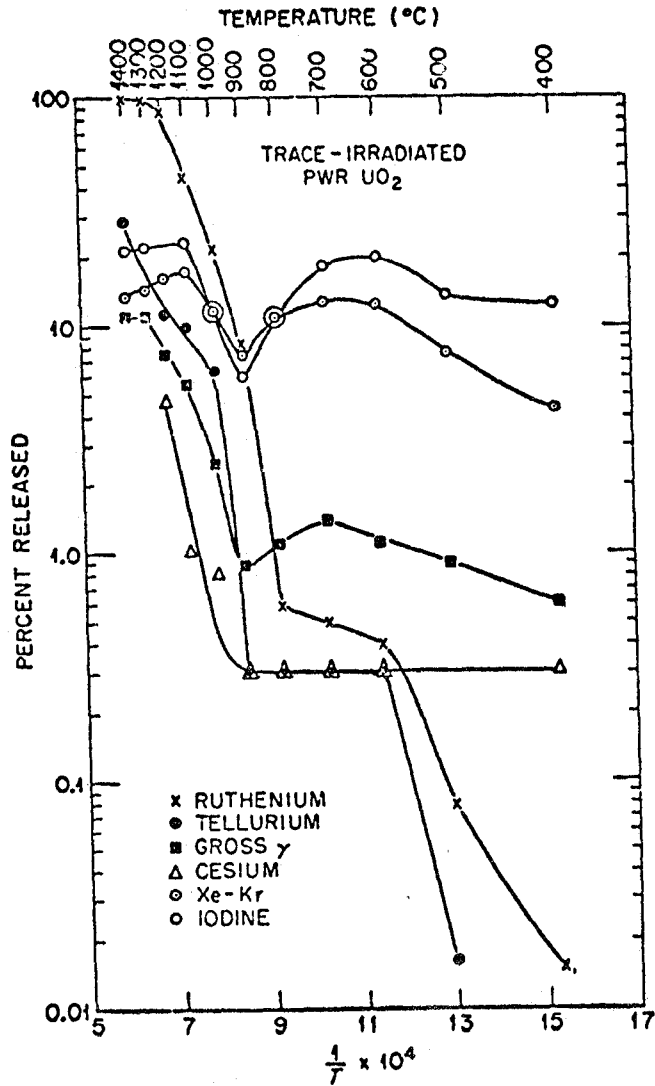


Bild 4.4.9 /1/: Fission Product Release by the Oxidation of UO₂ to U₃O₈ in Al₂, Showing Discontinuity Between 600°C and 900°C.

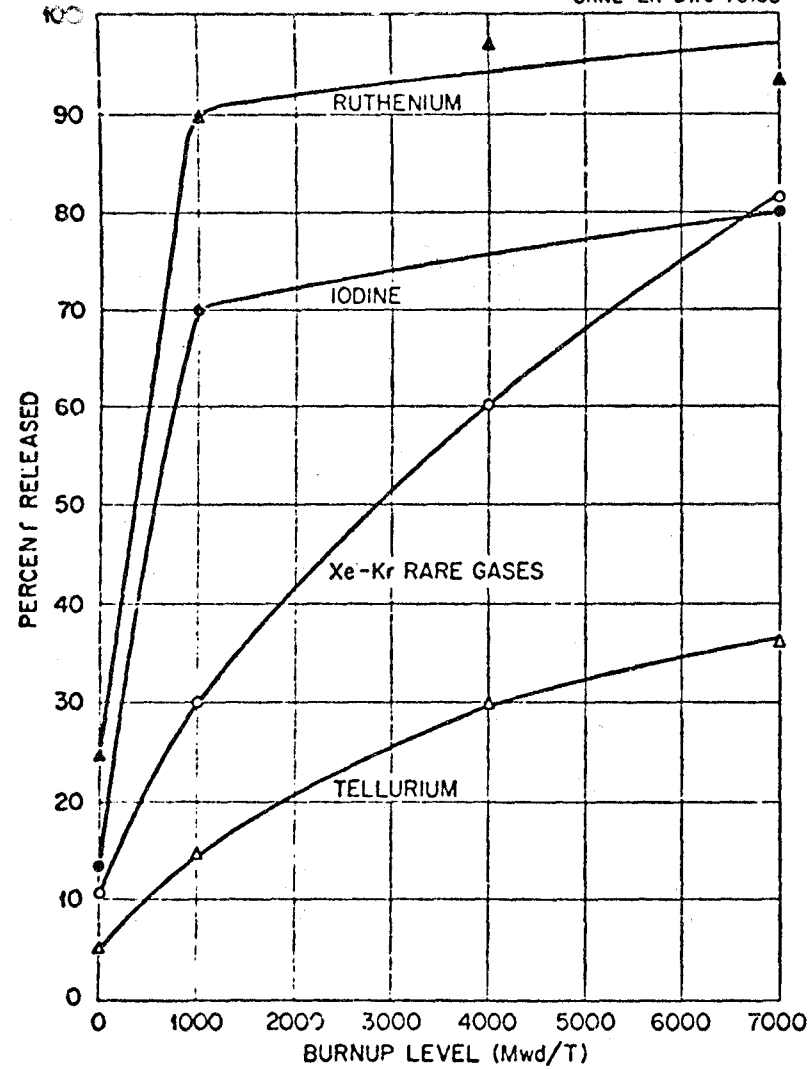
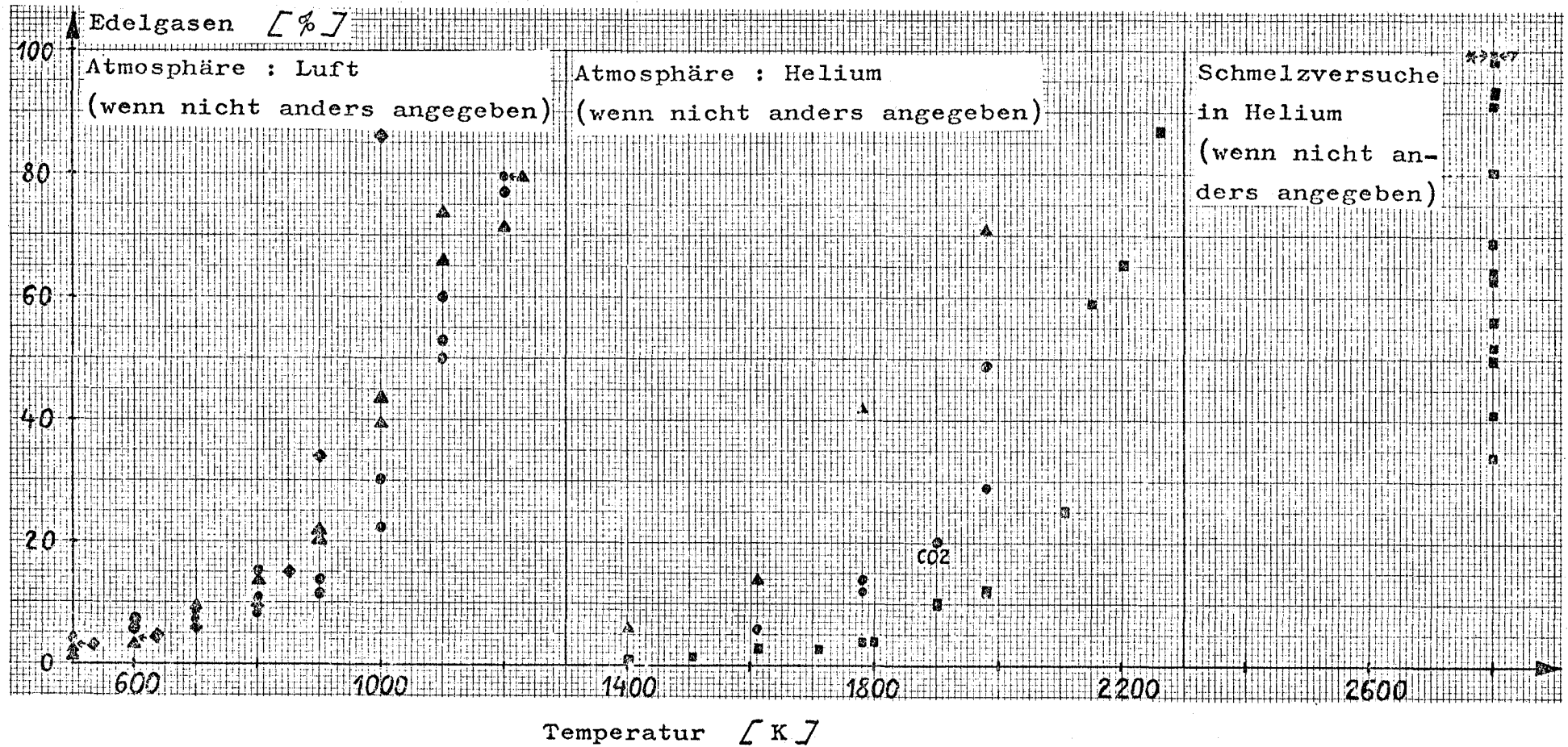


Bild 4.4.10 /1/: Effect of Burnup on Fission-Product Release by Oxidation at 1000° and 1200°C.

Bild 4.5.1

Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von



Zeichenerklärung:

- | | |
|--------------|---------------|
| ■ 1 MWd/t | ▲ 4000 MWd/t |
| ● 1000 MWd/t | ◆ 7000 MWd/t |
| ▼ 2800 MWd/t | * 11000 MWd/t |

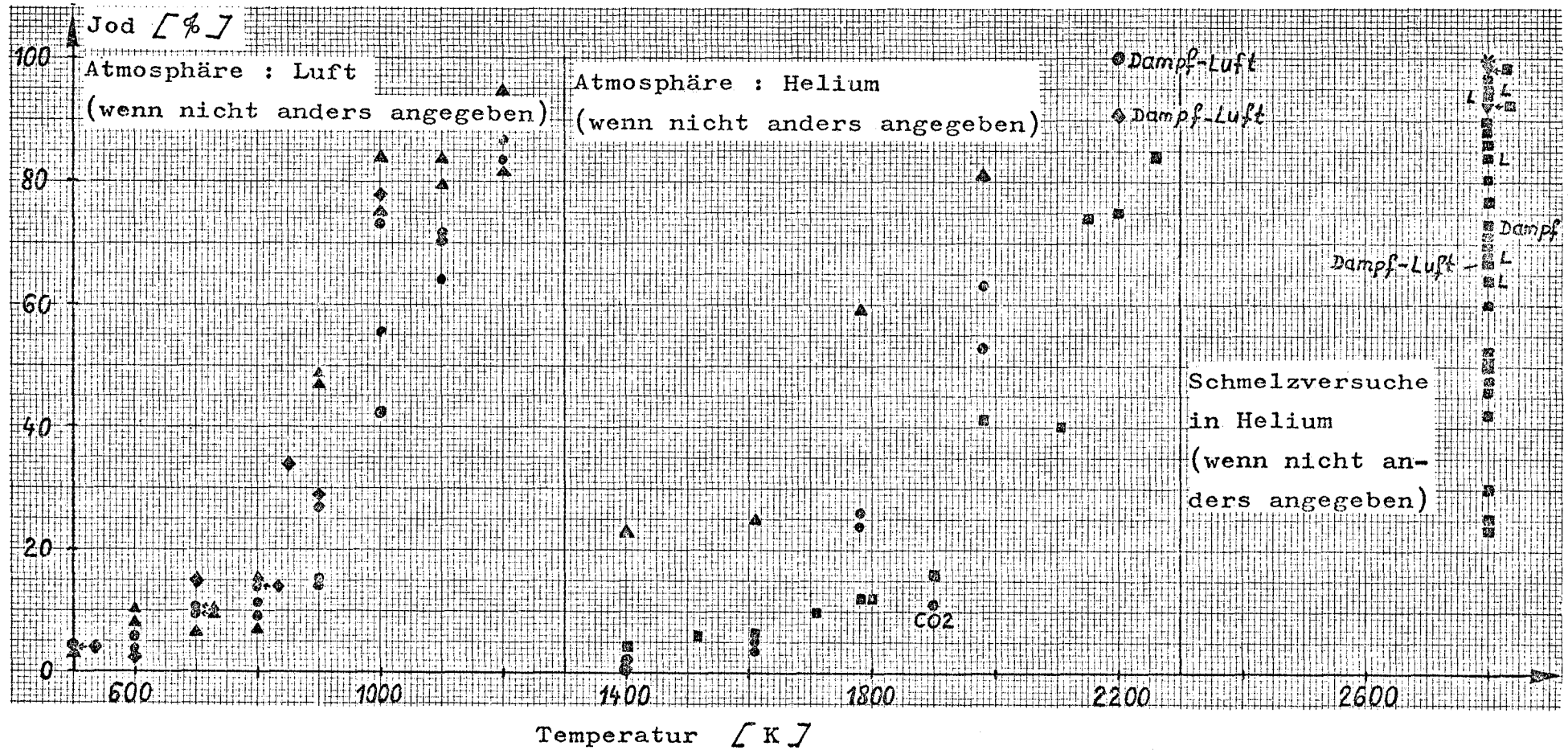
Abbrandgrad

- L Luft
- CO₂ CO₂ oder CO₂-Gemisch

Atmosphäre

Bild 4.5.2

Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von



Zeichenerklärung:

- 1 MWd/t
- 1000 MWd/t
- ▼ 2800 MWd/t

- ▲ 4000 MWd/t
- ◆ 7000 MWd/t
- * 11000 MWd/t

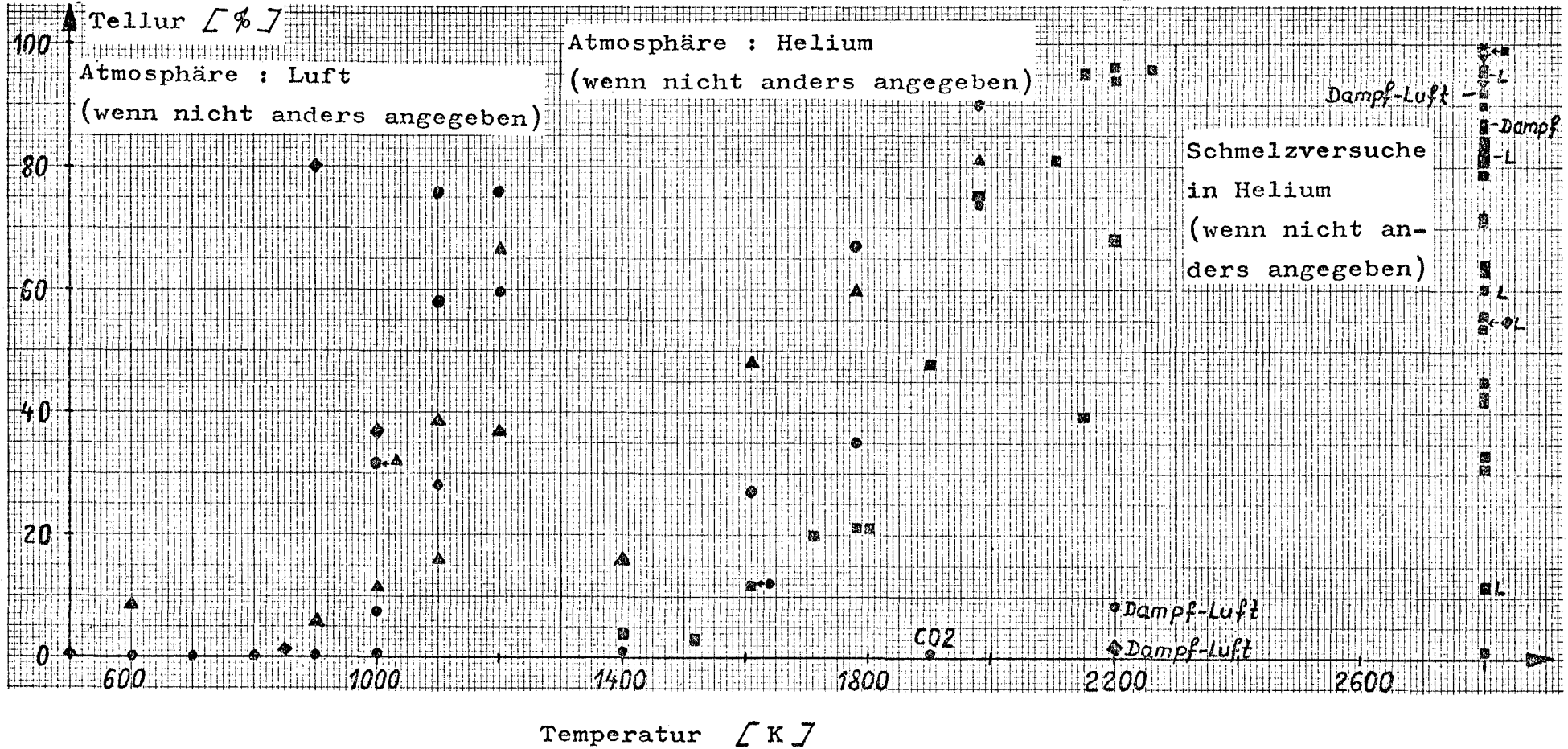
- L Luft
- CO2 CO2 oder CO2-Gemisch

Abbrandgrad

Atmosphäre

Bild 4.5.3

Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von



Zeichenerklärung:

- | | |
|--------------|---------------|
| ■ 1 MWd/t | ▲ 4000 MWd/t |
| ● 1000 MWd/t | ◆ 7000 MWd/t |
| ▼ 2800 MWd/t | * 11000 MWd/t |

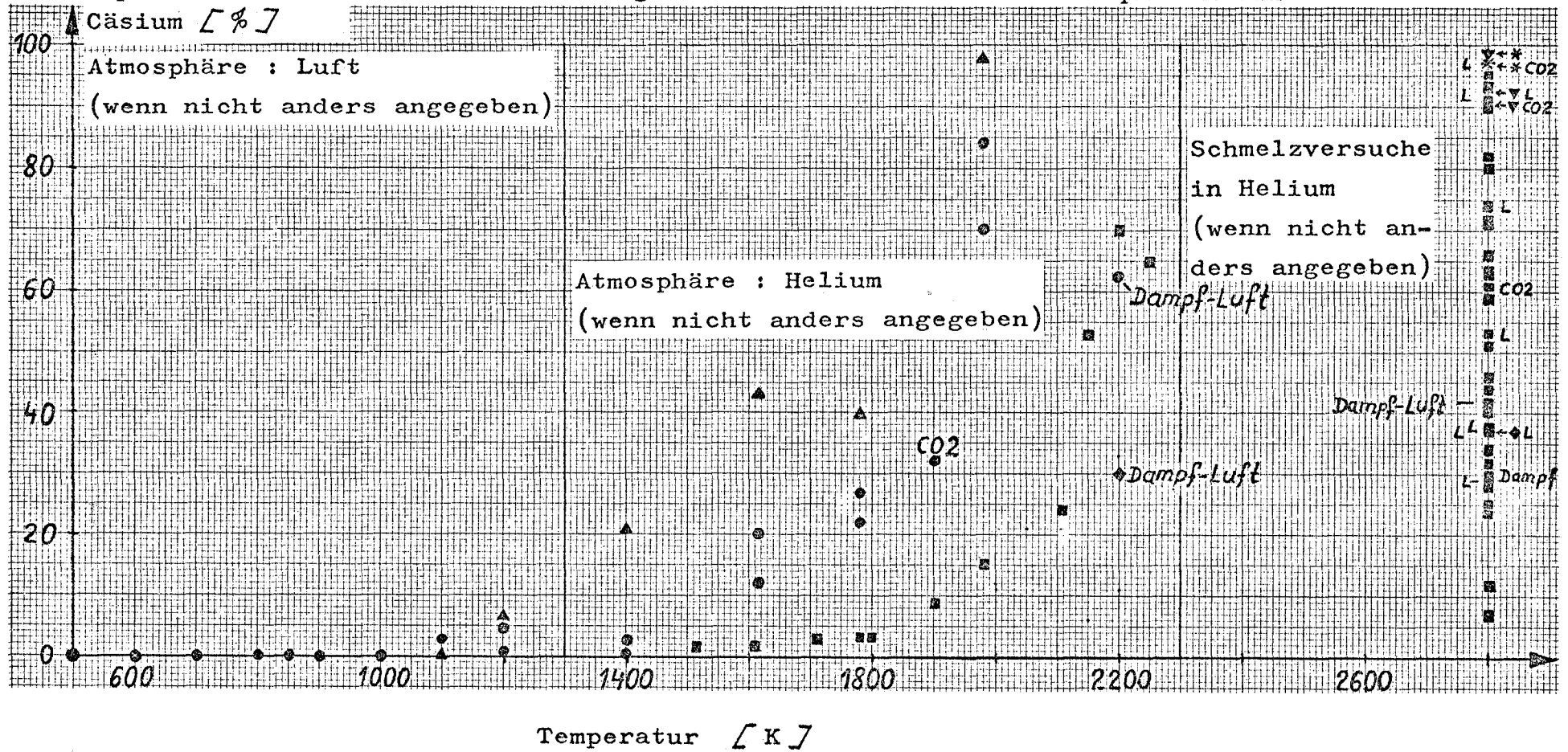
- L Luft
- CO₂ CO₂ oder CO₂-Gemisch

Abbrandgrad

Atmosphäre

Bild 4.5.4

Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von



Zeichenerklärung:

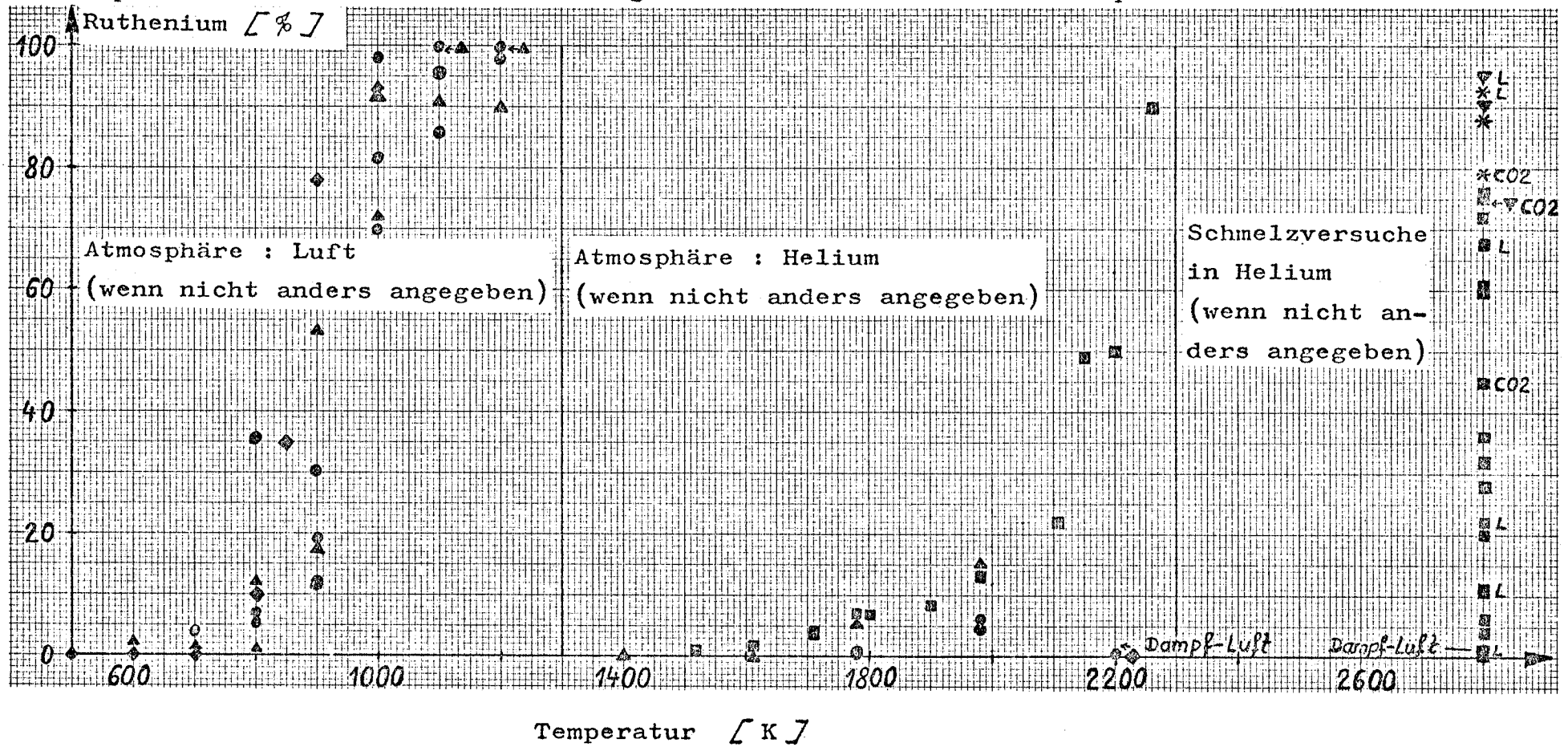
- 1 MWd/t
- ▲ 4000 MWd/t
-
- 1000 MWd/t
- ◆ 7000 MWd/t
- L Luft
- ▼ 2800 MWd/t
- * 11000 MWd/t
- CO2 CO2 oder CO2-Gemisch

Abbrandgrad

Atmosphäre

Bild 4.5.5

Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von



Zeichenerklärung:

- 1 MWd/t
- 1000 MWd/t
- ▼ 2800 MWd/t

- ▲ 4000 MWd/t
- ◆ 7000 MWd/t
- * 11000 MWd/t

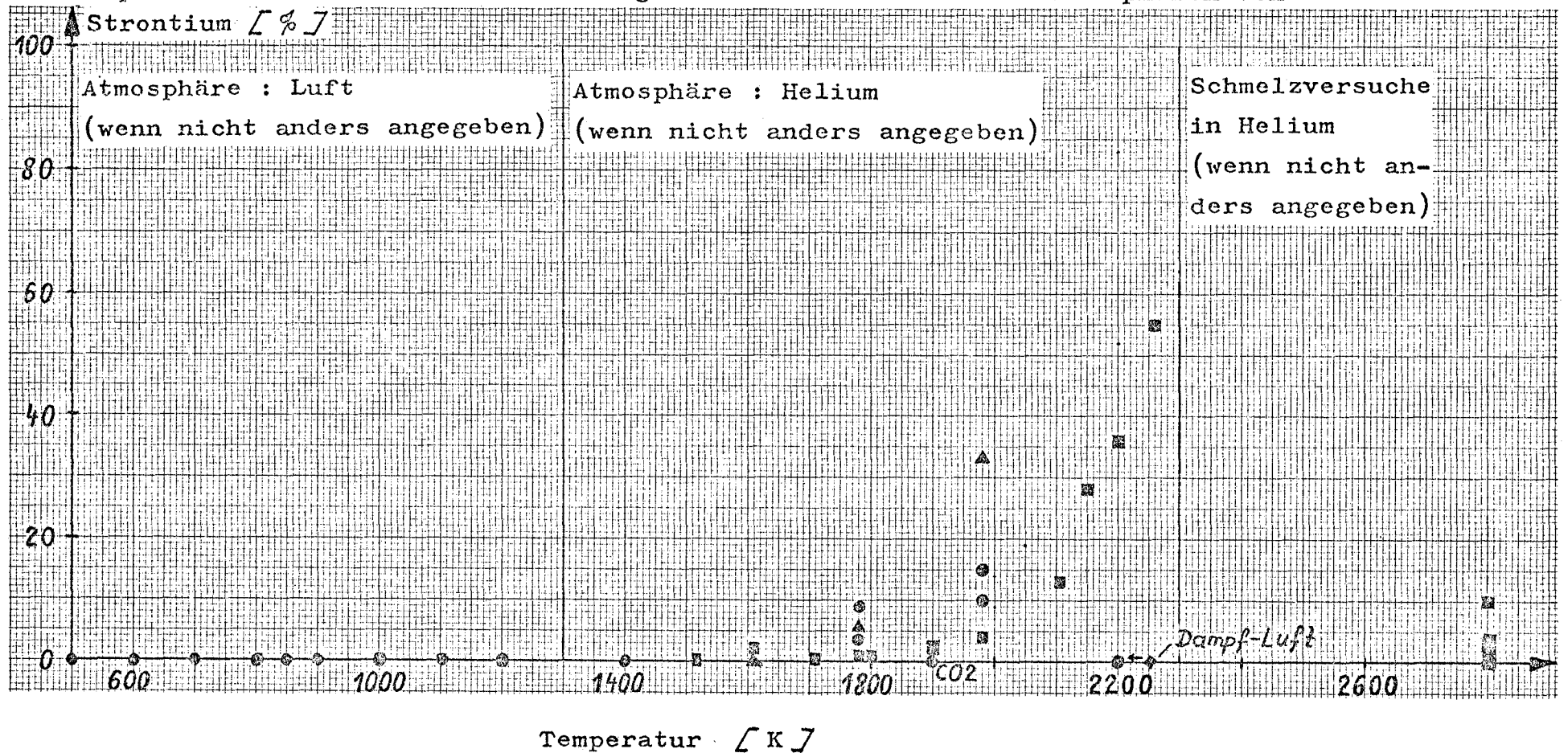
- L Luft
- CO2 CO2 oder CO2-Gemisch

Abbrandgrad

Atmosphäre

Bild 4.5.6

Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von



Zeichenerklärung:

- 1 MWd/t
- 1000 MWd/t
- ▼ 2800 MWd/t

- ▲ 4000 MWd/t
- ◆ 7000 MWd/t
- * 11000 MWd/t

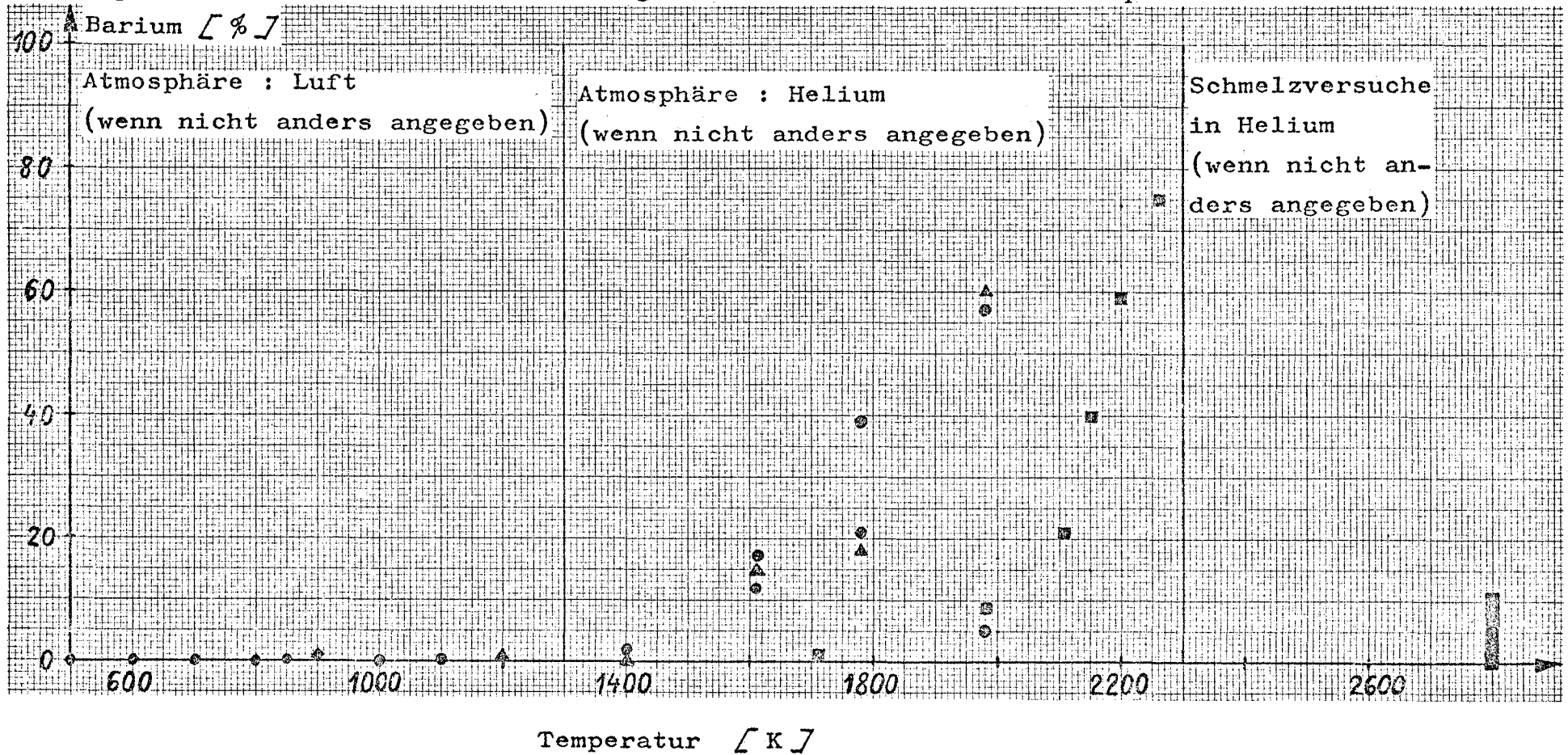
- L Luft
- CO₂ CO₂ oder CO₂-Gemisch

Abbrandgrad

Atmosphäre

Bild 4.5.7

Experimentell bestimmte Freisetzungsraten in verschiedenen Atmosphären von



Zeichenerklärung:

- 1 MWd/t
- 1000 MWd/t
- ▼ 2300 MWd/t

- ▲ 4000 MWd/t
- ◆ 7000 MWd/t
- * 11000 MWd/t

- L Luft
- CO2 CO2 oder CO2-Gemisch

Abbrandgrad

Atmosphäre

4.6 Literaturverzeichnis

- / 1 / G. W. Parker, C. J. Barton, G. E. Creek, W.J. Martin
and R. A. Lorenz
Out-of-Pile Studies of Fission-Product Release from
Overheated Reactor Fuels at ORNL, 1955-1965
USAEC Report ORNL-3981, July 1967
- / 2 / G. E. Creek, W.J. Martin and G.W. Parker
Experiments on the Release of Fission Products from
Molten Reactor Fuels
USAEC Report ORNL-2616, July 1959
- / 3 / G. W. Parker, G.E. Creek, W.J. Martin and C.J. Barton
Fuel Element Catastrophe Studies: Hazards of Fission
Product Release from Irradiated Uranium
USAEC Report ORNL-CF-60-6-24, June 1960
Fuel Element Decomposition Products
Seventh Air Cleaning Conference, Brockhaven,
October 10 - 12, 1961, USAEC Report TID-7627,
P. 263, March 1962
- / 4 / G.W. Parker, G.E. Creek and W. J. Martin
Preliminary Report on the Release of Fission
Products on Melting GE-ANP Fuel
USAEC Report ORNL-CF-60-1-50, January 1960
and Suppl. March 1960
- / 5 / G.W. Parker, G.E. Creek, W.J. Martin and R.A. Lorenz
Release of Fission Products on Out-of-Pile Melting
of Reactor Fuels
USAEC Report ORNL-3401, p. 5, February 1963

- / 6 / G. W. Parker et al.
Properties of Fission Product Aerosols Produced
by Overheated Reactor Fuels
USAEC Report ORNL - 3547, p. 3, March 1964
- / 7 / G. W. Parker and W. J. Martin
The Containment Research Installation
USAEC Report ORNL - 3915, p. 37, March 1966
- / 8 / G. W. Parker, G. E. Creek and W. J. Martin
Fission Product Release from Reactor Grade-UO₂
by Oxidation, Diffusion and Melting
USAEC Report ORNL-3176, p. 68-72, September 1961
- / 9 / G. W. Parker, G. E. Creek, R.A. Lorenz and W.J.Martin
Parametric Studies of Fission Product Release
from UO₂ Fuels
USAEC Report TID-7641, p. 15, June 1963.
Third Conference on Nuclear Reactor
Chemistry, Gatlinburg, October 9-11, 1962
- /10 / G. W. Parker, R.A. Lorenz, C.E. Miller, Jr. and J.G.
Wilhelm
Release of Fission Products on In-Pile Melting of Reactor
Fuels under Transient Reactor Conditions
USAEC Report ORNL-3691, November 1964
- /11/ Ibid, USAEC Report ORNL-3547, p. 25, March 1964

- /12/ G. W. Parker, G. E. Creek and W. J. Martin
Release of Fission Products from Reactor-Grade
UO₂ by Diffusion, Oxidation and Melting
USAEC Report TID-7622, p. 149, July 1962
Second Conference on Nuclear Reactor
Chemistry, Gatlinburg, October 10-12, 1961
- /13/ G. W. Parker, G. E. Creek and W. J. Martin
Fission Product Release from UO₂ under Simulated
Reactor Accident Conditions
USAEC Report TID-7610, p. 26, 1961
First Conference on Nuclear Reactor Chemistry,
Gatlinburg, October 12-14, 1960
- /14/ G. W. Parker, G. E. Creek and W. J. Martin
Fission Product Release from UO₂ by High
Temperature Diffusion and Melting in
Helium and Air
USAEC Report ORNL-CF-60-12-14, February 1961
- /15/ G. W. Parker and R. A. Lorenz
Fission Product Release from a Cluster of
Center-Heated UO₂ Fuel Pins
American Nuclear Society Meeting, Salt Lake
City, June 17-19, 1963. Trans.Am.Nucl. Soc.
6 (1) 124 (1963)
- /16/ G. W. Parker, et al.
Release and Transport of UO₂ Fission Products
in the Confinement Mockup Facility
USAEC Report ORNL-3691, p.3, November 1964

- /17 / G.W. Parker, G.E. Creek, W.J. Martin
Influence of Irradiation Level on Fission
Product Hazards Associated with UO_2 -Fueled
Reactors
USAEC Report ORNL - 3262, p. 166, 1962
- /18 / Wm. B. Cottrell and A.W. Savolainen
A Compilation of Current Practice in Analysis,
Design, Construction, Test and Operation
USAEC Report ORNL-NSIC-5, August 1965
- /19 / G. W. Parker et al.
Release of Fission Products on Out-of-Pile
Melting of Reactor Fuels,
Nuclear Safety Program Semiannual Progress Report
of Period Ending June 30, 1962, USAEC Report
ORNL-3319, Oak Ridge National Laboratory, 1962
- /20 / J.R. Beattie and Pamela M. Bryant
Assessment on Environmental Hazards from
Reactor Fission Product Releases
AHSB (S) R 135, 1970
- /21 / C. E. Miller, Jr.
The Light Bulb Model for Release of Fission
Products
Reactor Chemistry Division Annual Progress
Report for Period Ending December 31, 1966,
USAEC Report
ORNL-4076, March 1967

- /22 / W. E. Browning, Jr. et al.
Behavior of Fission Products Released During
In-Pile Simulated Loss-of-Codant Accidents
USAEC Report ORNL-3789, p. 263, April 1965
- /23 / G.W. Parker et al.
Fission Products Released by Nonnuclear Heating
of Fuel Materials
USAEC Report ORNL-3591, p. 167, 1964
- /24 / G. W. Parker et al.
Release of Fission Products on Out-of-Pile
Melting of Reactor Fuels
USAEC Report ORNL-3483, p. 9, 1963
- / 25 / J. Belle, Editor
UO₂: Properties and Nuclear Applications
USAEC, Juli 1961

Weitere gesichtete Literatur:

D. Davies, G. Long, W. P. Stanaway
The Emission of Volatile Fission Products from
Uranium Dioxide
AERE-R 4342, 1963

B. V. Samsonov, V. V. Sidorov
Kinetics of Fission-Fragment Yield During Changes
of Reactor Power
AERE-Trans 1122, 1969

D. L. Morrison
An Evaluation of the Applicability of Existing Data
to the Analytical Description of a Nuclear Reactor
Accident
BMI-1779, 1966

R. L. Ritzman, R. B. Price, D. L. Morrison
Fission-Gas Behavior in High-Temperature Materials
BMI-1830, 1968, p. 99

D. L. Morrison
An Evaluation of the Applicability of Existing Data
to the Analytical Description of a Nuclear Reactor
Accident
BMI-1844, 1968, p. 38

Donald L. Keller, Walston Chubb
Progress on High-Temperature Fuels Technology
During August, 1968, Through July, 1969
BMI-1870, 1969

W. A. Carbiener
An Evaluation of the Applicability of Existing Data
to the Analytical Description of a Nuclear Reactor
Accident
BMI-1877, 1970

W. A. Carbiener

An Evaluation of the Applicability of Existing Data
to the Analytical Description of a Nuclear Reactor
Accident

BMI-1881, 1970

G. M. Allison, H. K. Rae

Fission Gas and Iodine Release into Experimental
Coolant Systems from Planned and Unplanned Defects
in Uranium Dioxide Fuel Elements

Conf-650407, 1965, p. 1

A. W. Castleman, I. N. Tang, H. R. Munkelwitz

Chemical Reactions and Transport Behavior of Fission-
Fragment Iodine

Conf-650407, 1965, p. 325

J. P. Hoffmann, D. H. Coplin

The Release of Fission Gases from Uranium Dioxide
Pellet Fuel Operated at High Temperatures

GEAP-4596, 1964

R. C. Nelson et al.

Fission Gas Release from UO_2 Fuel Rods with Gross
Central Melting

GEAP-4572, 1964

R. N. Osborne

Analysis of Fission Product Release Related to
Centermelt Fuel Failures

GEAP-10039, 1969

E. Hoinkis

Chemische Aspekte der Reaktorsicherheit

HMI-B99, 1970

B. R. Hunter et al.

Sampling and Analysis of Fission Products During
the Loss-of Fluid Test (LOFT)

IDO-17151, 1966

K. A. Kietz

Quarterly Technical Report Step Project January 1 -
March 31, 1967

IDO-17239, 1967

D. R. O' Boyle, F. L. Brown, J. E. Sanecki

Solid Fission Product Behavior in Uranium-Plutonium
Oxide Fuel Irradiated in a Fast Neutron Flux

Journal of Nuclear Materials, 29 (1969), p. 27

R. M. Carroll

Fission-Gas Behavior in Fuels

Nuclear Safety, 10, No 3 (May-June 1969), p. 210

W. E. Browning et al.

Release of Fission Products During In-Pile Melting
of UO₂

Nuclear Science and Engineering, 18, 1964, p. 151

Seymour Katcoff

Fission-Product Yields from Neutron-Induced Fission
Nucleonics, Vol. 18, No 11 (Nov. 1960), p. 201

J. O. Blomeke et al.

Uranium-235 Fission-Product Production as a Function
of Thermal Neutron Flux, Irradiation Time, and Decay
Time

ORNL-2127, 1957, Vol. 1 and 2

O. Sisman, J. G. Morgan

Postirradiation Examination of Fuel Materials

ORNL-3417, 1963, p. 189

G. W. Parker, W. J. Martin, G. E. Creek, R. A. Lorenz
Release of Fission Products on Out-of-Pile Melting
of Reactor Fuels
ORNL-3483, 1963, p. 9

W. E. Browning, B. F. Roberts, C. E. Miller, R. P. Shields
Behavior of Fission Products Released During In-Pile
Destruction of Reactor Fuels
ORNL-3547, 1964, p. 42

W. E. Browning, R. P. Shields, C. E. Miller, B. F. Roberts
Behavior of Fission Products Released During In-Pile
Destruction of Reactor Fuels
ORNL-3691, 1964, p. 29

O. Sisman, H. W. Savage, G. W. Watson
Investigations of Fission-Product Behavior
ORNL-3731, 1965, p. 111

R. M. Carroll et al.
Fission-Gas Release During Fissioning of UO_2
ORNL-3789, 1965, p. 223

G. W. Parker et al.
Experiments with the Containment Mockup Facility
ORNL-3789, 1965, p. 251

G. W. Parker, R. A. Lorenz, J. G. Wilhelm
Release of Fission Products During Melting of Fuels
under Reactor Transient Conditions
ORNL-3789, 1965, p. 271

R. M. Carroll et al.
Fission-Gas Release During Fissioning of UO_2
ORNL-3913, 1966, p. 99

G. W. Parker et al.
Fission Products from High-Burnup UO_2
ORNL-3913, 1966, p. 138

R. M. Carroll et al.

Fission-Gas Release During Fissioning of UO_2
ORNL-4076, 1967, p. 109

G. W. Parker, R. A. Lorenz, J. G. Wilhelm

Fission Products from Fuels under Reactor-Transient
Conditions
ORNL-4076, 1967, p. 152

G. E. Creek, W. J. Martin, R. A. Lorenz, G. W. Parker

Fission Products from Zircaloy-Clad High-Burnup UO_2
ORNL-4076, 1967, p. 157

G. W. Parker et al.

Prompt Release of Fission Products from Zircaloy-
Clad UO_2 Fuels
ORNL-4228, 1968

R. M. Carroll et al.

Fission-Gas Release During Fissioning of UO_2
ORNL-4229, 1968, p. 138

S. H. Freid et al.

Fission Product Behavior During In-Pile Melting
of Reactor Fuels
ORNL-4229, 1968, p. 149

H. J. de Nordwell et al.

In-Pile Behavior of HTGR Fuel Elements in Mixtures
of Steam and Helium
ORNL-4229, 1968, p. 151

G. W. Parker, R. A. Lorenz

Fission Products from Fuels under Reactor-Transient
Conditions
ORNL-4229, 1968, p. 152

M. F. Osborne, G. W. Parker
Prompt Release of Fission Products from Highly
Rated Zircaloy-Clad UO_2 Fuel
ORNL-4229, 1968, p. 174

Nuclear Safety Program, Annual Progress Report
for Period Ending December 31, 1968
ORNL-4374, 1969

Wm. B. Cottrell and A. W. Savolainen
A Compilation of Current Practice in Analysis,
Design, Construction, Test, and Operation
ORNL-NSIC-5, 1965

L. F. Parsly and T. H. Row
Behaviour of Fission Products Released from
Synthetic High-Burnup UO_2 in Steam Atmospheres
ORNL-TM-1968, 1967

A. P. Malinauskas, J. W. Gooch, J. D. Redman
High-Temperature Behavior of Gasborne Fission
Products
ORNL-TM-2368, 1968, p. 110

M. H. Fontana
An Estimate of the Enhancement of Fission Product
Release from Molten Fuel by Thermally Induced
Internal Circulation
ORNL-TM-2448, 1969

H. Kaneko, Y. Tabata, M. Koizumi
Behaviour of Fission in UO_2 and PuO_2-UO_2 (I)
PNCT-AR-68, 1969, p. 66

F. A. Nichols, H. R. Warner
Interactions of Fission-Gas Bubbles with Structural
Defects and Release from Nuclear Fuels
Transactions, Nov. 1968

R. K. Hilliard, D. L. Reid, L. F. Coleman
Fission-Product Release from Metallic Uranium
Trans. Am. Nucl. Soc. 1963, p. 128

A. W. Castleman
Chemical Considerations in Reactor Safety: The
Chemical State of Fission Products Released from
Uranium at High Temperature
Trans. Am. Nucl. Soc. 1963, p. 128

5. Modell und Programmerstellung für die Berechnung der zeitabhängigen Wärmequellstärke im Brennstoff (bzw. in einer Coreschmelze) aus dem Spaltproduktzerfall nach partieller oder vollständiger Austreibung einzelner chemischer Elemente oder Elementgruppen.
(E. Waibel, Institut für Reaktorentwicklung, Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe)
-

5.1 Zusammenfassung

Am Beispiel eines Druck- und eines Siedewasserreaktors werden mit dem Programm REST Vergleichsrechnungen zur Bestimmung der mittleren Rest-Wärmequellstärke im Brennstoff des abgeschalteten Reaktors durch den Spaltproduktzerfall durchgeführt. Dabei wird Entweichen von Spaltprodukten nach einem postulierten Störfall berücksichtigt und die Wärmequellstärke sowohl innerhalb wie außerhalb des Brennstoffs verfolgt.

Ein Entweichmodell wird aufgestellt und Entweichkoeffizienten eingeführt, deren Festlegung zum Teil auf den Ergebnissen der Abschnitte 3 und 4 dieses Berichts basiert.

Besonders untersucht wird der Beitrag einzelner chemischer Elemente (als Summe der Spaltprodukte gleicher Kernladungszahl) zur Wärmequellstärke.

Die Ergebnisse der Untersuchungen werden ausgewertet und als Grundlage für Empfehlungen benutzt, die im Hinblick auf Versuche zur Verifizierung des Entweichmodells einschließlich der verwendeten Entweichkoeffizienten ausgesprochen werden.

5.2 Einleitung

Will man das Verhalten des Kernbrennstoffs nach einem theoretisch postulierten, hypothetischen Störfall in Form eines GAU mit ganz oder teilweise versagender Notkühlung nach erfolgter Reaktorabschaltung durch Scram untersuchen, müssen der Wärmeentzug aus dem Brennstoff und die Wärmeproduktion im Brennstoff berechnet und im thermodynamischen Gesamtsystem korreliert werden.

Im folgenden soll die Frage der Wärmeproduktion untersucht werden.

Wird der GAU als Versagen der Primärkühlung in Verbindung mit einem Blowdown definiert, so haben Rechnungen der Reaktorhersteller ergeben, daß etwa 100 sec nach erfolgtem Scram vergehen, bis die Corekühlung durch das ausströmende Kühlmittel soweit reduziert ist, daß ein Aufheizen der internen Brennstabzonen durch Temperatenausgleich erfolgt. Zu dieser Zeit findet keine Energiezufuhr mehr statt durch Uranspaltung. Die verbleibende Wärmequelle besteht nur noch aus Zerfallswärme und möglicherweise chemischen Reaktionen zwischen Restkühlmittel und Strukturwerkstoffen. Dieser Bericht, insbesondere Abschnitt 5, befaßt sich mit der Berechnung der Zerfallswärme. Diese kommt überwiegend aus den Spaltprodukten und zu einem kleineren Anteil (ca. 10 %) aus den Aktivierungsprodukten des Brennstoffs.

Sofern die Spaltprodukte im Brennstoff verbleiben, ist die Berechnung der Zerfallswärme einfach, und diese kann praktisch mit der Zeit als Parameter aus Tabellen mit einer gewissen Schwankungsbreite abgelesen werden, deren Ursache in den noch unvollständigen Eingabedaten für die Berechnung liegt (Zerfallsenergien, Gammas pro Zerfall).

In unserem Fall, wo eine ganze oder teilweise Zerstörung der Brennelemente angenommen wird, muß für die Berechnung der Restwärmequellestärke im Brennstoff ein Entweichen von Spaltprodukten zugelassen werden, dessen Einfluß zeitabhängig durch die ganze folgende Nuklidzerfallskette (Isobare) geht.

5.3 Entweichmodell

Wie bereits im Abschnitt 2 vermerkt, sind parallel laufende Arbeiten zum hypothetischen Notkühlversagen anderer Arbeitsgruppen noch im Gange. Das Abschmelzmodell als Ausgangsgrundlage für die folgende Betrachtung ist deshalb noch nicht definiert. Es wird darauf hingewiesen, daß wegen der im folgenden spekulativ getroffenen Annahmen möglicherweise spätere Korrekturen notwendig sind.

Es wird angenommen, daß sich ein Core (oder ein Teilcore, wenn so definiert) bei Notkühlversagen mit Reaktorabschaltung nach erfolgtem Blowdown und Temperatenausgleich durch die Spaltproduktzerfallswärme aufheizt. Sofern die Geometrie definiert ist, ergibt eine thermodynamische Rechnung die Brennstofftemperatur, die der aus einer homogen gedachten Spaltproduktverteilung resultierenden spezifischen Wärme-

quellstärke entspricht. Bei fortschreitender Temperaturerhöhung wird sowohl stoßweise als auch kontinuierliche Spaltproduktaustreibung stattfinden, der der natürliche Zerfall mit der Bildung neuer Nuklide überlagert ist. Dies verändert die Wärmequellstärke und beeinflusst die Temperaturänderung des Brennstoffs. Für die Berechnung der spezifischen Rest-Wärmequellstärke werden also temperaturgebundene Entweichkoeffizienten für die betrachteten Spaltprodukte benötigt.

In erster Linie wird man die Zerfallsenergien der einzelnen Nuklide nach chemischen Elementen aufsummieren. Es erscheint aber auch zulässig, solche Elemente zu Gruppen zusammenzufassen, die sich im Hinblick auf die Freisetzung gleich verhalten, d. h. gleiche oder ähnliche Entweichkoeffizienten haben.

Die Frage, wie weit die aus dem Brennstoff entwichenen Spaltprodukte auch das thermodynamische System verlassen oder teilweise unter Umständen sogar wieder mit abschmelzenden Coreeinbauten in den Brennstoff (Schmelze) zurückkehren, muß aus dem Störfallmodell und dem Abschmelzmodell beantwortet werden. Für die vorliegende Betrachtung wurde angenommen, daß sich zwei radiologisch getrennte Systeme bilden, eins im Brennstoff (A) und eins außerhalb (B), die derart gekoppelt sind, daß die aus A entweichenden Spaltprodukte dem System B zuwachsen, daß aber die Nuklidbildung durch Zerfälle in A und B unabhängig stattfindet. Thermodynamisch bedeutet dies, daß man in der Schmelze eine spezifische Wärmequellstärke pro Gewichtseinheit Brennstoff hat, im Druckbehälterraum eine spezifische Wärmequellstärke pro Einheit Ablagerungsoberfläche plus einer spezifischen Volumen-Wärmequellstärke aus den Gasen und Aerosolen.

(Für eine Verfeinerung der Rechnung im Hinblick auf einen Abschmelzcode ließe sich das Modell so ausbauen, daß die gasförmig oder luftgetragenen vorliegenden Spaltprodukte ganz oder teilweise in ein drittes radiologisches System (Containment) abgeführt werden und dort wieder eine spezifische Raum- bzw. Oberflächen-Wärmequellstärke verursachen. Die an den Druckbehältereinbauten abgelagerten Spaltprodukte (System B) würden bei deren Abschmelzen in das System A (Brennstoff) zurückgeführt, sofern sie nicht abdampfen.)

5.3.1 Stoßweise Spaltproduktentweichung

Bei drei Gegebenheiten ist mit einer stoßweisen Spaltproduktfreisetzung aus dem System A zu rechnen

- a) beim Schmelzen oder Platzen der Brennstabhüllen
- b) beim Schmelzen des Brennstoffs
- c) beim eventuellen Verdampfen von Brennstoff.

Alle drei Ereignisse sind durch die Temperatur bestimmt. Bei vereinfachter homogener Betrachtung des Systems sind die Freisetzungskoeffizienten als einmaliger Bruchteil des Spaltproduktinventars bestimmt (Freisetzungsfaktor).

5.3.2 Kontinuierliche Spaltproduktentweichung

Nach dem Schmelzen oder Platzen der Brennstabhüllen findet eine kontinuierliche Spaltproduktfreisetzung aus dem Brennstoff (System A) statt, die temperatur- und zeitabhängig ist und über die Brennstoffschmelztemperatur hinausgeht.

Die Freisetzungskoeffizienten für ein bestimmtes Temperaturniveau sind hier bestimmt als Bruchteil des Spaltproduktinventars pro Zeiteinheit (Freisetzungsrage). Es wird deshalb von Koeffizienten gesprochen, weil keine Kenntnisse über eine Entweichfunktion vorliegen.

5.4 Berechnung der Wärmequellstärke

5.4.1 Rechenprogramme

Die Wärmequellstärke wird mit Hilfe eines digitalen Rechenprogramms berechnet. Zur Verfügung stehen die im Rahmen der Berichtsarbeit entwickelten GfK-Rechenprogramme REST 2 und REST 3 /1/ sowie das AEG-Telefunken Programm ZERGI /2/. Die Programme sind ähnlich aufgebaut und umfassen die Nuklidreihen ^{34}Se bis ^{62}Sm . Unterschiedlich sind z. Z. Output und Entweichmathematik. ZERGI druckt aus Zerfallsleistung in $\%$ Vollast pro MWth und chemischem Element, REST druckt aus Aktivität $[\text{Ci}]$ und Zerfallsenergie $[\text{kW}]$ pro Tonne Brennstoff für die Einzelnuklide und aufsummiert für die chemischen Elemente. Außerdem werden bei letzterem über ein angeschlossenes Plottprogramm Zeitverlaufskurven der Elementenergien aufgezeichnet. REST 2 und ZERGI arbeiten in einem System mit Berücksichtigung der Spaltproduktaktivierung, REST 3 ohne Spaltproduktaktivierung in 2 gekoppelten Systemen, d. h. die entweichenden Spaltprodukte werden dort weiter verfolgt.

Für die Berechnungen wird angenommen, daß sich die β - und γ -Energien am Ort ihrer Entstehung in Wärme umsetzen. Für die γ -Energie eines Nuklids ist eine mittlere, pro Zerfall gewichtete Energie, für die mittlere β -Energie 40 % Maximalenergie angesetzt. Die Wärmequellstärke zur Zeit t wird bei REST 3 für System A und B (s. oben) getrennt gerechnet. Die Rechnung geht vom Einzelnuclid aus. Die Summierung erfolgt über die chemischen Elemente zu einer Summen-Wärmequellstärke.

Auf eine detaillierte Beschreibung der 3 Rechenprogramme wird im Rahmen dieses Berichts bewußt verzichtet. Es sei auf die Literatur /1/ und /2/ verwiesen. Tabelle 5.1 gibt einen summarischen Programm-Vergleich der Rechenergebnisse.

Tabelle 5.2 (Rechnung der AEG-Telefunken)

β -Zerfallsenergie des U-239 und Np-239

t (s)	E (Anteil Vollast)
300	0,0038
360	0,0037
500	0,0035
1000	0,0031
1800	0,0026
3000	0,0019
7200	0,0015
10^4	0,0013
$3 \cdot 10^4$	0,0012
10^5	0,0010
$3 \cdot 10^5$	0,0005
10^6	~ 0
$3 \cdot 10^6$	~ 0
10^7	~ 0
$3 \cdot 10^7$	~ 0

Tab.5.1: Datenvergleich REST - ZERGI

Summenzerfallsenergie Beta + Gamma der Nuklidreihen 34 bis 62 in Prozent Vollast

Zeit (sec)	ZERGI		REST 3 ¹⁾		ca. Differenz		REST 2 ²⁾		ca. Differenz		Zuschlag ⁴⁾ für Np/U	ANL ³⁾ 5800
	100 d	1000 d	100 d	1000 d	100 d	1000 d	100 d	1000 d	100 d	1000 d		
30	3.613	3.69	--	--			--	--				
36	--	--	2.872	2.94	+ 25 %	+ 22 %	3.103	3.273	+ 16 %	+ 12 %	ca. 0,40 %	3,6 %
100	3.01	3.083	--	--			--	--				
108	--	--	2.59	2.658	+ 16 %	+ 16 %	2.82	2.982	+ 6,4 %	+ 3,3 %	ca. 0,39 %	2,7 %
360	2.33	2.41	2.172	2.24	+ 7,4 %	+ 7,5 %	2.398	2.542	- 2,7 %	- 5 %	0,37 %	1,9 %
1800	1.593	1.67	1.514	1.582	+ 5,3 %	+ 5,7 %	1.735	1.86	- 7 %	- 10 %	0,26 %	1,3 %

1) ohne n-γ Prozesse

2) mit n-γ Prozessen

3) Spaltproduktenergie nach unendlicher Betriebszeit

4) siehe Tabelle 5.2

- 9 -

5.4.2 Rechenbeispiel ohne Entweichen von Spaltprodukten für

SWR Brunsbüttel und DWR BASF Mitte

Die folgenden Beispiele sind mit dem Programm REST 3 gerechnet (ohne Spaltproduktaktivierung). Bei Berücksichtigung von n-γ Prozessen sind der Wärmequellenstärke ca. 10 % aus der Spaltprodukt- und ca. 10 % aus der Brennstoffaktivierung hinzuzurechnen (Rechnungen mit REST 2 bzw. Ergebnisse Tabelle 5.2).

Die Reaktordaten sind den Sicherheitsberichten für die beiden Anlagen entnommen. Der Vollastbetrieb wurde mit 1000 d angenommen.

Tabelle 5.3: Reaktordaten SWR Brunsbüttel und DWR BASF

	SWR Brunsbüttel		DWR BASF	
Reaktorleistung	2292	MWth	2000	MWth
	805	MWe ²⁾	470	MWe ¹⁾²⁾
Brennstoffladung	117,57	t UO ₂	62,17	t UO ₂
Mittlere Anreicherung ³⁾	2,26	%	2,57	%
Betriebszeit	1000	d	1000	d

- 1) plus Prozeßdampf
- 2) Bruttoleistung
- 3) Anfangskern

Abb. 5.1 und 5.2 zeigen die Eingabedaten für die Rechnungen. Der mittlere Abbrand versteht sich nach den angenommenen 1000 d Vollastbetrieb, die Anreicherung ist die Anfangsanreicherung (Erstkern).

Das Programm rechnet kontinuierlich, es sind aber frei wählbare Zeitintervalle anzugeben (Zerfallszeiten), an deren Ende ein Output gewünscht wird. Da auch Zeitintervalle mit verminderter oder geänderter Reaktorleistung gerechnet werden können, ist die dem Zeitintervall zugehörige Reaktorleistung anzugeben.

In unserem Fall wurde definiert: das erste Zeitintervall 1000 d bei 2292 MWth (bzw. 2000 MWth), Ende des ersten Zeitintervalls t = 0, zweites Zeitintervall 0.001 h bei 0 MWth usw.

Abb. 5.3 gibt den Ausdruck für $t = 0$, d. h. nach 1000 d Vollast mit der spezifischen Reaktorleistung während dieses Zeitintervalls. Die Angaben sind auf 1 t Brennstoff (UO_2) bezogen. Die horizontale Gliederung enthält die Spaltprodukte gleicher Kernladungszahl von 34 bis 62 mit der Summierung für das chemische Element in der letzten Spalte. Angegeben sind Kernladungszahl, chem. Symbol, Nukleonenzahl, Halbwertszeit.

Die vertikale Gliederung gibt die dem Nuklid zur Zeit t zugehörige Aktivität $[Ci]$ und Zerfallsenergie $[kW]$ und zwar in den ersten beiden Zeilen für die im Brennstoff (bzw. Brennstab) enthaltenen Spaltprodukte und in den beiden folgenden Zeilen für die aus dem Brennstoff (bzw. Brennstab) ausgetretenen Spaltprodukte. Unten auf der Seite sind die Summenwerte aller Nuklide aufgeschrieben.

Zur Verfolgung des Zerfalls zeigt Abb. 5.4 den Zustand zur Zeit $t = 0,5$ h und Abb. 5.5 den Zustand zur Zeit $t = 24$ h.

Abb. 5.6 und 5.7 zeigen in Kurvendarstellung den Abklingverlauf aller betrachteten chemischen Elemente bis zur Zeit $t = 100$ h, auch hier wieder bezogen auf 1 t Brennstoff. Um den sich zeitlich ändernden Beitrag der einzelnen Elemente zur Wärmequellstärke sichtbar zu machen, ist die Summenkurve aller Elemente (Wärmequellstärke) jeweils eingetragen. Abb. 5.6 und 5.7 sind ohne $n-\gamma$ Prozesse gerechnet, Abb. 5.6a und 5.7a mit Spaltproduktaktivierung. Man beachte die deutlichen Unterschiede von z. B. Nb, Mo, Tc, Rh, Xe, Cs und Nd.

Abb. 5.3 bis 5.7 gelten für den SWR Brunsbüttel. In gleicher Reihenfolge sind die Werte für den DWR BASF Mitte in den Abb. 5.8 bis 5.12 angegeben. (Für die Weiterverwendung der Zahlenwerte sind die Bemerkungen unter Abschnitt 5.4.1 zu beachten).

5.4.3 Rechenbeispiel mit Entweichen von Spaltprodukten für SWR Brunsbüttel und DWR BASF Mitte

Wie in Abschnitt 5.3 bemerkt, werden für die Rechnungen mit Spaltproduktentweichen für das momentane Entweichen bei Zerstörung der Hüllen und beim Schmelzen des Brennstoffs Freisetzungsfaktoren und für das stetige Entweichen nach der Hüllenöffnung Freisetzungsraten benötigt. Beide sind temperaturabhängig und beziehen sich nach dem Rechenmodell auf das zum Zeitpunkt des Vorgangs vorhandene Spaltproduktinventar. Abb. 5.13 für SWR Brunsbüttel und Abb. 5.26 für DWR BASF Mitte geben die Eingabedaten für die Rechnungen mit Spaltproduktentweichen.

Zu den in Abschnitt 5.4.2 beschriebenen Werten kommen hinzu

- a) den Zeitintervallen zugeordnete mittlere Brennstofftemperaturen ¹⁾ (die hier noch eingelesen werden, bei Einfügung des Programms in einen größeren Abschmelzcode aber durch diesen errechnet werden müssen), und
- b) eine Tabelle der temperaturbezogenen Entweichkoeffizienten.

Die vorliegende Tabelle wurde nach den Ergebnissen der Abschnitte 3 und 4 dieses Berichts sowie nach experimentellen Messungen aus /3/ zusammengestellt. Wegen des lückenhaften Kenntnisstands sind die Zahlenwerte häufig interpoliert, extrapoliert oder von Elementen entliehen, die sich vermutlich ähnlich verhalten. Diese Voraussetzungen sollten bei Verwendung der Rechenergebnisse beachtet werden. (Vom BMBW wurde ein experimentelles Programm in die Wege geleitet, das speziell Spaltproduktentweichfaktoren und -raten verifizieren soll).

Henzel empfiehlt in Abschnitt 3 dieses Berichts, neben der Spontanfreisetzung von 30 % der Edelgase und Halogene beim Hüllenbruch und 100 % der Edelgase und Halogene sowie von Se, Rb, Mo, Tc, Ag, Sn, Sb, Te, Cs beim Brennstoffschmelzen, die restlichen Elemente in 7 Gruppen mit temperaturabhängigen Entweichkoeffizienten über der Brennstoffschmelztemperatur einzuteilen. Die Entweichkoeffizienten (s. Bild 3.4.18) sind dabei in absoluten, nicht konzentrations- bzw. inventarabhängigen Raten berechnet.

Die von Simon-Weidner in Abschnitt 4 dieses Berichtes zusammengestellten experimentellen Daten (siehe Tabelle 4.5.1 und 4.5.2) lassen allenfalls qualitative Vergleiche zwischen den relativ wenigen gemessenen Elementen zu. Es handelt sich um integrale Meßwerte über wechselnde Zeiten mit unterschiedlichen Parametern.

1) Wenn man hier von mittleren Brennstofftemperaturen spricht, so wird angenommen, daß der Temperatenausgleich nach Reaktorabschaltung und Blowdownende bereits stattgefunden hat. Die Temperaturangaben für Zeiten $t = 0.2$ h in diesem Beispiel sind willkürlich und ohne Bedeutung.

In Anbetracht der in Abschnitt 3 deutlich beschriebenen Annahmen für die theoretische Ermittlung der dort vorgeschlagenen Entweichkoeffizienten und der Ergebnisse der in Abschnitt 4 beschriebenen Literaturstudie schlägt der Verfasser dieses Abschnitts vor, bis zum Vorliegen zuverlässiger experimenteller Werte, die in Abb. 5.13 bzw. 5.26 numerisch und in Abb. 5.14 graphisch dargestellten inventarbezogenen Entweichkoeffizienten zu verwenden.

Die Elemente werden dabei in 6 Gruppen eingeteilt.

Tabelle 5.4: Einteilung der Spaltprodukte in Gruppen nach
ihrem Entweichverhalten

- a) Edelgase
- b) Halogene
- c) Cs
- d) Se, Rb, Mo, Tc, Ag, Sn, Sb, Te
- e) Sr, Pd, Ba, La, Ce, Pr
- f) Y, Zr, Nb, Ru, Rh, Cd, In, Nd, Pm, Sm

Ru könnte dabei auch in Gruppe d) stehen, da bekannt ist, daß es in oxydierender Atmosphäre flüchtig ist. Da die Entweichkoeffizienten kleiner werden für die ansteigenden Gruppen, ist die getroffene Annahme konservativ.

Mit den angegebenen inventarbezogenen Entweichkoeffizienten ergibt sich für den SWR Brunsbüttel der in den Abb. 5.15 und 5.16 dargestellte Verlauf der mittleren Rest-Wärmequellstärke pro Tonne ursprünglichen Brennstoffs (System A) sowie der zeitabhängige Beitrag der einzelnen Elemente. Abb. 5.17 bis 5.25 vermittelt die zugehörigen numerischen Werte. In diesen Programmausdrucken sind jeweils als 3. und 4. Zeile zum Vergleich auch die Werte des thermodynamischen Systems B (außerhalb des Brennstoffs) enthalten, dem die entwichenen Spaltprodukte zuwachsen, wie in Abschnitt 5.4.2 beschrieben. Die Zeitstufen 0.1 h, 0.2 h, 0.5 h, 1 h, 2 h, 5 h, 10 h, 24 h, 72 h wurden zur Wiedergabe ausgewählt. Der Zustand zur Zeit $t = 0$ ist derselbe wie in Abb. 5.3.

Für den DWR BASF Mitte sind dieselben Angaben in den Abb. 5.26 bis 5.37 enthalten.

Die eingebene Zeit-Temperaturkombination ist so gewählt, daß bei 6 min ($> 1400^{\circ}\text{C}$) nach Reaktorabschaltung und Notkühlversagen die Hüllen

zerstört und bei 30 min ($> 2500^{\circ}\text{C}$) der Brennstoff schmilzt. Es wird nochmals darauf hingewiesen, daß die mittlere Brennstofftemperatur vor dem Temperatúrausgleich nicht definiert ist und deshalb die Verwendung von 1200°C für die Anlaufphase willkürlich ist.

5.5 Diskussion der Ergebnisse

5.5.1 Druck- und Siedewasserreaktor

Die Ergebnisse der Abb. 5.3 und 5.8 lassen erkennen, daß die volllastbezogene Wärmequellstärke aus dem Spaltproduktzerfall für die beiden Reaktortypen praktisch gleich ist. Eine physikalische Betrachtung führt zum selben Ergebnis, daß nämlich der Wärmequellenanteil aus den durch Spaltung entstandenen Spaltprodukten mit Töchtern proportional der Spaltrate (Vollast oder thermische Leistung) ist ¹⁾, ebenfalls der rechnermäßig nicht erfaßte Anteil aus der Aktivierung des Brennstoffs ²⁾. Leichte Unterschiede ergeben sich bei der Erfassung des Anteils, der durch die Aktivierung der Spaltprodukte entsteht ³⁾, da hier das Fluß/Target Verhältnis von der unterschiedlichen Leistungsdichte der beiden Reaktortypen beeinflusst wird. Hinsichtlich der volllastbezogenen, prozentualen Wärmequellstärke im Brennstoff nach Abschaltung können die beiden Reaktortypen also gleich behandelt werden.

Unterschiede ergeben sich aber, wie ebenfalls aus den Abb. 5.3 und 5.8 hervorgeht, wenn man eine brennstoffspezifische Betrachtung anstellt. Nach 1000 d Vollast und Abschaltung erbringen die 2000 MWth des DWR BASF Mitte eine Spaltproduktzerfallsleistung von 1142.9 kW/t UO_2 ³⁾ und die 2292 MWth des SWR Brunsbüttel eine solche von 686.4 kW/t UO_2 ³⁾, was bis auf die oben geschilderte sehr kleine Abweichung dem Leistungs-dichteverhältnis der beiden Reaktoren entspricht.

1) Rechnungen mit REST 3 (ohne n- γ Prozesse)

2) Siehe Tabelle 5.2

3) Rechnungen mit REST 2 (n- γ Prozesse für Spaltprodukte, nicht für Brennstoff (dafür noch ca. 10% Zuschlag ²⁾)).

Dieser Unterschied hat Einfluß auf die Aufheizgeschwindigkeit des Brennstoffs nach dem oben definierten Störfall (Abschnitt 5.3) und damit auf den Zeitverlauf der Spaltproduktaustreibung (Eintritt von Hüllenbruch und Brennstoffschmelze sowie stetige Austreibung, die von der Temperatur und möglicherweise von der Spaltproduktkonzentration abhängig ist).

Außerdem ist die Größe der spezifischen und nicht nur integralen Heizleistung (Wärmequellstärke) von Bedeutung für das Problem einer eventuellen Schmelzenkühlung.

5.5.2 Beitrag einzelner chemischer Elemente (Summe der Spaltnuklide gleicher Kernladungszahl zur Wärmequellstärke)

Im Hinblick auf den Beitrag einzelner chemischer Elemente (Summe der Spaltnuklide) zur Wärmequellstärke können beide Reaktortypen gleich betrachtet werden, da ein Einfluß des Konzentrationsunterschieds nicht bekannt ist.

Aus den Abb. 5.6a und 5.7a (bzw. 5.11a und 5.12a) geht hervor, daß nur ein Teil der zu chemischen Elementen aufsummierten Nuklide einen wesentlichen Beitrag zur Summen-Wärmequellstärke Σ leistet. Dieser Beitrag ist zeitabhängig.

Läßt man die Anlaufzeit (ca. 6 min bis zum Hüllenbruch) außer acht, zeigt sich, daß nur Nb, J, La und nach 2 d Pr 10 % oder mehr der Gesamt-Wärmequellstärke beitragen. Nb erreicht dabei nach 100 h ca. 40 %! Knapp 10 % leistet Rb, das aber nach 6 min rasch abfällt, Y, das erst nach 5 h etwas zurückgeht und Zr und Pr für Zeiten > 5 h.

Die nächste Größenordnung sind dann Sr, Mo, Tc, Te und Cs im 30 bis 60 min Bereich. Für $t = 100$ h gibt Tabelle 5.5 am Beispiel des DWR BASF Mitte informativ die über 1 % Beitrag zur Wärmequellstärke liegenden Radionuklide.

5.5.3 Reduzierung der Wärmequellstärke durch Spaltproduktaustreibung

Die Ergebnisse dieser Rechnung sind naturgemäß stark abhängig von den verwandten Entweichkoeffizienten. Abb. 5.13, 5.14 und 5.26. Man muß dabei beachten, daß eine Entweichrate von 10^{-9} sec^{-1} einer Halbwertszeit von 22.4 a und eine solche von 10^{-7} sec^{-1} immer noch von 81 d entspricht.

Tabelle 5.5: Radionuklide, die bei $t = 100$ h mehr als 1 % Wärme-
 quellstärke beitragen (Beispiel DWR BASF Mitte, Rest-
 Zerfallsleistung 152.37 kW/t UO_2 , Rechnungen mit
 REST 2)

Nb 95	61.40 kW/t UO_2	}	10 %
La 140	16.10 "		
Pr 144	9.57 "	}	5 - 10 %
J 132	9.55 "		
Zr 95	8.40 "		
Pr 143	6.23 "	}	1 - 5 %
Y 91	5.68 "		
Mo 99	5.05 "		
Ba 140	4.49 "		
Sr 89	4.23 "		
Cs 134	2.74 "		
Ru 103	2.56 "		
Ce 141	2.44 "		
J 131	1.98 "		

Deutlich zu sehen in den Kurven der Restwärmequellstärke (Abb. 5.15 und 5.16 bzw. 5.27 und 5.28) ist aber, daß die Hüllenöffnung bei 0.1 h mit Entweichen von 30 % Edelgasen und 25 % Halogenen keinen wesentlichen Einfluß auf den Kurvenverlauf hat. Andererseits täuscht die doppeltlogarithmische Kurvenaufzeichnung bei oberflächlicher Betrachtung doch etwas über die wahren Verhältnisse hinweg. Zur genauen Information sind deswegen die numerischen Ausdrücke der Zeitstufen 0.1 h bis 72 h angegeben (Abb. 5.17 bis 5.25 bzw. 5.29 bis 5.37).

Sehr interessant in diesem Zusammenhang ist auch die Verfolgung der ausgetriebenen Spaltprodukte im System B (siehe Abschnitt 5.3). Zum Zeitpunkt größter Kurvenabweichung ($t \approx 1$ h) ergibt sich mit REST 3 gerechnet noch eine Gesamtzerfallsleistung von 1.2801 % Vollast, 0.7236 % Vollast im Brennstoff (System A) und 0.5565 % außerhalb des Brennstoffs (System B). Für die Zeit $t = 100$ h sind die entsprechenden Zahlen 0.2680 % Vollast gesamt, 0.2029 % Vollast im System A und 0.0651 % Vollast im System B.

Das heißt, daß zur Zeit $t = 1 \text{ h}$ 56.5 % Zerfallsleistung im Brennstoff und 43.5 % außerhalb erbracht werden. Bei $t = 100 \text{ h}$ sind die Werte 75.7 % innerhalb und 24.3 % außerhalb.

Die Ausgangsbedingungen für diese Ergebnisse sind aus Abb. 5.14 zu entnehmen. Sie besagen, daß die Spaltproduktgruppen a) bis d) (siehe Abschnitt 5.4.3) mit Erreichen der Brennstoffschmelztemperatur bzw. kurz nach deren Überschreiten weitgehend aus dem Brennstoff entlassen werden, die hochsiedenden Gruppen e) und f) praktisch nicht entlassen werden.

Eine Summenkurve mit und ohne Entweichen in anderem Maßstab ist in Abb. 5.38 gegeben.

5.5.4 Empfehlungen für durchzuführende Experimente:

Die vorstehenden Ausführungen lassen erkennen, daß, wenn das Entweichmodell mit den angesetzten Koeffizienten nicht sehr falsch ist, das Spaltproduktentweichen eine Reduzierung der Wärmequellstärke größenordnungsmäßig bis zu 50 % bewirken kann. Das Maximum der Reduzierung liegt dabei gerade im kritischen Zeitbereich während oder kurz nach Erreichen der Brennstoffschmelztemperatur.

Zuerst sollte deshalb qualitativ eine Überprüfung des Entweichmodells vorgenommen werden. Darunter ist eine Verifizierung der Spaltproduktgruppeneinteilung nach ihrem Entweichverhalten (Tabelle 5.4) zu verstehen sowie der Nachweis, daß die Gruppen a) bis d) beim Entstehen der Brennstoffschmelze weitgehend ausgetrieben sind oder werden, daß die Gruppe e) nur mäßig bei weiterer Temperaturerhöhung bis zur Brennstoffsiedetemperatur entweicht und daß die Gruppe f) praktisch im Brennstoff verbleibt.

Wenn sich hier Ergebnisse zeigen, sollten die Versuche quantitativ fortgesetzt werden mit der Untersuchung von temperaturabhängigen Entweichkoeffizienten für Nb, J, La, Pr, Y, Zr, und erst nach erfolgreichem Abschluß dieser Versuchsreihe sollte man sich der Gruppe Sr, Mo, Tc, Te und Cs zuwenden (siehe Abschnitt 5.5.2).

Bei Anwendung radiochemischer Meßtechnik wird man sich nicht mit den Elementen sondern mit einzelnen Nukliden befassen. Die Abbildungen des Abschnitts 5 oder auch Tabelle 5.5 geben hinreichend Auskunft für eine geeignete Auswahl. Auf jeden Fall sollten die Versuche durch Begleitrechnungen und Vergleich der Meß- und Rechenwerte gestützt werden.

5.6 Literatur

/1/ E. Waibel

REST - Programme zur Berechnung von Spaltprodukt-Aktivität und
-Zerfallsleistung nach variabler Reaktorgeschichte in zwei ge-
koppelten Systemen unter Berücksichtigung von Spaltproduktaus-
treibung

KFK 1579, April 1972

/2/ H. Ch. Sobottka

Bestimmung der Nachwärme

AEG-Bericht E 3 - 2195, Feb. 1972

/3/ E. Waibel

INVENT - A Fortran IV Computer Program for the Calculation of
Fission Product Inventory, and its Application to Fission Pro-
duct Release Studies at EVESR

KFK - Externer Bericht 8/68-3. 1968

Abb. 5.1: Eingabedaten für Rechenbeispiel KKW Brunsbüttel

600MWE SWR BRUNSBUEITTEL

BERECHNUNG DER ZERFALLSWAERME
(SUMMIERUNG DER BEITRAEGE DER ISOTOPE EINES CHEM. ELEMENTS)

COREDATEN: BRENNSTOFF 117.57 T UO2
LEISTUNG 2292. MWTH
MITTL.SPEZ.LEISTUNG 19.49 W/G BRENNSTOFF
MITTL.ABBRAND 19495. MWG/T OXYD
MITTL.ANREICHERUNG 2.26 %

BETRIEBSZEITEN: 1000. TAGE BEI 2292. MWTH

ZERFALLSZEITEN IN STD. BEI MWTH	0.001	0.003	0.010	0.030	0.100	0.200	0.500	1.000	2.000	5.000	10.000	24.000	48.000	72.000	100.000
	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

Abb. 5.2: Eingabedaten für Rechenbeispiel KKW BASF Mitte

470MWE PWR BASF MITTE

BERECHNUNG DER ZERFALLSWAERME
(SUMMIERUNG DER BEITRAEGE DER ISOTOPE EINES CHEM. ELEMENTS)

COREDATEN: BRENNSTOFF 62.17 T UO2
LEISTUNG 2000. MWTH
MITTL.SPEZ.LEISTUNG 32.17 W/G BRENNSTOFF
MITTL.ABBRAND 32170. MWG/T OXYD
MITTL.ANREICHERUNG 2.57 %

BETRIEBSZEITEN: 1000. TAGE BEI 2000. MWTH

ZERFALLSZEITEN IN STD. BEI MWTH	0.001	0.003	0.010	0.030	0.100	0.200	0.500	1.000	2.000	5.000	10.000	24.000	48.000	72.000	100.000
	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

0.0 H NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRUENGLICHEN BRENNSTOFFS)
(LEISTUNG 19.49 MWHT/T DXYD, MITTL-FLUSS 0.62E 14 N/CM2/SEC)

Table with columns for unit ID, unit name, and various numerical values. Each unit entry is followed by 'SUMME' and 'SE' values. Units include 34SE, 35BR, 36KR, 37RB, 38SR, 39Y, 40ZR, 41NB, 42MD, 43TC, 44RU, 45RH, 46PD, 47AG, 48CD, 49IN, 50SN, 51SB, 52TE, 53J, 54XE, 55CS, 56BA, 57LA, 58CE, 59PR, 60ND, 61PM, 62SM.

ZERFALLSWAERME IM BRENNSTOFF 619.78 KW/T = 72.867 MWHT GESAMT, ENTSPRECHEND 3.1792 % VOLLAST
ZERFALLSWAERME AUSSERHALB 0.0 KW/T = 0.0 MWHT GESAMT, ENTSPRECHEND 0.0 % VOLLAST
(GESAMTZERFALLSWAERME 686.36 KW/T = 80.696 MWHT ENTSPRECHEND 3.5208 % VOLLAST)

←REST 3 ohne n-x
←REST 2 mit n-x

Abb. 5.3: Spaltproduktinventar und Zerfallsenergie für SWR Brunnabfälle
nach 1000 d Vollast

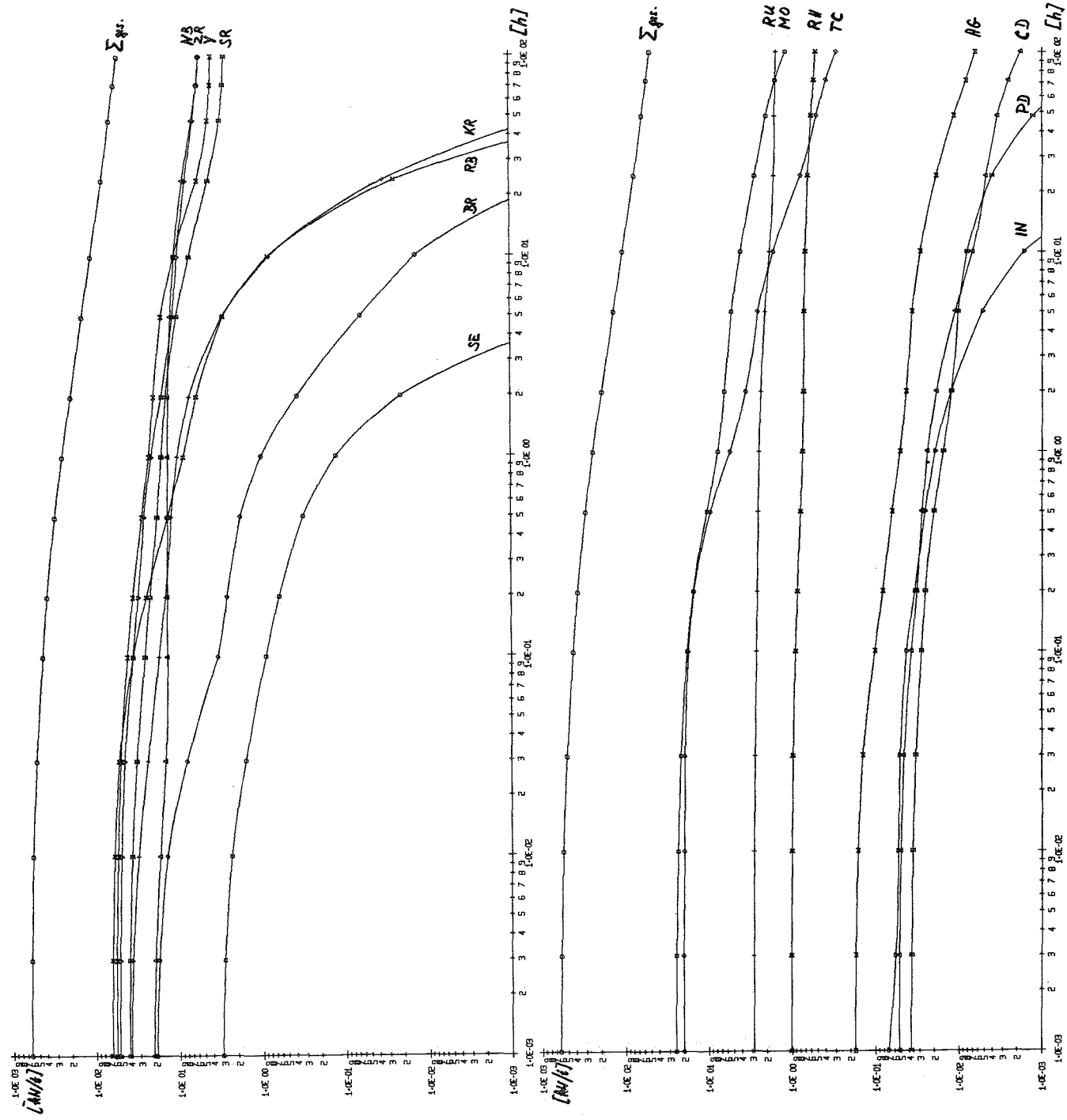


Abb. 5.6: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für SWR Brunsbüttel ohne n- γ Prozesse

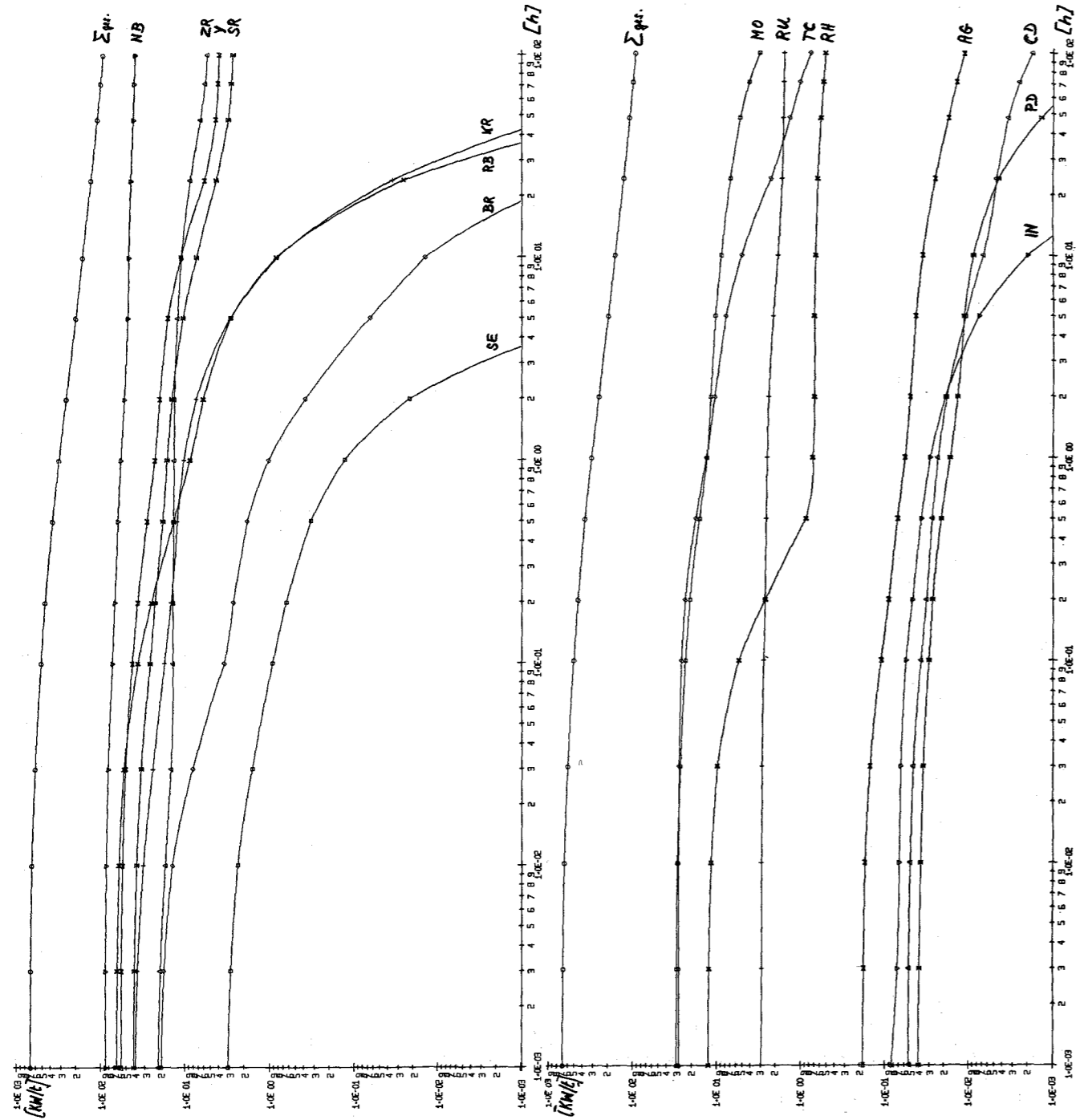


Abb. 5.6a: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für SWR Brunsbüttel mit Spaltproduktaktivierung

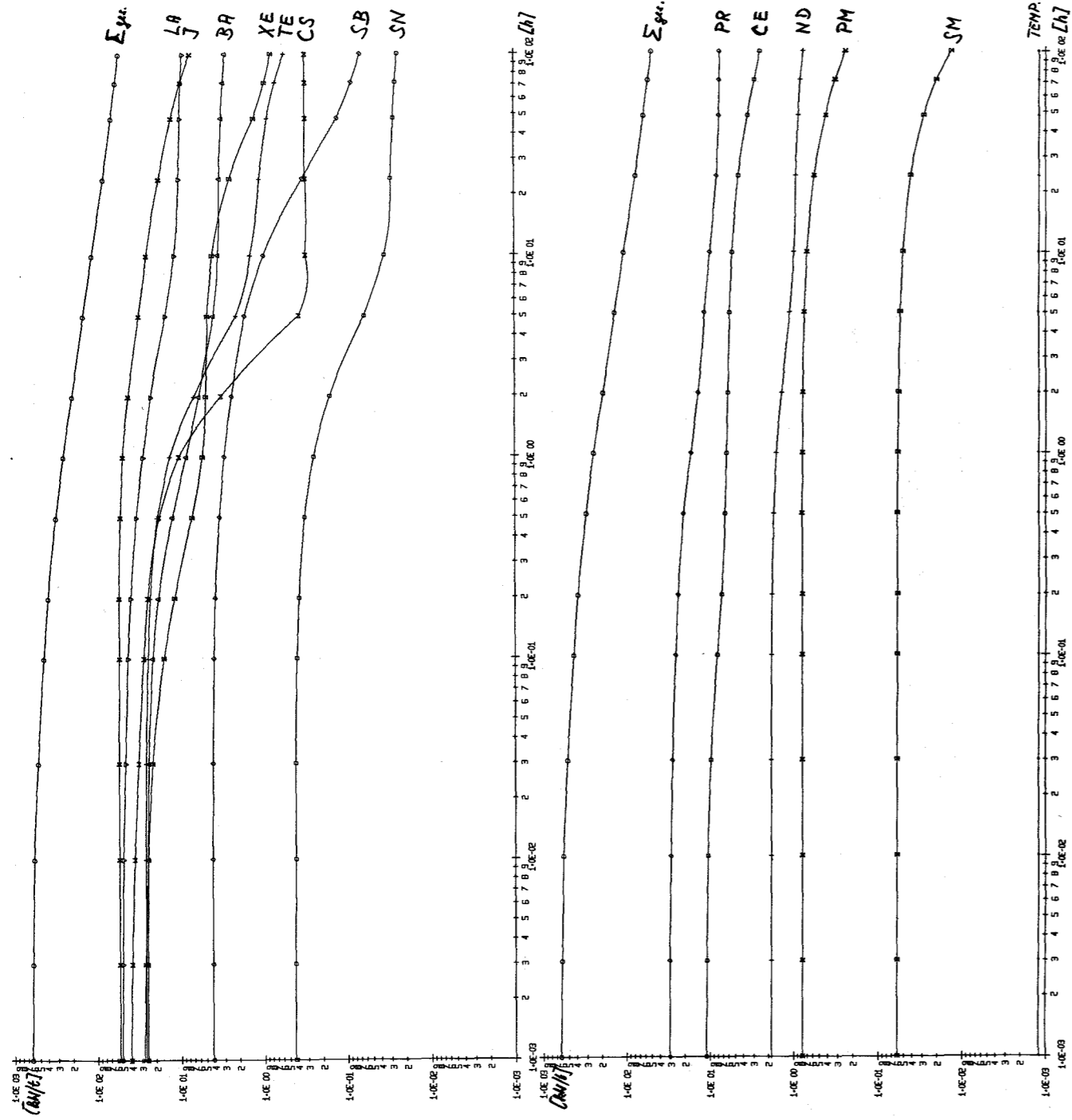


Abb. 5.7: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für SWR Brunsbüttel ohne n- γ Prozesse

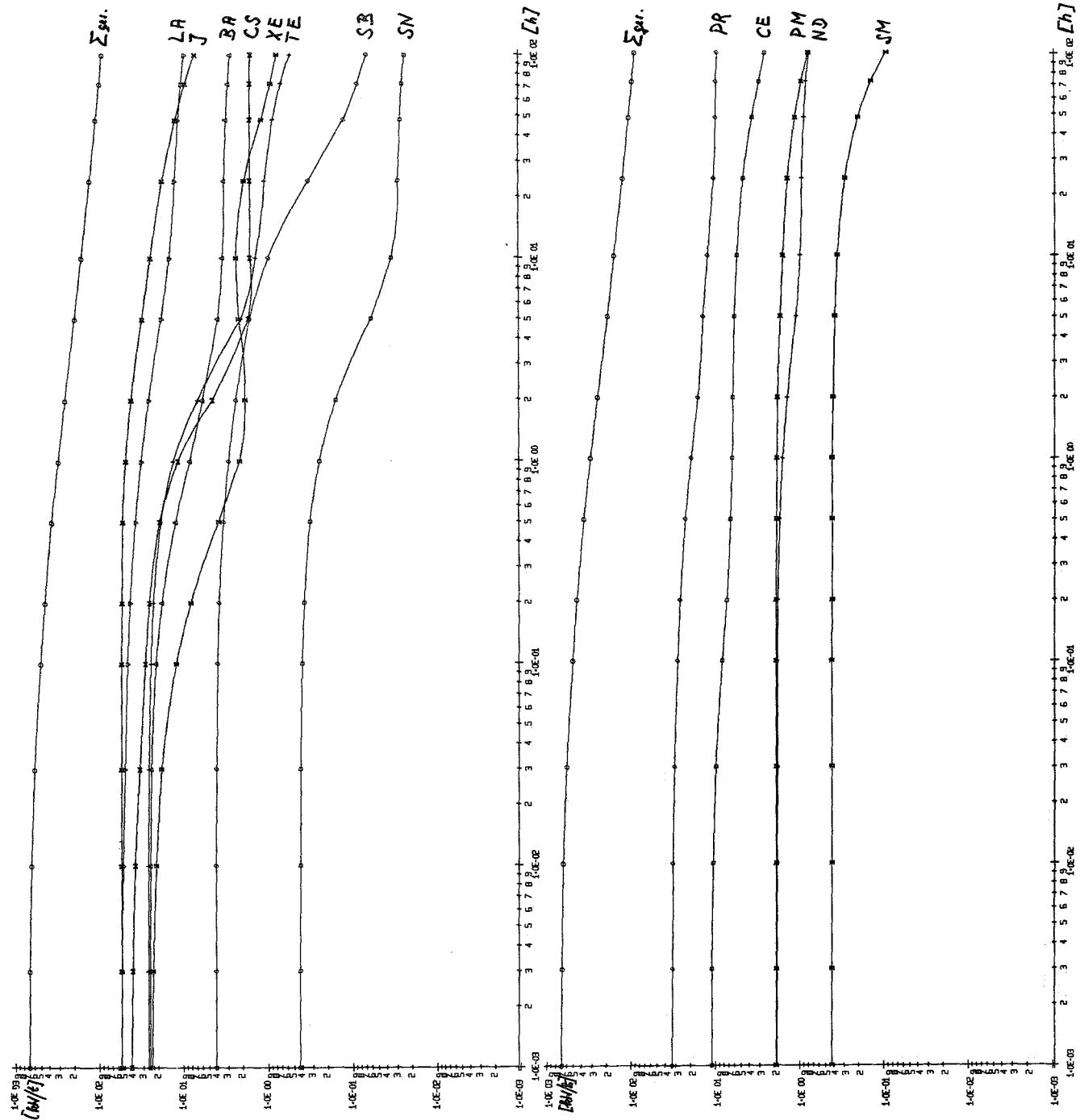


Abb. 5.7a: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für SWR Brunsbüttel mit Spaltproduktaktivierung



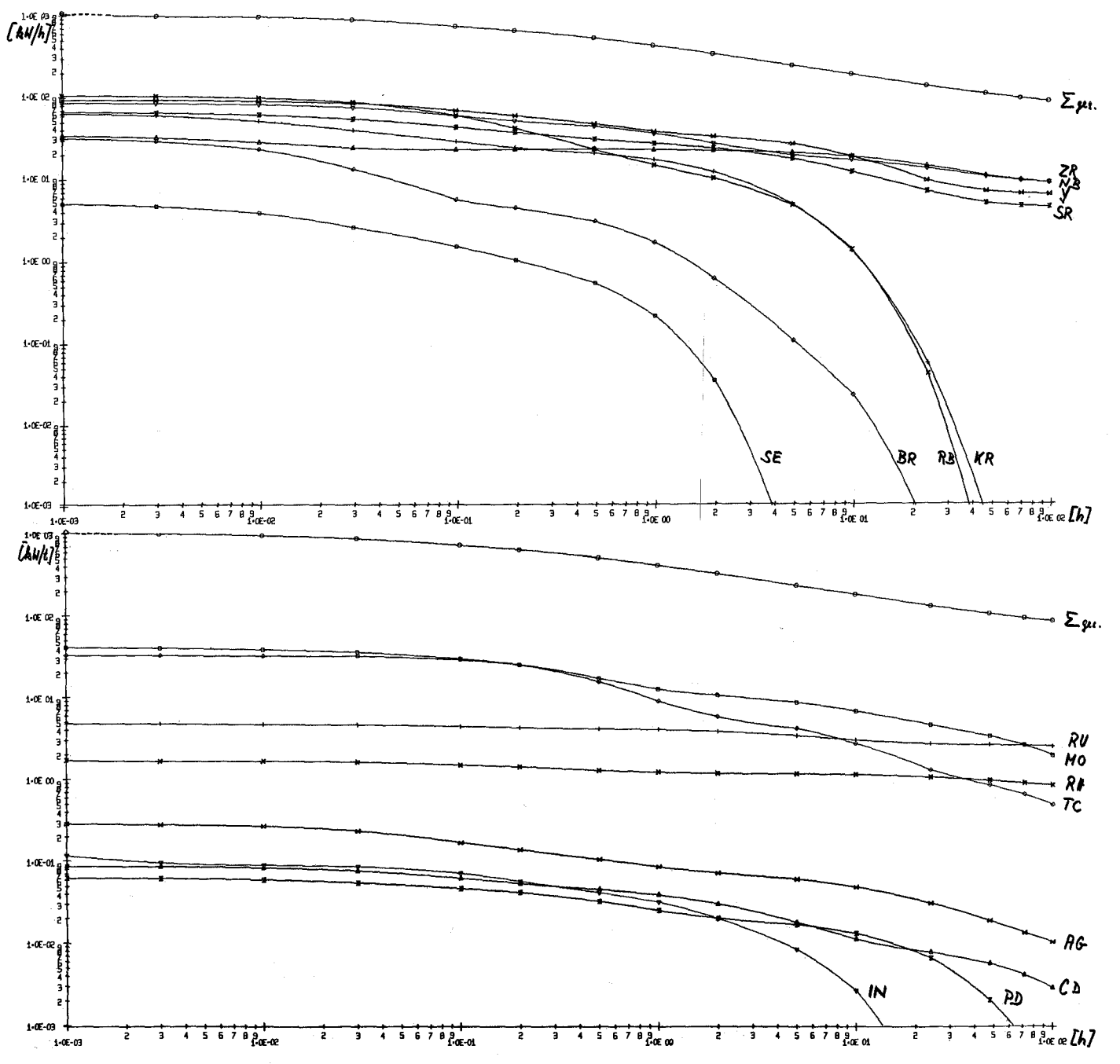


Abb. 5.11: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für DWR BASF Mitte ohne n- γ Prozesse

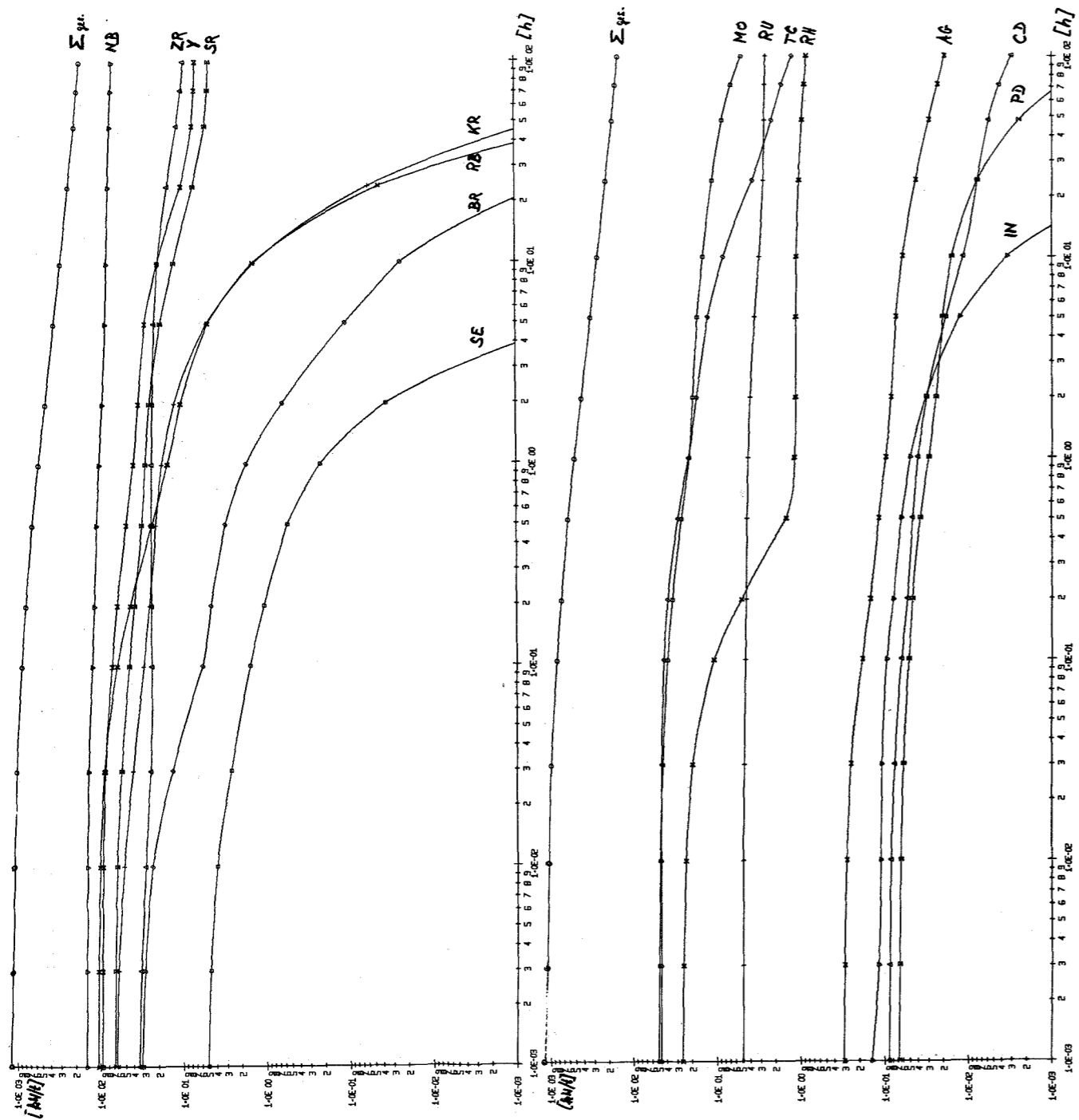


Abb. 5.11a: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 34 bis 49 für DWR BASF Mitte mit Spaltproduktaktivierung

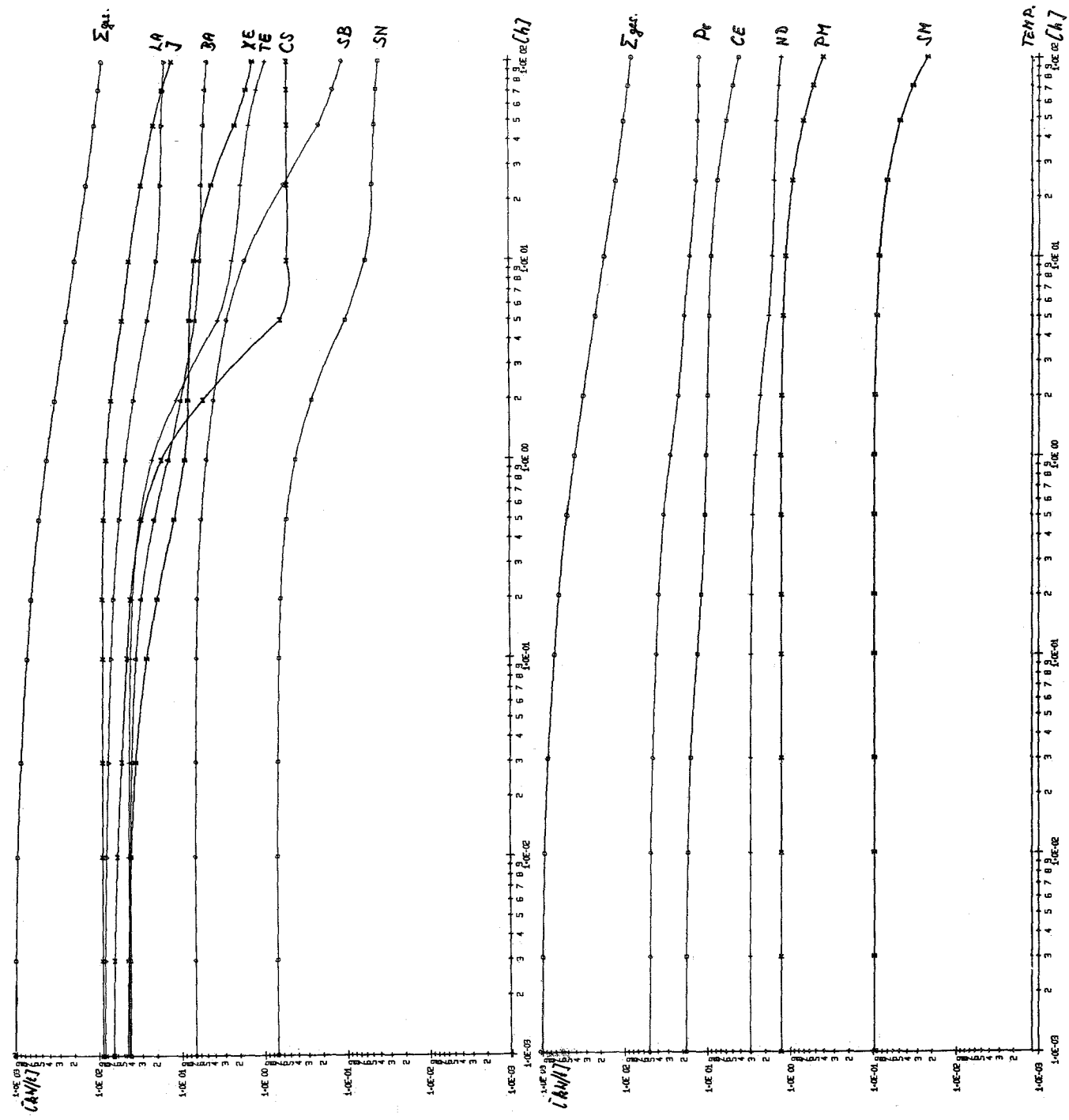


Abb. 5.12: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe der radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für DWR BASF Mitte ohne n- γ Prozesse

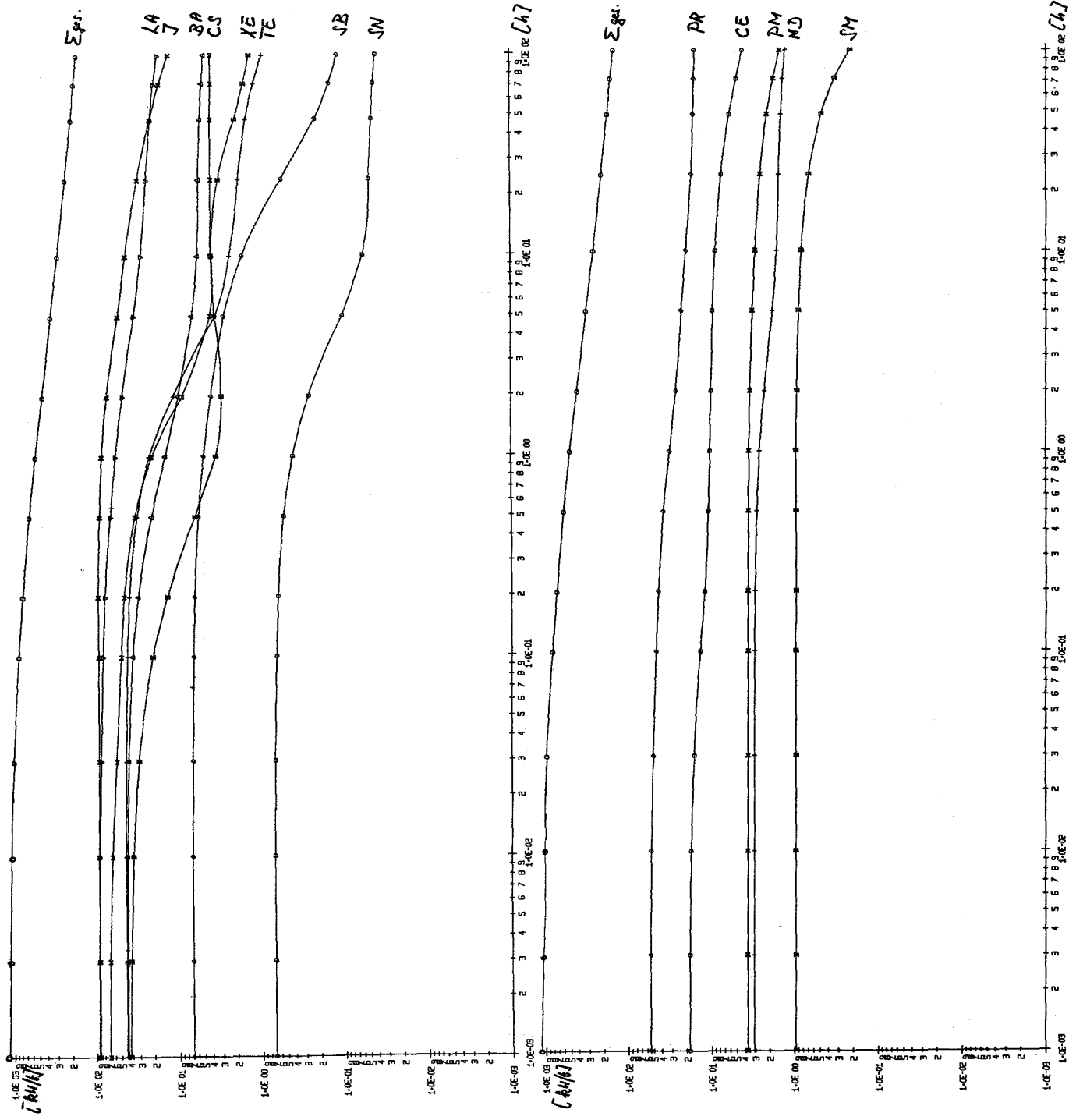


Abb. 5.12a: Abklingverlauf der chemischen Elemente (Summe ihrer radioaktiven Nuklide) der Kernladungszahl 50 bis 62 für DWR BASF Mitte mit Spaltproduktaktivierung

800MWE SWR BRUNSBUETTEL

BERECHNUNG DER ZERFALLSWAERME
(SUMMIERUNG DER BEITRAEGE DER ISOTOPE EINES CHEM. ELEMENTS)

COREDATEN: BRENNSTOFF 117.57 T UO2
LEISTUNG 2292. MWTH
MITTL.SPEZ.LEISTUNG 19.49 W/G BRENNSTOFF
MITTL.ABBRAND 19495. MWD/T OXYD
MITTL.ANREICHERUNG 2.26 %

BETRIEBSZEITEN: 1000. TAGE BEI 2292. MWTH

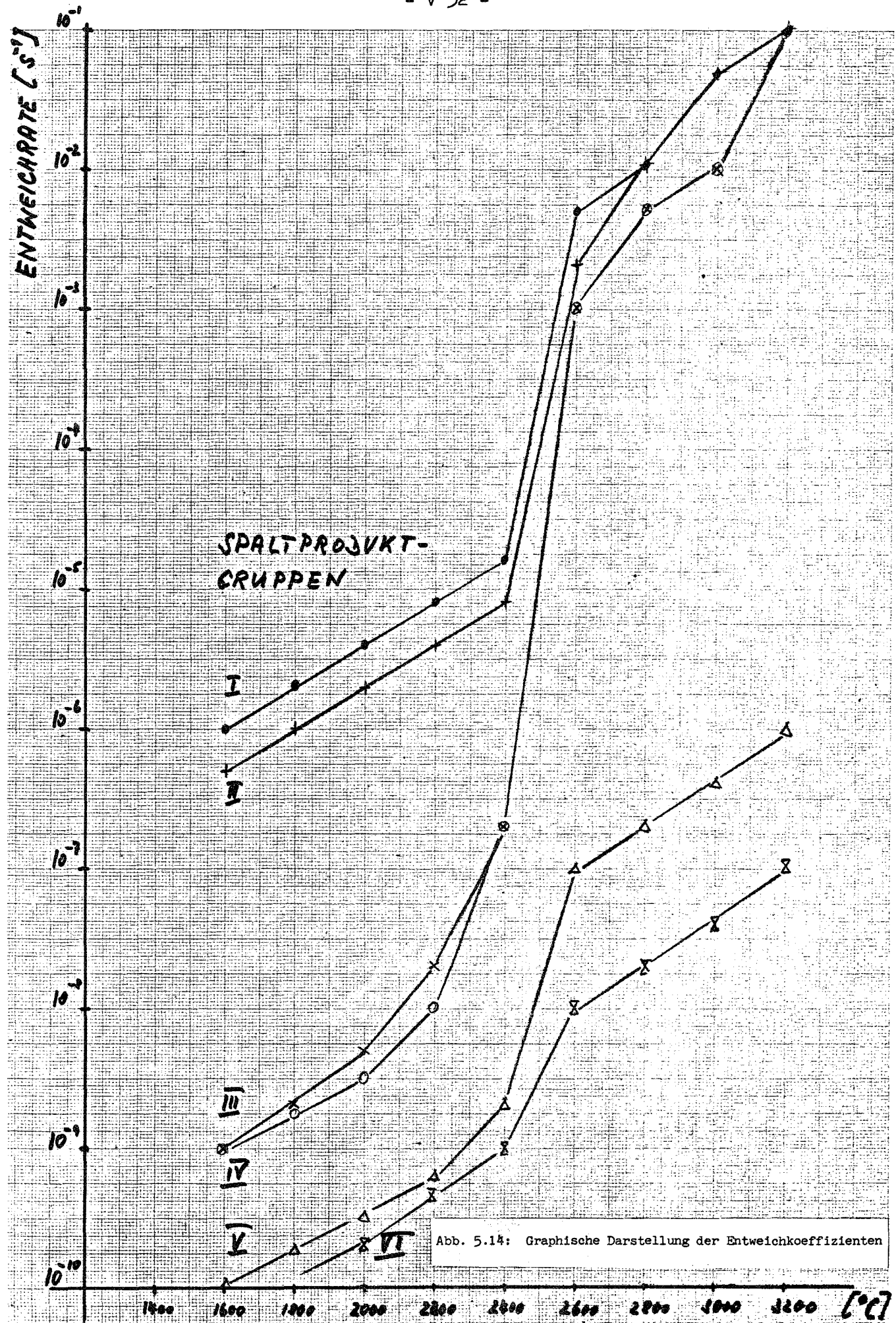
ZERFALLSZEITEN IN STD. 0.001 0.003 0.010 0.030 0.100 0.200 0.500 1.000 2.000 5.000 10.000 24.000 48.000 72.000 100.000
BEI MWTH 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0
TEMPERATUREND) 1200. 1200. 1200. 1200. 1300. 1600. 2000. 2600. 2800. 3000. 3200. 3000. 2900. 2800. 2700. 2600.

ENTWEICHKOEFFIZIENTEN

MOMENTAN: HUELLENBRUCH BEI 1400C: GASE 30%, HALOGENE 25%, CS 10%
BRENNSTOFFSCHMELZEN BEI 2500C: GASE 99%, HALOGENE 99%, CS 90%, SE-RB-MO-TC-AG-SN-SB-TE 30%
STETIG: TEMP. -1400C -1600C -1800C -2000C -2200C -2400C -2600C -2800C -3000C -3200C

SE	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
BR	0.0	0.50E-06	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.20E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E 00
KR	0.0	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.16E-04	0.50E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E 00
RB	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
SR	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
Y	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
ZR	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
NB	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
MD	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
IC	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
RU	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
RH	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
PD	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
AG	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
CD	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
IN	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
SN	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
SB	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
TE	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
J	0.0	0.50E-06	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.20E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E 00
XE	0.0	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.16E-04	0.50E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E 00
CS	0.0	0.10E-08	0.20E-08	0.50E-08	0.20E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E 00
BA	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
LA	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
GE	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
PR	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
ND	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
PM	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
SM	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06

Abb. 5.13: Eingabedaten für Rechenbeispiel KKW Brunsbüttel mit Temperatur-Zeitverlauf und Spaltproduktentweichkoeffizienten



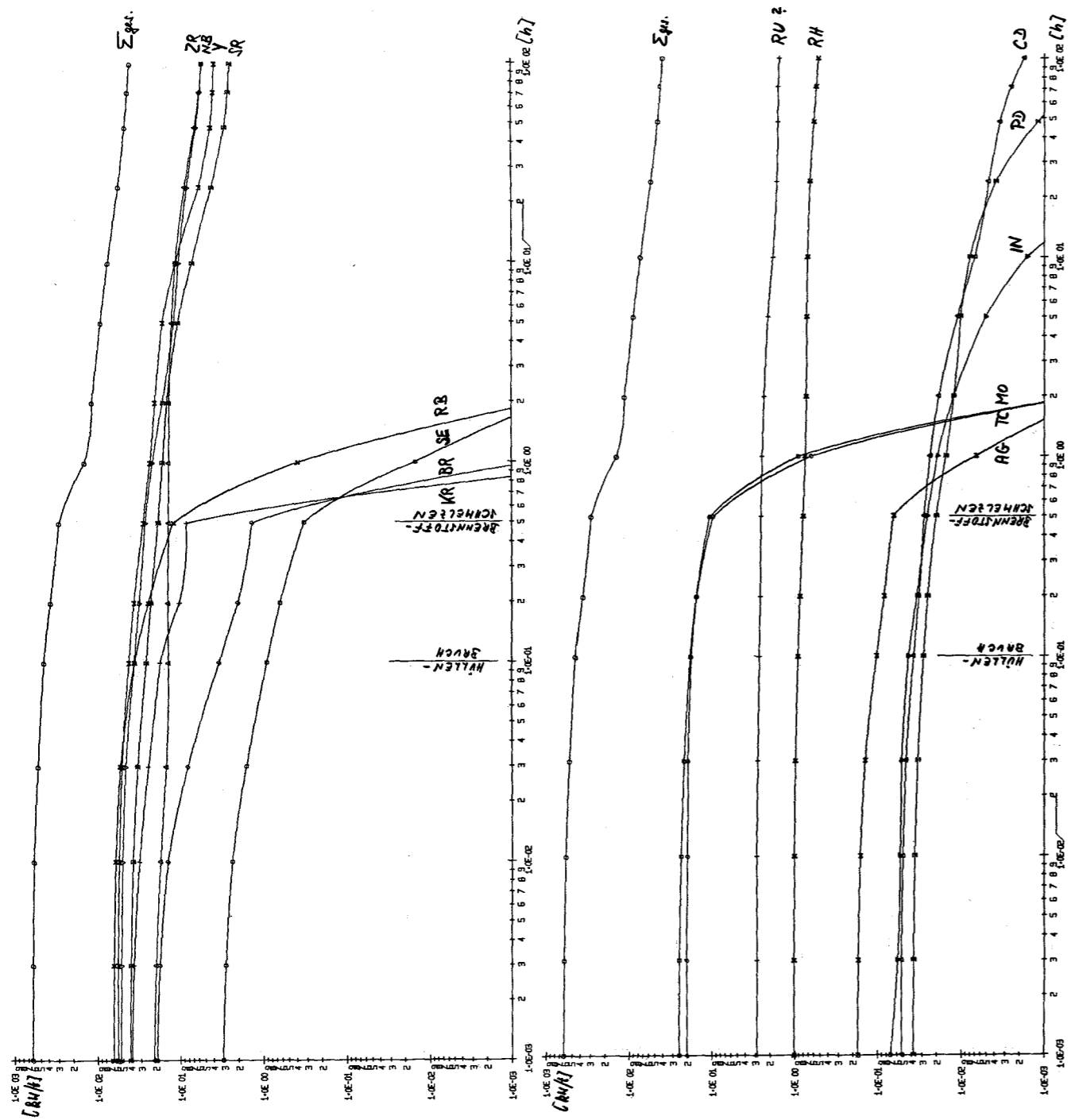


Abb. 5.15: Mittlere Wärmequellenstärke im Brennstoff mit Spaltproduktentweichen für SWR Brunsbüttel (Summenkurve und Beitrag der Elemente Se bis In)

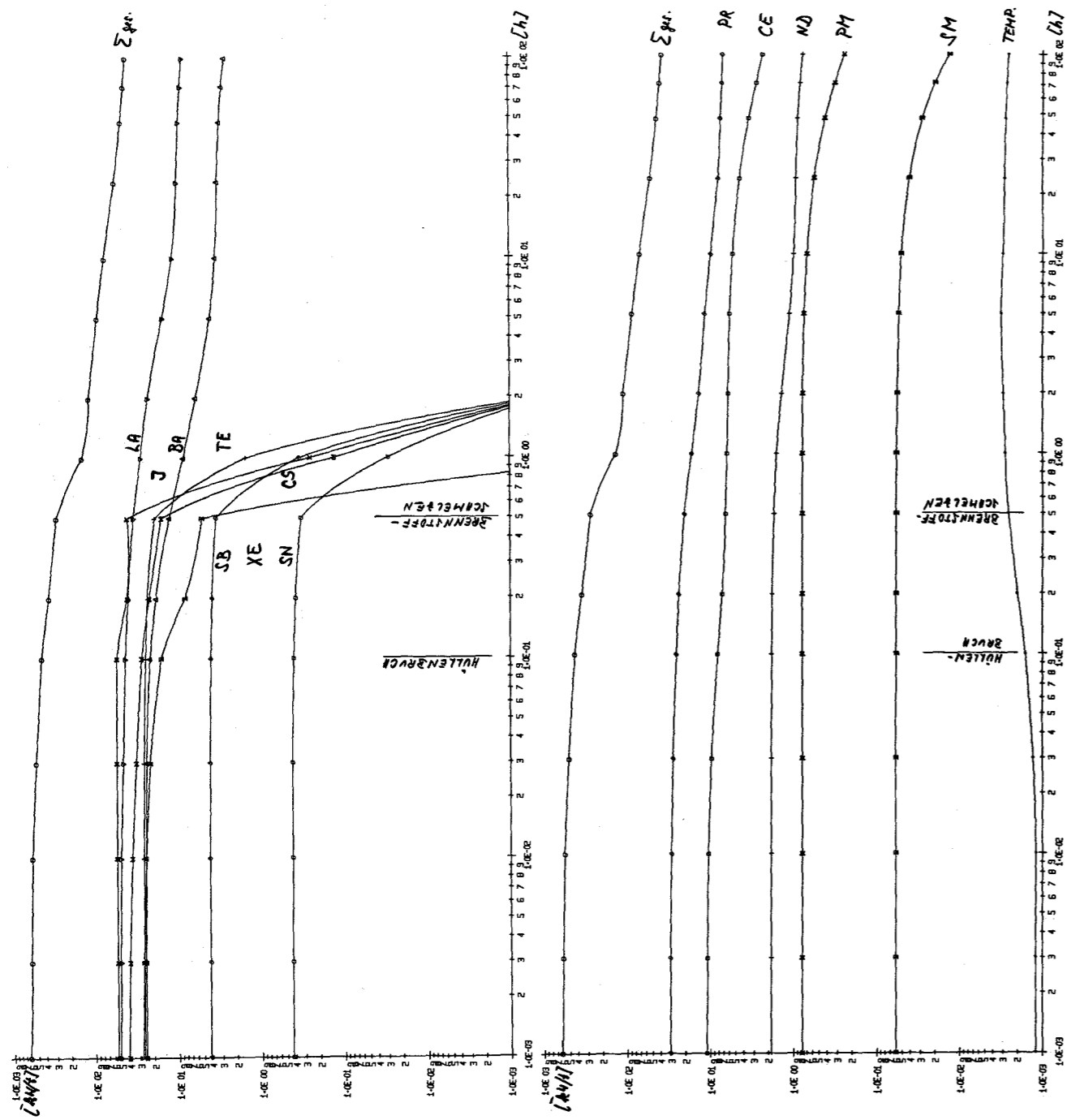


Abb. 5.16: Mittlere Wärmequellenstärke im Brennstoff mit Spaltproduktentweichen für SWR Brunsbüttel (Summenkurve und Beitrag der Elemente Sn bis Sm)



2.000 h NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRUENGLICHEN BRENNSTOFFS)
(LEISTUNG 0.0 MWTH/T DXVD, MITTL.FLUSS 0.0 N/CM2/SEC)

Table with columns for reactor power (MWTH/T) and neutron flux (N/CM2/SEC) across various channels (e.g., 34SE, 35BR, 35KK, etc.) and their sub-components (K1, K2, etc.). Includes summary rows for each channel and a final ZERFALLSZAEMERUNG section.

ZERFALLSZAEMERUNG IM BRENNSTOFF 114.79 KW/T = 13.496 MWTH GESAMT, ENTSPRECHEND 0.5888 % VOLLAST
ZERFALLSZAEMERUNG AUSSERHALB 81.81 KW/T = 9.619 MWTH GESAMT, ENTSPRECHEND 0.4197 % VOLLAST

Abb. 5.21: Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 2.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabsehaltung)

139

10.000 H NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRÜNGLICHEN BRENNSTOFFS)
 (LEISTUNG 0.0 MWTH/ T OXYO, MITTL. FLUSS 0.0 N/C/M2/SEC)

34SE	83/ 23M	84/ 3.3M	85/ 39S											SUMME SE
(CI)	0.0	0.0	0.0											0.0
(KM)	0.0	0.0	0.0											0.0
(CI)	0.594E-03	0.291E-49	0.0											0.6939E-03
(KM)	0.112E-07	0.165E-54	0.0											0.1118E-07
35BR	83/ 2.4H	84/ 32M	85/ 3M	86/ 54S	87/ 55.4S									SUMME BR
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0									0.0
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0									0.0
(CI)	0.528E-04	0.395E-00	0.170E-54	0.0	0.0									0.5285E-04
(KM)	0.141E-01	0.693E-05	0.100E-59	0.0	0.0									0.1408E-01
35KR	83/ STAB	84/ STAB	85/ 4.4H	86/ STAB	87/ 76M	88/ 2.8H	89/ 3.1M	90/ 32S					SUMME KR	
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0					0.0	
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0					0.0	
(CI)	0.0	0.0	0.448E-05	0.0	0.175E-04	0.493E-05	0.420E-52	0.0					0.9584E-05	
(KM)	0.0	0.0	0.133E-00	0.0	0.273E-01	0.627E-00	0.660E-57	0.0					0.7877E-00	
37RB	87/ 47E9A	88/ 17.8M	89/ 15M	90/ 4.3M	91/ 57.4S						SUMME RB			
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0						0.0			
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0						0.0			
(CI)	0.127E-08	0.551E-05	0.896E-06	0.109E-35	0.0						0.5509E-05			
(KM)	0.826E-15	0.815E-00	0.177E-10	0.347E-40	0.0						0.8153E-00			
38SR	88/ STAB	89/ 50.5D	90/ 28.1A	91/ 9.7H	92/ 2.71H	93/ 8M	94/ 1.3M					SUMME SR		
(CI)	0.0	0.760E-06	0.612E-05	0.457E-06	0.660E-05	0.251E-16	0.0					0.1345E-07		
(KM)	0.0	0.263E-01	0.791E-01	0.361E-01	0.592E-00	0.313E-21	0.0					0.6912E-01		
(CI)	0.0	0.179E-05	0.144E-04	0.107E-05	0.155E-04	0.590E-18	0.0					0.3163E-05		
(KM)	0.0	0.620E-01	0.186E-02	0.847E-01	0.139E-01	0.734E-23	0.0					0.1625E-00		
39Y	89/ STAB	90/ 64.1H	91/ 58.8D	92/ 3.5H	93/ 10.2H	94/ 20M	95/ 10.9M	96/ 2.3M				SUMME Y		
(CI)	0.0	0.622E-05	0.966E-06	0.313E-06	0.514E-06	0.878E-03	0.268E-10	0.284E-72				0.1855E-07		
(KM)	0.0	0.334E-00	0.356E-01	0.312E-01	0.380E-01	0.142E-07	0.222E-15	0.404E-77				0.1081E-02		
(CI)	0.0	0.192E-03	0.227E-04	0.185E-04	0.119E-04	0.204E-05	0.621E-13	0.634E-75				0.9504E-04		
(KM)	0.0	0.103E-02	0.834E-02	0.185E-01	0.883E-02	0.328E-10	0.515E-18	0.0				0.3667E-01		
40ZR	90/ STAB	91/ STAB	92/ STAB	93/ 15E5A	94/ STAB	95/ 65.5D	96/ STAB	97/ 16.8H	98/ 30.7S			SUMME ZR		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.143E-01	0.0	0.101E-07	0.0	0.641E-06	0.0			0.1653E-07		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.204E-06	0.0	0.528E-01	0.0	0.550E-01	0.0			0.1078E-02		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.333E-02	0.0	0.235E-04	0.0	0.149E-04	0.0			0.3842E-04		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.473E-09	0.0	0.123E-01	0.0	0.128E-01	0.0			0.2507E-01		
41NB	95/ 35D	96/ 23.4H	97/ 74M	98/ 51M	99/ 2.4M	100/ 2.8M					SUMME NB			
(CI)	0.105E-07	0.732E-02	0.691E-06	0.279E-03	0.555E-69	0.327E-58					0.1742E-07			
(KM)	0.315E-01	0.112E-02	0.475E-01	0.586E-02	0.454E-74	0.387E-63					0.9911E-01			
(CI)	0.244E-04	0.170E-00	0.161E-04	0.649E-00	0.124E-71	0.730E-61					0.4052E-04			
(KM)	0.120E-01	0.261E-05	0.110E-01	0.136E-04	0.101E-76	0.865E-66					0.2305E-01			
42MD	95/ STAB	96/ STAB	97/ STAB	98/ STAB	99/ 66.7H	100/ STAB	101/ 14.6M	102/ 11.5M	103/ 5.3H	104/ 1.1M		SUMME MD		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.168E-73	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		0.1684E-73		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		0.0		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.913E-06	0.0	0.353E-06	0.137E-09	0.133E-06	0.0		0.1047E-07		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.304E-01	0.0	0.534E-11	0.389E-15	0.111E-01	0.0		0.4141E-01		
43TC	99/ 6.0H	100/ 17S	101/ 14M	102/ 4.5M	103/ 50S	104/ 18M	105/ 7.7H	106/ 37S				SUMME TC		
(CI)	0.567E-77	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0				0.5674E-77		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0				0.0		
(CI)	0.372E-06	0.0	0.615E-05	0.225E-09	0.134E-06	0.293E-04	0.523E-18	0.0				0.1105E-07		
(KM)	0.725E-00	0.0	0.311E-10	0.169E-14	0.934E-00	0.492E-09	0.455E-23	0.0				0.1659E-01		
44RJ	99/ STAB	100/ STAB	101/ STAB	102/ STAB	103/ 39.5D	104/ STAB	105/ 4.4H	106/ 1.0A	107/ 4.2M	108/ 4.5M		SUMME RU		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.489E-06	0.0	0.314E-05	0.544E-05	0.315E-38	0.843E-36		0.5745E-06		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.162E-01	0.0	0.195E-00	0.502E-02	0.279E-43	0.283E-41		0.1823E-01		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.291E-04	0.0	0.112E-03	0.126E-03	0.730E-41	0.197E-38		0.3151E-04		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.967E-02	0.0	0.698E-03	0.117E-04	0.647E-46	0.659E-44		0.1038E-01		
45RH	103/ STAB	104/ 4.4M	105/ 35.5H	106/ 30S	107/ 22M	108/ 17S	109/ 30S					SUMME RH		
(CI)	0.0	0.0	0.135E-06	0.544E-05	0.238E-03	0.900E-36	0.0					0.1890E-06		
(KM)	0.0	0.0	0.209E-00	0.479E-00	0.113E-08	0.116E-40	0.0					0.6880E-00		
(CI)	0.0	0.0	0.327E-03	0.126E-03	0.553E-06	0.210E-38	0.0					0.4536E-03		
(KM)	0.0	0.0	0.508E-03	0.111E-02	0.261E-11	0.270E-43	0.0					0.1622E-02		
45PD	105/ STAB	107/ 7E6A	108/ STAB	109/ 13.5H	110/ STAB	111/ 22M	112/ 21H	113/ 1.5M	114/ 2.4M			SUMME PD		
(CI)	0.0	0.125E-01	0.0	0.289E-06	0.0	0.189E-04	0.115E-04	0.0	0.131E-71			0.4040E-04		
(KM)	0.0	0.119E-08	0.0	0.711E-02	0.0	0.110E-09	0.793E-03	0.0	0.0			0.7903E-02		
(CI)	0.0	0.294E-03	0.0	0.678E-02	0.0	0.444E-06	0.271E-02	0.0	0.308E-73			0.9491E-02		
(KM)	0.0	0.279E-10	0.0	0.167E-03	0.0	0.257E-11	0.186E-04	0.0	0.0			0.1856E-03		
47AG	111/ 7.5D	112/ 3.2H	113/ 5.3H	114/ 5.25	115/ 20.0M	116/ 2.5M						SUMME AG		
(CI)	0.203E-09	0.496E-00	0.0	0.766E-72	0.0	0.0						0.4964E-00		
(KM)	0.533E-15	0.848E-05	0.0	0.109E-76	0.0	0.0						0.8475E-05		
(CI)	0.301E-04	0.136E-04	0.715E-03	0.628E-72	0.160E-05	0.174E-68						0.5086E-04		
(KM)	0.790E-02	0.166E-01	0.509E-02	0.896E-77	0.475E-10	0.257E-73						0.2959E-01		
49CD	111/ STAB	112/ STAB	113/ STAB	114/ STAB	115/ 53.5H	116/ STAB	117/ 2.5H	118/ 49M	119/ 3.4M			SUMME CD		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.151E-04	0.0	0.113E-03	0.474E-00	0.178E-49			0.1619E-04		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.569E-02	0.0	0.121E-02	0.140E-05	0.158E-54			0.6900E-02		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.603E-01	0.0	0.262E-00	0.110E-02	0.410E-52			0.6295E-01		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.228E-04	0.0	0.282E-05	0.326E-08	0.304E-57			0.2500E-04		
49IN	117/ 1.95H	118/ 5S	119/ 2.3M	120/ 3.2S	121/ 30S							SUMME IN		
(CI)	0.330E-03	0.475E-00	0.550E-49	0.0	0.0							0.3303E-03		
(KM)	0.142E-02	0.524E-05	0.462E-54	0.0	0.0							0.1626E-02		
(CI)	0.767E-00	0.110E-02	0.127E-51	0.0	0.0							0.7678E-00		
(KM)	0.377E-05	0.122E-07	0.106E-56	0.0	0.0							0.3784E-05		
50SN	120/ STAB	121/ 27H	122/ STAB	123/ 129D	124/ STAB	125/ 9.6D	126/ 1E5A	127/ 2.1H	128/ 59M			SUMME SN		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0			0.0		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0			0.0		
(CI)	0.0	0.176E-04	0.0	0.261E-04	0.0	0.335E-04	0.981E-01	0.667E-03	0.528E-02			0.8437E-04		
(KM)	0.0	0.198E-02	0.0	0.878E-02	0.0	0.203E-01	0.581E-07	0.422E-02	0.240E-03			0.3549E-01		
51SB	124/ 60.3D	125/ 2.7A	126/ 12.4D	127/ 3.8D	128/ 9.3H	129/ 4.3H	130/ 37M	131/ 23M				SUMME SB		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0				0.0		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0				0.0		
(CI)	0.0	0.173E-04	0.161E-03	0.213E-05	0.393E-05	0.328E-05	0.432E-01	0.625E-02				0.9524E-05		
(KM)	0.0	0.682E-02	0.120E-02	0.117E-00	0.514E-00	0.339E-00	0.138E-04	0.403E-08				0.9784E-00		
52TE	126/ STAB	127/ 9.4H	128/ STAB	129/ 69M	130/ STAB	131/ 25M	132/ 78H	133/ 54M	134/ 43M			SUMME TE		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0			0.0		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0			0.0		
(CI)	0.0	0.222E-05	0.0	0.446E-05	0.0	0.262E-00	0.651E-06	0.491E-03	0.717E-02			0.7187E-06		
(KM)	0.0	0.370E-01	0.0	0.174E-00	0.0	0.174E-05	0.117E-01	0.896E-02	0.721E-04			0.1392E-01		
53J	127/ STAB	128/ 25M	129/ 17E6A	130/ 12.3H	131/ 8.05D	132/ 2.4H	133/ 20.8H	134/ 52M	135/ 6.7H			SUMME J		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0			0.0		
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0			0.0		
(CI)	0.0	0.0	0.423E-01	0.112E-03	0.463E-06	0.671E-06	0.823E-06	0.192E-04	0.361E-06			0.2320E-07		
(KM)	0.0	0.0	0.160E-07	0.164E-02	0.165E-01	0.128E-02	0.518E-01	0.281E-01	0.458E-01			0.2429E-02		
54XE	131/ STAB	132/ STAB	133/ 5.65D	134/ STAB	135/ 9.15H	136/ STAB	137/ 3.9M	138/ 14.1M	139/ 41S	140/ 13.5S		SUMME XE		
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		0.0			
(KM)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		0.0			
(CI)	0.0	0.0	0.109E-07	0.0	0.800E-06	0.0								

24.000 H NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRUENGLICHEN BRENNSTOFFS)
LEISTUNG 0.0 MWH/T DXYO, MITTL.FLUSS 0.0 N/CMZ/SEC

34SE	83/ 23M 84/ 3.3M 85/ 39S	SUMME SE
(CI)	0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.706E-14 0.0 0.0	0.706E-14
(KW)	0.114E-18 0.0 0.0	0.1137E-18
35BR	83/ 2.4H 84/ 32M 85/ 3M 86/ 54S 87/ 55.4S	SUMME BR
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.928E-02 0.499E-08 0.0 0.0 0.0	0.9275E-02
(KW)	0.247E-03 0.874E-13 0.0 0.0 0.0	0.2471E-03
35KR	83/ STAB 84/ STAB 85/ 4.4H 86/ STAB 87/ 76M 88/ 2.8H 89/ 3.1M 90/ 32S	SUMME KR
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.494E-04 0.0 0.823E-00 0.154E-04 0.0	0.8485E-04
(KW)	0.0 0.0 0.147E-01 0.0 0.128E-04 0.196E-01 0.0	0.3430E-01
37RB	87/ 47E9A 88/ 17.8M 89/ 15M 90/ 4.3M 91/ 57.4S	SUMME RB
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.128E-08 0.172E-04 0.125E-22 0.0 0.0	0.1723E-04
(KW)	0.830E-15 0.255E-01 0.248E-27 0.0 0.0	0.2550E-01
38SR	88/ STAB 89/ 50.5D 90/ 28.1A 91/ 9.7H 92/ 2.71H 93/ 8M 94/ 1.3M	SUMME SR
(CI)	0.0 0.739E-06 0.600E-05 0.165E-06 0.180E-04 0.609E-48 0.0	0.9658E-06
(KW)	0.0 0.256E-01 0.775E-01 0.130E-01 0.162E-01 0.758E-53 0.0	0.3955E-01
(CI)	0.0 0.328E-05 0.266E-04 0.731E-04 0.799E-02 0.270E-49 0.0	0.4285E-05
(KW)	0.0 0.114E-00 0.344E-02 0.576E-01 0.717E-03 0.336E-54 0.0	0.1754E-00
39Y	89/ STAB 90/ 64.1H 91/ 58.8D 92/ 3.5H 93/ 10.2H 94/ 20M 95/ 10.9H 96/ 2.3M	SUMME Y
(CI)	0.0 0.619E-05 0.960E-06 0.273E-05 0.198E-06 0.200E-15 0.168E-33 0.0	0.1247E-07
(KW)	0.0 0.332E-00 0.352E-01 0.272E-00 0.146E-01 0.323E-20 0.139E-38 0.0	0.5603E-01
(CI)	0.0 0.571E-03 0.425E-04 0.417E-03 0.861E-03 0.867E-18 0.726E-36 0.0	0.8097E-04
(KW)	0.0 0.307E-02 0.156E-01 0.416E-02 0.636E-02 0.140E-22 0.602E-41 0.0	0.2923E-01
40ZR	90/ STAB 91/ STAB 92/ STAB 93/ 15E5A 94/ STAB 95/ 65.5D 96/ STAB 97/ 16.8H 98/ 30.7S	SUMME ZR
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.143E-01 0.0 0.100E-07 0.0 0.359E-06 0.0	0.1363E-07
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.203E-06 0.0 0.524E-01 0.0 0.308E-01 0.0	0.8319E-01
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.622E-02 0.0 0.497E-04 0.0 0.156E-04 0.0	0.5925E-04
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.883E-09 0.0 0.228E-01 0.0 0.134E-01 0.0	0.3617E-01
41NB	95/ 35D 96/ 23.4H 97/ 74M 98/ 51M 99/ 2.4M 100/ 2.8M	SUMME NB
(CI)	0.105E-07 0.482E-02 0.387E-06 0.307E-02 0.0 0.0	0.1436E-07
(KW)	0.0 0.514E-01 0.741E-03 0.266E-01 0.644E-07 0.0 0.0	0.7805E-01
(CI)	0.0 0.456E-04 0.210E-00 0.168E-04 0.133E-04 0.0 0.0	0.8242E-04
(KW)	0.0 0.224E-01 0.322E-05 0.116E-01 0.280E-09 0.0 0.0	0.3394E-01
42MJ	95/ STAB 96/ STAB 97/ STAB 98/ STAB 99/ 66.7H 100/ STAB 101/ 14.6M 102/ 11.5M 103/ 5.3H 104/ 1.1M	SUMME MJ
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
43TC	99/ 6.0H 100/ 17S 101/ 14M 102/ 4.5M 103/ 50S 104/ 18M 105/ 7.7M 106/ 37S	SUMME TC
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.861E-06 0.0 0.395E-22 0.238E-31 0.214E-05 0.263E-18 0.768E-51 0.0	0.8628E-06
(KW)	0.542E-00 0.0 0.200E-27 0.179E-36 0.150E-00 0.443E-23 0.669E-56 0.0	0.7923E-00
44RU	99/ STAB 100/ STAB 101/ STAB 102/ STAB 103/ 39.5D 104/ STAB 105/ 4.4H 106/ 1.0A 107/ 4.2M 108/ 4.5M	SUMME RU
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.483E-06 0.0 0.346E-04 0.542E-05 0.0 0.0	0.5404E-06
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.160E-01 0.49 0.0 0.215E-01 0.500E-02 0.0	0.1629E-01
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
45RH	103/ STAB 104/ 4.4M 105/ 35.5H 106/ 30S 107/ 22M 108/ 17S 109/ 30S	SUMME RH
(CI)	0.0 0.0 0.105E-06 0.342E-05 0.768E-15 0.0 0.0	0.1593E-06
(KW)	0.0 0.0 0.163E-00 0.477E-00 0.362E-20 0.0 0.0	0.5407E-00
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
45PD	106/ STAB 107/ 7E6A 108/ STAB 109/ 13.5H 110/ STAB 111/ 22M 112/ 21H 113/ 1.5M 114/ 2.4M	SUMME PD
(CI)	0.0 0.123E-01 0.0 0.138E-04 0.0 0.397E-16 0.713E-03 0.0 0.0	0.2091E-04
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
47AG	111/ 7.5D 112/ 3.2H 113/ 5.3H 114/ 5.2S 115/ 20.0M 116/ 2.5M	SUMME AG
(CI)	0.574E-20 0.427E-01 0.0 0.0 0.0 0.0	0.4267E-01
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
48CD	111/ STAB 112/ STAB 113/ STAB 114/ STAB 115/ 53.5H 116/ STAB 117/ 2.5H 118/ 49M 119/ 3.4M	SUMME CD
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.125E-04 0.0 0.232E-01 0.328E-05 0.0 0.0	0.1255E-04
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
49IN	117/ 1.95H 118/ 5S 119/ 2.3M 120/ 3.2S 121/ 30S	SUMME IN
(CI)	0.39E-01 0.329E-05 0.0 0.0 0.0	0.9279E-01
(KW)	0.457E-04 0.363E-10 0.0 0.0 0.0	0.4574E-04
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.404E-01 0.143E-07 0.0 0.0 0.0	0.4042E-01
(KW)	0.199E-06 0.158E-12 0.0 0.0 0.0	0.1988E-06
50SN	120/ STAB 121/ 27H 122/ STAB 123/ 129D 124/ STAB 125/ 9.6D 126/ 1E5A 127/ 2.1H 128/ 59M	SUMME SN
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.123E-04 0.0 0.260E-04 0.0 0.321E-04 0.981E-01 0.657E-01 0.274E-02	0.7048E-04
(KW)	0.0 0.138E-02 0.0 0.876E-02 0.0 0.194E-01 0.581E-07 0.416E-04 0.124E-07	0.2961E-01
51SB	124/ 60.3D 125/ 2.7A 126/ 12.4D 127/ 3.8D 128/ 9.3H 129/ 4.3H 130/ 37M 131/ 23M	SUMME SB
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.173E-04 0.156E-03 0.191E-05 0.138E-05 0.344E-04 0.634E-06 0.636E-13	0.3829E-05
(KW)	0.0 0.682E-02 0.116E-02 0.106E-00 0.181E-00 0.355E-01 0.203E-11 0.410E-19	0.3300E-01
52TE	126/ STAB 127/ 9.4H 128/ STAB 129/ 69M 130/ STAB 131/ 25M 132/ 78M 133/ 54M 134/ 43M	SUMME TE
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.208E-05 0.0 0.469E-04 0.0 0.250E-10 0.575E-06 0.102E-01 0.946E-04	0.6006E-06
(KW)	0.0 0.347E-01 0.0 0.183E-01 0.0 0.167E-15 0.104E-01 0.186E-06 0.952E-10	0.1088E-01
53J	127/ STAB 128/ 25M 129/ 17E6A 130/ 12.3H 131/ 8.05D 132/ 2.4H 133/ 20.8H 134/ 52M 135/ 6.7H	SUMME J
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.423E-01 0.510E-02 0.441E-06 0.593E-06 0.516E-06 0.306E-01 0.847E-05	0.1635E-07
(KW)	0.0 0.0 0.160E-07 0.744E-03 0.157E-01 0.114E-02 0.325E-01 0.450E-06 0.108E-01	0.1727E-02
54XE	131/ STAB 132/ STAB 133/ 5.65D 134/ STAB 135/ 9.15H 136/ STAB 137/ 3.9H 138/ 14.1M 139/ 41S 140/ 13.5S	SUMME XE
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.106E-07 0.0 0.387E-06 0.0 0.0 0.178E-24 0.0 0.0	0.1450E-07
55CS	133/ STAB 134/ 2.05A 135/ 2E6A 136/ 12.9D 137/ 30.0A 138/ 32.3M 139/ 9.0M 140/ 64S 141/ 24S	SUMME CS
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0	0.0
(KW)	0.0 0.0 0.108E-01 0.935E-03 0.625E-05 0.707E-07 0.819E-42 0.0 0.0	0.6340E-05
59BA	135/ STAB 136/ STAB 137/ STAB 138/ STAB 139/ 82.9M 140/ 12.8D 141/ 18M 142/ 11M	SUMME BA
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.669E-01 0.939E-06 0.815E-18 0.364E-33	0.9395E-06
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.353E-04 0.310E-01 0.727E-23 0.274E-38	0.3101E-01
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.440E-00 0.417E-05 0.361E-19 0.161E-34	0.4165E-05
(KW)	0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.232E-05 0.137E-00 0.322E-24 0.122E-39	0.1375E-00
57LA	139/ STAB 140/ 40.2H 141/ 3.9H 142/ 92.5M 143/ 14M 144/ 41S	SUMME LA
(CI)	0.0 0.986E-06 0.146E-05 0.214E-02 0.102E-24 0.0	0.1001E-07
(KW)	0.0 0.940E-01 0.866E-01 0.351E-03 0.151E-29 0.0	0.9484E-01
(CI)	0.0 0.437E-05 0.649E-03 0.951E-00 0.453E-26 0.0	0.4438E-05
(KW)	0.0 0.417E-00 0.384E-02 0.156E-04 0.671E-31 0.0	0.4205E-00
58CE	140/ STAB 141/ 32.5D 142/ STAB 143/ 33.4H 144/ 284D 145/ 3.0M 146/ 13.9M	SUMME CE
(CI)	0.0 0.945E-06 0.0 0.569E-06 0.775E-06 0.0 0.301E-25	0.2290E-07
(KW)	0.0 0.148E-01 0.0 0.239E-01 0.577E-00 0.0 0.932E-31	0.4441E-01
(CI)	0.0 0.419E-05 0.0 0.252E-05 0.344E-05 0.0 0.133E-26	0.1015E-06
(KW)	0.0 0.655E-01 0.0 0.106E-00 0.256E-01 0.0 0.413E-32	0.1969E-00
59PR	143/ 13.6D 144/ 17.3M 145/ 5.98H 146/ 24.0M 147/ 12.0M 148/ 1.98M 149/ 2.3M	SUMME PR
(CI)	0.921E-06 0.775E-06 0.384E-05 0.956E-12 0.266E-30 0.0 0.0	0.1734E-07
(KW)	0.0 0.203E-01 0.561E-01 0.391E-00 0.163E-16 0.251E-35 0.0 0.0	0.8035E-01
(CI)	0.0 0.408E-05 0.344E-05 0.170E-04 0.424E-13 0.118E-31 0.0 0.0	0.7690E-05
(KW)	0.0 0.902E-01 0.249E-00 0.173E-01 0.724E-18 0.111E-36 0.0 0.0	0.3562E-00
60ND	147/ 11.1D 148/ STAB 149/ 1.73H	SUMME ND
(CI)	0.340E-06 0.0 0.117E-02	0.3401E-06
(KW)	0.938E-00 0.0 0.564E-04	0.9383E-00
(CI)	0.148E-04 0.0 0.509E-01	0.1478E-04
(KW)	0.408E-02 0.0 0.245E-06	0.4079E-02
61PM	147/ 2.62A 148/ 5.4D 149/ 53.1H 150/ 2.7H 151/ 28M	SUMME PM
(CI)	0.185E-06 0.288E-02 0.130E-06 0.484E-00 0.380E-05	0.3525E-06
(KW)	0.979E-01 0.198E-03 0.333E-00 0.658E-05 0.130E-00	0.5617E-00
(CI)	0.0 0.302E-03 0.125E-00 0.565E-03 0.210E-02 0.165E-03	0.1532E-04
(KW)	0.426E-03 0.859E-06 0.145E-02 0.286E-07 0.567E-03	0.2442E-02
62SM	149/ STAB 150/ STAB 151/ 87A 152/ STAB 153/ 46.8H	SUMME SM
(CI)	0.0 0.0 0.0 0.148E-04 0.0 0.181E-05	0.1961E-05
(KW)	0.0 0.0 0.276E-03 0.0 0.412E-01	0.4148E-01
(CI)	0.0 0.0 0.644E-01 0.0 0.788E-02	0.8525E-02
(KW)	0.0 0.0 0.120E-05 0.0 0.179E-03	0.1804E-03

ZERFALLSWAERME IM BRENNSTOFF 54.56 KW/T = 6.415 MWH GESAMT, ENTSPRECHEND 0.2799 % VOLLAST
ZERFALLSWAERME AUSSERHALB 26.56 KW/T = 3.122 MWH GESAMT, ENTSPRECHEND 0.1362 % VOLLAST

Abb. 5.24: Numerische Angabe der Wärmequellenstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel SWR Brunsbüttel 24.0 h nach Störfall (GAU mit Notkühlversagen und Reaktorabschaltung)

470MWE DWR BASF MITTE

BERECHNUNG DER ZERFALLSWAERME
(SUMMIERUNG DER BEITRAEGE DER ISOTOPE EINES CHEM. ELEMENTS)

COREDATEN: BRENNSTOFF 62.17 T UO2
LEISTUNG 2000. MWH
MITTL.SPEZ.LEISTUNG 32.17 W/G BRENNSTOFF
MITTL.ABBRAND 32170. MWD/T OXYD
MITTL.ANREICHERUNG 2.57 %

BETRIEBSZEITEN: 1000. TAGE BEI 2000. MWH

ZERFALLSZEITEN IN STD. BEI MWH	0.001	0.003	0.010	0.030	0.100	0.200	0.500	1.000	2.000	5.000	10.000	24.000	48.000	72.000	100.000	
TEMPERATUR(END)	1200.	1200.	1200.	1200.	1300.	1600.	2000.	2600.	2800.	3000.	3200.	3000.	2900.	2800.	2700.	2600.

ENTWEICKHOEFFIZIENTEN

MOMENTAN: HJELLENBRUCH BEI 1400C: GASE 30%, HALOGENE 25%, CS 10%
BRENNSTOFFSCHMELZEN BEI 2500C: GASE 99%, HALOGENE 99%, CS 99%, SE-RB-MO-TC-AG-SN-SB-TE 30%

STETIG: TEMP.	-1400C	-1600C	-1800C	-2000C	-2200C	-2400C	-2600C	-2800C	-3000C	-3200C
SE	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
BR	0.0	0.50E-06	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.20E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E-00
KR	0.0	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.16E-04	0.50E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E-00
RB	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
SR	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
Y	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
ZR	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
NB	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
MO	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
TC	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
RU	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
RH	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
PD	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
AG	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
CD	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
IN	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
SN	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
SB	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
TE	0.0	0.10E-08	0.15E-08	0.30E-08	0.10E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
J	0.0	0.50E-06	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.20E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E-00
XE	0.0	0.10E-05	0.20E-05	0.40E-05	0.80E-05	0.16E-04	0.50E-02	0.10E-01	0.50E-01	0.10E-00
CS	0.0	0.10E-08	0.20E-08	0.50E-08	0.20E-07	0.20E-06	0.10E-02	0.50E-02	0.10E-01	0.10E-00
BA	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
LA	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
CE	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
PR	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.30E-09	0.60E-09	0.20E-08	0.10E-06	0.20E-06	0.40E-06	0.10E-05
ND	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
PM	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06
SM	0.0	0.10E-09	0.15E-09	0.20E-09	0.50E-09	0.10E-08	0.10E-07	0.20E-07	0.40E-07	0.10E-06

Abb. 5.26: Eingabedaten für Rechenbeispiel KKW BASF Mitte mit Temperatur-Zeitverlauf und Spaltproduktentweichkoeffizienten

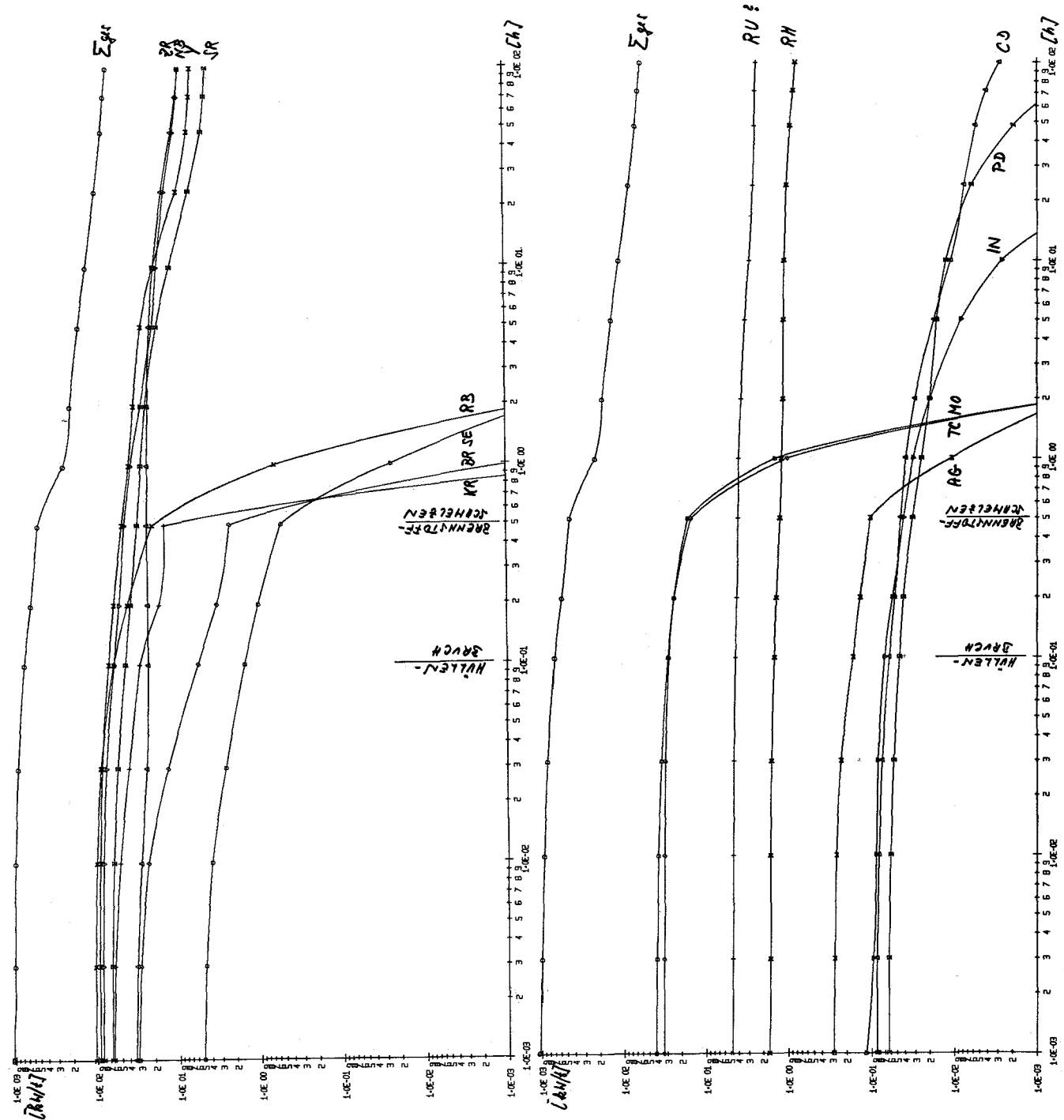


Abb. 5.27: Mittlere Wärmequellstärke im Brennstoff mit Spaltprodukt-entweichen für DWR BASF Mitte (Summenkurve und Beitrag der Elemente Se bis In)

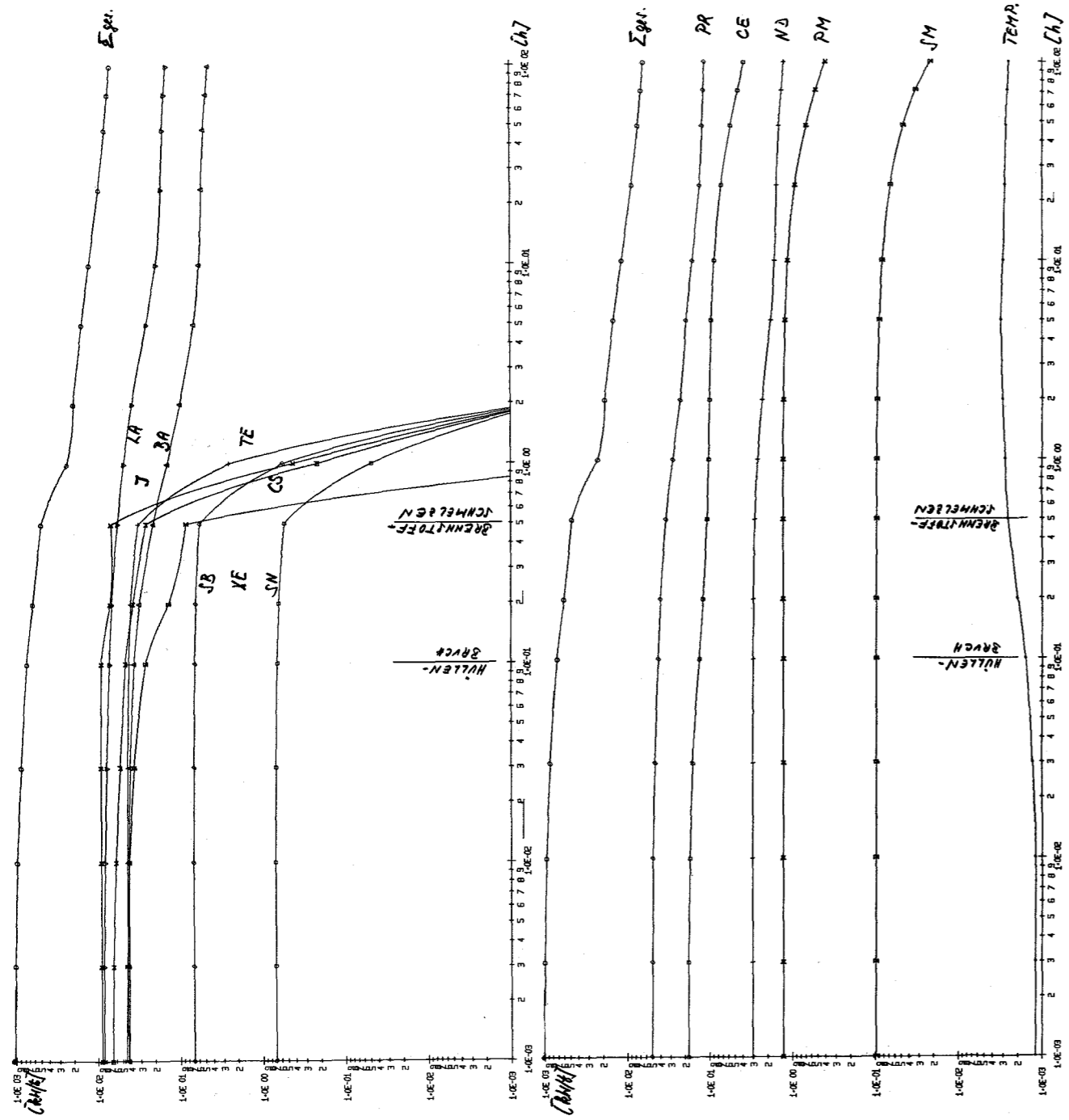


Abb. 5.28: Mittlere Wärmequellstärke im Brennstoff mit Spaltproduktentweichen für DWR BASF Mitte (Summenkurve und Beitrag der Elemente Sn bis Sm)

0.100 H NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRUENGLICHEN BRENNSTOFFS)
(LEISTUNG 0.0 MWH/T OXYO, MITTL.FLUSS 0.0 N/CHZ/SEC)

Table with columns for unit IDs (e.g., 34SE, 35BR, 36KR), time periods (e.g., 83/ 23M, 84/ 3.3M), and power values for CI, KW, and KWH. The table ends with a summary row: ZERFALLSWAERME IM BRENNSTOFF 720.66 KW/T = 44.873 MWH GESAMT, ENTSPRECHEND 2.2402 % VOLLAST

Abb. 5.29: Numerische Angabe der Waermequellstaerke innerhalb und auerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t urstuenglichen Brennstoffs f#ur Beispiel DWR BASF Mitte 0.1 h nach Stoerfall (GAU mit Notkuhlversagen und Reaktorabschaltung)

0.200 H NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRUENGLICHEN BRENNSTOFFS)
(LEISTUNG 0.0 MWHT/T OXYD, MITTL. FLUSS 0.0 N/CM2/SEC)

Table with multiple columns containing alphanumeric codes (e.g., 34SE, 35BR) and numerical values representing performance metrics. Each entry includes a code and several data points, often with sub-headers (CI, KW, etc.). The table concludes with summary statistics: ZERFALLSWAERME IN BRENNSTOFF (592.43 KW/T) and ZERFALLSWAERME AUSSERHALB (40.83 KW/T).

Abb. 5.30: Numerische Angabe der Wärmequellstärke innerhalb und außerhalb des Brennstoffs bezogen auf 1 t ursprünglichen Brennstoffs für Beispiel DWR BASP Mitte 0.2 h nach Störfall (GAU mit Notkühlerausfällen und Reaktorabschaltung)

- 874 -

0.500 H NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRÜNGLICHEN BRENNSTOFFS)
LEISTUNG 0.0 MWTH/T OXYD, MITTL.FLUSS 0.0 NCM2/SEC

34SE	83/ 23M	84/ 3.3M	85/ 39S									SUMME SE
(CI)	0.330E 05	0.463E 03	0.612E-08									0.3342E 05
(KW)	0.531E 00	0.263E-02	0.507E-13									0.5334E 00
(CI)	0.119E 00	0.203E-02	0.0									0.1214E 00
(KW)	0.192E-05	0.115E-07	0.0									0.1934E-05
35BR	83/ 2.4H	84/ 32M	85/ 3M	86/ 54S	87/ 55.4S							SUMME BR
(CI)	0.980E 05	0.113E 06	0.320E 03	0.366E-04	0.843E-04							0.2114E 06
(KW)	0.261E 00	0.198E 01	0.189E-02	0.559E-09	0.219E-08							0.2246E 01
(CI)	0.312E 05	0.364E 05	0.107E 03	0.123E-04	0.284E-04							0.6777E 05
(KW)	0.832E-01	0.639E 00	0.636E-03	0.188E-09	0.735E-09							0.7227E 00
36KR	83/ STAB	84/ STAB	85/ 4.4H	86/ STAB	87/ 76M	88/ 2.8H	89/ 3.1M	90/ 32S				SUMME KR
(CI)	0.0	0.0	0.230E 06	0.0	0.364E 06	0.595E 06	0.106E 04	0.110E-10				0.1190E 07
(KW)	0.0	0.0	0.683E 00	0.0	0.567E 01	0.757E 01	0.167E-01	0.174E-15				0.1395E 02
(CI)	0.0	0.0	0.100E 06	0.0	0.158E 06	0.259E 06	0.462E 03	0.481E-11				0.5177E 06
(KW)	0.0	0.0	0.297E 00	0.0	0.247E 01	0.330E 01	0.726E-02	0.757E-16				0.6070E 01
37RB	87/ 47E9A	88/ 17.8M	89/ 15M	90/ 4.3M	91/ 57.4S							SUMME RB
(CI)	0.386E-09	0.758E 06	0.395E 06	0.141E 05	0.540E-03							0.1167E 07
(KW)	0.251E-15	0.112E 02	0.783E 01	0.449E 00	0.589E-08							0.1949E 02
(CI)	0.118E-09	0.163E 06	0.829E 04	0.534E 00	0.0							0.1713E 06
(KW)	0.768E-16	0.241E 01	0.164E 00	0.171E-04	0.0							0.2577E 01
38SR	88/ STAB	89/ 50.5D	90/ 28.1A	91/ 9.7H	92/ 2.71H	93/ 8M	94/ 1.3M					SUMME SR
(CI)	0.0	0.129E 07	0.103E 06	0.152E 07	0.127E 07	0.119E 06	0.141E 00					0.4302E 07
(KW)	0.0	0.447E 01	0.134E 00	0.120E 02	0.113E 02	0.148E 01	0.189E-05					0.2945E 02
(CI)	0.0	0.198E 01	0.487E-01	0.453E 00	0.540E 00	0.0	0.0					0.3025E 01
(KW)	0.0	0.687E-05	0.630E-07	0.357E-05	0.485E-05	0.0	0.0					0.1535E-04
39Y	89/ STAB	90/ 64.1H	91/ 58.8D	92/ 3.5H	93/ 17.2H	94/ 20M	95/ 10.9M	96/ 2.3M				SUMME Y
(CI)	0.0	0.103E 06	0.160E 07	0.159E 07	0.162E 07	0.549E 06	0.246E 06	0.183E 03				0.5693E 07
(KW)	0.0	0.535E 00	0.589E 01	0.137E 02	0.120E 02	0.885E 01	0.203E 01	0.261E-02				0.4993E 02
(CI)	0.0	0.344E-01	0.214E 00	0.418E 00	0.430E 00	0.0	0.0	0.0				0.1097E 01
(KW)	0.0	0.185E-06	0.787E-06	0.417E-05	0.318E-05	0.0	0.0	0.0				0.8325E-05
40ZR	90/ STAB	91/ STAB	92/ STAB	93/ 15E5A	94/ STAB	95/ 65.5D	96/ STAB	97/ 16.8H	98/ 30.7S			SUMME ZR
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.239E 01	0.0	0.168E 07	0.0	0.157E 07	0.339E-11			0.3249E 07
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.340E-06	0.0	0.877E 01	0.0	0.135E 02	0.281E-16			0.2224E 02
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.457E-06	0.0	0.238E 00	0.0	0.0	0.0			0.2384E 00
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.649E-13	0.0	0.124E-05	0.0	0.0	0.0			0.1243E-05
41NB	95/ 35D	96/ 23.4H	97/ 74M	98/ 51M	99/ 2.4M	100/ 2.8M						SUMME NB
(CI)	0.174E 07	0.160E 03	0.166E 07	0.107E 07	0.272E 03	0.100E 04						0.4465E 07
(KW)	0.893E 01	0.246E-02	0.114E 02	0.224E 02	0.223E-02	0.119E-01						0.4235E 02
(CI)	0.446E 00	0.458E 04	0.464E 02	0.323E 00	0.0	0.0						0.7741E 00
(KW)	0.219E-05	0.704E-09	0.319E-07	0.678E-05	0.0	0.0						0.9007E-05
42MD	95/ STAB	96/ STAB	97/ STAB	98/ STAB	99/ 66.7H	100/ STAB	101/ 14.6M	102/ 11.5M	103/ 5.3H	104/ 1.1M		SUMME MD
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.166E 07	0.0	0.327E 06	0.185E 06	0.762E 06	0.282E-02		0.2937E 07
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.553E 01	0.0	0.494E 01	0.525E 00	0.632E 01	0.332E-07		0.1731E 02
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.527E 00	0.0	0.113E 01	0.537E 00	0.276E 01	0.0		0.9698E 01
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.175E-04	0.0	0.171E-04	0.153E-05	0.229E-04	0.0		0.5927E-04
43TC	99/ 6.0H	100/ 17S	101/ 14M	102/ 4.5H	103/ 50S	104/ 18M	105/ 7.7M	106/ 37S				SUMME TC
(CI)	0.167E 07	0.706E-29	0.779E 06	0.296E 06	0.764E 06	0.164E 06	0.164E 06	0.235E-09				0.3691E 07
(KW)	0.125E 01	0.983E-34	0.394E 01	0.223E 01	0.534E 01	0.276E 01	0.143E 00	0.975E-15				0.1566E 02
(CI)	0.560E 01	0.0	0.628E 01	0.976E 00	0.288E 01	0.496E 00	0.585E-01	0.0				0.1622E 02
(KW)	0.418E-05	0.0	0.318E-04	0.681E-05	0.201E-04	0.834E-05	0.509E-06	0.0				0.7174E-04
44RU	99/ STAB	100/ STAB	101/ STAB	102/ STAB	103/ 39.5D	104/ STAB	105/ 4.4H	106/ 1.0A	107/ 4.2M	108/ 4.5M		SUMME RU
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.814E 06	0.0	0.232E 06	0.900E 05	0.365E 03	0.187E 03		0.1136E 07
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.270E 01	0.0	0.144E 01	0.831E-02	0.324E-02	0.627E-03		0.4154E 01
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.442E 00	0.0	0.180E-01	0.428E-01	0.0	0.0		0.5026E 00
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.147E-05	0.0	0.112E-06	0.396E-08	0.0	0.0		0.1582E-05
45RH	103/ STAB	104/ 4.4H	105/ 35.5H	106/ 30S	107/ 22M	108/ 17S	109/ 30S					SUMME RH
(CI)	0.0	0.0	0.244E 06	0.900E 05	0.247E 05	0.200E 03	0.712E-14					0.3589E 06
(KW)	0.0	0.0	0.379E 00	0.793E 00	0.116E 00	0.257E-02	0.211E-19					0.1291E 01
(CI)	0.0	0.0	0.193E-01	0.429E-01	0.0	0.0	0.0					0.5320E-01
(KW)	0.0	0.0	0.160E-07	0.379E-06	0.0	0.0	0.0					0.3939E-06
46PD	106/ STAB	107/ 7E6A	108/ STAB	109/ 13.5H	110/ STAB	111/ 22M	112/ 21H	113/ 1.5M	114/ 2.4M			SUMME PD
(CI)	0.0	0.192E-01	0.0	0.794E 04	0.0	0.200E 04	0.267E 04	0.415E-02	0.657E 00			0.1261E 05
(KW)	0.0	0.182E-08	0.0	0.196E-01	0.0	0.116E-01	0.183E-02	0.983E-08	0.156E-06			0.3301E-01
(CI)	0.0	0.611E-08	0.0	0.0	0.0	0.0	0.817E-03	0.0	0.0			0.8172E-03
(KW)	0.0	0.579E-15	0.0	0.0	0.0	0.0	0.561E-09	0.0	0.0			0.5612E-09
47AG	111/ 7.5D	112/ 3.2H	113/ 5.3H	114/ 5.2S	115/ 20.0M	116/ 2.5M						SUMME AG
(CI)	0.515E 04	0.271E 04	0.408E 04	0.682E 00	0.998E 03	0.119E 01						0.1295E 05
(KW)	0.135E-01	0.331E-01	0.291E-01	0.973E-05	0.296E-01	0.177E-04						0.1053E 00
(CI)	0.183E-01	0.927E-02	0.130E-01	0.472E-06	0.398E-02	0.0						0.4363E-01
(KW)	0.480E-07	0.113E-06	0.923E-07	0.674E-11	0.915E-07	0.0						0.3451E-06
48CD	111/ STAB	112/ STAB	113/ STAB	114/ STAB	115/ 53.5H	116/ STAB	117/ 2.5H	118/ 49M	119/ 3.4M			SUMME CD
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.281E 04	0.0	0.260E 04	0.248E 04	0.839E 01			0.7905E 04
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.106E-01	0.0	0.279E-01	0.735E-02	0.745E-04			0.4600E-01
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.484E-04	0.0	0.0	0.438E-03	0.0			0.4862E-03
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.183E-09	0.0	0.0	0.130E-08	0.0			0.1479E-08
49IN	117/ 1.95H	118/ 5S	119/ 2.3M	120/ 3.2S	121/ 30S							SUMME IN
(CI)	0.295E 04	0.249E 04	0.250E 02	0.0	0.268E-14							0.5465E 04
(KW)	0.145E-01	0.275E-01	0.210E-03	0.0	0.222E-20							0.4219E-01
(CI)	0.293E-02	0.101E-02	0.0	0.0	0.0							0.3939E-02
(KW)	0.144E-07	0.111E-07	0.0	0.0	0.0							0.2553E-07
50SN	120/ STAB	121/ 27H	122/ STAB	123/ 129D	124/ STAB	125/ 9.6D	126/ 1E5A	127/ 2.1H	128/ 59M			SUMME SN
(CI)	0.0	0.370E 04	0.0	0.432E 04	0.0	0.569E 04	0.159E 00	0.253E 05	0.706E 05			0.1096E 06
(KW)	0.0	0.416E-02	0.0	0.145E-01	0.0	0.344E-01	0.944E-07	0.160E 00	0.320E 00			0.5337E 00
(CI)	0.0	0.102E-01	0.0	0.151E-01	0.0	0.207E-01	0.615E-06	0.926E-01	0.250E 00			0.3880E 00
(KW)	0.0	0.115E-07	0.0	0.509E-07	0.0	0.125E-06	0.364E-12	0.587E-06	0.114E-05			0.1910E-05
51SB	124/ 60.3D	125/ 2.7A	126/ 12.4D	127/ 3.8D	128/ 9.3H	129/ 4.3H	130/ 37M	131/ 23M				SUMME SB
(CI)	0.0	0.285E 04	0.271E 03	0.371								

1.000 H NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRÜNGLICHEN BRENNSTOFFS)
(LEISTUNG 0,0 MWh/T Oxyd, MITTL.FLUSS 0,0 N/CMZ/SEC)

34SE	83/ 23M	84/ 3,3M	85/ 3,95												SUMME SE	
(CI)	0.154E 04	0.984E-01	0.145E-22												0.1544E 04	
(KW)	0.249E-01	0.559E-06	0.120E-27												0.2487E-01	
(KI)	0.118E 05	0.752E 00	0.111E-21												0.1180E 05	
(KW)	0.190E 00	0.428E-05	0.920E-27												0.1901E 00	
35BR	83/ 2,4H	84/ 3,2M	85/ 3M	86/ 5,45	87/ 5,5,45										SUMME BR	
(CI)	0.162E 03	0.169E 02	0.854E-04	0.934E-18	0.383E-17										0.1787E 03	
(KW)	0.431E-03	0.296E-03	0.506E-09	0.143E-22	0.993E-22										0.7273E-03	
(KI)	0.115E 06	0.781E 05	0.418E 00	0.457E-14	0.187E-13										0.1927E 06	
(KW)	0.305E 00	0.137E 01	0.247E-05	0.698E-19	0.485E-18										0.1675E 01	
36KR	83/ STAB	84/ STAB	85/ 4,4H	86/ STAB	87/ 7,6M	88/ 2,8H	89/ 3,1M	90/ 3,25							SUMME KR	
(CI)	0.0	0.0	0.263E 00	0.0	0.342E 00	0.448E 00	0.160E-05	0.159E-33							0.1252E 01	
(KW)	0.0	0.0	0.779E-06	0.0	0.533E-05	0.826E-05	0.252E-10	0.251E-38							0.1436E-04	
(KI)	0.0	0.0	0.305E 06	0.0	0.397E 06	0.754E 06	0.186E 01	0.185E-27							0.1457E 07	
(KW)	0.0	0.0	0.906E 00	0.0	0.619E 01	0.960E 01	0.293E-04	0.292E-32							0.1670E 02	
37RB	87/ 4,7E9A	88/ 17,8M	89/ 15M	90/ 4,3M	91/ 57,45										SUMME RB	
(CI)	0.448E-10	0.273E 05	0.114E 05	0.129E 02	0.229E-13										0.3877E 05	
(KW)	0.291E-16	0.406E 00	0.227E 00	0.413E-03	0.259E-18										0.6312E 00	
(KI)	0.844E-09	0.805E 06	0.896E 05	0.988E 02	0.175E-12										0.8952E 06	
(KW)	0.548E-15	0.119E 02	0.177E 01	0.316E-02	0.191E-17										0.1370E 02	
38SR	88/ STAB	89/ 50,50	90/ 28,1A	91/ 9,7H	92/ 2,71H	93/ 8M	94/ 1,3M								SUMME SR	
(CI)	0.0	0.129E 07	0.193E 06	0.147E 07	0.111E 07	0.894E 04	0.160E-07								0.3985E 07	
(KW)	0.0	0.447E 01	0.134E 00	0.118E 02	0.998E 01	0.110E 00	0.214E-12								0.2629E 02	
(KI)	0.0	0.273E 03	0.186E 02	0.265E 03	0.200E 03	0.159E 01	0.281E-11								0.7589E 03	
(KW)	0.0	0.944E-03	0.241E-04	0.209E-02	0.180E-02	0.198E-04	0.375E-16								0.4874E-02	
39Y	89/ STAB	90/ 64,1H	91/ 58,8D	92/ 3,5H	93/ 10,2H	94/ 20M	95/ 10,9M	96/ 2,3M							SUMME Y	
(CI)	0.0	0.103E 06	0.160E 07	0.154E 07	0.157E 07	0.194E 06	0.364E 05	0.218E-01							0.5039E 07	
(KW)	0.0	0.553E 00	0.599E 01	0.154E 02	0.116E 02	0.313E 01	0.302E 00	0.399E-06							0.3681E 02	
(KI)	0.0	0.191E 01	0.293E 02	0.368E 02	0.285E 02	0.335E 01	0.661E 00	0.294E-06							0.1095E 03	
(KW)	0.0	0.102E-04	0.108E-03	0.367E-03	0.211E-03	0.540E-04	0.548E-05	0.417E-11							0.7558E-03	
40ZR	90/ STAB	91/ STAB	92/ STAB	93/ 15,5A	94/ STAB	95/ 65,50	96/ STAB	97/ 16,8H	98/ 30,75						SUMME ZR	
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.239E 01	0.0	0.168E 07	0.0	0.154E 07	0.770E-29						0.3217E 07	
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.340E-06	0.0	0.877E 01	0.0	0.132E 02	0.638E-34						0.2196E 02	
(KI)	0.0	0.0	0.0	0.438E-06	0.0	0.303E 02	0.0	0.279E 02	0.118E-33						0.5817E 02	
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.622E-11	0.0	0.158E-03	0.0	0.240E-03	0.974E-39						0.3975E-03	
41NB	95/ 35D	96/ 23,4H	97/ 7,4M	98/ 5,1H	99/ 2,4M	100/ 2,8M									SUMME NB	
(CI)	0.174E 07	0.158E 03	0.163E 07	0.710E 06	0.471E-01	0.598E 00									0.4080E 07	
(KW)	0.853E 01	0.243E-02	0.112E 02	0.149E 02	0.395E-06	0.708E-05									0.3465E 02	
(KI)	0.317E 02	0.289E-02	0.292E 02	0.139E 02	0.673E-06	0.795E-05									0.7395E 02	
(KW)	0.156E-03	0.444E-07	0.291E-03	0.274E-03	0.550E-11	0.942E-10									0.6299E-03	
42MO	95/ STAB	96/ STAB	97/ STAB	98/ STAB	99/ 66,7H	100/ STAB	101/ 14,6M	102/ 11,5M	103/ 5,3H	104/ 1,1M					SUMME MO	
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.191E 06	0.0	0.910E 04	0.351E 04	0.826E 05	0.202E-11					0.2867E 06	
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.636E 00	0.0	0.138E 00	0.997E-02	0.685E 00	0.238E-16					0.1469E 01	
(KI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.146E 07	0.0	0.695E 05	0.268E 05	0.631E 06	0.155E-10					0.2191E 07	
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.486E 01	0.0	0.195E 01	0.762E-01	0.523E 01	0.182E-15					0.1123E 02	
43TC	99/ 6,0H	100/ 17,5	101/ 14M	102/ 4,5M	103/ 5,05	104/ 18M	105/ 7,7M	106/ 3,75							SUMME TC	
(CI)	0.193E 06	0.112E-61	0.335E 05	0.575E 04	0.828E 05	0.598E 05	0.128E 03	0.621E-25							0.3215E 06	
(KW)	0.144E 00	0.156E-66	0.170E 00	0.433E-01	0.579E 00	0.101E 00	0.111E-02	0.257E-30							0.1037E 01	
(KI)	0.148E 07	0.859E-61	0.256E 06	0.449E 05	0.633E 06	0.457E 05	0.975E 03	0.474E-24							0.2457E 07	
(KW)	0.110E 01	0.119E-65	0.130E 01	0.331E 00	0.442E 01	0.768E 00	0.849E-02	0.197E-29							0.7928E 01	
44RU	99/ STAB	100/ STAB	101/ STAB	102/ STAB	103/ 39,5D	104/ STAB	105/ 4,4H	106/ 1,0A	107/ 4,2M	108/ 4,5M					SUMME RU	
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.814E 06	0.0	0.215E 06	0.909E 05	0.259E 01	0.184E 01					0.1118E 07	
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.270E 01	0.0	0.133E 01	0.831E-02	0.229E-04	0.617E-05					0.4042E 01	
(KI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.197E 03	0.0	0.240E 03	0.163E 01	0.436E-04	0.314E-04					0.4382E 03	
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.654E-03	0.0	0.149E-02	0.199E-06	0.387E-09	0.105E-09					0.2142E-02	
45RH	103/ STAB	104/ 4,4M	105/ 35,5H	106/ 30,5	107/ 22M	108/ 17,5	109/ 3,05								SUMME RH	
(CI)	0.0	0.0	0.244E 06	0.909E 05	0.962E 04	0.196E 01	0.623E-32								0.3435E 06	
(KW)	0.0	0.0	0.379E 00	0.793E 00	0.454E-01	0.253E-04	0.184E-37								0.1217E 01	
(KI)	0.0	0.0	0.583E 01	0.163E 01	0.164E 00	0.335E-04	0.948E-37								0.7622E 01	
(KW)	0.0	0.0	0.905E-05	0.144E-04	0.773E-06	0.431E-09	0.281E-42								0.2419E-04	
46PD	106/ STAB	107/ 7,6A	108/ STAB	109/ 13,5H	110/ STAB	111/ 22M	112/ 21H	113/ 1,5M	114/ 2,4M						SUMME PD	
(CI)	0.0	0.192E-01	0.0	0.773E 04	0.0	0.779E 03	0.262E 04	0.397E-08	0.114E-03						0.1114E 05	
(KW)	0.0	0.182E-08	0.0	0.191E-01	0.0	0.452E-02	0.180E-02	0.949E-14	0.269E-10						0.2537E 01	
(KI)	0.0	0.347E-05	0.0	0.139E 01	0.0	0.140E 00	0.473E 00	0.695E-12	0.198E-07						0.2093E 01	
(KW)	0.0	0.328E-12	0.0	0.342E-05	0.0	0.813E-06	0.325E-06	0.165E-17	0.470E-14						0.4562E-05	
47AG	111/ 7,5D	112/ 3,2H	113/ 5,3H	114/ 5,25	115/ 20,0M	116/ 2,5M									SUMME AG	
(CI)	0.596E 03	0.409E 03	0.443E 03	0.117E-03	0.408E 02	0.338E-04									0.1488E 04	
(KW)	0.156E-02	0.499E-02	0.316E-02	0.167E-08	0.121E-02	0.509E-09									0.1092E-01	
(KI)	0.455E 04	0.229E 04	0.338E 04	0.932E-06	0.312E 03	0.258E-03									0.1054E 05	
(KW)	0.119E-01	0.280E-01	0.241E-01	0.133E-10	0.926E-02	0.382E-08									0.7332E-01	
48CD	111/ STAB	112/ STAB	113/ STAB	114/ STAB	115/ 53,5H	116/ STAB	117/ 2,5H	118/ 4,9M	119/ 3,4M						SUMME CD	
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.280E 04	0.0	0.226E 04	0.163E 04	0.186E-01						0.6685E 04	
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.106E-01	0.0	0.243E-01	0.481E-02	0.165E-06						0.3970E-01	
(KI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.256E 01	0.0	0.478E-01	0.298E-01	0.319E-06							

2.000 h NACH ABSCHALTUNG (ANGABEN PRO TONNE URSPRÜNGLICHEN BRENNSTOFFS)
(LEISTUNG 0,0 MWHT/OXD, MITTL.FLUSS 0,0 N/C/M2/SEC)

34SE	83/ 23M	84/ 3.3M	85/ 39S									SUMME SE
(CI)	0.386E-05	0.506E-14	0.930E-58									0.3857E-05
(KW)	0.621E-10	0.287E-19	0.771E-63									0.6212E-10
(CI)	0.219E 04	0.287E-05	0.528E-49									0.2189E 04
(KW)	0.352E-01	0.163E-10	0.437E-54									0.3525E-01
35BR	83/ 2.4H	84/ 32M	85/ 3M	86/ 54S	87/ 55.4S							SUMME BR
(CI)	0.676E-07	0.205E-14	0.190E-25	0.189E-53	0.245E-52							0.6758E-07
(KW)	0.180E-12	0.359E-19	0.112E-30	0.289E-58	0.636E-57							0.1800E-12
(CI)	0.874E 05	0.213E 05	0.400E-06	0.399E-34	0.517E-33							0.1087E 06
(KW)	0.233E 00	0.374E 00	0.237E-11	0.609E-39	0.134E-37							0.6065E 00
36KR	83/ STAB	84/ STAB	85/ 4.4H	86/ STAB	87/ 76M	88/ 2.8H	89/ 3.1H	90/ 32S				SUMME KR
(CI)	0.0	0.0	0.520E-16	0.0	0.458E-16	0.117E-15	0.559E-27	0.0				0.2153E-15
(KW)	0.0	0.0	0.154E-21	0.0	0.715E-21	0.150E-20	0.872E-32	0.0				0.2365E-20
(CI)	0.0	0.0	0.261E 06	0.0	0.230E 06	0.589E 06	0.278E-05	0.253E-61				0.1079E 07
(KW)	0.0	0.0	0.774E 00	0.0	0.358E 01	0.750E 01	0.437E-10	0.398E-66				0.1186E 02
37RB	87/ 47E9A	88/ 17.8M	89/ 15M	90/ 4.3M	91/ 57.4S							SUMME RB
(CI)	0.682E-19	0.402E-04	0.109E-04	0.124E-17	0.470E-40							0.5113E-04
(KW)	0.443E-24	0.595E-09	0.216E-09	0.397E-15	0.512E-45							0.812E-09
(CI)	0.140E-08	0.657E 06	0.632E 04	0.706E-02	0.267E-31							0.6637E 06
(KW)	0.911E-15	0.973E 01	0.125E 00	0.226E-06	0.291E-36							0.9854E 01
38SR	88/ STAB	89/ 59.3D	90/ 28.1A	91/ 9.7H	92/ 2.71H	93/ 8M	94/ 1.3M					SUMME SR
(CI)	0.0	0.129E 07	0.173E 06	0.137E 07	0.861E 06	0.488E 02	0.206E-21					0.3621E 07
(KW)	0.0	0.447E 01	0.133E 00	0.108E 02	0.773E 01	0.607E-03	0.275E-26					0.2311E 02
(CI)	0.0	0.122E 04	0.930E 02	0.123E 04	0.775E 03	0.439E-01	0.184E-24					0.3319E 04
(KW)	0.0	0.422E-02	0.120E-03	0.971E-02	0.695E-02	0.546E-06	0.246E-29					0.2101E-01
39Y	89/ STAB	90/ 64.1H	91/ 58.8D	92/ 3.5H	93/ 10.2H	94/ 20M	95/ 10.9M	96/ 2.3M				SUMME Y
(CI)	0.0	0.163E 06	0.166E 07	0.144E 07	0.144E 07	0.243E 05	0.802E 03	0.376E-09				0.4630E 07
(KW)	0.0	0.593E 00	0.589E 01	0.144E 02	0.108E 02	0.391E 00	0.665E-02	0.435E-14				0.321E 02
(CI)	0.0	0.985E 01	0.144E 03	0.222E 03	0.132E 03	0.215E 01	0.720E-01	0.275E-13				0.5100E 03
(KW)	0.0	0.529E-04	0.532E-03	0.221E-02	0.974E-03	0.346E-04	0.597E-06	0.390E-18				0.3806E-02
40ZR	90/ STAB	91/ STAB	92/ STAB	93/ 19E5A	94/ STAB	95/ 65.5D	96/ STAB	97/ 16.8H	98/ 30.7S			SUMME ZR
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.239E 01	0.0	0.168E 07	0.0	0.147E 02	0.397E-64			0.3154E 07
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.340E-06	0.0	0.959E-08	0.0	0.122E-09	0.915E-08			0.2142E 02
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.216E-03	0.0	0.151E 03	0.0	0.133E 03	0.364E-68			0.2834E 03
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.307E-10	0.0	0.787E-03	0.0	0.114E-02	0.302E-73			0.1925E-02
41NB	95/ 35D	96/ 23.4H	97/ 74M	98/ 51H	99/ 2.4M	100/ 2.8M						SUMME NB
(CI)	0.174E 07	0.153E 03	0.158E 07	0.314E 06	0.141E-08	0.212E-06						0.3628E 07
(KW)	0.853E 01	0.236E-02	0.108E 02	0.660E 01	0.115E-13	0.252E-11						0.2595E 02
(CI)	0.157E 03	0.139E-01	0.141E 03	0.283E 02	0.128E-12	0.169E-10						0.3263E 03
(KW)	0.769E-03	0.213E-06	0.970E-03	0.595E-03	0.105E-17	0.201E-15						0.2334E-02
42MO	95/ STAB	96/ STAB	97/ STAB	98/ STAB	99/ 66.7H	100/ STAB	101/ 14.6M	102/ 11.5M	103/ 5.3H	104/ 1.1M		SUMME MO
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.289E-02	0.0	0.804E-05	0.144E-05	0.110E-02	0.118E-35		0.3999E-02
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.959E-08	0.0	0.122E-09	0.499E-11	0.915E-08	0.139E-40		0.1887E-07
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.164E 07	0.0	0.456E 04	0.817E 03	0.627E 06	0.670E-27		0.2269E 07
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.544E 01	0.0	0.690E-01	0.232E-02	0.519E 01	0.789E-32		0.1071E 02
43TC	99/ 6.0H	100/ 17S	101/ 14M	102/ 4.5H	103/ 50S	104/ 18M	105/ 7.7M	106/ 37S				SUMME TC
(CI)	0.294E-02	0.0	0.487E-04	0.236E-05	0.111E-02	0.904E-05	0.878E-08	0.492E-62				0.4106E-02
(KW)	0.219E-08	0.0	0.246E-09	0.178E-10	0.773E-08	0.152E-09	0.764E-13	0.204E-67				0.1034E-07
(CI)	0.167E 07	0.0	0.276E 05	0.134E 04	0.628E 06	0.513E 04	0.498E 01	0.279E-53				0.2335E 07
(KW)	0.124E 01	0.0	0.140E 00	0.101E-01	0.439E 01	0.862E-01	0.433E-04	0.116E-58				0.5868E 01
44RU	99/ STAB	100/ STAB	101/ STAB	102/ STAB	103/ 39.5D	104/ STAB	105/ 4.4H	106/ 1.0A	107/ 4.2M	108/ 4.5M		SUMME RU
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.813E 06	0.0	0.183E 06	0.900E 05	0.130E-03	0.179E-03		0.1086E 07
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.270E 01	0.0	0.114E 01	0.831E-02	0.115E-08	0.598E-09		0.3845E 01
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.742E 03	0.0	0.245E 03	0.810E 01	0.114E-07	0.158E-07		0.9993E 03
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.246E-02	0.0	0.150E-02	0.748E-06	0.101E-12	0.529E-13		0.3987E-02
45RH	103/ STAB	104/ 4.4M	105/ 35.5H	106/ 30S	107/ 22M	108/ 17S	109/ 30S					SUMME RH
(CI)	0.0	0.0	0.243E 06	0.900E 05	0.145E 04	0.191E-03	0.477E-68					0.3344E 06
(KW)	0.0	0.0	0.377E 00	0.792E 00	0.686E-02	0.245E-08	0.141E-73					0.1177E 01
(CI)	0.0	0.0	0.279E 02	0.811E 01	0.129E 00	0.169E-07	0.436E-72					0.3614E 02
(KW)	0.0	0.0	0.433E-04	0.714E-04	0.607E-06	0.217E-12	0.129E-77					0.1154E 02
46PD	106/ STAB	107/ 7E6A	108/ STAB	109/ 13.9H	110/ STAB	111/ 12M	112/ 21H	113/ 1.5M	114/ 2.4M			SUMME PD
(CI)	0.0	0.192E-01	0.0	0.734E 04	0.0	0.118E 03	0.254E 04	0.363E-20	0.341E-11			0.9997E 04
(KW)	0.0	0.182E-03	0.0	0.181E-01	0.0	0.682E-03	0.174E-02	0.899E-26	0.807E-18			0.2051E-01
(CI)	0.0	0.173E-04	0.0	0.669E 01	0.0	0.106E 03	0.229E 01	0.324E-23	0.304E-14			0.8995E 04
(KW)	0.0	0.164E-11	0.0	0.163E-04	0.0	0.614E-06	0.157E-05	0.767E-29	0.720E-21			0.1845E-01
47AG	111/ 7.5D	112/ 3.2H	113/ 5.3H	114/ 5.2S	115/ 20.0M	116/ 2.5M						SUMME AG
(CI)	0.281E-01	0.302E 02	0.592E-05	0.340E-11	0.778E-07	0.308E-19						0.3025E 02
(KW)	0.736E-07	0.369E-03	0.422E-10	0.485E-16	0.231E-11	0.456E-24						0.3690E-03
(CI)	0.512E 04	0.265E 04	0.336E 04	0.136E-12	0.441E 02	0.175E-10						0.1118E 05
(KW)	0.134E-01	0.323E-01	0.239E-01	0.199E-17	0.131E-02	0.259E-15						0.7102E-01
48CD	111/ STAB	112/ STAB	113/ STAB	114/ STAB	115/ 53.5H	116/ STAB	117/ 2.5H	118/ 49M	119/ 3.4M			SUMME CD
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.276E 04	0.0	0.171E 04	0.696E 03	0.906E-07			0.5171E 04
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.104E-01	0.0	0.184E-01	0.206E-02	0.809E-12			0.3092E-01
(CI)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.460E 01	0.0	0.154E 00	0.626E-01	0.804E-11			0.4819E 01
(KW)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.174E-04	0.0	0.166E-05	0.185E-06	0.714E-16			0.1923E-04
49IN	117/ 1.95H	118/ 5S	119/ 2.3M	120/ 3.2S	121/ 30S							SUMME IN
(CI)	0.259E 04	0.697E 03	0.280E-06	0.0	0.180E-68							0.3290E 04
(KW)	0.128E-01	0.769E-02	0.235E-11	0.0	0.149E-74							0.2045E-01
(CI)	0.232E 00	0.631E-01	0.248E-10	0.0	0.165E-72							0.2949E 00
(KW)	0.114E-05	0.696E-06	0.209E-15	0.0	0.0							0.1836E-05
50SN	120/ STAB	121/ 27H	122/ STAB	123/ 129D	124/ STAB	125/ 9.6D	126/ 1E5A	127/ 2.1H	128/ 59M			SUMME SN
(CI)	0.0	0.627E-05	0.0	0.761E-05	0.0	0.998E-05	0.281E-09	0.272E-04	0.432E-04			0.9423E-04
(KW)	0.0	0.706E-11	0.0	0.256E-10	0.0	0.604E-10	0.166E-05	0.172E-09	0.196E-09			0.4613E-09
(CI)	0.0	0.356E 04	0.0	0.432E 04	0.0	0.566E 04	0.159E 00	0.154E 05	0.245E 05			0.5347E 05
(KW)	0.0	0.401E-02	0.0	0.145E-01	0.0	0.343E-01						

