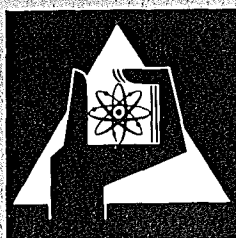


**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

November 1973

KFK 1859

**PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT
1. Halbjahresbericht 1973**



**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

K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M K A R L S R U H E

KFK 1859

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

3. Projektbericht / 1. Halbjahr 1973

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.

Der vorliegende 3.Halbjahresbericht 1/1973 beschreibt Arbeiten am Projekt Nukleare Sicherheit, die von Instituten und Abteilungen der GfK durchgeführt wurden.

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

| | |
|--|----|
| 4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN | 1 |
| 4110 Entwicklung von Filter- und Abgassystemen | 1 |
| 4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre | 1 |
| 4112 Entwicklung von Abluft-Filtern für Wiederaufarbeitungsanlagen | 7 |
| 4114 Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgasen | 10 |
| 4115 Oberflächenanalyse von anorganischen Jodfiltern durch ESCA | 13 |
| 4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von radioaktiven Verunreinigungen in Reaktorkreisläufen und deren Reinigung | 23 |
| 4130 Messung der Tritiumkontamination der Umwelt | 25 |
| 4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen | 31 |
| 4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen | 36 |
| 4151 Untersuchungen zur thermischen Belastung des Rheins | 36 |
| 4160 Sicherheitsprobleme bei der Endlagerung | 48 |
| 4161 Beseitigung tritiumhaltiger Abwässer durch Einpressen in poröse Schichten des tiefen Untergrundes | 48 |
| 4170 Langfristige radioökologische Belastung durch eine Anhäufung von nuklearen Anlagen | 49 |

| | <u>Seite</u> |
|--|--------------|
| 4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN | 54 |
| 4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen | 54 |
| 4212 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbau-systemen | 54 |
| 4220 Zweiphasendynamik | 101 |
| 4222 Stoßrohrexperimente zur Druckwellenausbreitung in Zweiphasengemischen | 101 |
| 4230 Notkühlung von LWR | 104 |
| 4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall | 104 |
| 4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall | 109 |
| 4236 Untersuchung zum Brennstabverhalten in der Blow-down-Phase eines Kühlmittelverlustunfalles Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben | 117 |
| 4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalles In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2 | 124 |
| 4238 Untersuchung zur Wechselwirkung zwischen Brennstabversagen und Kernnotkühlung in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles | 127 |
| 4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockagen auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles | 129 |
| 4240 Coreschmelzen von LWR | 131 |
| 4241 Experimentelle Untersuchungen der Abschmelzphase von UO ₂ -Zircaloy-Brennstäben bei versagender Notkühlung | 131 |
| 4242 Theoretische Untersuchungen zur Wasserstoffbildung beim LWR-Coreschmelzen | 133 |
| 4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen | 135 |

| | <u>Seite</u> |
|--|--------------|
| 4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN | 143 |
| 4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reak- tionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen | 143 |
| 4311 Nukleare Schadstoffe in der Nachunfall-Atmosphäre eines Leichtwasser-Reaktor(LWR)-Containments | 143 |
| 4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase | 166 |
| 4312 FA Statistische Analyse des Ausbreitungsverhaltens von Abluftfahnen nach Störfällen in Norddeutschland | 182 |
| 4312 FB Analyse der Berechnungen und Messungen zur Aus- breitung radioaktiver Stoffe beim amerikanischen Plowshare-Programm zwecks Prüfung der Übertragbar- keit auf Reaktorschadensfälle | 187 |
| 4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG VON KONTAMINATIONEN | 198 |
| 4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen | 198 |
| 4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren | 198 |
| 4416 Verfahren zum Abdichten von Öffnungen | 212 |
| 4420 Technik der Räum- und Demontgearbeiten | 215 |
| 4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte | 215 |
| 4423 Inspektions- und Meßtechnik zur Schadenserfassung | 218 |
| 4430 Vorsorgliche bauliche und verfahrenstechnische Maßnahmen zur Erleichterung der Schadensbeseitigung | 220 |
| 4440 Strahlenschutz und Notfallplanung | 223 |
| 4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG NUKLEARER ANLAGEN | 228 |
| 4510 Informationssystem zur Reaktorsicherheit | 228 |
| 4511 Erstellung einer Systemstudie | 230 |
| 4512 Erstellung eines Prototypsystems | 231 |
| Veröffentlichungen und Berichte im 1. Halbjahr 1973 | 233 |

Im Rahmen des Projekts Nukleare Sicherheit
zusammenarbeitende Institute und Abteilungen der
Gesellschaft für Kernforschung

| | |
|---|------|
| Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik | IASR |
| Institut für Heiße Chemie | IHCH |
| Institut für Material- und Festkörperforschung | IMF |
| Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik | INR |
| Institut für Reaktorbauelemente | IRB |
| Institut für Radiochemie | IRCH |
| Institut für Reaktorentwicklung | IRE |
| | |
| Abteilung Dekontaminationsbetriebe | ADB |
| Abteilung Reaktorbetrieb und Technik | RBT |
| Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit | ASS |
| Laboratorium für Isotopentechnik | LIT |

Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die Tätigkeiten des Projekts Nukleare Sicherheit im 1. Halbjahr 1973. Daraus sind besonders hervorzuheben:

Entwicklung von Filter- und Abgassystemen

Nach Abschluß umfangreicher Abnahmetests wurde der technische Filterprüfstand an GfK übergeben. Damit besitzt das Zentrum ein hervorragendes Instrument zum Testen von Filter- und Abgassystemen unter Bedingungen, die vom Normalbetrieb bis zum GaU reichen.

Reduktion des Schadstoffpotentials und der Kontamination in LWR-Primärkreisläufen

Gemeinsam mit Betreibern und Herstellern von Kernkraftwerken wurde ein Kolloquium über "Probleme bei der Störfallbeseitigung in Kernkraftanlagen" durchgeführt.

Die Ziele der Forschungsarbeiten auf diesem Gebiet wurden einer Überprüfung unterzogen. Am Primärkreis des Kernkraftwerks Obrigheim wurden Messungen zum Ablagerungsverhalten aktivierter Korrosionsprodukte durchgeführt.

Messung der Tritiumkontamination der Umwelt

Die Bedeutung des Meßprogramms zur langfristigen Beobachtung des Tritiumgehaltes im Grund-, Trink- und Oberflächenwasser im Raum zwischen Straßburg und Mannheim hat erheblich zugenommen. Dieses Meßprogramm hat Modellcharakter bekommen. Mit der Erweiterung auf Wasserproben aus der Umgebung von Kernkraftwerken wurde begonnen.

Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen

Bei einer großen Wiederaufarbeitungsanlage von 1500 t/a ist die Abtrennung des Krypton-85 zum Schutz der Umgebung notwendig. In Zusammenarbeit mit Industriefirmen wird an der Projektierung einer Versuchsanlage gearbeitet.

Untersuchungen zur thermischen Belastung von Flüssen

Die Untersuchungen zur thermischen Belastung des Rheins hängen im Rahmen des PNS mit Fragen der Standortbeurteilung zusammen. Gemeinsam mit Energieversorgungsunternehmen und in Abstimmung mit den zuständigen Gewässerämtern wird unterhalb vom Kernkraftwerk Philippsburg im Rhein eine Meßinsel errichtet.

Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung von nuklearen Anlagen

Die Erfassung der statistischen Daten über die Bevölkerung und ihre Ernährung sowie die Zusammenstellung der Planungen für Kernkraftwerke im Oberrheingebiet zwischen Basel und Mainz wurde abgeschlossen. Ein mathematisches Modell zur Beschreibung und Abschätzung der langfristigen radiologischen Belastung befindet sich in der Entwicklung.

Dynamische Beanspruchung von Siedewasserreaktor-Druckabbausystemen

Die Blowdown-Versuche im Reaktor Marviken wurden erfolgreich abgeschlossen.

Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverlustunfällen und dessen Rückwirkung auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung

Vorhandene Codes, z.B. RELAP 3, THETA 1-B etc., wurden für die Auslegung der Notkühlungsexperimente zum Brennstabverhalten bereitgestellt und zum Einsatz gebracht. Ferner wurde ein Systemkern zur Aufnahme der Brennstabverhaltensmoduln auf der Rechenanlage des Kernforschungszentrums implementiert. Ein vereinfachter Deformationsmodul und ein Wärmetransportmodul wurden entwickelt und befinden sich in der Testphase.

Erste Versuche zur Untersuchung der Änderung der Textur von Hüllrohrwerkstoffen bei Temperaturtransienten eines Kühlmittelverlustunfalles wurden durchgeführt. Parallel dazu wurde eine umfassende Bestandsaufnahme zum plastischen Verhalten von Zircaloy-4 bei hohen Temperaturen durchgeführt. Zur Untersuchung des Einflusses der Sauerstoffversprödung auf die Versagensmechanismen von Zircaloy-Hüllrohren wurde eine Versuchsstrecke konstruiert und gebaut.

Die Untersuchungen zum mechanisch-thermischen Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase konzentrierten sich auf die Entwicklung eines elektrisch beheizten Brennstabsimulators, der in seinem thermischen Verhalten möglichst weitgehend einem echten Brennstab entspricht.

Bei den Einzelstab-in-pile-Experimenten zur Untersuchung des Brennstabverhaltens in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalles lag das Hauptgewicht im Berichtszeitraum auf der Auslegung der Brennstabprüflinge. Daneben wurden erste Versuche zum Problem der Innendruckmessung des Prüflings durchgeführt.

Zur Prüfung einer eventuellen deutschen Beteiligung am französischen Projekt PHEBUS (in-pile-Bündelexperiment zum Verhalten von LWR-Brennelementen beim Kühlmittelverlustunfall) wurden Gespräche mit dem CEA aufgenommen. Auf deutscher und französischer Seite wurden dafür Arbeitsgruppen gebildet.

Coreschmelzen von Leichtwasserreaktoren

Ein Versuchsprogramm zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spaltprodukten beim Kernschmelzen wurde erarbeitet. Vorversuche wurden durchgeführt. Eine Schmelzanlage wurde spezifiziert und Angebote wurden eingeholt. Der BMFT-Sachverständigenkreis "Coreschmelzen" hat die Coreschmelzenexperimente des PNS hinsichtlich Zielsetzung und Vorgehen in allen wesentlichen Punkten befürwortet.

Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase

Diese Arbeiten haben ebenfalls direkten Bezug zu Standortfragen von Kernkraftwerken in dichtbesiedelten Gebieten und zielen vor allem darauf ab, die Mechanismen extremer Störfälle zu erfassen und deren Auswirkungen weiter zu vermindern. Es wurden 7 Ausbreitungsexperimente, darunter erstmals auch ein Nahfeldversuch, durchgeführt, um Informationen über die Ausbreitungsfaktoren in Quellennähe zu gewinnen.

Risikoanalysen

Angesichts der in Zukunft stark wachsenden Zahl von nuklearen Transporten wurde eine Risikoabschätzung für die verschiedenen Transportarten und -wege für abgebrannten Brennstoff, Plutonium und radioaktive Abfälle in Angriff genommen.

Eine Bestandsaufnahme und Beurteilung der bisher angewandten Methoden und Verfahren zur quantitativen Risikobetrachtung wurde begonnen.

HDR-Sicherheitsprogramm

Für nichtnukleare Sicherheitsexperimente im HDR wird ein Versuchsprogramm erstellt.

Stilllegung und Endbeseitigung von Kernkraftwerken

Notwendige F+E-Arbeiten zu offenen Problemen bei der Stilllegung und Endbeseitigung von Kernkraftwerken werden z.Z. spezifiziert.

Summary

This report describes the activities of the Nuclear Safety Project (PNS) during the first six months of 1973.

The essential features are:

Development of Filter- and Off-gas Systems

After extensive acceptance tests the filter test bench was delivered to GfK. The GfK now has an excellent instrument for testing filter- and off-gas systems under both normal operation and MCA conditions.

Activated Corrosion Products and their Contamination Behavior in LWR-Primary Circuits

Repair works and radiation problems in nuclear power plants were discussed in a meeting jointly held with manufacturers and operators of nuclear power reactors.

The objectives of research work carried out in this field were reviewed. Measurements on the deposition behavior of activated corrosion products were made at the primary circuit of the Obrigheim Nuclear Power Station.

Measurement of Environmental Tritium Contamination

The measurement program for long-term surveillance of tritium contamination in the ground, drinking and surface waters of the area between Strasbourg and Mannheim has become increasingly important. It can be considered as a model for subsequent work in this field. Its extension to water samples taken in the vicinity of nuclear power stations has been started.

Krypton and Xenon Removal from the Exhaust Air of Nuclear Plants

In a large reprocessing plant with a capacity of 1500 to/yr krypton-85 must be kept from being released into the environment. Planning of a pilot plant has been started in cooperation with industry.

Investigations Concerning the Thermal Load of Rivers

Within the framework of the Nuclear Safety Project, investigations concerning the thermal load of the Rhine River are connected with site evaluation. Together with electric power companies and after consultation of the competent water authorities a measurement pontoon will be installed in the Rhine river downstream of the Philippsburg Nuclear Power Station.

Long-term Radiological Impact due to a Regional Crowding of Nuclear Plants

The acquisition of statistical data about the population and its food as well as the compilation of nuclear power stations planned in the Upper Rhine region between Basel and Mainz have been completed. A mathematical model for description and assessment of the long-term radiological impact is being developed.

Dynamic Stress of BWR-Pressure Reduction Systems

The blowdown experiments in the Marviken reactor were successfully terminated.

Investigations of the Fuel Rod Behavior in Loss-of-Coolant Accidents and its Influence on the Effectiveness of Emergency Core Cooling Systems

Existing codes, such as RELAP 3, THETA 1-B, etc., were made available and used for the design of the experiments on fuel rod behavior. Furthermore a system nucleus was implemented on the computer of the Nuclear Research Center for acceptance of the fuel rod behavior modules. A simplified deformation module and a heat transfer module were developed and are presently in the test phase.

Preliminary experiments were performed to investigate the change of texture of cladding tube materials in temperature gradients of a loss-of-coolant accident. At the same time, a comprehensive literature research with respect to the plastic behavior of Zircaloy-4 at elevated temperatures was carried out. A test section was designed and built allowing the investigation of the influence of oxygen embrittlement on the failure mechanisms of Zircaloy cladding tubes.

Referring to the studies on the mechanical-thermal fuel rod behavior in the blowdown phase the work performed so far centered around the development of an electrically heated fuel rod simulator whose thermal behavior is similar to that of a real fuel rod.

The single-rod in-pile experiments on the fuel rod behavior in the second heat-up-phase of a loss-of-coolant accident were mainly concerned with the design of the fuel rod specimens. In addition, preliminary tests were performed on the problem of measuring the internal pressure of the test specimen.

First discussions have been initiated with CEA aiming at the examination of a possible German participation in the French PHEBUS Project (in-pile bundle experiments on the behavior of LWR-fuel elements during a loss-of-coolant accident). Working groups have been established from the French and German sides for this purpose.

Core Meltdown of Light-Water Reactors

A test program was elaborated which allows to determine and limit fission product release in the course of core meltdown. Preliminary tests were made. A melting facility was specified and offers were requested. The expert group "Core Melting" of the Federal Ministry of Research and Technology supported in all principal points the core meltdown experiments planned within the Nuclear Safety Project as regards their objectives and procedure.

Theoretical and Experimental Investigations of the Diffusion of Radioactive Gases

These activities contribute directly to solving problems of siting nuclear power stations in densely populated areas and serve the particular purpose of estimating and reducing the consequences of severe accidents. Seven diffusion experiments were performed including, for the first time, a short-range experiment in order to obtain information about the diffusion coefficients in the vicinity of the source.

Risk Analyses

Considering the important increase of nuclear transportation expected in the future, a risk evaluation was initiated with respect to the various

ways and container types for the transportation of irradiated fuel elements, plutonium, and radioactive wastes.

State of the art study and selection of the methods and procedures applied for quantitative risk evaluation was started.

Safety Program for the Superheated Steam Reactor HDR

A test program is being set up for non-nuclear safety experiments carried out in the former Superheated Steam Reactor HDR.

Decommissioning and Disposal of Nuclear Power Plant Components

Necessary R&D works on unsolved problems regarding the decommissioning and final disposal of nuclear power plant components are specified at present.

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

4110 Entwicklung von Filtern und Abgassystemen

(H.-G. Dillmann, J. Furrer, R. Kaempffer,
A. Weinert, J.G. Wilhelm, ASS)

4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten
aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre

Die Arbeiten für Störfall-Umluftfilter mit anorg. Jodadsorbermaterial wurden fortgesetzt. Es wurden Versuche zur Standzeit der Filter bei Normalbetrieb durchgeführt, da ein kontinuierlicher Betrieb der Filter zur Reduktion der laufenden Jodabgabe auch bei Normalbetrieb geplant ist. Die Kombination von Filterbetrieb im Normal- und Störfall kann nur dann als zulässig angesehen werden, wenn es sich:

1. Um eine Umluft-Filteranlage handelt (in diesem Fall ist das Erreichen extrem hoher Abscheidegrade nicht notwendig, Abscheidegrade zwischen 90 und 99 % sind voll ausreichend),
2. ein Adsorbermaterial eingesetzt wird, das eine relativ hohe Alterungs- und Vergiftungsbeständigkeit zeigt.

Ziel der Untersuchungen war es, den Zuschlag zur auslegungsgemäß benötigten Bett-Tiefe des Jodadsorbermaterials zu ermitteln, der infolge von Alterungs- und Vergiftungserscheinungen notwendig ist. Von der Industrie (Fa. Bayer, Leverkusen) hergestelltes anorg. Jodadsorbermaterial AC-6120 wurde für diese Untersuchungen in 4 aufeinanderfolgenden Filterbetten kontinuierlich mit Luft aus dem Reaktorgebäude des FR 2 (Lüfterbau) beaufschlagt. Die dabei eingestellte lineare Luftgeschwindigkeit entsprach der, die von uns für die HTR-Filteranlage vorgeschlagen wird. In bestimmten Abständen wurden Proben entnommen und einer Prüfung des jeweils noch vorhandenen Abscheidegrades für radioaktiv markiertes Methyljodid unterworfen.

In der nachfolgenden Tabelle sind die bisherigen Ergebnisse wiedergegeben.

Tab. 4111-1 Alterung von AC-6120 in der Luft eines Reaktorgebäudes

Adsorbermaterial: AC-6120, Korngrößenfraktion: 1 - 2 mm,
4 aufeinanderfolgende Betten von je 2,5 cm Tiefe.

Beaufschlagung während der Alterung: Raumluft des Lüfterbaues, gefiltert durch Schwebstoff-Filter Klasse S, relative Feuchte ca. 40 - 70 %.

Trägergas (während der Laborprüfung): Feuchtluft gefiltert, 70 % rel.F., 30°C, Atmosphärendruck, lineare Luftgeschwindigkeit 25 cm/s $\hat{=}$ Verweilzeit von 0,1 s pro Testbett.

Prüfmedium: CH₄^{131J} + CH₄^{127J}, Beladung ca. 1,5 mg/g (berechnet auf 10 cm Bett-Tiefe).

Vorbefeuchtung (nur Trägergas): \geq 20 h

Beaufschlagung (Prüfmedium + Trägergas): 1 h

Nachströmzeit (nur Trägergas): \geq 20 h

| Betriebszeit (Alterung) bei v = 25 cm/s | Differentielle Abscheidegrade in % | | | |
|---|------------------------------------|--------|--------|------------|
| | Bett 1 | Bett 2 | Bett 3 | Bett 4 |
| keine | 90,6 | 94,2 | 93,6 | 94,2 |
| 1 Woche | 88,3 | 91,6 | 94,4 | 95,5 |
| 2 Wochen | 88,7 | 97,2 | 96,2 | 78,5 +) |
| 0,9 Monat | 88,7 | 97,5 | 98,2 | 87,0 +) |
| 2 Monate | 77,2 | 95,7 | 96,1 | 96,4 |
| 4 Monate | 65,7 | 93,0 | 96,4 | 96,7 |
| 5,2 Monate | 50,3 | 95,0 | 97,1 | 96,5 |
| | Integrale Abscheidegrade in % | | | |
| | Bett-Tiefe in cm | | | |
| | 2,5 | 5,0 | 7,5 | 10,0 |
| keine | 90,6 | 99,5 | 99,97 | 99,998 |
| 1 Woche | 88,3 | 99,0 | 99,95 | 99,997 |
| 2 Wochen | 88,7 | 99,7 | 99,99 | 99,997 |
| 0,9 Monat | 88,7 | 99,7 | 99,995 | 99,999 ++) |
| 2 Monate | 77,2 | 99,0 | 99,96 | 99,999 ++) |
| 4 Monate | 65,7 | 97,6 | 99,91 | 99,997 |
| 5,2 Monate | 50,3 | 97,5 | 99,93 | 99,997 |

+) Prüfmedium durch schwer abscheidbare Verbindung verunreinigt.

++) Nachweisgrenze erreicht.

Ergebnisse

Die differentiellen Abscheidegrade zeigen außerhalb der üblichen Schwankungen, die durch Variation der Korngrößenfraktion im Testbett und der Imprägnierung bedingt sind, einen wesentlichen Vergiftungs- (Alterungs-) einfluß nur im 1. Testbett. Insgesamt ist die Alterung geringer, als nach einem einzelnen, früher durchgeführten Versuch mit Adsorbermaterial aus einer Laborcharge bei einer Betriebszeit im angegebenen Bereich erwartet werden konnte. Die Alterung ist außerdem wesentlich geringer, als für Filter mit KJ-imprägnierter Aktivkohle als Adsorbermaterial zu erwarten ist. Als Alterungszuschlag wird nach den bisher vorliegenden Ergebnissen eine Bett-Tiefe von zusätzlich 2,5 - 5,0 cm bei einer linearen Luftgeschwindigkeit von 25 cm/s als ausreichend angesehen.

Bei den Alterungsuntersuchungen des Jodadsorbermaterials AC-6120 wurde ein Auswachsen von Silbernitrat-Kristallen an der Oberfläche des Trägermaterials nach der Imprägnierung bei Raumluft-Temperatur und einer relativen Luftfeuchte von 40 - 70 % unter dem Stereo-Mikroskop beobachtet. Die Folgen des Auswachsens sind:

1. Zusammenbacken der Kugeln.
2. Abrieb von AgNO_3 -Kristallen bei gegenseitiger Reibung der Kugeln.
3. Austragung von AgNO_3 bzw. AgJ (nach chemischer Reaktion mit dem ausströmenden Jod) als Aerosole durch die Abluft.

Um ein Auswachsen der AgNO_3 -Kristalle, das bei Lagerung an feuchter Luft auftritt, zurückzudrängen, wurden folgende Verfahren durchgeführt:

- a) Verbesserung der Imprägnierung des Trägermaterials.
- b) Stabilisierung der AgNO_3 -Imprägnierung durch oberflächliche Dünnschicht-Fällung.
- c) Herstellung und Erprobung von Mischimprägnierungen.

Zu a) Verschiedene Parameter der Imprägnierungsmethode wie Druck, Temperatur und Konzentration, wurden in Reihenuntersuchungen überarbeitet. Eine Verbesserung der Imprägnierung wurde durch Erhöhung der Trockentemperatur erreicht. Die früher durchgeführte Trocknung unter vermindertem Druck zum schnelleren Abtransport des entstehenden Wasserdampfes wurde aufgegeben, da Transportvorgänge von AgNO_3 unter vermindertem Druck vom Innern der Trägerkugeln in die Randzonen beobachtet wurden.

Zu b) Ein Ueberzug der imprägnierten Kugeln mit einer feinen Netzstruktur von SiO_2 -Polymeren wurde angestrebt, um nach Trocknung bei höheren Temperaturen eine Stabilisierung zu erreichen. Versuche mit Wasserglas schlugen fehl.

Die Umsetzung der imprägnierten Trägermaterialien mit einer anderen kieselensäurehaltigen Lösung ergab gute Ergebnisse bei Konzentrationen $< 3 \%$. Die Abscheidegrade des AC-6120 wurden nach dieser Stabilisierung nur sehr geringfügig herabgesetzt.

Zu c) Eine Unterdrückung des Auswachsens der reinen AgNO_3 -Kristalle könnte ebenfalls durch Mischkristallbildung mit katalytisch aktiven Materialien erfolgen. Mischungen verschiedener Zusammensetzung wurden für unterschiedliche Anwendungen getestet.

Nach ersten Abscheidungsuntersuchungen bei 30°C und 70% relativer Luftfeuchte zeigten sich bisher schon vielversprechende Ergebnisse. Ein Auswachsen der Kristalle wird nicht mehr beobachtet. Eine weitgehende Verbesserung wird beim Einsatz der Mischimprägnierungen bei einer Gewichtsprozentverteilung von $7,5 \text{ Gew. } \% \text{ Ag}$ zu $7,5 \text{ Gew. } \% \text{ des Mischkristallpartners}$ auch bei höheren Temperaturen erwartet.

Weitere Versuche mit Mischimprägnierungen sind noch im Gange. Ebenfalls wird der Einsatz der Mischimprägnierungen zur Abscheidung des anfallenden Jodes in einer Wiederaufarbeitungsanlage geplant.

Techn. Filterprüfstand

Am 20. 7. 1973 wurde der techn. Filterprüfstand nach Abschluß eines umfangreichen Abnahmebetriebes an die GfK übergeben. Die Ueberprüfung der wesentlichen Betriebsmeß- und Regelgeräte erbrachte, bis auf die Funktion der Feuchtemeßstelle in der Teststrecke, zufriedenstellende Ergebnisse.

Zur Ueberprüfung des Betriebsbereiches im Frischluft- und im Kreislaufbetrieb wurden Versuche mit angenäherten Grenzzuständen sowie Mittelpunkte des Betriebsbereiches gefahren.

Es wurden der Volumenstrom, die Temperatur und die relative Feuchte variiert.

Der Durchsatz wurde zwischen 400 und 2000 m³/h verändert, die relative Feuchte zwischen 40 und 95 % und die Temperatur bei Frischluftbetrieb zwischen 25 und 50°C sowie im Kreislaufbetrieb zwischen 25 und 140°C.

Dabei zeigte sich, daß in bezug auf die Feuchtemeßstelle vor der Teststrecke die geforderte Genauigkeit der Feuchterege lung erreicht wird, und die Regelabweichung kleiner als die zugestandene Schwankungsbreite ist.

Von den 2 Feuchtemeßstellen arbeitet allerdings nur die Stelle 1 vor der Teststrecke einwandfrei. Die Ursache für abweichende Werte an der Feuchtemeßstelle in der Teststrecke ist noch zu klären und zu beseitigen.

Im Anschluß an die Versuche mit Luft-Dampfgemischen wurden reine Dampfversuche bei 5 at gefahren. Dabei wurde die Temperatur bei 151°C (Satt dampf) und 200°C (Heißdampf) eingestellt. Der Durchsatz wurde zwischen 400 und 2000 m³/h variiert.

Schwierig erwies sich der Betriebspunkt 400 m³/h bei Satt dampf. Es ergaben sich starke Durchsatzschwankungen von ± 20 %, eine Satt dampf-spezifische Eigenschaft.

Nach dem bisherigen Eindruck der Abnahmeversuche erfüllt die Anlage im allgemeinen die Spezifikationen. Mängel, die sich bei den Versuchen gezeigt haben, wurden in einem Mängelkatalog festgehalten und werden vertragsgemäß innerhalb einer vorgegebenen Frist nachgebessert.

Im Rahmen der Störfall-Umluftfilterentwicklung sind im techn. Filterprüfstand Schwebstoff-Filter unter simulierten Störfallbedingungen zu untersuchen. Es muß eine Methode entwickelt werden, geeignete Prüfaerosole zu erzeugen und damit Abscheidegrade unter Störfallbedingungen zu bestimmen. In einer Technikumshalle wird z. Z. eine entsprechende Versuchsanlage errichtet.

Die Notwendigkeit, Feststoffaerosole zu verwenden, ergibt sich aus den Betriebsbedingungen der projektierten Störfallumluf tfilter, die bei Drücken bis zu 5 Atmosphären und Temperaturen bis zu 200°C arbeiten müssen. Die Verwendung von NaCl-Aerosolen könnte zu brauchbaren Ergebnissen führen.

Die bislang praktizierte Methode zur Erzeugung dieser Aerosole, bei der mit Hilfe von Preßluft eine Natriumchloridlösung über ein Düsensystem zerstäubt wird, bringt jedoch wesentliche Nachteile mit sich. Die Erzeugungsrate liegt, selbst bei größeren Ausführungen des Aerosolgenerators, nur bei 0,2 g/min. Außerdem benötigt man zur Verdampfung des in der zerstäubten Lösung vorhandenen Wassers lange Trockenstrecken. Schließlich liegt der so erzeugte mittlere Teilchendurchmesser mit ca. 0,7 μ m zu hoch, da man für den Abscheidegrad von Schwebstoff-Filtern bei ca. 0,3 μ m ein Minimum erwarten kann. Es ist deshalb sinnvoll, ein Aerosol zu verwenden, bei dem das Maximum der Größenverteilung um 0,3 μ m liegt.

Um diesen Forderungen gerecht zu werden, wurde zur Aerosol-Erzeugung die noch wenig untersuchte Flammenverdampfungsmethode ausgewählt. Sie beruht darauf, daß ein Festkörperpulver, etwa NaCl, in einer Flamme verdampft wird und im kühlen Luftstrom zu kleinsten Partikeln rekondensiert. Man hat damit grundsätzlich alle Vorteile eines wasserfreien Aerosols. In England durchgeführte Untersuchungen ergaben zudem, daß eine wesentlich größere Erzeugungsrate von mindestens 6 g/min erreicht werden kann und daß der mittlere Durchmesser der Teilchen zwischen 0,3 und 0,4 μ m liegt. Es gilt nun, diese erfolversprechende Methode weiterzuentwickeln, in wesentlichen Punkten, wie Erzeugungsrate und Teilchendurchmesser, zu optimieren und einen Aerosolgenerator zu bauen, der im gesamten Arbeitsbereich des Filterprüfstandes eingesetzt werden kann. Die für die Aerosol-Erzeugung notwendige Apparatur befindet sich z. Z. im Aufbau. Da, wie oben ausgeführt, nur ein bestimmter Teilchengrößenbereich in Frage kommt, muß ein Partikelzählgerät angeschafft werden, mit dem sich auf optischem Wege Größenverteilung und Durchmesser der erzeugten Aerosole bestimmen lassen. Solche Geräte sind bisher nur für Normalbedingungen ausgelegt. Zur Zeit wird gemeinsam mit verschiedenen Herstellerfirmen untersucht, welche Änderungen bzw. Umbauten notwendig sind, um ihre Geräte unter den Filterprüfstandsbedingungen einsetzen zu können.

4112 Entwicklung von Abluft-Filtern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Im ersten Halbjahr 1973 konnte wegen der Betriebsunterbrechung der WAK nur ein Filterversuch in den dort anfallenden Abgasen durchgeführt werden. Da die Meßstelle bei verschiedenen Fremdarbeiten wiederholt abgeschaltet werden mußte und die Gesamtanlage nicht normal betrieben wurde, sind die bis jetzt erhaltenen Ergebnisse nicht ohne weiteres übertragbar.

Beim Einsatz von 25 cm tiefen Adsorberbetten betrug das Verhältnis der ^{129}J Jodmengen vom ersten Teilbett (2,5 cm Bett-Tiefe) zum letzten Teilbett $2 \cdot 10^2$ in den Dissolver- und $2 \cdot 10^3$ in den Behälterabgasen. In den Tiefbetten konnte das Auftreten einer im Anteil zur Gesamtmenge geringen schwer abscheidbaren Jodkomponente sowohl in den Dissolver- als auch Behälterabgasen festgestellt werden. Die Untersuchungen werden nach der Wiederaufnahme des WAK-Betriebes fortgesetzt. Weiter wurden gaschromatographische Untersuchungen zum Reaktionsmechanismus am Jodadsorbermaterial begonnen und die ESCA Untersuchungen, die vom IHCh zur Vergiftung des Adsorbermaterials durchgeführt werden, zu einem vorläufigen Abschluß gebracht (s. PNS 4115).

Um Aussagen über Filtergifte und deren Einfluß auf die Reaktionen, die am Jodadsorbermaterial ablaufen, zu erhalten, werden die Abscheidungsreaktionen zwischen Jodverbindungen und Adsorbermaterial aufgeklärt.

Bei der Reaktion von Silbernitrat mit Alkyljodiden in Schutzgasatmosphäre können folgende Reaktionsmechanismen angenommen werden:



Versuchsdurchführung und Aufklärung der Produkte:

Ein Glasgefäß mit silbernitratimprägniertem anorg. Jodadsorbermaterial (AC-6120) wird auf 10^{-3} Torr bei 150°C evakuiert. Anschließend wird das Gefäß mit N_2 flüssig gekühlt und Alkyljodid als Reaktionspartner und CCl_4 als Lösungsmittel auf das Jodadsorbermaterial aufkondensiert. Nach Entfernung der Kühlung wird als Schutzgas Argon (reinst) eingeleitet und dadurch Druckausgleich hergestellt.

Schon bei niedriger Temperatur ($T < 0^{\circ}\text{C}$) erfolgt eine Reaktion des Gemisches. Nach Ausschütteln der Reaktionsprodukte mit CCl_4 wird eine gaschromatographische Analyse durchgeführt. Zur Trennung der Reaktionsprodukte wurden benutzt:

Säule : 3,6 m; 1/8" Edelstahl
Säulenflüssigkeit: Di-n-decylphthalat 2,5 %
Trägermaterial : Chromosorb G 80 - 100 mesh
Trägergas : 25 ml N_2 /min
FID : 30 ml H_2 /min; 240 ml synth. Luft
Temperatur : Säule 60°C ; Einlaß 150°C ; FID 200°C

Das erhaltene Chromatogramm der Reaktion von AC-6120 mit CH_3J ist in Abb. 4112-1 aufgeführt. Siedepunkte und Retentionszeiten sind der Tabelle 4112-1 zu entnehmen.

Die Bestimmung der Hauptreaktionsprodukte bei der Umsetzung von Methyljodid, Aethyljodid und Propyljodid mit AC-6120 wurde mit verschiedenen Säulenmaterialien durchgeführt. Ebenfalls wurden die Retentionszeiten der reinen Alkylnitrate bzw. der Reaktionsprodukte der Alkylnitrate und Alkyljodide bei der Umsetzung mit Luft bestimmt. Nach diesen Untersuchungen können auch bei der Umsetzung in Luft mit Sicherheit andere Hauptreaktionsprodukte ausgeschlossen werden, die eine entsprechende Retentionszeit wie die Alkylnitrate besitzen.

Bei der Reaktion von AC-6120 mit Alkyljodiden löst sich schon nach kurzer Zeit elementares Jod in CCl_4 . Es wird eine Zersetzung der Alkyljodide an der frisch gebildeten AgJ-Oberfläche angenommen, die aufgrund von Radikalreaktionen zu Alkanen führt. Diese treten im Chromatogramm als kleinere Anteile auf. Eine Uebereinstimmung der Retentionszeiten mit bekannten Alkanen, die als Eichsubstanzen eingesetzt wurden, war festzustellen.

Es konnte nachgewiesen werden, daß bei allen bisher untersuchten Reaktionen von Alkyljodiden mit AC-6120 unter Luft- und Feuchtigkeitsausschluß stets Alkylnitrate und Alkane auftraten.

Die Hauptreaktion wird durch folgende Gleichung dargestellt:

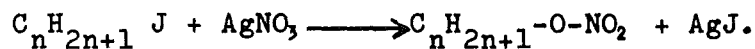


Abb. 4112-1: Chromatogramm der Reaktionsprodukte von Methyljodid mit AC-6120 (Lösungsmittel Tetrachlorkohlenstoff)

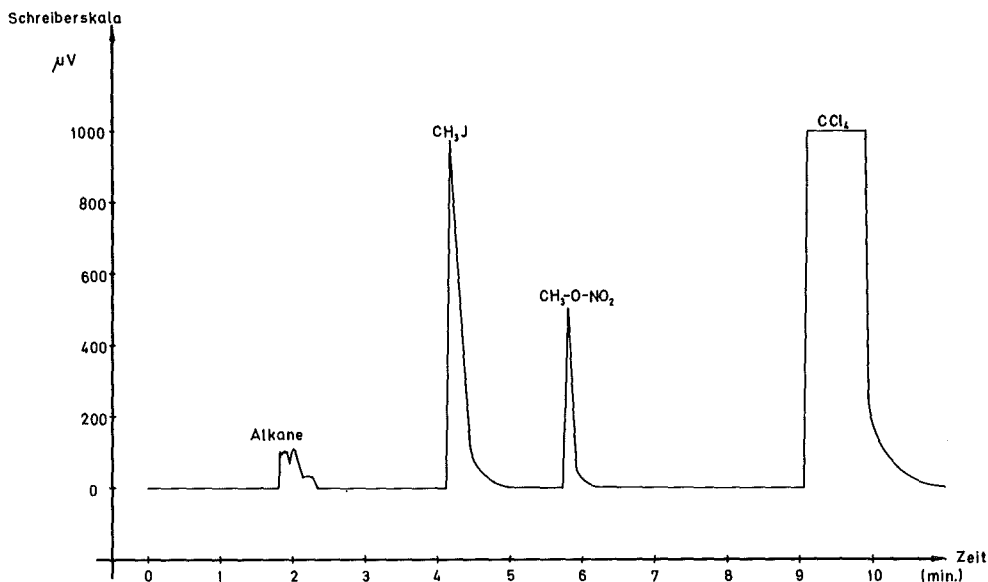


Tabelle 4112-1: Siedepunkte und Retentionszeiten

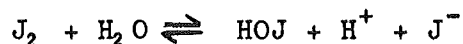
| | Kp [°C] | Retentionszeit [s] |
|--|------------|-----------------------|
| CH ₃ J | 42,5 | 265 |
| C ₂ H ₅ J | 72,3 | 495 |
| C ₃ H ₇ J | 102-103 | 1095 |
| CH ₃ ONO ₂ | 65 | 350 |
| C ₂ H ₅ ONO ₂ | 88,7 | 665 |
| C ₃ H ₇ ONO ₂ | 110,5 | 1405 |
| CCl ₄ | 76,7 | 575 |

4114 Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgasen

Für die Auslegung des Exventingfilters (Abluftfilters) des SNR-300 wurde eine umfangreiche Versuchsserie begonnen, da die zu erwartenden Bedingungen in der Abluft stark von den bisher untersuchten Verhältnissen abweichen. Ueber die Arbeiten wird nach Abschluß der ersten Versuchsserie (Abscheidung ohne Einfluß von Na-Aerosol) berichtet werden.

Um erste Erfahrungen zur Abluftmessung in Reaktorabgasen zu erhalten, wurde der von ASS/Ch und Fa. Herfurth entwickelte Jodmonitor zur Messung der Jodaktivität in der Kaminluft eines Forschungsreaktors eingesetzt. Es zeigte sich, daß unter den besonderen Bedingungen an dieser Meßstelle (relativ hohe ^{41}Ar -Konzentration) zusätzliche Abschirmung und ein intermittierender Betrieb mit Druckluftspülung der Adsorberpatrone vor der Meßperiode notwendig ist. Eine Konzentration an ^{131}J in der Größenordnung von pCi/m^3 konnte in der Abluft nachgewiesen werden. Die Kontamination der Abluft, die durch diese Meßstelle erfaßt wird, weicht infolge der am Reaktor durchgeführten Forschungsaufgaben stark von der Zusammensetzung ab, die an einem Leistungsreaktor zu erwarten ist. Deshalb wird die Meßstelle nach ausreichender Betriebserfahrung in ein Kernkraftwerk verlegt.

Aufgrund neuerer Arbeiten ist zu vermuten, daß unterjodige Säure (HOJ), die sich in Wasser (z. B. Primärkühlmittel, BE-Lagerbecken, Dampfatosphäre) aus elementarem Jod gemäß



bildet, unter bestimmten Bedingungen (niedrige J_2 -Konzentration, hoher pH-Wert, hohe Temperaturen) in größeren Anteilen in die Atmosphäre entweichen kann. Eine Halbwertszeit für HOJ in Luft von 10 Stunden und mehr wird für möglich gehalten. Dies steht in Widerspruch zu den üblicherweise in der Literatur zu findenden Angaben, nach denen unterjodige Säure nur in wässriger Lösung vorkommt und außerordentlich unbeständig ist.

Das Auftreten einer schwer abscheidbaren Jodkomponente wurde in vielen eigenen und fremden Untersuchungen beobachtet. Verschiedene Autoren weisen darauf hin, daß es sich um unterjodige Säure handeln könnte. Es soll zunächst geklärt werden, ob unter den genannten oder anderen Bedingungen neben J_2 und org. Jodverbindungen eine der HOJ entsprechende, schlecht adsorbierbare Jodverbindung in der Atmosphäre bevorzugt auftritt. Die einschlägigen experimentellen Arbeiten befinden sich in Vorbereitung.

Eigene Veröffentlichung:

J. G. Wilhelm

Entwicklung eines Meßgerätes zur kontinuierlichen Luftüberwachung
auf Radiojod, Atomwirtschaft, Jahrgang 18, Nr. 6, S. 297 - 299,
Juni 1973.

4115 Oberflächenanalyse von anorganischen Jodfiltern durch ESCA
(E. Henrich, IHCH)

Die Fotoelektronenspektroskopie (ESCA Electron Spectroscopy for Chemical Analysis) von anorganischen Spaltjodfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen dient zur Klärung der erwünschten Verbindungsbildungen und der unerwünschten Vergiftungsreaktionen des Filtermaterials und soll damit indirekt zur Verbesserung der Kapazität, des Abscheidegrades, der Lebensdauer und der Wirtschaftlichkeit der Filter beitragen.

1. Das untersuchte Filtermaterial [1]

Das untersuchte Filtermaterial (Produkt AC 6120 der Fa. Bayer, Leverkusen) besteht aus porösen Siliziumdioxid-Kügelchen von 1 - 2 mm Durchmesser, die auf der äußerlich sichtbaren (ca. $0.005 \text{ m}^2/\text{g}$) und auf der wesentlich größeren nicht sichtbaren inneren Oberfläche (ca. $185 \text{ m}^2/\text{g}$) etwa 11 Gew.-% Silbernitrat enthalten. Die Filter selbst sind aus mehreren hintereinander geschalteten je 2.5 cm tiefen Filterbetten aufgebaut. Sie wurden über einen Zeitraum von 10 Wochen bei 150°C von der schwebstoffgefilterten Abluft einer Purex-Wiederaufarbeitungsanlage mit einer Verweilzeit von 0.1 sec pro Filterbett durchströmt. Die stickoxidhaltige Abluft aus dem Auflösebehälter und die weitgehend stickoxidfreie Abluft aus den anderen Behältern wurde auf zwei getrennte Filter, das Auflöser- und das Behälterfilter aufgegeben. Die Spaltjoddurchlässigkeit der Behälterfilter steigt im Vergleich zu derjenigen der Auflöserfilter schnell an und läßt deshalb eine getrennte Betrachtung beider Filter notwendig erscheinen.

Die hier untersuchten Auflöserfilter wurden allerdings während der drei letzten Betriebswochen von weitgehend stickoxidfreier Abluft angeströmt und könnten deshalb einige Abweichungen vom Verhalten typischer Auflöserfilter zeigen; z.B. waren die sonst überwiegend weißen Filterkörner der hinteren Auflöser-Filterbetten graubraun gefärbt.

2. Zur Beurteilung der ESCA-Leistungsgrenzen [2]

Die Untersuchungen wurden mit einem AEI-ES-100 Gerät durchgeführt.

Die Fotoelektronen wurden mit 1487 eV Al-K_{α1,2}-Röntgenstrahlung (Halbwertsbreite etwa 0.9 eV) ausgelöst und die kinetische Energie der aus der Oberfläche der Probe austretenden Elektronen mit einem elektrostatischen Analysator auf ± 0.2 eV genau bestimmt. Diejenigen Elektronen, die ohne Energieverlustwechselwirkung aus der Oberfläche entkommen, verursachen die Peaks (Halbwertsbreite 1.3 eV und größer) im Spektrum. Aus der kinetischen Energie E_{kin} und der Energie der anregenden Röntgenstrahlung $h\nu$ kann ihre Bindungsenergie $E_B = h\nu - E_{kin}$ bestimmt werden. Verschiedene Elemente können anhand ihrer durch die chemische Umgebung nur geringfügig beeinflussten charakteristischen Bindungsenergien vor allem der Nichtvalenzelektronen identifiziert werden.

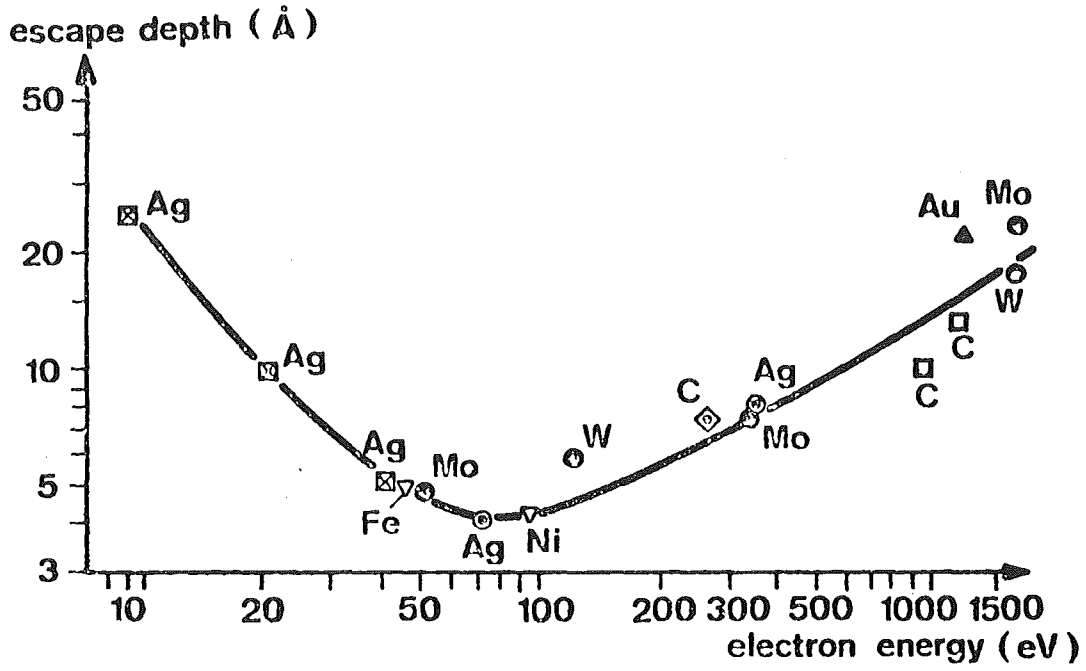
Jedem einfachen Fotoelektronenpeak sind weitere Linien zugeordnet:

- a) Auger-Linien, verursacht durch Emission von Augerelektronen.
- b) Satellitenlinien auf der Seite höherer Bindungsenergie werden verursacht durch gleichzeitige definierte "shake up"-und "shake off"-Prozesse in der äußeren Elektronenhülle.
- c) Eine Satellitenlinie mit 10 eV niedriger Bindungsenergie und etwa 10 % der Intensität der eigentlichen Linie wird verursacht durch Kontamination mit Al-K_{α3,4}-Röntgenstrahlung.
- d) Plasmonenpeaks auf der Seite höherer Bindungsenergie verursacht durch Anregung kollektiver Elektronenschwingungen.

Der große Teil der unter Energieverlustwechselwirkung aus der Oberfläche austretenden Elektronen trägt zur Strukturierung des Untergrundes bei.

Zur Informationstiefe [3]:

Die wechselwirkungsfreie mittlere Austrittstiefe für Photoelektronen zwischen 10 und 1500 eV liegt zwischen 4 und 20 Å (siehe Abb. 4115-1). Da auch noch Bruchteile einer monoatomaren Belegung nachweisbar sind und der Druck in der Probenkammer des Spektrometers z.Zt. bestenfalls



Tracy : NATO summer school, Gent, Sept. 1972

Abb. 4115-1: Die wechselwirkungsfreie mittlere Austrittstiefe für Photoelektronen.

$5 \cdot 10^{-7}$ Torr beträgt, sind Störungen durch adsorbierte Stoffe (Stickstoff, Wasser, Öldämpfe etc.) nicht sicher auszuschließen. In der energetischen Lage, der Form und Breite und der Intensität der Peaks in den Fotoelektronenspektren ist somit nur die Information über eine etwa 10 - 50 Å dicke Oberflächenschicht der Probe enthalten.

Zur Elementaranalyse der Probenoberfläche:

Die relative Nachweiswahrscheinlichkeit $[^{-4}]$ verschiedener Elemente anhand ihrer intensivsten Linien erstreckt sich über etwa 2 Zehnerpotenzen. Die Nachweiswahrscheinlichkeit eines Elements ist für unterschiedliche Proben nicht genau konstant, da in verschiedenen Verbindungen die Plasmonen-, die "shake up"-und "shake off"-Satelliten mit unterschiedlichem Erfolg um Intensität mit der eigentlichen Linie konkurrieren. Darüber hinaus muß für vergleichbare Messungen, wegen der unterschiedlichen Ausdringtiefe von Elektronen verschiedener kinetischer Energie, eine homogene Probenzusammensetzung über die gesamte Informationstiefe gewährleistet sein. Für monomolekulare Oberflächenschichten und Proben, die durch dünne Filme aus Fremdmaterial kontaminiert sind, müssen deshalb beträchtliche Änderungen der relativen Nachweiswahrscheinlichkeit erwartet werden.

Die folgende Tabelle 4115-1 zeigt die an Verbindungen definierter Zusammensetzung experimentell ermittelten relativen Nachweiswahrscheinlichkeiten anhand der Peakhöhen im AEI-ES-100-Gerät für die in den Filterproben gefundenen Elemente. Der Fehler dürfte auch für verschiedene Verbindungen eines Elements den Faktor 2 nicht überschreiten.

Tabelle 4115-1:

| Elemente | Si | C | P | N | S | O | Cl | Br | J | Ag |
|-------------------------------|----|----|----|----|----|----|----|----|------------|------------|
| Elektron | 2p | 1s | 2p | 1s | 2p | 1s | 2p | 3d | $3d^{5/2}$ | $3d^{5/2}$ |
| rel. Nachweiswahrscheinlichk. | 3 | 3 | 4 | 5 | 5 | 5 | 6 | 6 | 45 | 50 |

Aus den angeführten Gründen kann für die Filterproben nur eine halbquantitative Elementaranalyse der Oberflächen erwartet werden.

Zur Unterscheidbarkeit verschiedener Verbindungen eines Elements:

In verschiedenen Verbindungen eines Elements kann sich die Bindungsenergie der Elektronen bis zu etwa 10 eV unterscheiden (chemische Verschiebung). Pro Wertigkeitsstufe erhöht sich die Bindungsenergie um grob 1 eV, bei gleicher Wertigkeit kann der Einfluß einer verschiedenen chemischen Umgebung eine zusätzliche Verschiebung von etwa ± 2 eV bewirken. Deshalb lassen sich in den ESCA-Spektren z.B. nur weiter auseinanderliegende Wertigkeitsstufen sicher unterscheiden. Für die Filterproben ist insbesondere die Unterscheidbarkeit von Jodid und Jodat und die Identifizierung des Nitrat-Stickstoffs von Bedeutung.

Zur Homogenität der Filterproben:

Der ESCA-Untersuchung ist nur die äußerlich sichtbare Oberfläche der Filterkörner zugänglich, das sind nur 20 - 30 ppm der gesamten inneren und äußeren Oberfläche. Eine chemische Analyse der Gesamtprobe und eine Analyse der äußeren Oberfläche durch ESCA braucht deshalb nicht unbedingt übereinzustimmen.

Da die Farbe des Filterkorninneren weitgehend der äußeren Oberflächenfärbung entspricht, ist zumindest eine Ähnlichkeit beider Oberflächen zu erwarten. Weiterhin deuten die einzelnen Körner eines Filterbettes durch ihre etwas unterschiedliche Färbung eine geringe Inhomogenität der Proben selbst an. Bei der Aufnahme der Spektren wird über die äußere Oberfläche von etwa 3 - 10 Körnern gemittelt, was deshalb nur mit gewissen Vorbehalten als repräsentativ für die Gesamtprobe betrachtet werden kann.

Durch Pulvern der Filterkörner erzeugt man eine große Menge frischer Bruchflächen im Substanzinneren, insbesondere auch im Inneren der Silbernitratkristallite; ein ESCA-Spektrum sollte somit die Zusammensetzung der Gesamtsubstanz und nicht mehr der ursprünglichen Oberfläche wiedergeben. Die gleiche Information läßt sich aber besser und genauer durch eine chemische Analyse erhalten.

3. Ergebnisse der Filteruntersuchungen

Zur Beständigkeit des Silbernitrats im AC 6120:

An der äußeren Oberfläche des beaufschlagten und des nicht beauf-

schlagten AC 6120 liegt der Nitratstickstoffgehalt unter 10 % des für Silbernitrat erwarteten Wertes. Das läßt den Schluß zu, daß selbst das weiße nicht beaufschlagte Material bis in eine Tiefe von $> 20 \text{ \AA}$ weitgehend zu Silberoxid zersetzt ist. Auf eine Zersetzung noch dickerer Schichten deutet auch die graubraune Farbe (Ag_2O) tieferer Auflöserfilterbetten und die noch dunklere Färbung des gesamten Behälterfilters hin.

Eine Analyse der frischen Bruchflächen des gepulverten Materials zeigte, daß im Substanzinneren des nicht beaufschlagten AC 6120 und in den ersten Betten des Auflöserfilters noch ausreichende Mengen an Nitrat vorhanden sind, wohingegen der unter 15 % des AgNO_3 -Wertes gesunkene Nitratgehalt im Inneren der Behälterfilter auf eine beträchtliche makroskopische Zersetzung schließen läßt. Eine gravimetrische Nitratbestimmung mit Nitron ergab in Übereinstimmung damit noch den vollständigen Nitratgehalt im nicht beaufschlagten Material, während in den Behälterfiltern kein Nitrat mehr gefunden wurde [5]. Ein intensiver zweiter Stickstoffpeak in dem gepulverten Material scheint auf adsorbierten molekularen Stickstoff zurückführbar zu sein.

Die mit steigender Dunkelfärbung beobachtbare Verringerung des Abscheidegrades der Filter für Spaltjod [1] und die Weißfärbung und Regeneration der Filterwirkung durch die Behandlung mit Stickoxiden, scheinen die Zersetzung des Silbernitrats zum Oxid für die Qualitätsverschlechterung der Filter verantwortlich zu machen. Mit dieser Hypothese läßt sich aber die gute Filterwirkung des neuen AC-6120, welches auf der äußeren Oberfläche ebenfalls von einer mindestens 20 \AA dicken Oxidhaut bedeckt ist, nur schwer in Einklang bringen. Es ist denkbar, daß für die Inaktivierung der Filterfunktion auch Alterungsvorgänge des oberflächlichen Silberoxids oder zusätzliche Vergiftungsreaktionen von Bedeutung sind.

Inwieweit die Dunkelfärbung der Filterkörner auch durch organische Zersetzungsprodukte verursacht wird, kann mit Hilfe der ESCA-Spektren nicht entschieden werden, da in allen Spektren ein C-1s Peak bei 285 eV vorhanden ist, der von einem unvermeidbaren dünnen Film des Diffusionspumpenöls auf der Probe herrührt. Dieser Peak wird als interner Energiestandard benutzt.

Zur Größe der Silbernitratkristallite auf dem Trägermaterial:

Da selbst in nicht beaufschlagten AC-6120 eine $> 20 \text{ \AA}$ dicke Oberflächenschicht praktisch nitratfrei ist, aber analytisch noch keine makroskopische Zersetzung feststellbar ist, muß der durch ESCA erfaßte Bruchteil der Substanz unterhalb der analytischen Fehlergrenze liegen. Daraus läßt sich folgern, daß die mittlere Dicke der Silbernitratkristalle an den äußeren Oberflächen mindestens 1000 \AA betragen sollte. Aus dem Intensitätsverhältnis der Silber- und Siliziumlinie ergibt sich außerdem, daß die Kristallite höchstens 10 - 20 % des Trägerkornäußeren bedecken.

Bildung von Silberhalogeniden:

Alle gemessenen Filterproben enthalten < 5 bis etwa 50 % Silberchlorid an der äußeren Oberfläche. Es ist nicht ganz auszuschließen, daß zumindest ein Teil davon durch Spuren von Salzsäurenebel in der Laborluft verursacht wird, da bisher keine Korrelation des Chloridgehaltes mit der Filtertiefe erkennbar ist.

In den ersten Betten der Auflöserfilter beträgt der Silberjodidanteil an der Oberfläche bis zu 50 %, für die Behälterfilter liegt der Wert etwa eine Zehnerpotenz niedriger. Ab etwa 15 cm Filtertiefe ist mit ESCA kein Jod mehr nachweisbar.

Silberjodat konnte bisher nicht nachgewiesen werden, sein Anteil an der Oberfläche dürfte weniger als 10 % des Jodidanteils sein.

Auf dem ersten 2.5 cm-Bett des Auflöserfilters übersteigt die Bromidmenge die vorhandene Jodmenge um etwa das vier- bis fünffache. Auf den folgenden Auflöserfilterbetten und auf dem gesamten Behälterfilter war kein Bromid mehr nachweisbar.

Der Phosphor- und Schwefelgehalt der Filter:

Auf dem ersten Bett des Behälterfilters war eine Phosphatmenge vorhanden, die zur Ag_3PO_4 -Bildung etwa das dreifache des in der Oberfläche vorhandenen Silbers erfordert hätte, ab 10 cm Filtertiefe war das Phosphat nicht mehr nachweisbar. Auf den Auflöserfiltern konnte

ebenfalls kein Phosphat gefunden werden.

Die Inaktivierung der Behälterfilter nur auf eine Phosphatvergiftung zurückzuführen erscheint nicht sehr plausibel, da die tieferen Filterbetten kein oder doch nur sehr wenig Phosphat enthalten und deshalb noch aktiv sein sollten. Verunreinigungen, die eine bestimmte Silbermenge nur durch Verbindungsbildung blockieren, sollten ebenfalls ohne allzu großen Einfluß auf die Filterwirkung sein, da das zu absorbierende Spaltjod im Prinzip das gleiche tut, das Silber des AC-6120 aber trotzdem zu über 50 % in Silberjodid umgesetzt werden kann.

Sulfatschwefel konnte nicht sicher nachgewiesen werden, in einigen Spektren sind Andeutungen vorhanden.

Die Abb. 4115-2 und 4115-3 zeigen die ESCA-Übersichtsspektren des 1. und 3. Bettes des Behälter- und des Auflöserfilters.

4. Geplante Arbeiten

Die Untersuchungen weiterer Filterproben soll zeigen, inwieweit die erhaltenen Ergebnisse tatsächlich typisch sind, insbesondere steht die Untersuchung typischer Auflöserfilter noch aus. Weiterhin soll geklärt werden, ob Jodat und Schwefel überhaupt in nennenswerter Menge vorhanden sind. Nach einer geplanten UHV-Umrüstung und dem Einbau einer Sputtereinrichtung zur Oberflächenreinigung und Abtragung, sollen die Ergebnisse mit wesentlich verbesserter Verlässlichkeit und quantitativer Genauigkeit abgesichert werden. Darüber hinaus wird durch die Umrüstung eine Untersuchung tieferer Filterschichten möglich werden.

Zitierte Literatur:

- [1] Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Jahresbericht 1972, KFK 1818
- [2] K. Siegbahn, et.al., "ESCA", Uppsala 1965
- [3] Tracy, NATO summer school, Gent, Sept. 1972
- [4] C.D.Wagner, Anal. Chem. 44 (1972) 1050
- [5] J. Furrer, private Mitteilung

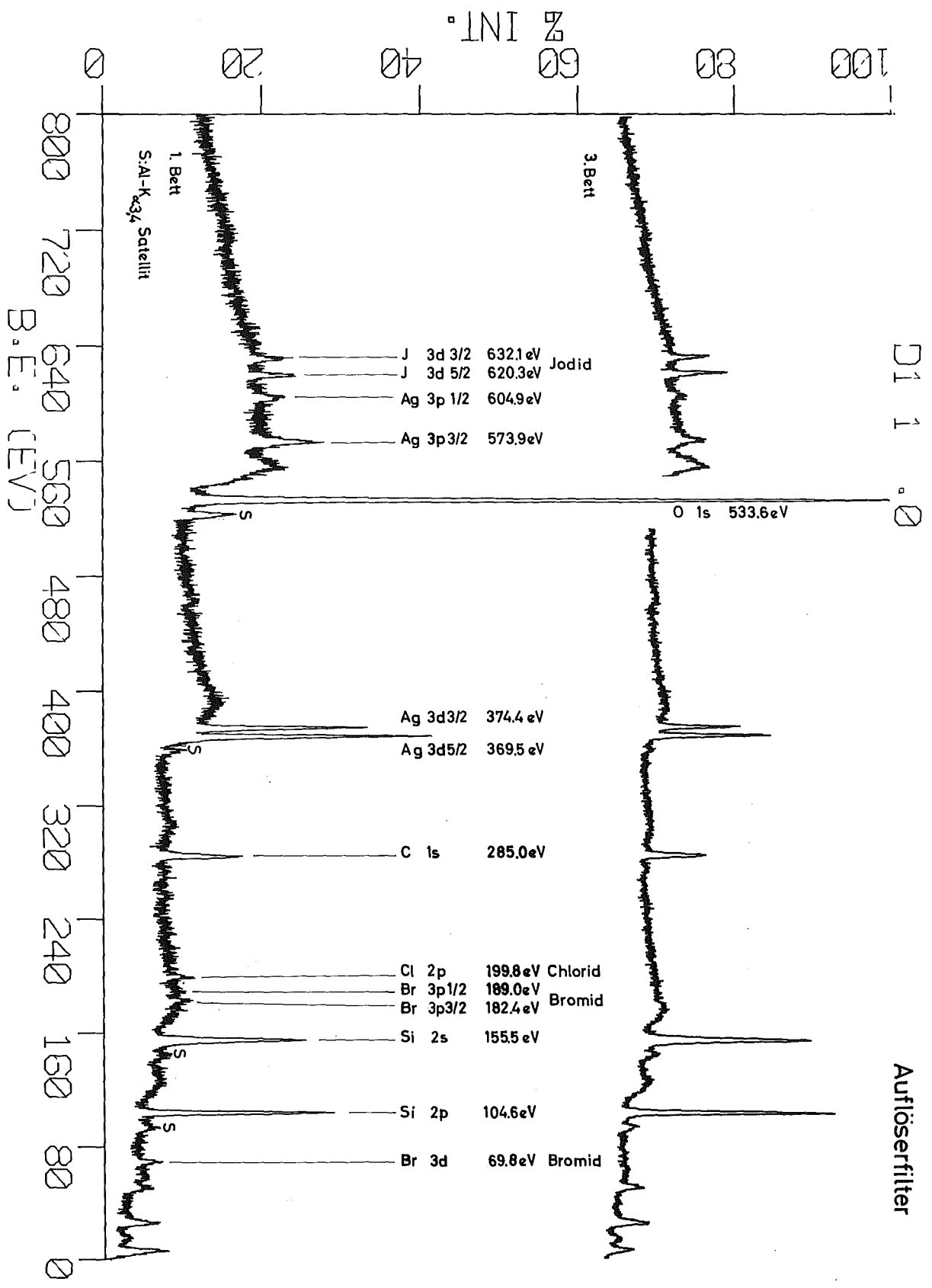


Abb. 4115-2: ESCA-Übersichtsspektrum des 1. und 3. Bettes eines Auflösers

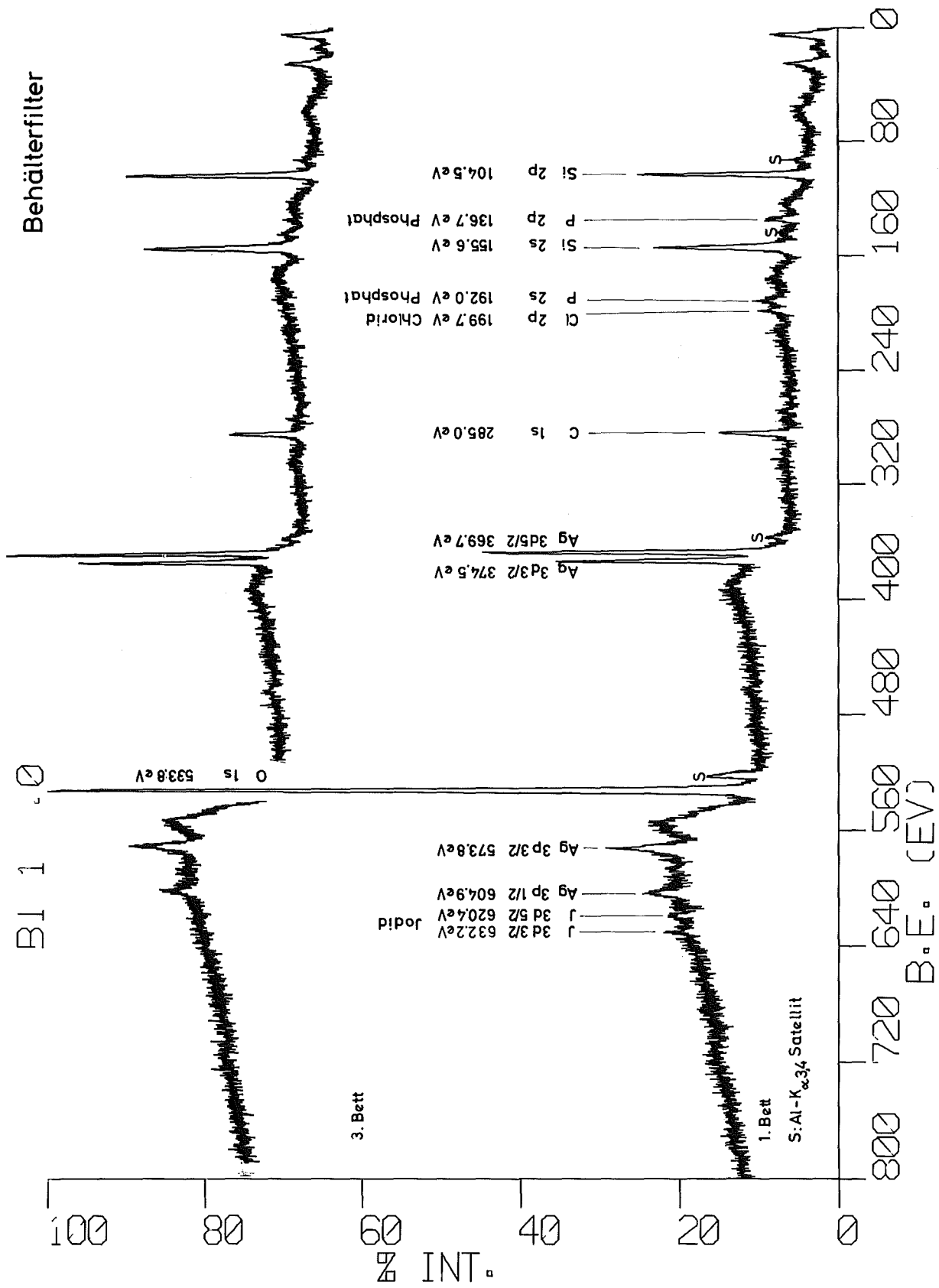


Abb. 4114-3: ESCA-Übersichtsspektrum des 1. und 3. Bettes eines Behälterfilters

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von aktivierten Korrosionsprodukten in Primärkreisläufen und deren Dekontamination

Im Berichtszeitraum erfolgte eine Überprüfung der Ziele dieses Forschungsvorhabens.

Alle Maßnahmen zur Reduktion der Primärkreiskontamination werden durch die Materialauswahl (z.B. Incoloy 800 als Dampferzeuger-Werkstoff) sowie durch die Reaktorwasserchemie bestimmt. Aufgrund der 3 dominierenden Mechanismen beim Aktivitätsaufbau in LWR-Primärkreisen, nämlich

1. Bildung der Korrosionsprodukte außerhalb des Cores, insbesondere im Dampferzeuger,
2. Abscheidung und Aktivierung der Korrosionsprodukte auf den Brennelement-Oberflächen mit anschließender Ablösung bzw. Abtragung,
3. Transport der Korrosionsprodukte in das Core und aus dem Core,

ergeben sich konsequent folgende 3 Möglichkeiten zur Reduktion der Kontamination in LWR-Primärkreisen:

1. Reduktion der Metallabgaberaten (z.B. durch Schutzschichten)
2. Verkürzung der Verweilzeit der Korrosionsprodukte auf den Brennelement-Oberflächen (z.B. durch entsprechende Steuerung der Löslichkeit)
3. Reduktion der Menge transportierter Korrosionsprodukte durch verbesserte Filter- und Reinigungssysteme.

Zu Punkt 1: Reduktion der Metallabgaberaten

Stand der Kenntnisse:

Durch leicht alkalische Fahrweise durch 1 - 2 ppm Li und einer Wasserstoffzudosierung läßt sich die Menge der Korrosionsprodukte verringern. In zwei in letzter Zeit in Betrieb genommenen Druckwasserreaktoren wurde in einem Fall versucht, vor der Inbetriebnahme durch Alkalisierung des Wassers bei einer Temperatur von 280 °C (Aufheizung durch Kreislaufpumpen) im Primärsystem eine Schutzschicht aufzubringen. Im Vergleich zu früheren Maßnahmen wurde dadurch eine dünnere, festhaftendere Schutzschicht und eine wesentliche Reduktion der bei Betriebsbeginn vorliegenden Menge von Korrosionsprodukten erreicht. Weitere Betriebserfahrungen müssen dabei jedoch noch abgewartet werden. Im anderen Fall wurde versucht, während der Inbetriebnahme den Sauerstoffgehalt im Primärkreis möglichst niedrig zu halten (< 0,05 ppm). Auch durch diese Maßnahme gelang es, die Menge der während der Inbetriebnahme gebildeten Korrosionsprodukte stark zu reduzieren.

Ziel der hier notwendigen Untersuchungen:

- a) Bestimmung der Metallabgaberaten von Incoloy 800 in Abhängigkeit von den Bedingungen der Reaktorwasserchemie.
- b) Systematische Untersuchungen zur Erzeugung von Schutzschichten zur Reduktion der Metallabgaberaten.

Zu Punkt 2: Verkürzung der Verweilzeit der Korrosionsprodukte auf den
Brennelementoberflächen

Stand der Kenntnisse:

Die Ablagerungen sind am stärksten im Core-Zentrum an den oberen Enden der Brennelemente, d.h. in den Zonen höchster Kühlwassertemperaturen und geringster Wasserstoffgehalte. Der Nickelgehalt der Ablagerungen ist am oberen Ende der Brennelemente am höchsten, der Eisengehalt am geringsten. Diese Befunde sind offensichtlich nicht durch die hydrodynamischen Verhältnisse zu erklären, sondern sprechen dafür, daß die Abscheidungen in erster Linie als chemisches Problem zu sehen sind. Ansatzpunkte bietet die Beeinflussung der Löslichkeit der Korrosionsprodukte über den pH-Wert und dem Wasserstoffgehalt in Abhängigkeit von der Temperatur. Ungeklärt ist insbesondere das Verhalten von Kobalt. Es wird abgeschieden, obwohl die Löslichkeitsgrenze für Kobaltoxid bei einer im Primärkühlwasser vorliegenden Menge von 0,5 ppb Co bei weitem nicht erreicht wird.

Ziele der hier notwendigen Untersuchungen:

- c) Bestimmung der Zusammensetzung und der Struktur der Korrosionsprodukte. Untersuchung der Löslichkeiten von Metalloxiden vom Magnetittyp, von Nickeloxid und Kobaltoxid in Abhängigkeit von pH, Temperatur und Wasserstoffgehalt.

Das PNS konzentriert sich im Rahmen des Teilprojekts 4120, in Abstimmung mit der KWU, auf die obigen Schwerpunkte a), b) und c). Dazu müssen folgende Arbeiten in Angriff genommen werden:

- Untersuchung des Löslichkeitsverhaltens von Korrosionsprodukten in Refreshing-Autoklaven
- Untersuchung der Metallabgaberrate von Incoloy 800
- Untersuchung der physikalisch-chemischen Eigenschaften von Primärkreis-korrosionsprodukten

Auf diesen Gebieten werden bis zum Jahresende Versuchsprogramme erarbeitet.

4130 Messung der Tritiumkontamination der Umwelt

(L.A. König, M. Winter, H. Schüler, W. Tachlinski, ASS)

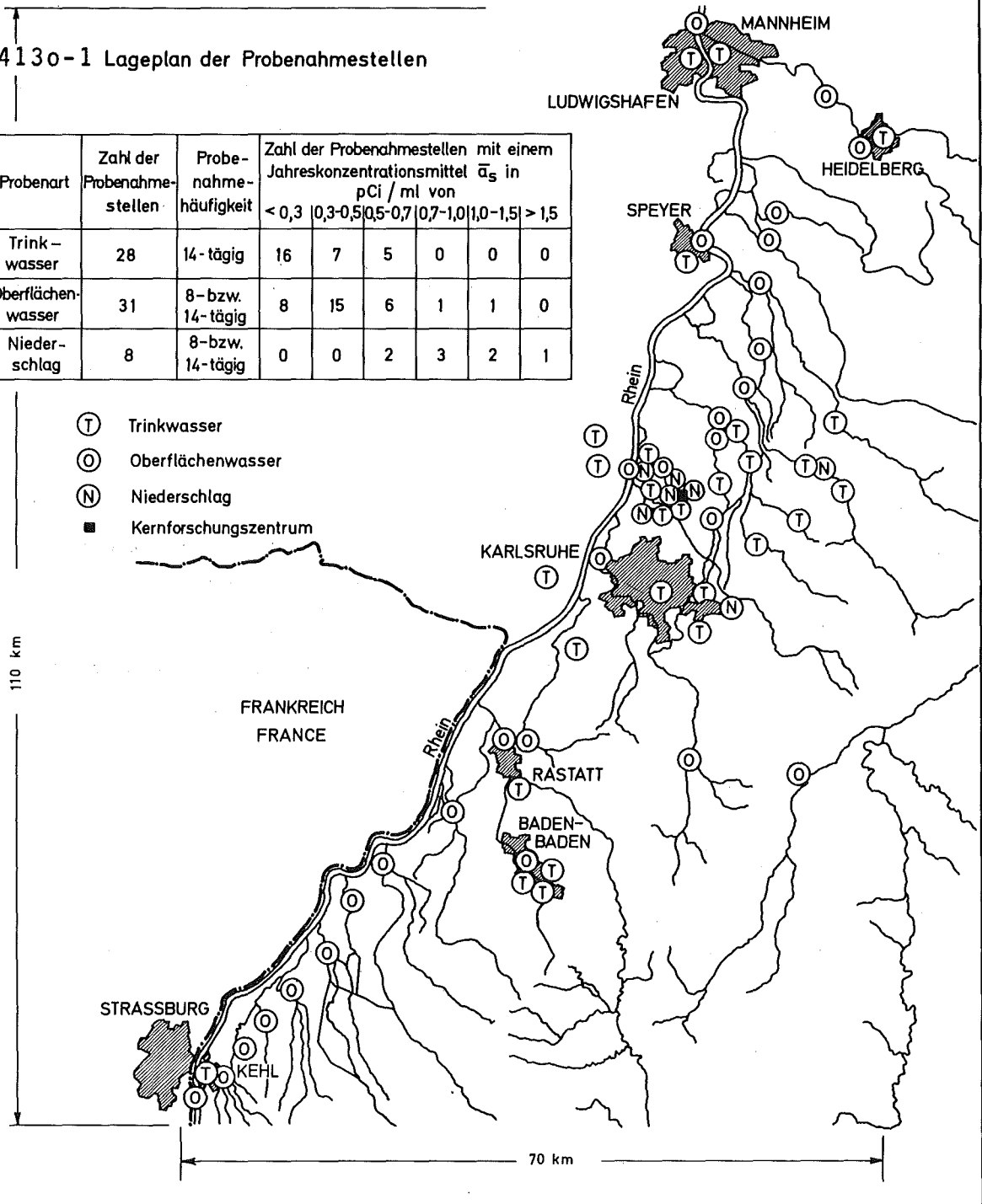
Das laufende Probenahme-Programm umfaßt den Bereich der Oberrheinischen Tiefebene zwischen Mannheim und Straßburg. Abb. 4130-1 (entnommen aus [1]) zeigt den Lageplan der Probenahmestellen. Nach dem Stand vom Juni 1973 werden pro 14 Tage 11 Niederschlags-, 28 Trinkwasser- und 46 Oberflächenwasserproben gemessen. Im Rahmen des Programmes werden der Rhein selbst und seine wichtigsten rechtsrheinischen Zuflüsse überwacht. Die Trinkwasserproben werden von Mitarbeitern der Abteilung an ihren Wohnorten genommen und zur Messung mitgebracht. Die Probenahme von Niederschlägen ist auf einen Umkreis von 10 km um das Kernforschungszentrum beschränkt, da die erforderliche Betreuung der Sammelgefäße keine größeren Anmarschwege zuläßt.

Abb. 4130-1 zeigt eine Häufung der Probenahmestellen im Nahbereich des Kernforschungszentrums auch für Trink- und Oberflächenwasser. Mit dieser intensiveren Überwachung der näheren Umgebung wird den Tritiumableitungen des Kernforschungszentrums Rechnung getragen. Die jährlichen Tritiumfreisetzungen der beiden Schwerwasserreaktoren FR 2 und MZFR liegen bei ca. 5 % ihres Inventars [2]. 1972 wurden vom KFZ insgesamt rund 4000 Ci Tritium freigesetzt, davon 2226 Ci mit dem Abwasser [3] und 1764 Ci mit der Abluft [4]. Da die Wiederaufarbeitungsanlage (WAK) künftig sowohl mehr als auch stärker abgebrannten Brennstoff zu verarbeiten hat und das Tritiuminventar der o.g. Reaktoren pro Jahr um ca. 1 Ci/l zunimmt, ist mit einem weiteren Ansteigen der Tritiumfreisetzungen zu rechnen.

Wegen der ständig steigenden Tritiumkonzentrationen insbesondere des Abwassers ist beabsichtigt, stark tritiumhaltige Abwässer zur Endlagerung künftig in eine erschöpfte Erdölbohrung unmittelbar neben dem Kernforschungszentrum einzuleiten [7] (siehe PNS Nr. 4161). Die Verwirklichung dieses Projekts erfordert ebenfalls eine sehr sorgfältige Umgebungsüberwachung auf Tritium, um die Zuverlässigkeit dieser Art der Tritiumbeseitigung nachweisen zu können.

Abb. 4130-1 Lageplan der Probenahmestellen

| Probenart | Zahl der Probenahmestellen | Probenahmehäufigkeit | Zahl der Probenahmestellen mit einem Jahreskonzentrationsmittel \bar{a}_s in pCi / ml von | | | | | |
|-------------------|----------------------------|----------------------|---|---------|---------|---------|---------|-------|
| | | | < 0,3 | 0,3-0,5 | 0,5-0,7 | 0,7-1,0 | 1,0-1,5 | > 1,5 |
| Trinkwasser | 28 | 14-tägig | 16 | 7 | 5 | 0 | 0 | 0 |
| Oberflächenwasser | 31 | 8- bzw. 14-tägig | 8 | 15 | 6 | 1 | 1 | 0 |
| Niederschlag | 8 | 8- bzw. 14-tägig | 0 | 0 | 2 | 3 | 2 | 1 |



Die Bestimmung der Tritiumkonzentration der Wasserproben erfolgt mit Hilfe eines Flüssigszintillationsspektrometers der Fa. Packard Instr., Modell 3375 [5]. Die bei diesem Gerät angewandte Quenchkorrektur beruht auf einer Kombination der sog. Kanalverhältnis-Methode und der Methode des externen Standards. Als Szintillatorcocktail wird der als fertiges Gemisch käufliche Dreikomponentenszintillator "Insta-Gel" verwendet. Alle Wasserproben werden vor der Messung destilliert. Von jeder Probe werden 10 ml Wasser mit 12,5 ml "Insta-Gel" versetzt. Dies geschieht zur Vermeidung von Photolumineszenz in einer Dunkelkammer. Der Vermeidung von Thermo- und Photolumineszenzeffekten dient auch ein sich anschließendes 2-stündiges Tempern der Proben bei ca. 70 °C. Nach Abkühlung der Proben auf die Meßtemperatur im Flüssigszintillationsspektrometer von 11 °C werden die Proben 50 min lang gemessen.

Bei einer für reine Tritiummessungen optimalen Meßkanaleinstellung, einem Nulleffekt von 4 bis 5 ipm und Zählwirkungsgraden von, je nach Quenchgrad, 14 bis 16 %, lassen sich Nachweisgrenzen für die Tritiumkonzentration von 0,2 bis 0,3 pCi/ml erzielen.

Für den relativen 2σ -Fehler der gemessenen Tritiumkonzentrationen a gilt

$$\frac{\Delta a}{a} = \pm \sqrt{\frac{4(\lambda+1)}{R_0 T_M (\lambda-1)^2} + 0,0007} \quad \text{mit } \lambda = \frac{R_M}{R_0} .$$

Hierin bedeuten R_M und R_0 die Meß- und Nullraten und T_M die Meßzeit. Die Konstante unter der Wurzel setzt sich aus den Fehlern des Eichstandards und der Meßgutmenge zusammen.

Einige typische Ergebnisse der Messungen der Tritiumkonzentration in Grund-, Trink-, Oberflächenwasser und in Niederschlägen wurden bereits in [6] berichtet. 1972 wurden im Rahmen dieses Programmes insgesamt rund 1600 Wasserproben untersucht.

Zur statistischen Auswertung wurden für die drei Wasserarten für jede Probenahmestelle die Jahresmittelwerte der Tritiumkonzentrationen für 1972 bestimmt.

Da für Meßwerte unterhalb der Nachweisgrenze im Extremfall alternativ 0 oder der Betrag der Nachweisgrenze selbst zur Mittelbildung verwendet werden könnte, wurde in diesen Fällen der Betrag der halben Nachweisgrenze eingesetzt. Bei der Bildung der Jahresmittelwerte für die Niederschläge wurden die Tritiumkonzentrationen mit den Niederschlagsmengen gewichtet. Abb. 4130-1 enthält eine Übersichtstabelle mit Angaben über Probenart, Zahl der Probenahmestellen und Probenahmehäufigkeit. Die in dieser Tabelle für die 3 Wasserarten angegebenen Häufigkeitsverteilungen der Probenahmestellen mit - innerhalb bestimmter Meßwertintervalle - gleichen Jahresmittelwerten der Tritiumkonzentration macht die unterschiedlichen Tritiumkontaminationen von Trinkwasser, Oberflächenwasser und Niederschlag deutlich. Die auch im Jahresmittel deutlich höheren Niederschlagsmeßwerte sind z.T. infolge der Nähe der Sammelgefäße durch Tritiumfreisetzungen des Kernforschungszentrums bedingt. Probenahmestellen für Oberflächengewässer, die tritiumhaltige Abwässer des Zentrums führen, wurden bei der Häufigkeitsverteilung in Abb. 4130-1 nicht berücksichtigt.

Im 1. Halbjahr 1973 wurde ein Schema zur Erfassung und Auswertung der anfallenden Rohdaten entworfen. Die Bewältigung des Datenmaterials des Jahres 1972 war nur möglich, weil nach Erstellung der erforderlichen Rechenprogramme ein Kleinrechner eingesetzt werden konnte.

Eine Berichterstattung über Meßergebnisse von 1973 erscheint zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch nicht sinnvoll, da, wie die in [5] veröffentlichten Ergebnisse zeigen, ein jahreszeitlicher Gang der Tritiumkonzentrationen erst festgestellt werden kann, wenn alle Meßwerte eines Jahres vorliegen. Auch Untersuchungen zum Wasserhaushalt erfordern Beobachtungen über längere Zeiträume als 6 Monate, um gesicherte Ergebnisse zu erhalten.

Mit der geplanten Erweiterung des Tritiummeßprogrammes auf Wasserproben aus der Umgebung von Kernkraftwerken wurde begonnen. Messungen erfolgen bereits an Proben von den Kernkraftwerken Gundremmingen, Niederaichbach, Philippsburg und Neckarwestheim.

Zur Untersuchung des Tritiumgehaltes von Pflanzenproben wurde 1973 mit der Erprobung einer Probenaufarbeitungsmethode begonnen. Als Probenmaterial diente zunächst das in der Umgebung fast überall verfügbare Gras.

In einem ersten Schritt sollte nur das als HTO in der Pflanze enthaltene Tritium gemessen werden. Später wird durch Totalverbrennung allen Wasserstoffes zu H₂O bzw. HTO zu prüfen sein, ob sich die Tritiumkonzentration der organischen Substanzen von der Konzentration des Wassergehaltes der Pflanzen unterscheidet und ob durch die schnelle und billige "Pflanzenwasser"-Messung allein (unter Umgehung der Totalverbrennung) repräsentative Aussagen über den Grad der Tritiumkontamination von Pflanzen möglich sind.

Die Messung des Tritiums im Flüssigkeitsszintillations-Spektrometer erfordert ein möglichst reines Probengut, um Chemolumineszenz zu vermeiden und Quencheffekte niedrig zu halten. Bei der Probenaufarbeitung, also der Herstellung des Meßgutes, erwies es sich als schwierig, bei der Pflanzenentwässerung das gleichzeitige Übergehen niedrig siedender organischer Verbindungen zu verhindern, bzw. diese quantitativ abzutrennen. Bei der in Erprobung befindlichen Probenaufarbeitungsmethode wird das "Pflanzenwasser" bei mäßiger Temperatur (100-150 °C) in Vakuum ausgetrieben und in mit flüssigem Stickstoff gekühlten Kältefallen ausgefroren. Eine vollständige Abtrennung der organischen Bestandteile gelang noch nicht.

Das nach der beschriebenen Methode den Grasproben entzogene "Pflanzenwasser" machte jeweils 75 % des Frischgewichtes aus. Je nach Zeitpunkt und Ort der Probenahme ergaben sich Tritiumkonzentrationen des Pflanzenwassers im Bereich zwischen 0,3 pCi/ml (Nachweisgrenze) und 14 pCi/ml.

Eigene Veröffentlichungen

- [1] L.A. König, M. Winter
Investigation of the Tritium Level in the Environment of the Karlsruhe Nuclear Research Center, 3. IRPA-Kongreß, Washington, 9.-14. Sept. 1973

[⁻3] M. Winter, H. Schüler:

Abwasserüberwachung, Beitrag zum Jahresbericht 1972 der ASS,
KFK 1818 (Mai 1973), Herausgeber: H. Kiefer, W. Koelzer

[⁻4] L.A. König, J. Amann:

Abluftüberwachung, Beitrag zum Jahresbericht 1972 der ASS,
KFK 1818 (Mai 1973), Herausgeber: H. Kiefer, W. Koelzer

[⁻6] L.A. König, M. Winter, H. Schüler:

Messung der Tritiumkontamination der Umwelt, Beitrag zum 2. Halb-
jahresbericht 2/1972 des PNS, KFK 1787, (Mai 1973)

Zitierte Veröffentlichungen:

[⁻2] L.A. König:

Umweltbelastung durch Tritium, KFK 1560 (Februar 1972)

[⁻5] L.A. König, M. Winter:

Über die Tritiumkontamination der Umwelt, Symposium Radioecology
Applied to the Protection of Man and his Environment, Rom,
7. - 10. Sept. 1971, EUR 4800 d-f-i-e

[⁻7] W. Hild:

Beseitigung tritiumhaltiger Abwässer durch Einpressen in poröse
Schichten des tieferen Untergrundes, Beitrag zum 1. Halbjahres-
bericht 1/1972 des PNS, KFK 1702 (Dez. 1972)

4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen

(R. v. Ammon, IHCH; C.H. Leichsenring, PNS-PL; H. Witte, D. Lindenberg, NUKEM)

Zum Schutz der Umgebung zukünftiger großer Wiederaufarbeitungsanlagen ist die Abtrennung der radioaktiven Spalteredelgase erforderlich. Auch für die großen Kernkraftwerke ist eine Abtrennanlage für Spalteredelgase als Alternative zu den Verzögerungstrecken einsetzbar. Von den bekannten Abtrennungsverfahren erscheinen als technisch besonders günstig:

1. die Absorption der Edelgase in Freon (Frigen)
2. die Edelgasabscheidung durch Tieftemperatur-Rektifikation

Es wurde daher mit 2 Projektstudien begonnen, um eine bessere Grundlage zur Auswahl des geeigneteren Verfahrens zu finden.

Es ist geplant, eine Versuchsanlage zunächst in einer Technikumshalle kalt zu testen, und später an der Wiederaufarbeitungsanlage WAK zu erproben. Daher werden für den Bau der Anlage die Vorschriften, wie sie für die WAK gelten, berücksichtigt. Diese Vorschriften bestehen aus 5 Teilerrichtungsgenehmigungen sowie aus den allgemeinen Richtlinien und Spezifikationen der WAK. Außerdem werden vom technischen Überwachungsverein (TÜV) vorgeprüfte Einzelspezifikationen (technische Liefer- und Abnahmebedingungen) bei der Kostenermittlung und Ausschreibung zugrunde gelegt.

Im Berichtszeitraum wurde mit der Projektstudie für eine Versuchsanlage zur Abtrennung der Spalteredelgase durch Absorption in halogenierten Kohlenwasserstoffen (Freon bzw. Frigen) in Zusammenarbeit mit der Firma NUKEM begonnen.

Auslegung der Versuchsanlage

Bei der geplanten großen Wiederaufarbeitungsanlage (Durchsatz 5 t/d) wird mit einem Abgasvolumenstrom von $170 \text{ m}^3/\text{h}$ aus der Auflöserstufe der

Anlage gerechnet. Genaue Werte über die Abgasmenge der WAK an dieser Stelle konnten bisher noch nicht gemessen werden. Mit einer Kapazität von $50 \text{ Nm}^3/\text{h}$ hat die Versuchsanlage jedoch die richtige Größenordnung. Die Hauptkomponenten des Freonprozesses sind 3 Füllkörperkolonnen: die Absorptions-, die Fraktionier- und die Strip-Kolonne. Bei einem Nenndurchsatz von $50 \text{ Nm}^3/\text{h}$ und einem Krypton-Gehalt von 10^2 bis 10^4 ppm muß die Absorptionskolonne mit $150 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ausgelegt werden, um einem entsprechenden Recycling-Strom gerecht zu werden.

Als Randbedingungen für die 3 Kolonnen gelten:

| | |
|--------------------|---|
| Packungshöhe | : $\leq 3000 \text{ mm}$ |
| Packung | : "Multifil" (Vereinigte Füllkörper-Fabriken) |
| Lösungsmittelmenge | : 0,2 bis 0,4 l/s |

In Anlehnung an die Berechnungen und Meßergebnisse der ORGDP-Anlage von Merriman [1] wurden für die Kolonnen weiterhin folgende Daten ermittelt:

Absorptionskolonne

| | |
|----------------------|------------------------|
| Kolonnendurchmesser: | 150 mm |
| Druck | : 30 at |
| Temperatur | : -30°C |
| Stufenhöhe | : 200 mm |
| theor. Stufenzahl | : 9 |

Fraktionierkolonne

| | |
|----------------------|-----------------------|
| Kolonnendurchmesser: | 150 mm |
| Druck | : 3 at |
| Temperatur | : -5°C |
| Stufenhöhe | : 350 mm |
| theor. Stufenzahl | : 9 |

Strip-Kolonne

| | |
|----------------------|-------------------------|
| Kolonnendurchmesser: | 150 mm |
| Druck | : 1,7 at |
| Temperatur | : $-1,8^\circ \text{C}$ |
| Stufenhöhe | : 350 mm |
| theor. Stufenzahl | : 8 |

Beschreibung der Anlage (Abb. 4140-1)

Das vorgereinigte Abgas wird zunächst dem Verdichter (V 401) zugeführt und hier auf dem Betriebsdruck der Absorptionskolonne verdichtet. Dem Kompressor ist ein Pufferbehälter (B 403) nachgeschaltet, der die Druckregelung stabilisiert. Der Kaltwasserkühler (W 415) nach dem Pufferbehälter hat die Aufgabe, die Kompressionswärme abzuführen und das Gas bis zu einem Taupunkt von 9°C von Feuchtigkeit zu befreien. Das abgekühlte Gas wird dann durch die wechselweise auf Betrieb und Regenerierung geschalteten zwei Silicagel-Trockner (T 401, 402) geleitet. Anschließend wird das getrocknete Gas mengengeregelt und durch einen Wärmeaustauscher (W 401) geleitet, in dem es im Gegenstrom mit dem kalten aus dem Absorber austretenden Gas vorgekühlt wird. Vor Eintritt in die Absorberkolonne (K 401) wird das Gas auf Betriebstemperatur abgekühlt (W 402). Das Gas tritt in den Sumpf der Absorberkolonne ein und dem aufsteigenden Gas rieselt über Füllkörper das am Kolonnenkopf eingeleitete Absorptionsmittel Frigen 12 entgegen.

Dabei wird Krypton mit einem Faktor von 10^3 aus dem Rohgasstrom abgetrennt. Ungefähr ein Fünftel der Menge des Trägergases wird ebenfalls absorbiert. Die nicht absorbierten Gase werden am Kolonnenkopf abgezogen und an die Atmosphäre abgegeben. Das am Kopf eingeleitete Absorptionsmittel Frigen 12 wird über eine Dosierpumpe (P 401) aus dem Lagertank (B 406) gesaugt und auf Absorberdruck gebracht. Das sich im Sumpf sammelnde beladene Absorptionsmittel wird der Fraktionierkolonne (K 402) nach Erwärmung (W 403 und W 405) auf die Betriebstemperatur von -5°C zugeleitet.

Im Fraktionator werden die absorbierten Trägergase (N_2 , O_2) im Gegenstrom mit dem in B 407 erzeugten Absorptionsmitteldampf angetrieben. Die am Kolonnenkopf austretenden Gase und Dämpfe werden über Kondensatoren (W 407, W 408) geleitet, in denen das Absorptionsmittel Frigen rückkondensiert wird, um dann über den Flash-Apparat (B 404) dem Fraktionator wieder zugeführt zu werden, während die angetriebenen noch Edelgas enthaltenden Gase auf die Verdichtersaugseite zurückgeleitet werden, wo sie sich mit dem Rohgasstrom vermischen (Recycling).

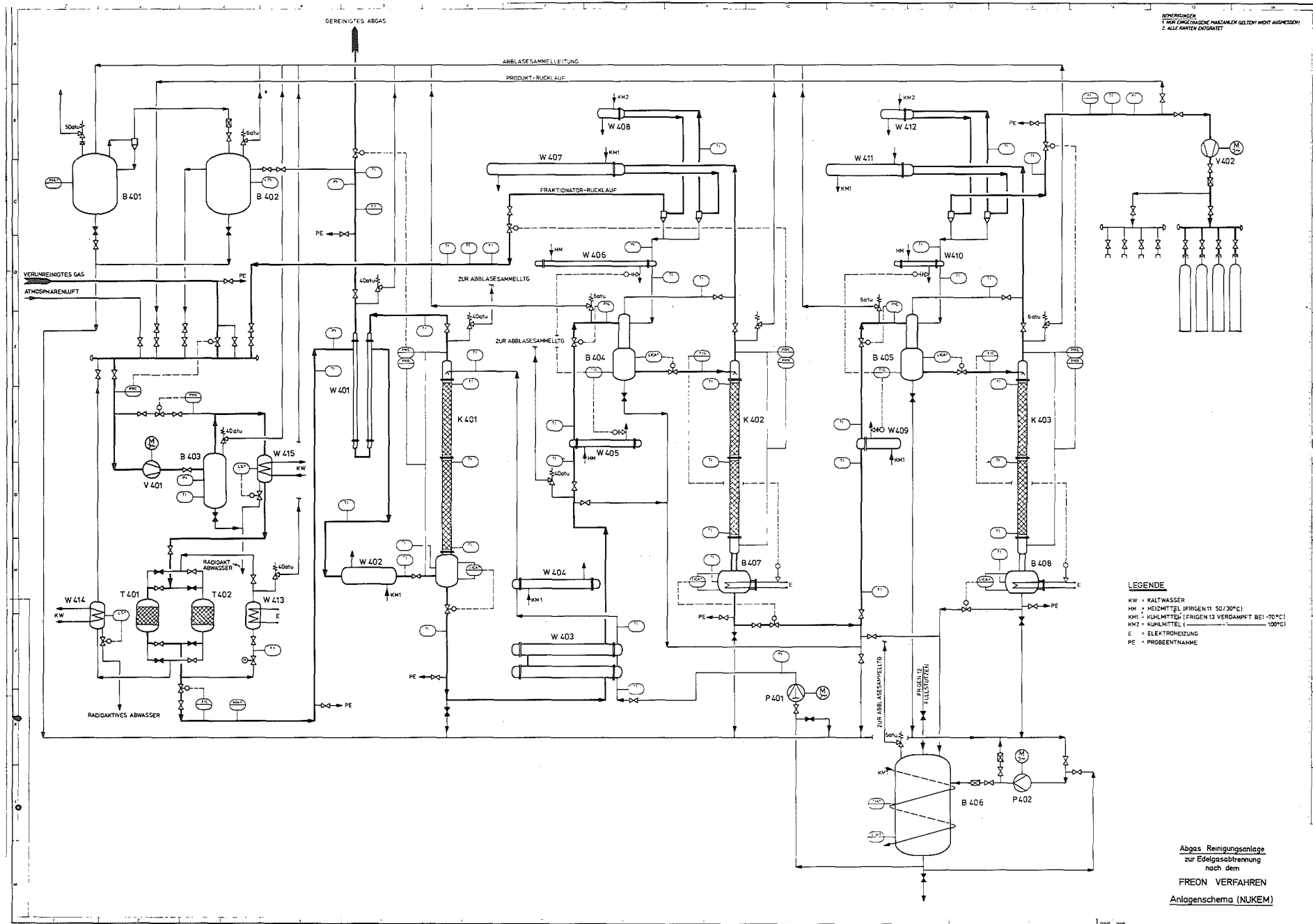
Aus dem beheizten Behälter (B 407) am Fuß der Fraktionierkolonne gelangt das Absorptionsmittel über den Kühler (W 409) in den Kopf der Strip-Kolonne. Im Prinzip der Fraktionierkolonne identisch, werden hier die Edelgaskonzentrate freigesetzt. Mitgeführte Frigendämpfe werden weitgehend in zwei Kondensatoren (W 411, W 412) abgeschieden und dem Flash-Apparat (B 405) zugeführt, aus dem das beladene Frigen in die Strip-Kolonne eingespeist wird.

Das Gaskonzentrat wird schließlich mit einem Verdichter (V 402) auf Druckgasflaschen abgefüllt. Das Absorptionsmittel hingegen gelangt in den Vorratstank (B 406), aus dem es neu in den Kreislauf eingespeist wird.

Zitierte Literatur:

[1] J.R. Merriman, M.J. Stephenson et.al.

Application of the Selective Absorption Process to the
Removal of Krypton and Xenon from Reactor Off-Gas
USAEC Rep - K - L 6288 (1970)



ABGASREINIGUNG
 TÜRKEIMUNGSSCHREIBUNG GELTEN NICHT ANGESICHT
 2. ALLE KÄHLEN ENTZAHLT

LEGENDE
 KW = KALTWASSER
 HM = HEIZMITTEL (FRIGEN 11 50/30°C)
 KM = KÜHLMITTEL (FRIGEN 13 VERDAMPFT BEI -70°C)
 KN = KÜHLMITTEL (FRIGEN 13 VERDAMPFT BEI -100°C)
 E = ELEKTROHEIZUNG
 PE = PROBENTAHME

Abgas Reinigungsanlage
 zur Edelgasabtrennung
 nach dem
 FREON VERFAHREN
 Anlagenschema (NUKEM)

4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

4151 Untersuchungen zur thermischen Belastung des Rheins
(G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, IASR/RPU)

1. Problemstellung

Gegenwärtig befinden sich am Rhein - speziell am Oberrhein - eine erhebliche Anzahl von Kraftwerken im Bau bzw. in Planung. Diese deutliche Massierung im Oberrheintalgraben hat seine Ursache darin, daß sich hier die nahezu letzten freien Kühlwasserreserven der Bundesrepublik und Frankreichs befinden. Zumindest auf deutscher Seite wird bereits jetzt fest mit der Auflage gerechnet, Kühltürme zu errichten. Diese dienen allerdings nicht dazu, wie vielfach angenommen wird, an die Stelle der Frischwasserkühlung zu treten, sondern werden vielmehr prophylaktisch gefordert, um nicht in Kühlwasser-Engpaßsituationen vor die Alternative "Stromabschaltung oder Überschreitung der vorgeschriebenen Aufheizspanne" gestellt zu sein. Das bedeutet, ein Kraftwerk am Rhein wird die meiste Zeit im kostengünstigen Frischwasserbetrieb fahren und nur im Bedarfsfall den aufwendigeren Kühlturmbetrieb teilweise oder ganz zuschalten.

Die Auslegung des "kalten Endes" eines in Planung befindlichen Kraftwerkes ist jedoch ganz erheblich von der voraussichtlichen Zuschaltdauer und dem Zuschaltgrad der Kühltürme abhängig - d.h. hier liegt ein wirtschaftliches Optimierungsproblem zwischen Investitions- und Betriebsaufwand vor. Bei den Energieerzeugern hat sich dafür das Stichwort Kühl-Regie eingebürgert. Die Grundlagen zur möglichst genauen Erfassung der lokalen Wärmebilanzsituation, die statistischen Daten und Analysen sowie die dynamischen Rechenmodelle sind von entscheidender Bedeutung. Rechenmodelle befinden sich zur Zeit in Entwicklung bei der Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA), die bereits als ersten Ansatz für verschiedene Referenzfälle (stationäres Modell) den sogenannten Wärmelastplan Rhein entwickelte. Dieser mußte wegen des Fehlens hinreichend bekannter Eingangsdaten und Austauschkoefizienten durch Anpassen dieser Größen unter Beachtung vernünftig und konservativ angenommener Grenzen an gemessene Temperaturverläufe gewonnen werden.

Da einige dieser in Grenzen angepaßten Parameter temperaturabhängig, andere dagegen temperaturunabhängig sind, enthält dieses Verfahren wachsende Unsicherheiten bei Extrapolation nach höheren Temperaturniveaus (thermisch stark belasteter Fall). Es besteht der Wunsch, die verbliebenen Unsicherheiten der Modellrechnungen so weit wie möglich durch Verwendung direkter, lokal gewonnener Meßergebnisse einzuengen, insbesondere auch im Hinblick auf die Ausnutzung von regionalen und zeitlichen Schwankungsbreiten, die bislang durch die Verwendung von Mittelwerten und durch Beschränkung auf Referenzfälle unterdrückt werden mußten.

Ein weiteres Problem stellt das Verzweignungsverhältnis der Umweltbelastung durch Wasserdampfemission bzw. -immission bei Kühlturm- und/oder Durchflußkühlung dar, da im Kühlturm der Abwärmeabbau durch Strahlung entfällt und der Konvektionsanteil gegenüber der Durchflußkühlung meist geringer ist. Bei Betrachtungen zu den Auswirkungen der Punktquelle "Naßkühlturm" sollten aber Daten über die Auswirkungen der Linienquelle "thermisch nicht belasteter und belasteter Fluß" vorliegen.

2. Ziele des Arbeitsprogramms

Vor diesem Hintergrund wurden folgende Punkte als Ziele des Vorhabens formuliert:

- a) Messung der Wärme- und Wasserdampfemission aus dem Rhein (z.B. auch Nebelbildung)
 - unter den jetzigen, unbelasteten Bedingungen an repräsentativer Stelle des Oberrheintales als Funktion jahreszeitlicher meteorologischer Bedingungen
 - unter den zukünftigen belasteten Bedingungen in der durchmischten Zone der Abwärmeeinleitung des Kernkraftwerks Philippsburg auch als Funktion dessen Lastbetriebes

- b) Beitrag zur Kühl-Regie von Kraftwerken
 - Messung und Korrelation von Abwärmeabbauparametern als Beitrag zu einem optimal verzweigten Kühlturm-Durchfluß-Kühlbetrieb von Kraftwerken im Oberrheintal

- Mitarbeit an der Entwicklung eines dynamischen Rechenmodells zur Kühl-Regie von Kraftwerken im Oberrheintal (Zusammenarbeit mit EVU's)

c) Beitrag zur Verbesserung der Daten für das Gesamt-Wärmebelastungsmodell des Rheins (Wärmelastplan) sowie zur Kraftwerks-Standortdichte.

d) Beitrag zu den Grundlagen des Wärmeaustausches Wasser-Atmosphäre für schnellfließende Oberflächengewässer.

3. Auswahl der Meßverfahren

Die Ziele des Arbeitsprogramms bedingen ein Meßverfahren, von dem erwartet werden kann, daß es bisherige Unsicherheiten bei der Erfassung des latenten und des fühlbaren Wärmestromes (Verdunstung und Konvektion) unterbietet und daß es im Dauerbetrieb angewendet werden kann. Deshalb wurde entschieden, die Turbulenz-Korrelationsmethode einzusetzen, bei der von der anschaulichen Vorstellung ausgegangen wird, daß jeder Transport von Feuchte oder fühlbarer Wärme durch statistisch schwankende Vertikalkomponenten des Windes getragen wird. Dabei sind je nach Richtung des Transports aufwärts gerichtete Komponenten systematisch feuchter bzw. wärmer als abwärtsgerichtete, bzw. umgekehrt. Die Flüsse der latenten Wärme ϕ_L (Verdunstung) bzw. der fühlbaren Wärme ϕ_F (Konvektion) berechnen sich zu

$$\phi_L = \langle W_Z \cdot q' \rangle \cdot L \quad \text{bzw.} \quad \phi_F = \langle W_Z \cdot \theta' \rangle \cdot c_p \rho$$

mit W_Z = Momentanwert der Vertikalgeschwindigkeit des Windes

q'/θ' = Abweichung des Momentan- vom Mittelwert der Feuchte/Temperatur

L = Verdunstungswärme

c_p = spez. Wärme der Luft

ρ = Dichte der Luft

$\langle \rangle$ = zeitliche Mittelwertbildung

Bei dieser Methode müssen allerdings die neben den Kalibrierfehlern der Sonden (einige Prozent) bei Verwendung herkömmlicher Meßgeräte auftretenden

systematischen Fehler vermieden werden. Diese sind dadurch bedingt, daß "hochfrequente" Anteile des Turbulenzspektrums, die je nach Wetterlage mehr oder weniger zum Wärmetransport beitragen, von diesen Geräten nicht mehr aufgelöst werden. Deshalb kam der Turbulenz-Korrelationsmethode, obwohl sie als einzige weitgehend voraussetzungsfrei ist, noch bis vor einigen Jahren wenig praktische Bedeutung zu. Zwischenzeitlich wurden jedoch Ultraschall-Anemometer-Thermometer entwickelt, mit deren Hilfe nachgewiesen wurde, daß bei zeitlicher Auflösung der Momentanwerte von vertikaler Windgeschwindigkeit und Temperatur bis zu 10 Hz jeweils die gesamten Turbulenzspektren bis auf "hochfrequente" Anteile mit weniger als 1 % der maximalen spektralen Dichten erfaßt werden. Gleichzeitig lösen diese Geräte das Problem, ungestört Wind und Temperatur zur gleichen Zeit am gleichen Ort zu messen sowie die Vertikal-komponente streng zu separieren. Bei der Ermittlung des latenten Wärmestromes verbleiben noch gewisse Schwierigkeiten, mit hinreichend geringer Trägheit die Feuchtemessungen ohne Störung der Windmessung am gleichen Ort im Dauerbetrieb durchzuführen. Es besteht Aussicht, durch Verwendung von Miniatur-Thermistoren nach dem Psychrometerprinzip eine Auflösung bis zu 1 Hz verwirklichen zu können, was je nach Wetterlage und Abstand von der Grenzschicht (hier: Wasseroberfläche) eine Erfassung von 90 bis nahe 100 % des Flusses der latenten Wärme entspricht.

Da die Turbulenz-Korrelationsmethode auf dem korrelierten Verhalten der Schwankungen von Windgeschwindigkeit, Feuchte und Temperatur beruht, muß auch die Produktbildung der bereinigten und gegebenenfalls korrigierten Momentanwerte vorgenommen werden. Dies bedingt entweder große Datenspeicher oder sofortige Weiterverarbeitung an Ort und Stelle. Der hierfür erforderliche Aufwand sowie die junge Verfügbarkeit kommerzieller Sonden sind Gründe, weshalb diese Methode bislang nicht für ähnliche Messungen in Dauerbetrieb und speziell nicht über Fließgewässern Verwendung fand; es sind jedoch sowohl Erfahrungen aus Langzeitmessungen von Turbulenzspektren sowie Kurzzeitmessungen des Wärmetransports über Land, Seen und Meer bekannt.

Bisherige Messungen an Fließgewässern und Berechnungen des Wärmestroms beruhen im wesentlichen auf der konventionellen Gradientenmethode, die davon ausgeht, daß jeder Transport dem Gradienten proportional ist. Bei Anwendung dieser Methode ist man allerdings gezwungen, Annahmen bezüglich

der Austauschkoeffizienten zu treffen, so daß sich allein aus den Ansätzen verschiedener Autoren zwischen 30 und 40% Unsicherheit ergeben. Speziell im Fall schnellfließender Oberflächengewässer tritt noch der unbekannte Einfluß des sog. Mitführungswindes hinzu, so daß infolge Streuung zwischen direkt gemessenen und aus Gradienten- oder Klimamessungen nach verschiedenen Formeln berechneten Temperaturverläufen keine befriedigende Auswahl zwischen den bekannten Ansätzen möglich ist. So gibt der Wärmelastplan 17 aus der Gradientenmethode abgeleitete Verdunstungsformeln an, die auf den Einzelfall angewendet bis zu einem Faktor 5 unterschiedliche Ergebnisse liefern.

Grundsätzlich werden bei diesen Formeln die unabhängig vom Grad der durch theoretische Ableitungen oder durch Analogiebetrachtungen gewonnenen Näherung freibleibenden Parameter durch Anpassung der berechneten Ergebnisse an direkte Beobachtungen von Temperaturverlauf (Flüsse, Meer) und Wasserführung (See) bestimmt. Ein solcher Vergleich ist nur über längere Zeiträume und unter günstigen Bedingungen möglich, so daß nicht verifiziert werden kann, wie gut jeweils der Einfluß der einzelnen, in der Regel kurz anhaltenden, Wetterlage beschrieben wird. Da die Häufigkeit und die Dauer der einzelnen Wetterlagen aber regional unterschiedlich ist, sind die so ermittelten Parameter nur bedingt übertragbar, obwohl für die Berechnung von langfristigen Bilanzen die Unterschiede weitaus geringer ausfallen als im Fall einer speziellen Wetterlage. Im Zuge steigender thermischer Auslastung des Rheins kommt jedoch auch der guten Beschreibung der Bilanzen im lokalen und im zeitlichen Einzelfall steigende Bedeutung zu, so im Hinblick auf eine optimale Verteilung der Last und der freien Aufheizspanne zwischen Kraftwerken an verschiedenen Standorten mit unterschiedlicher Wetterlage. Diese Beschreibung soll ein zukünftiges Meßstellennetz leisten, im Minimalfall bestehend aus den Klimastationen, die die Kraftwerke in ihrem eigenen Interesse einrichten werden und zum Teil auch schon eingerichtet haben. Vermutlich werden auch diese Meßstellen sich der weniger aufwendigen Gradientenmethode bedienen. Durch Vergleich der Turbulenz-Korrelationsmethode mit der zusätzlich instrumentierten Gradientenmethode wird es im Rahmen dieses Meßprogramms möglich sein, bisherige Rechnungen zu überprüfen und die Ergebnisse künftiger Meßstellen an eine weitgehend von Annahmen freie Meßmethode anzuschließen.

4. Meßtechnik

Im einzelnen werden folgende Größen gemessen:

- A Strahlungsbilanz über der Rheinoberfläche
- B latenter Wärmestrom über der Rheinoberfläche, gewonnen aus vertikaler Windgeschwindigkeit und schneller Feuchtemessung am gleichen Ort
- C fühlbarer Wärmestrom über der Rheinoberfläche, gewonnen aus vertikaler Windgeschwindigkeit und schneller Temperaturmessung am gleichen Ort
- D Temperaturgradient aus 3 Ebenen über dem Wasser
- E Feuchtegradient aus 3 Ebenen über dem Wasser
- F Windgeschwindigkeitsgradient aus 3 Ebenen über dem Wasser
- G Windrichtung in 2 Höhen über dem Wasser
- H Wassertemperatur (redundant zur Erfassung möglicher schwankender Kühlwasserfahnen)
- I Oberflächenströmungsgeschwindigkeit des Rheins
- J Oberflächenrauigkeit des Rheines, da dieser Größe ein Einfluß auf die Austauschkoefizienten zugeschrieben wird, sie jedoch zumeist zur Anpassung Anwendung findet
- K Pegelstand zur Ermittlung der Abflußgeschwindigkeit
- L Nebel bzw. Sichtweite
- M Luftdruck

Am Ufer werden über der Baumkrone nochmals Wind, Temperatur und Feuchte gemessen, um horizontale Gradienten zu erfassen, außerdem die Niederschlagsintensität, um Hinweise für systembedingte Fehlmessungen zu erhalten.

Mit Ausnahme der Sonden zu den Größen H bis M befinden sich alle Geräte derzeit in einem Eich- und Erprobungsprogramm, um späterhin systematische Fehler ausschließen oder korrigieren zu können, über Herstellerangaben hinaus den Ansprech- und Streubereich zu kennen sowie den Wartungsbetrieb optimal planen zu können.

Die von den Sonden im und über dem Rhein erhaltenen Signale werden dort zu einer ca. 70 m entfernt dicht am Ufer stehenden Meßhütte durch ein

ANSICHT VON LAND

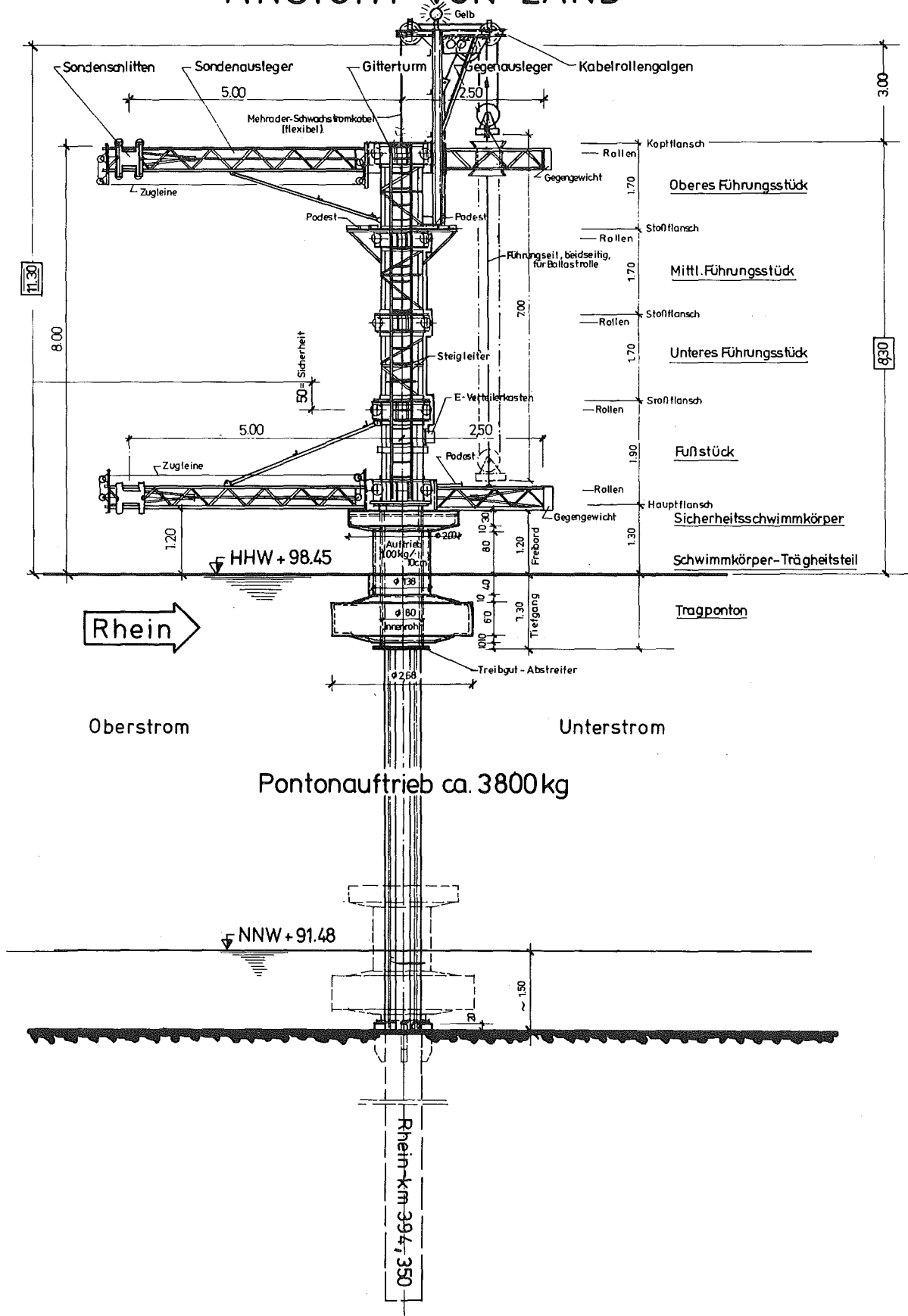


Abb. 4151-1: Ansicht des Sondenträgers von Land

Kabel weitergeleitet. Die Meßwerte werden dort digitalisiert. In einem Prozeßrechner werden die Daten auf Störungen untersucht, korrigiert und dem Rechenprogramm zugeführt, bevor von den Momentan- auf Mittelwerte übergegangen wird. Neben der Ausgabe der Mittelwerte auf Band werden auch Steuerbefehle an die Aufhängung einiger Sonden gegeben, um deren optimale Orientierung zur Windrichtung definiert einzustellen.

Die Montage der Sonden über dem Wasser erfolgt an zwei horizontalen Auslegern, die an einem Gittermast montiert sind (Abb. 4151-1). Der Gittermast schwimmt auf einem dem Wellengang wenig folgenden Ponton und wird von einem in das Flußbett gerammten Dalben senkrecht und nahezu spielfrei gefährt. Durch diese Konstruktion wird erreicht, daß sich die zwei unteren und die obere Meßebeine in stets gleichem Abstand von der mittleren Wasseroberfläche befinden, die vorgenommenen horizontalen und vertikalen Justierungen erhalten bleiben und nennenswerte Relativbewegungen zu einer ruhend gedachten Umgebung selten eintreten.

Die ergänzenden Sonden am Ufer werden an einem einfachen Gittermast 2 m über der Baumkrone montiert. (35 m über dem Boden)

5. Standort

Der mit der zuständigen Genehmigungsbehörde, dem Wasser- und Schifffahrtsamt Mannheim, vereinbarte Standort ist der Strom-km 394,35 (Nähe Rheinhäusen), 60 Meter von der badischen Uferbaukante entfernt (Abb. 4151-2 und 4151-3).

Er ergab sich aus folgenden Anforderungen:
(jeweils in Reihenfolge der Prioritäten)

- a) Für die Umgebung der Meßstelle soll eine für das Oberrheintal typische Struktur vorherrschen: schmaler, dünner Baumbestand (Auwald), mittlere Entfernung und Ausdehnung von Altrheinflächen, mittlere Höhe der Uferböschung, mittlere Bebauungsdichte in nicht zu großer Nähe, nicht zu enge Strombiegung, keine zu große Abweichung von der Hauptstromachse.

Der letzte Unterpunkt ist hinreichend, die anderen sehr gut erfüllt.

- b) Der Standort soll unterhalb des KKW Philippsburg liegen; weit genug, um nicht über allzu inhomogen temperiertem Wasser zu messen, andererseits soll die Fließstrecke nicht zu lang sein, um bei Laständerungen genügend große Meßeffekte zu erzielen.

Während erst Standorte unterhalb Strom-km 405 mit über 15 km Fließstrecke wegen des letzten Unterpunktes nicht mehr in Betracht kommen, dürfte Homogenität nach ca. 5 km Fließstrecke mit einem Wechsel (Übergang von Links- und Rechtsbogen) dazwischen hinreichend eingetreten sein.

- c) Es soll möglichst entfernt von Ufereinflüssen und über repräsentativer, also starker Strömung nahe der Strommitte gemessen werden ohne Gefährdung durch die Schifffahrt.

Es ergab sich, daß diese Forderung bei Rhein-km 394,35 maximal erfüllt werden kann; eine Pontonbrücke der Bundeswehr ca. 150 m stromauf und in Kürze einzurichtende Buhnen gewährleisten zusätzlich zum Verlauf der dort gerade wechselnden Schifffahrtsrinne Schutz, so daß 60 m Abstand zur Uferbaukante bewilligt werden konnten; infolge des Wechsels befindet sich andererseits der Dalben in stets genügend tiefem Wasser (- 1,70 m bezogen auf Normal).

- d) Es sollen gute infrastrukturelle Voraussetzungen anzutreffen sein, wie Zufahrtsmöglichkeiten mit LKW, einfache Strom- und Telefonanschlußmöglichkeiten, Errichtungsmöglichkeit einer Hütte zur Aufnahme der Meßtechnik am Ufer bei kurzer Datenübertragungsleitung. Nähe einer Dienststelle zur nachbarlichen Überwachung gegen Zwischenfälle.

Diese Punkte sind alle, teilweise durch die nahen Einrichtungen der Bundeswehr, erfüllt.

- e) Es sollen keine Störfaktoren vorhanden sein, wie hohe Brückenbauwerke, große unbekannte Abwärme- und Abwassereinleitungen, Industrieabgase, vielbegangenes Erholungsgebiet, Sportboot- und Badebetrieb als Folge dicht besiedelten Geländes.

Auch diese Punkte sind, bis auf die Anwesenheit einer ca. 3 km stromabwärts gelegenen Raffinerie bei Speyer in nordwestlicher Richtung, erfüllt.

6. Stand der Tätigkeiten

Im Berichtszeitraum wurden folgende Tätigkeiten durchgeführt:

In Wechselwirkung mit dem Deutschen Wetterdienst und anderen Experten auf dem Gebiet der Meßtechnik wurde die Konzipierung der Meßgeräteausrüstung weitgehend abgeschlossen und die Grundausrüstung beschafft.

Die Konstruktion des Meßmastes sowie die Konzipierung der Ufereinrichtungen wurden abgeschlossen.

In Erörterung mit dem Wasser- und Schifffahrtsamt Mannheim wurde der Standort festgelegt und das Genehmigungsverfahren in Gesprächen mit zuständigen Behörden vorbereitet.

Die Konzeption der Meßwertverarbeitung an Ort und Stelle wurde abgeschlossen. Ein Eich- und Erprobungsprogramm der Sonden wurde entworfen und für die eingetroffenen Geräte aufgenommen.

In Eigenarbeit zu erstellende elektronische Bauelemente wurden entworfen und erprobt sowie Einzelheiten der Installation geplant.

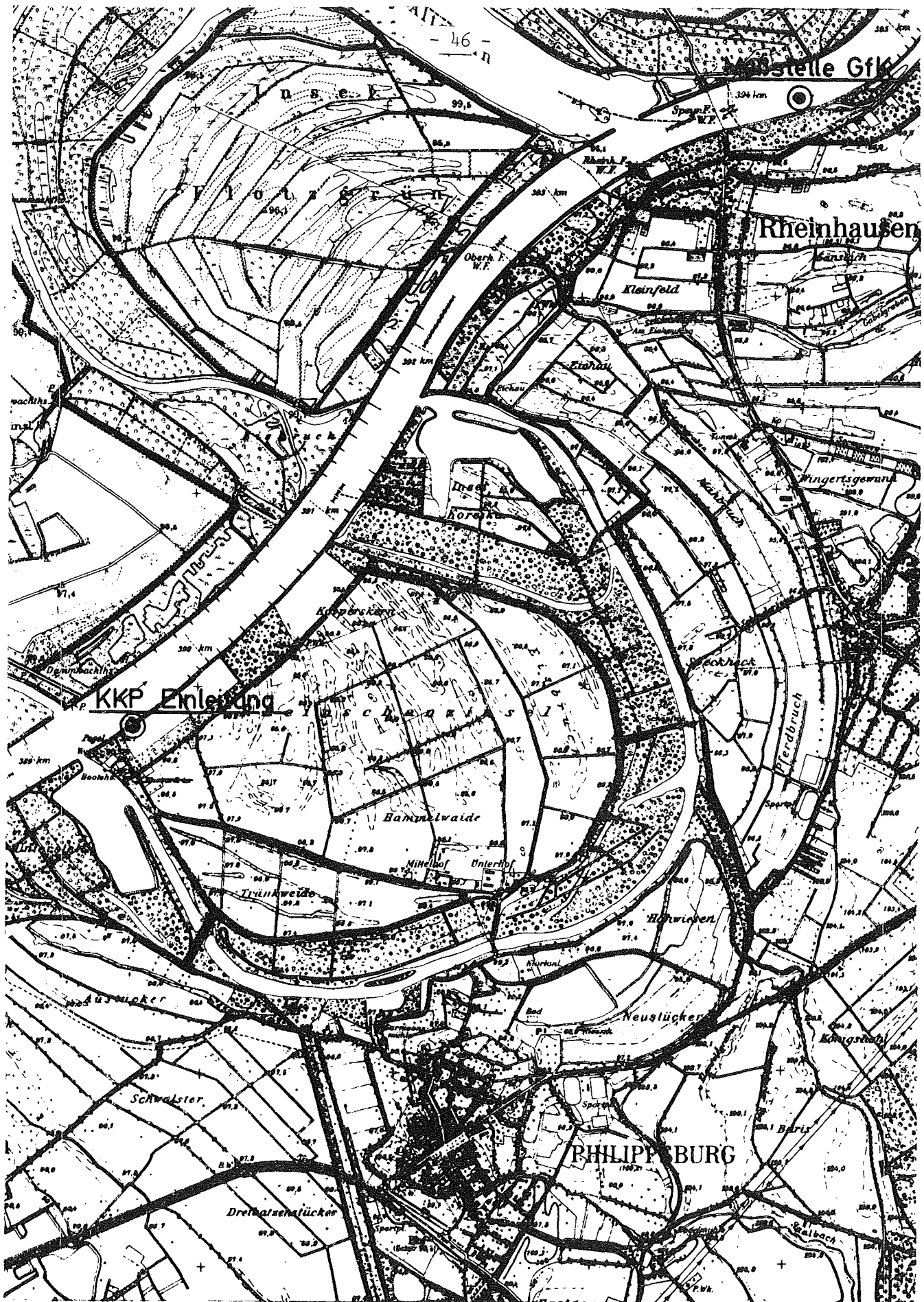
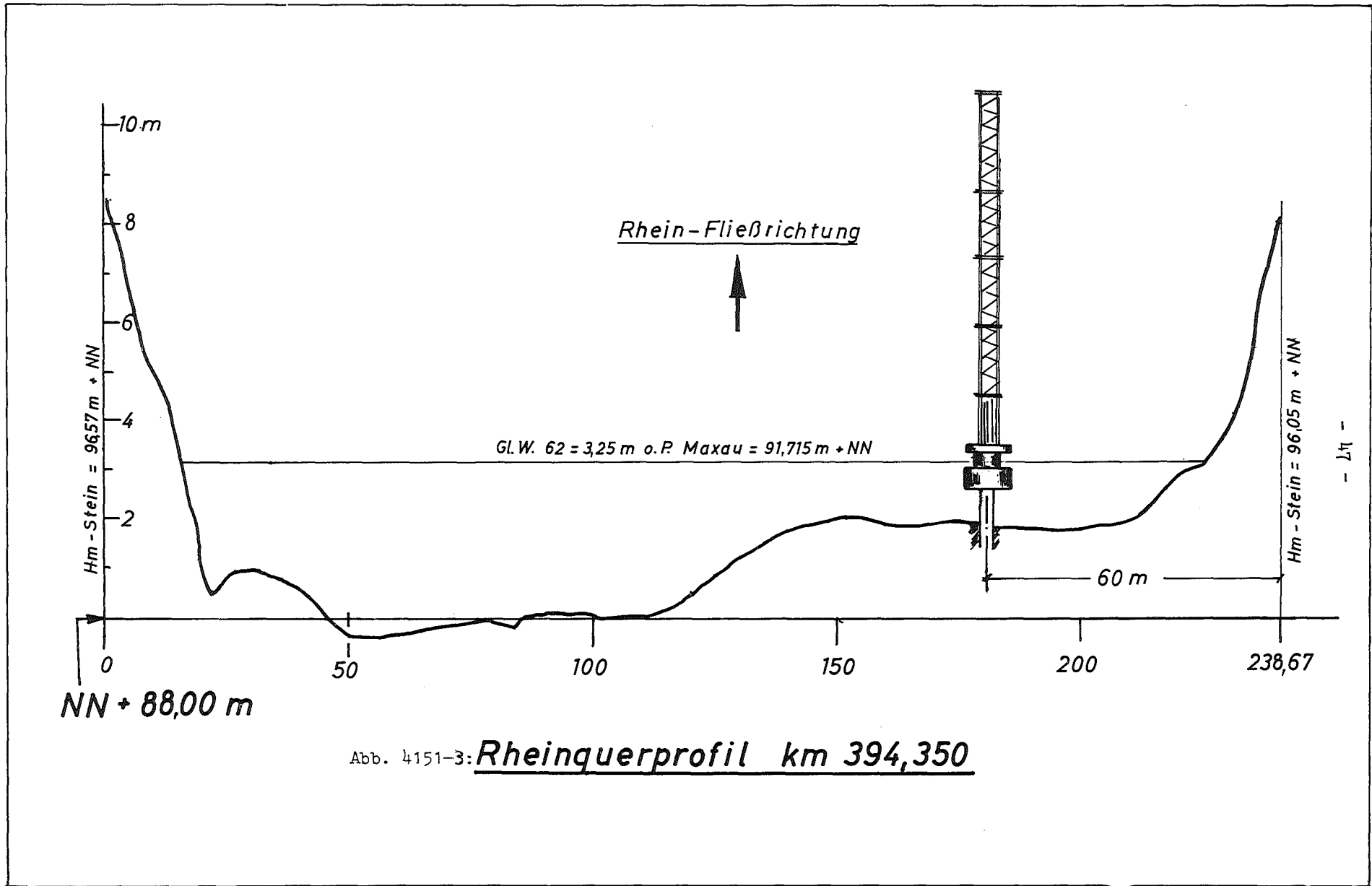


Abb. 4151-2: Lageplan der Meißelinsel im Rhein bei Strom-km 394,35.



4160 Sicherheitsprobleme bei der Endlagerung

4161 Beseitigung tritiumhaltiger Abwässer durch Einpressen in
poröse Schichten des tiefen Untergrundes
(W. Hild, ADB)

Im März 1973 wurde entschieden, daß für die wasserrechtliche Genehmigung, die neben der atomrechtlichen Genehmigung für die Durchführung des Versuchsprogramms benötigt wird, ein Offenlegungsverfahren notwendig ist. Zuständig für die Durchführung des wasserrechtlichen Verfahrens ist das Bergamt Baden-Württemberg.

Beim Bergamt Baden-Württemberg wurde inzwischen ein Antrag auf wasserrechtliche Genehmigung gemäß Wassergesetz vom 13.12.1962 gestellt. Vor Einleitung des wasserrechtlichen Verfahrens wird das Bergamt diesen Antrag zunächst gemeinsam mit der zuständigen oberen und unteren Wasserbehörde auf Vollständigkeit überprüfen, um eine möglichst reibungslose Abwicklung zu gewährleisten.

Die zur Durchführung der oberirdischen Herrichtungsmaßnahmen an der Bohrstelle benötigte Baugenehmigung soll gemeinsam mit der wasserrechtlichen Genehmigung erteilt werden. Dies gilt auch für die atomrechtliche Genehmigung, so daß unter der Voraussetzung einer zügigen Abwicklung des wasserrechtlichen Verfahrens frühestens gegen Ende 1973 mit der Durchführung der oberirdischen Herrichtung und dem Beginn der Versuchsversenkungen gerechnet werden kann.

4170 Langfristige radioökologische Belastung durch eine Anhäufung
von nuklearen Anlagen
(A. Bayer, F. Porz, INR)

Anhand veröffentlichter Erfahrungswerte von in Betrieb befindlichen Kernkraftwerken wurden die Freisetzungsraten von Jod-131 ($T_{1/2} = 8d$) zusammengestellt. Es zeigt sich, daß die jährlichen Abgaben mit der Abluft bei Normalbetrieb der Anlagen folgende Werte nicht überschreiten:

| | | | |
|--------------------|---|------|------|
| Druckwasserreaktor | : | 0,06 | Ci/a |
| Siedewasserreaktor | : | 0,3 | Ci/a |

Unter Zugrundelegung dieser Abgaberraten für Leistungsreaktoren und der angemeldeten Emissionen des KFK Karlsruhe (Stand 1972) wurden für das Gebiet des Oberrheins die etwa im Jahre 1985 im Fall von Milch-Eigenversorgung bei Kleinkindern zu erwartenden Schilddrüsendosen durch Jod-131 berechnet. (Abb. 4170-1). Konservativerweise wurde angenommen, daß das Jod in elementarer Form abgegeben wird. Die Standort- und Blockangaben wurden im wesentlichen dem "Wärmelastplan Rhein" entnommen. Berücksichtigt wurde die Belastung über Inhalation und Ingestion von Milch. Es zeigt sich, daß die vorgeschlagene Dosisgrenze von 90 mrem/a nicht überschritten wird.

Langfristig gewinnt das Isotop Jod-129 ($T_{1/2} = 1,7 \cdot 10^7$ a), das aufgrund seiner sehr langen Halbwertszeit sich in der Natur akkumuliert, an Bedeutung. Wiederaufarbeitungsanlagen stellen die größten Quellen dieses Isotops dar. Es wurde deshalb eine Abklingzeit - Dekontaminationsfaktor - Parameterstudie durchgeführt für eine 1500 t/a-Wiederaufarbeitungsanlage mit einem 100 m hohen Abluftkamin (angenommenes Produkt aus Windhäufigkeit und Ausbreitungsfaktor $p \cdot J = 5 \cdot 10^{-7}$ sec/m³) unter der Auflage, daß die Dosisgrenze von 90 mrem/a nicht überschritten werden darf (Abb. 4170-2). Hier wurde ebenfalls eine Abgabe von elementarem Jod angenommen.

Aufgrund von Energiebedarfsvorhersagen und des prognostizierten Einsatzes von Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen (angenommener Dekontaminationsfaktor $DF = 10^4$) wurden die Jod-129 Produktions- und Freisetzungsraten sowie die akkumulierten Mengen bis zum Jahr 2000

berechnet (Abb. 4170-3). Wie ersichtlich, liegt die bis zum Jahr 2000 freigesetzte Jod-129 Menge noch um den Faktor 10 unter der natürlichen Jod-129 Menge, die am Kreislauf teilnimmt. Zur Klärung der Frage, nach welchen Gesetzen das aus kerntechnischen Anlagen lokal freigesetzte Jod-129 in den globalen Kreislauf aufgenommen wird, bedarf es noch weiterer Untersuchungen.

Die Arbeiten werden fortgesetzt mit der Erstellung eines Rechenmodells, das die Berechnung der zukünftig zu erwartenden Strahlenbelastung der Bevölkerung einer Region (hier Oberrheingebiet) durch kerntechnische Anlagen im Normalbetrieb ermöglicht.

Eigene Veröffentlichungen und Berichte:

A. Bayer:

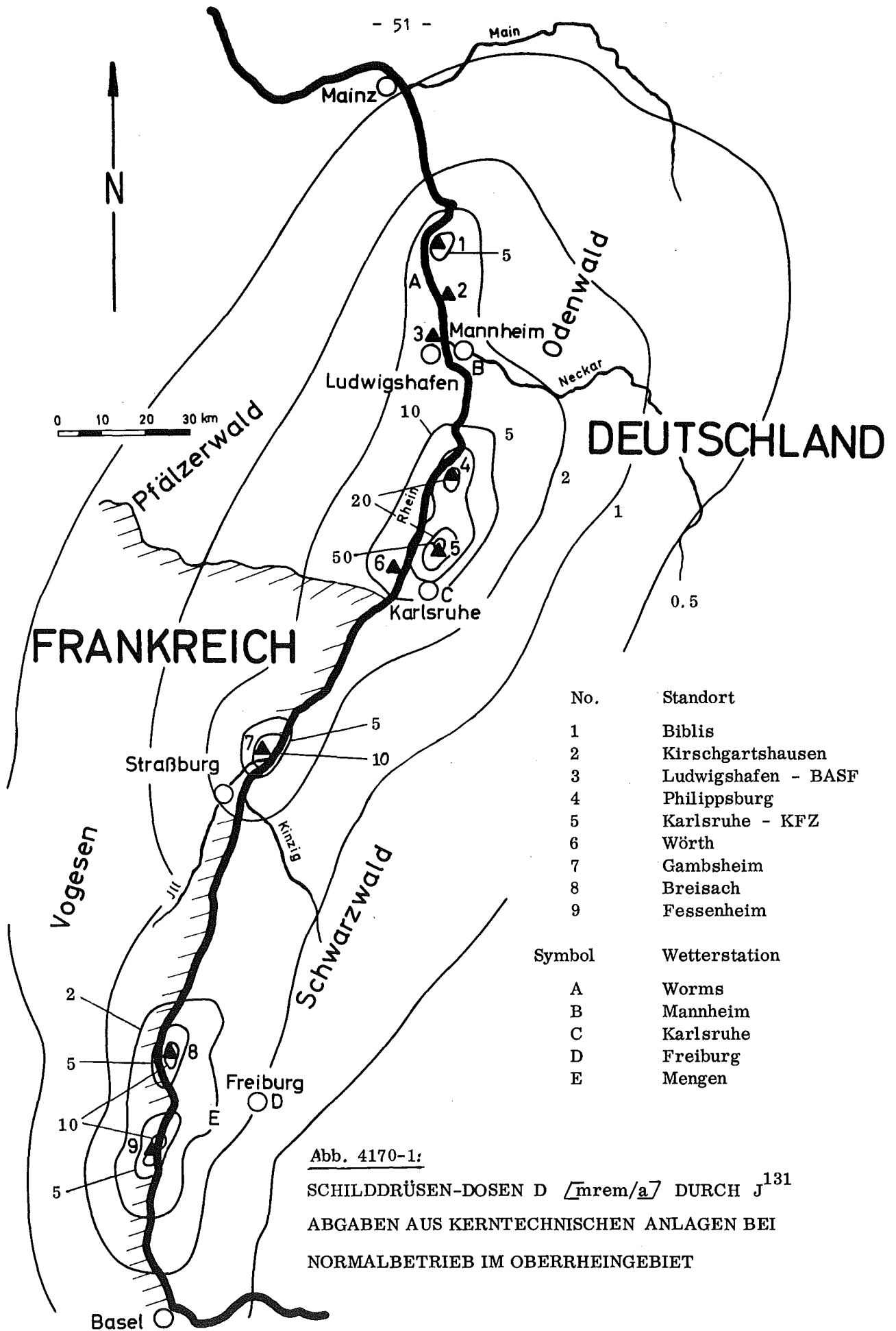
Dose and Risk Considerations for the Release of ^{131}I at Special Sites; IAEA Symposium on Principles and Standards of Reactor Safety, Jülich 1973, Paper IAEA/SM-169/8

F. Porz:

Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Jodisotopen durch Reaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000; unveröffentlicher Bericht

A. Bayer:

ORNL-TR 2629, Übersetzung von KFK 1582 (1972)



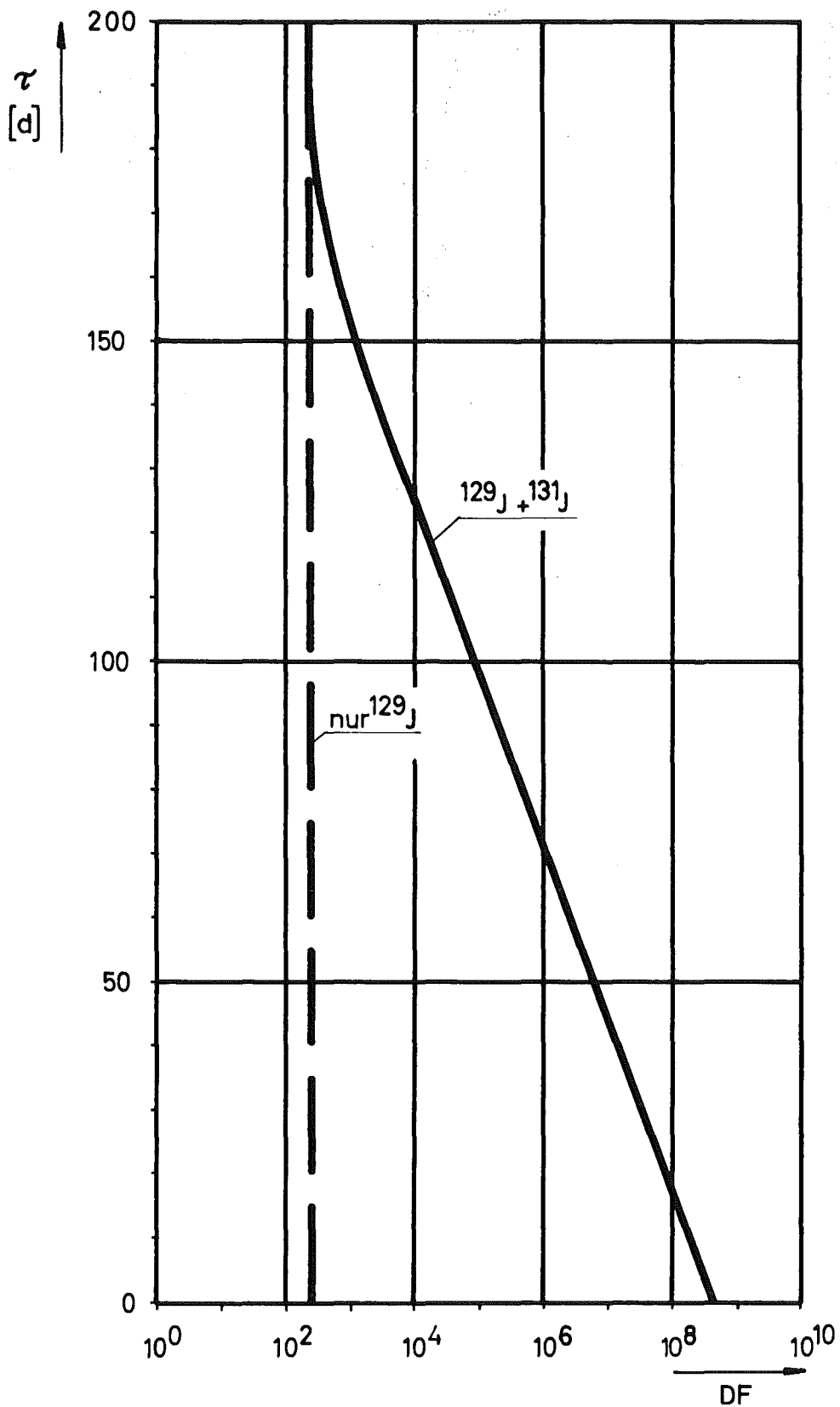


Abb. 4170-2:
ERFORDERLICHE ABKLINGZEITEN BEI DER AUFARBEITUNG VON
1500 t/a BRENNSTOFF BEI VERSCHIEDENEN DEKONTAMINATIONS-
FAKTOREN DF

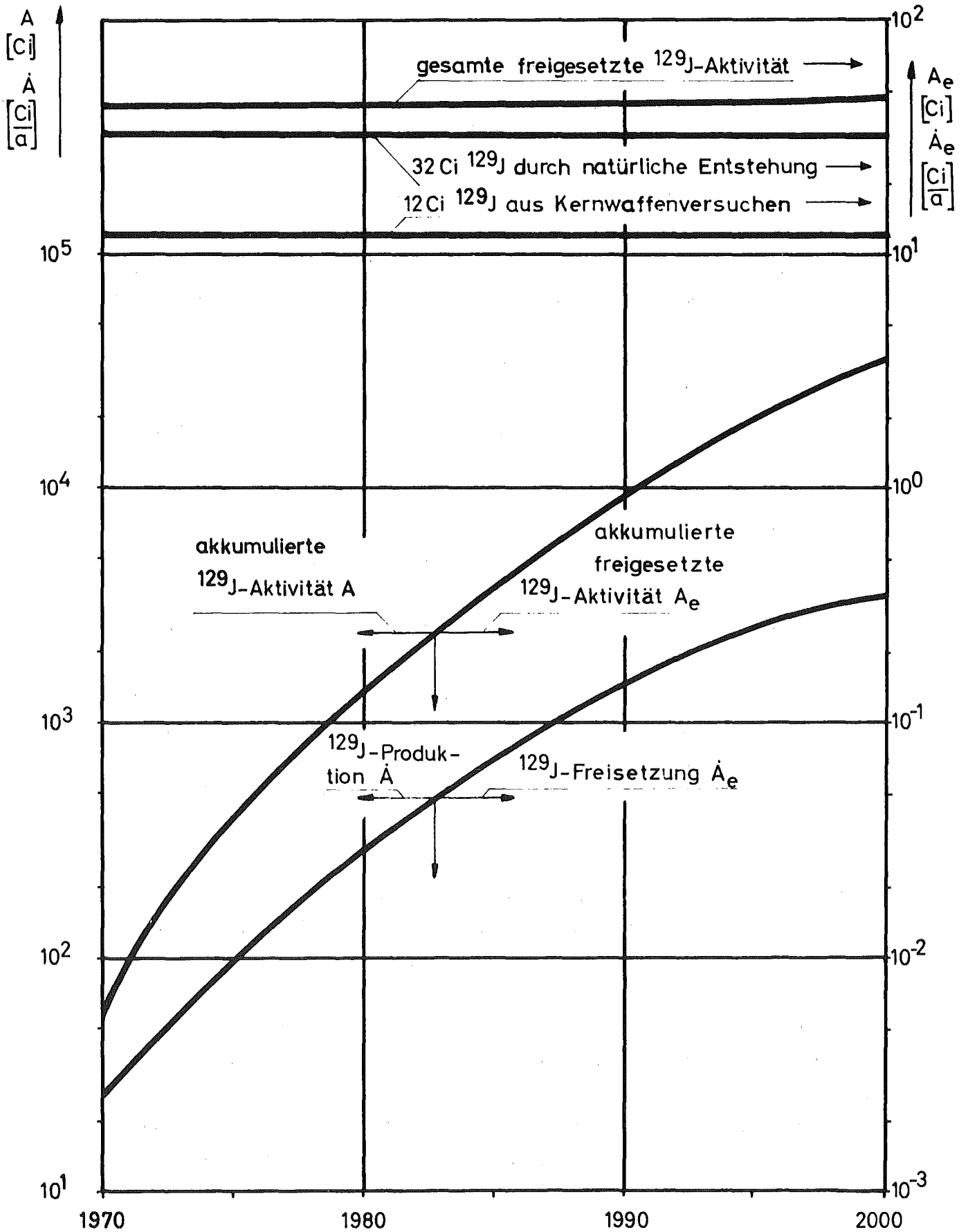


Abb. 4170-3:
 ^{129}J -PRODUKTIONS-UND FREISETZUNGSRATE SOWIE AKKUMULIERTE PRODUZIERTE UND FREISETZTE ^{129}J -AKTIVITÄT IN DER WELT BEI EINEM DEKONTAMINATIONSFAKTOR $DF=10^4$

- 4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN
- 4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen
- 4212 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen
- 4212.1 Dynamische Beanspruchungen durch Druckpulsationen beim Blowdown
(K.D. Appelt, G. Bönisch, J. Kadlec, R.A. Müller, E. Wolf, IRE)

Druckpulsationen in Druckabbausystemen

Im Berichtszeitraum wurden die Blowdown-Versuche in Marviken abgeschlossen.

Zielsetzung sowie erste Tendenzen der Blowdown-Versuche Nr. 1 bis 9 wurden bereits im ersten bzw. zweiten PNS-Halbjahresbericht 1972 [1,2] genannt. Es wurden insgesamt 16 Versuche durchgeführt, wobei es sich bei den Versuchen 10 bis 16 um Wasserrohrbrüche mit zwei Bruchöffnungen verschiedenen Durchmessers im Raum 122 handelte. Tab. 4212-10 gibt einen Überblick über einige wichtige Parameter der Versuche Nr. 1 bis 16. Die in Zeile 5 von Tab. 4212-10 abgeschätzten Massenstromdichten (Maximalwerte) der Versuche 1 bis 11 sind als Funktion der Zeit in Abb. 4212-1 aufgetragen, um einen Eindruck zu vermitteln, in welchen Bereichen die Dampfstromdichten sich bei den verschiedenen Versuchen bewegten.

Bei diesen Werten handelt es sich um eine Abschätzung aus der Wärme- und Massenbilanz des Wassers in der Kondensationskammer. Die Auswertung von Meßdaten ist zur Zeit noch nicht abgeschlossen.

Zu den Versuchen selbst ist zu sagen, daß bei dem Versuch Nr. 10 noch alle Kondensationsrohre ($A_{KR} = 4,03 \text{ m}^2$) geöffnet waren, so daß sich bei einem Bruchquerschnitt von $0,088 \text{ m}^2$ eine max. Dampfstromdichte von ca. $90 \text{ kg/m}^2 \text{ sec}$ ergab. Bei dem Versuch Nr. 11 wurden 20 der insgesamt 54 Kondensationsrohre blockiert, so daß sich die max. Dampfstromdichte auf ca. $138 \text{ kg/m}^2 \text{ sec}$ erhöhte. Die Anfangstemperatur in der Wasservorlage lag bei diesen Versuchen bei ca. 17 bzw. $18 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Maximalamplituden der Druckpulsationen stiegen von Versuch 10 mit $0,32 \text{ kp/cm}^2$

(Spitze-Spitze) auf $0,52 \text{ kp/cm}^2$ (Sp-Sp) bei Versuch Nr. 11 und etwa das gleiche bei Versuch Nr. 12. Besonders auffallend ist, daß mit der Steigerung der Massenstromdichte von ca. 90 auf ca. $138 \text{ kg/m}^2\text{sec}$ und der damit verbundenen Steigerung der Amplituden der Druckpulsationen eine Veränderung im Charakter der Druckpulsationen einhergeht. Das diskrete Spektrum der Druckpulsationen von Versuch Nr. 10 und der vorherigen Versuche geht über in ein flaches kontinuierliches Spektrum, durchsetzt mit einigen Peaks die offenbar durch Systemresonanzen im Abblasesystem entstehen. Die Abb. 4212-2 bis 8 zeigen die Zeitverläufe der Biegedehnung der Modellplatte (DMS 18) und der Druckpulsationen (DA 10). Dabei zeigen die beiden oberen Kurven jeweils den Gesamtverlauf des Blowdown, die beiden mittleren Kurven einen Ausschnitt aus der Anfangsphase und die beiden unteren Kurven einen Ausschnitt aus dem Bereich größter Amplituden. Auf Abb. 4212-2, Versuch 10, ist zu erkennen, daß die große Bruchöffnung ($0,07 \text{ m}^2$) nach ca. 55 sec geschlossen wird (Abfall der Amplituden der Druckpulsationen). In der Folge ist nur die kleine Bruchöffnung ($0,018 \text{ m}^2$) geöffnet bis ca. 510 sec. Aus dem Anstieg der Kurve im Bereich der großen Massenstromdichte ist zu entnehmen, daß noch ein beträchtlicher Luftanteil der Dampfströmung beigemischt ist und sicher zu einer Dämpfung der Druckpulsationen führt. Dieser Verlauf ist qualitativ bei allen nachfolgenden Versuchen zu erkennen, mit Ausnahme des Versuches Nr. 15, bei dem wegen eines technischen Defekts nur die kleine Bruchöffnung ($0,018 \text{ m}^2$) öffnete und nicht mehr geschlossen werden konnte.

Die Freiblasezeit bei den Versuchen 10, 11, 12, 13, 14 und 16 lag im Mittel bei 1 sec. Es tritt hier der schon bekannte schwingungsartige Druckverlauf durch die schwingende Expansion der Luftblase beim Freiblasen auf. Das max. Δp liegt bei ca. $0,3 \text{ kp/cm}^2$.

Der genannte Unterschied im Spektrum der Druckpulsationen ist in den unteren Kurven der Abb. 4212-2 bis -8 gut sichtbar. Der quasi-periodische Charakter der Druckpulsationen des Versuches Nr. 10, Abb. 4212-2, geht in ein kontinuierliches Spektrum bei Versuch Nr. 11, Abb. 4212-3 über. Dieser Charakter bleibt auch bei den nachfolgenden Versuchen, wieder mit Ausnahme des Versuches Nr. 15, erhalten.

Unterschiede gibt es vor allem in der Amplitude, die ganz wesentlich durch eine Komponente bei ca. 4 Hz bestimmt wird, und wie bereits erwähnt, durch eine Systemresonanz im Abblasesystem hervorgerufen wird.

Dabei fällt auf, daß beim Versuch Nr. 13, Abb. 4212-5, diese Systemresonanz besonders stark in Erscheinung trat und zu einer max. Amplitude der Druckpulsationen von 1 kp/cm^2 (Sp-Sp) führte. Und dies trotz der Tatsache, daß beim Versuch Nr. 13 die zweite Bruchöffnung durch einen technischen Defekt nicht öffnete, d.h. die Massenstromdichte gegenüber den Versuchen 12, 14 und 16 kleiner gewesen sein muß.

Möglicherweise ist für die Erhöhung der Druckpulsationen ein geringerer Luftanteil in der Dampfströmung ausschlaggebend gewesen, da Versuch Nr. 13 als Versuch mit Dampfvorspülung des Containments zum Herausblasen der Luft und Vorwärmung des Containments geplant war. Wegen eines Defekts am Spülventil im Raum 124 reichte die Dampfmenge jedoch nicht aus, um das Containment freizublasen, führte jedoch zu einer Vorkomprimierung des Luftpolsters im Containment. Dies kann ein schnelleres Ausströmen und ein geringeres Nachströmen der Luft während des Versuches zur Folge gehabt haben, was zu den stetig steigenden Amplituden der Druckpulsationen bis zum Schließen der Bruchöffnung führte. Nähere Untersuchungen dieser Phänomene sind noch nicht abgeschlossen.

Die Tatsache, daß das Druckabbausystem in Marviken zu Systemresonanzen neigt, läßt erwarten, daß Druckabbausysteme ähnlicher Bauart bei anderen Reaktoren ebenfalls solche Systemresonanzen aufweisen können.

Unter diesen Umständen wäre es sinnvoll, derartige Systeme auf solche Resonanzen hin zu untersuchen, da nicht ausgeschlossen werden kann, daß eine Resonanz des Abblasesystems direkt mit der Resonanz einer tragenden Struktur zusammenfällt und diese zu starken Schwingungen anregt. Ein solches Zusammentreffen muß aus sicherheitstechnischen Gründen vermieden werden.

Weiter wurde bestätigt, was schon im zweiten PNS-Halbjahresbericht 1972 [2] berichtet wurde, daß die Druckwelle bei niedrigen Frequenzen sowie

bei Systemresonanzen in Phase an den Strukturteilen ankommt. Die Phasenabweichung nimmt mit zunehmender Frequenz zu. Die Korrelation der Druckpulsationen bei den niedrigen Frequenzen kann jedoch zur Folge haben, daß die Strukturen auch im unterkritischen Frequenzbereich zu größeren Schwingungen angeregt werden können.

Diesen Sachverhalt zeigt die Abb. 4212-9 z.B. besonders deutlich. In dieser Abbildung sind die Spektraldichtefunktionen der Druckpulsationen des DA 1 (obere Kurve) und der Biegedehnung der Modellplatte des DMS 20 (untere Kurve) sowie der Kohärenz- und Phasenfunktion beider Signale aufgetragen. In der oberen Kurve ist der Resonanzpeak der Druckpulsationen bei ca. 4 Hz deutlich sichtbar. In der zweiten Kurve von oben ist zu sehen, daß der größte Teil der Schwingungsenergie der Modellplatte im Frequenzband unter der 1. Eigenfrequenz der Modellplatte enthalten ist. Die ersten Eigenfrequenzen der Modellplatte liegen bei ca. 24,5; 31; 43; 60 und 80 Hz. Druck und Biegeschwingung sind korreliert und in Phase, wobei die Korrelation und die Phasenübereinstimmung wieder mit zunehmender Frequenz abnimmt. Die aufgetretenen max. Amplituden der Biegespannung lagen bei diesem Versuch bei $\sigma = \pm 8 \text{ kp/mm}^2$, bei Versuch Nr. 13 z.B. bei $\sigma = \pm 11 \text{ kp/mm}^2$.

Als vorläufiges Resultat der Untersuchungen kann man zusammenfassend folgendes sagen:

Es wurde festgestellt, daß in Marviken die Druckpulsationen bei der Kondensation grundsätzlich ein randomer Vorgang sind und im Frequenzbereich bis ca. 100 Hz mit relativ kleinen Amplituden von max. $0,4 \text{ kp/cm}^2$ (Sp-Sp) auftreten. Darüber überlagern sich quasi-periodische Druckpulsationen, die durch Systemresonanzen im Abblasesystem entstehen und zu größeren Amplituden führen können. Diese Amplituden lagen bei $0,8$ bis $1,0 \text{ kp/cm}^2$ (Sp-Sp). Die Intensität der Druckpulsationen scheint vor allem von der Dampfstromdichte und dem Luftanteil in der Dampfströmung abzuhängen.

Die Druckwelle kommt vor allem bei den Systemresonanzen und bei niedrigen Frequenzen in Phase an den Strukturen an und erregt diese auch dann zu Schwingungen, wenn die Resonanzfrequenzen der Strukturen in einem anderen Frequenzbereich liegen.

Abschließend ist zu erwähnen, daß die detaillierte Auswertung der Versuchsergebnisse, die Interpretation der verschiedenen Phänomene, sowie der Versuch einer Generalisierung der Ergebnisse zur Zeit durchgeführt wird.

Erweiterte Meßeinrichtung zur Messung der Zustandsgrößen, Massenstromdichte und Zusammensetzung des in das Druckabbausystem einströmenden Zweiphasengemisches beim Blowdown

Mit dem Einbau der in [1, 2] beschriebenen "erweiterten Meßeinrichtung" in das Druckabbausystem des Kernkraftwerkes Marviken wurde Ende Januar 1973 begonnen. Die Montagearbeiten gingen zügig voran, so daß die Anlage schon im Februar erstmals in Betrieb genommen werden konnte.

Die Meßeinrichtung diente dem Ziel, die lokalen Massenströme und die Gemischzusammensetzung des beim Blowdown abströmenden Mediums zu bestimmen, um deren Einfluß auf die in der Kondensationskammer auftretenden Druckpulsationen zu untersuchen.

Da die erweiterte Meßeinrichtung bisher nur in ihren Grundzügen während der Bauphase beschrieben wurde, soll im folgenden anhand der in Abb. 4212-11 dargestellten Einbauanordnung auf die wesentlichsten Details näher eingegangen und anschließend einige Meßergebnisse vorgestellt werden.

Über das Radiotracer-Meßverfahren zur Bestimmung der Strömungsgeschwindigkeit und die damit erzielten Ergebnisse wird anschließend in Absatz 4212.2, "Entwicklung und Anwendung eines Geschwindigkeitsmeßverfahrens mit Radiotracern", berichtet.

Meßanlagen:

Zur Messung der Zustandsgrößen ist in dem zentral über der Druckpulsations-Meßeinrichtung befindlichen Kondensationsrohr die untere Meßlanze (Abb. 4212-13) und in dem darüber angeordneten Blowdown-Kanal die obere Meßlanze (Abb. 4212-12) eingebaut. Jede Meßlanze ist mit einem Absolutdruckaufnehmer DA 25 (obere)/26 (untere Meßlanze) zur Messung des

statischen Druckes, einem Differenzdruckaufnehmer DA 27/28 zur Messung des Staudruckes, einem Thermoelement Th. 29/31 zur Messung der Strömungstemperatur und einem Thermoelement Th. 30/32 zur Anzeige der Membrantemperatur des Differenzdruckaufnehmers DA 27/28 bestückt.

Zu beachten ist besonders der Staudruckabgriff, der mit Rücksicht auf die Verstopfungsgefahr der Drucksignalbohrungen redundant ausgeführt ist. Dies wird dadurch erreicht, daß der Differenzdruckaufnehmer DA 27/28 jeweils durch 3 um den Lanzenkörper angeordnete Staurohre mit dem Gesamtdruck und durch 3 im Lanzenkörper verlaufende Bohrungen mit dem statischen Druck beaufschlagt wird.

Um bei der Druckmessung im Blowdown-Kanal den Temperaturgang der Druckaufnehmer DA 25, 26, 27 und 28, der sich als sehr beträchtlich erwies, auszuschalten, wurde in Höhe der oberen Meßlanze eine Referenzmessung des statischen Druckes und des Staudruckes durchgeführt. Die dafür vorgesehenen Druckaufnehmer (DA 35 statischer Druck, DA 36 Staudruck) befanden sich dabei außerhalb des Kanals auf konstanter Temperatur in einem Eiswasserbad, wohin die Drucksignale durch Rohrleitungen übertragen wurden, siehe Abb. 4212-11. Für Temperaturvergleichsmessungen des strömenden Mediums wurden zusätzlich die beiden Thermoelemente Th. 33 an der oberen und Th. 34 an der unteren Lanze eingesetzt.

Abb. 4212-14 zeigt die Referenz-Staurohranordnung, den Referenzabgriff des statischen Druckes und einen Ausschnitt der oberen Meßlanze in Anströmrichtung einschließlich der Thermoelemente Th. 29 und 33. Alle Druckaufnehmer sind temperaturkompensierte Membranaufnehmer mit DMS-Vollbrückenschaltung. Als Temperatureaufnehmer wurden metallummantelte Thermoelemente (NiCr-Ni, 1 mm \varnothing) mit TI-Meßstellen verwendet.

Die Meßsignale wurden in abgeschirmten Leitungen, die zum Schutz gegen mechanische Beschädigungen und Feuchtigkeit in Metallrohren verlegt waren, mittels druckdichter Kabeldurchführungen aus der Kondensationskammer in das Sicherheitscontainment und von hier zum Dataraum übertragen. Hier wurden die Meßsignale verstärkt und analog auf Magnetband gespeichert. Die gesamte Kabellänge betrug ca. 80 m.

Proben-Entnahmeeinrichtung

Zum Entnehmen der Gemischproben wurde zunächst die ursprünglich vorgesehene Proben-Entnahmeeinrichtung mit 15 Entnahmeeinheiten an den Blowdown-Kanal angebaut. Auf Abb. 4212-15 ist die Anlage im Querschnitt und Grundriß mit den wichtigsten Einbaumaßen dargestellt. Die Proben-Entnahmeeinheiten sind beidseitig eines Entnahmerohres angeordnet, das schräg nach oben in den Strömungskanal hineinragt, so daß die Entnahmeöffnung etwa in Höhe des Druckabgriffes der oberen Meßlanze liegt. Unterhalb der Entnahmeeinheiten ist das Entnahmerohr mit größerem Querschnitt ausgeführt, verläuft dann quer über die Dampfverteilerkammer und taucht schließlich von oben kommend ca. 0,3 m tief in das Kondensationswasserbecken ein.

Jede Entnahmeeinheit besteht aus einem Entnahmegefäß, einem Druckmeßventil sowie je einem elektropneumatisch betätigten Vakuum- und Überströmventil zum Evakuieren der Einheiten und zum Entnehmen der Proben. Der Inhalt beträgt ca. 1 l. Die Überström- und Vakuumventile haben im Prinzip denselben Aufbau. Es sind Schrägsitzventile der Größe 3/4", die eigens für diesen Zweck bei der GfK im IRE entwickelt und gebaut wurden. Die Ventilbetätigung erfolgt jeweils über eine Pneumatik-Servo-einrichtung, gesteuert durch ein Dreiwegmagnetventil. Zur Abdichtung ist eine Weichstoffdichtung eingesetzt, die zusammen mit einer Schließfeder auch bei Änderung der Richtung des abzudichtenden Differenzdruckes, eine ausgezeichnete Dichtheit gewährleistet. Beim Dichtheitstest lagen die Leckraten aller Ventile (bei 3 atü He-Atmosphäre) unter 10^{-7} Torr · l/s. Dies entspricht, bezogen auf eine Entnahmeeinheit pro Tag, einem Druckverlust bzw. Druckanstieg von $\Delta p < 2 \cdot 10^{-2}$ Torr.

Die während des Versuchsbetriebes erreichten Leckraten waren infolge Ventilverschmutzung durch die in der Strömung mitgeführten Fremdstoffe etwa 10 Mal so groß, so daß eine Druckverfälschung der entnommenen Proben von ca. 0,2 Torr entstand, was jedoch auf das Auswertergebnis nur einen Fehler von < 1 % ergibt.

Vor dem Versuch wurden die Entnahmeeinheiten gemeinsam auf 0,5 Torr evakuiert und während des Versuches erfolgte dann das Entnehmen der Proben durch hintereinanderfolgendes kurzzeitiges Öffnen der Überströmventile über ein Schrittschaltwerk. Die Öffnungsdauer betrug ca. 2,7 s.

Unmittelbar nach Freigabe der Kondensationskammer durch den Strahlenschutz (ca. 17 h nach Blowdown-Start; von schwedischer Seite werden die Versuche unter aktiven Bedingungen durchgeführt) wurden die Entnahmeeinheiten ausgebaut und im Labor ausgewertet. Dazu gehörte einmal die Messung von Druck und Temperatur zur Bestimmung des Luftanteils und zum anderen die Bestimmung der eingeströmten H_2O -Menge durch Evakuieren und Ausfrieren des Probeninhaltes in einer Tiefkühlfalle. Durch Auswiegen auf einer Präzisionswaage konnte die angefallene H_2O -Menge auf 0,1 mg genau ermittelt werden.

Im Laufe der Versuche wurde die Proben-Entnahmeeinrichtung für Vergleichsmessungen erweitert, indem unmittelbar an die Blowdown-Kanalwand 5 Proben-Entnahmeeinheiten angebaut wurden, die über Entnahmerohrstutzen direkt mit dem Strömungskanal in Verbindung standen (Abb. 4212-11). Diese zusätzliche Einrichtung hatte den Zweck, den Einfluß der Öffnungsdauer der Überströmventile, der Entnahme-Rohrstutzenlänge und den Einfluß des Entnahmerohres (der ursprünglichen Entnahmeeinrichtung) auf die Füllmenge zu bestimmen. Abb. 4212-16 zeigt die zusätzliche und die ursprüngliche Meßeinrichtung in Blickrichtung auf die Dampfverteilerkammer.

Eine nochmalige Erweiterung der Meßeinrichtung erfolgte beim letzten Versuch. Dabei sollte untersucht werden, wieweit ein völlig anderes Entnahmeprinzip, nämlich das Entnehmen von Proben im Druckströmverfahren, für die vorliegenden Verhältnisse geeignet ist.

Die dazu notwendige Einrichtung zeigt Abb. 4212-17. In den Blowdown-Kanal sind 4 Entnahmerohre, die auf beiden Seiten ein Überströmventil besitzen, eingebaut. Diese Rohre haben ca. 0,1 l Inhalt und wurden im Gegensatz zu den oben beschriebenen Proben-Entnahmeeinheiten nicht evakuiert, sondern vom Versuchsstart bis zum Schließzeitpunkt der Ventile durchströmt. Um eine echte Vergleichsmöglichkeit zu haben, war der Ventilschließzeitpunkt so gewählt, daß jeweils ein Durchströmrohr gleichzeitig mit dem Entnehmen einer Probe im Evakuierungsverfahren geschlossen wurde.

Bisherige Meßergebnisse mit der erweiterten Meßeinrichtung:

Vor der Diskussion der Meßergebnisse muß auf eine Besonderheit der Versuchsdurchführung hingewiesen werden, die im Zeitverlauf einiger Meßschriebe deutlich in Erscheinung tritt.

Die während des Einsatzes der erweiterten Meßeinrichtung durchgeführten Blowdown-Versuche dienten alle der Simulation von Wasserrohrbrüchen. Dabei wurden jeweils 2 Bruchöffnungen im Raum 122 freigelegt (die eine mit 350 mm \emptyset durch Bersten einer Metallmembran und die andere mit 150 mm \emptyset durch Öffnen eines Kugelventils). Aus versuchstechnischen Gründen wurde die große Öffnung nach ca. 80 s (bezogen auf den Berstzeitpunkt der Metallmembran) mittels eines Kugelventils geschlossen, während die kleine Ausströmöffnung bis Versuchsende (ca. 240s) offenblieb, dann wurde der Ausströmvorgang durch Schließen des dazugehörigen Kugelventils gestoppt.

Im folgenden sollen einige charakteristische Meßschriebe in Abb. 4212-18 diskutiert werden. Die Diagramme zeigen die im Blowdown-Kanal beim Versuch 16 aufgenommenen zeitlichen Druck- und Temperaturverläufe der Referenz-Meßwertaufnehmer DA 34, 35 und Th. 33. Die Zeitzählung beginnt dabei mit dem Berstzeitpunkt der oben erwähnten Metallmembran.

Das auf allen Diagrammen über dem Druck und der Temperatur aufgezeichnete Signal stellt die Impulssteuerung für die Überströmventile der Proben-Entnahmeeinrichtung dar. Bei jeder Unterbrechung der Signale wurde eine Probe aus dem Strömungskanal entnommen.

Bemerkenswert ist die starke Schwankung des Staudruckes p_{dyn} (oberes Diagramm) mit einer Frequenz von ca. 18 Hz, die jedoch noch von einer hochfrequenten Schwingung kleinerer Amplituden (siehe 2. Diagramm von oben mit größerem Zeitmaßstab) überlagert wird. Die starke Abnahme des mittleren Staudruckes und die Verkleinerung der Schwingungsamplitude im Zeitbereich zwischen 80 und 90 s wird durch das Schließen der großen Bruchöffnung verursacht.

Das 3. Diagramm von oben zeigt den Temperatur- und den statischen Druckverlauf p_{stat} . Während der Druck fast augenblicklich im Zeitpunkt des Berstens der Membran sprunghaft ansteigt, folgt die Temperatur zunächst etwas langsamer, springt dann aber nach ca. 1 s ebenso steil an wie der Druck. Beide Kurven steigen dann asymptotisch an und fallen beim Schließen

der großen Bruchöffnung wieder leicht ab. Die dem mittleren statischen Druck überlagerte Schwingung hat hinsichtlich der Amplitudengröße einen ähnlichen Verlauf wie beim Staudruck, jedoch eine Frequenz von ca. 42 Hz (siehe 4. Diagramm von oben).

Auf Abb. 4212-19 sind die Füllmengen der Proben-Entnahmeeinheiten über der Zeit aufgetragen. Das obere Bild zeigt den H_2O -Anteil, das untere den Luftanteil. Die Kurvenzüge liegen mit Ausnahme der Werte für Versuch Nr. 15, der unter anderen technischen Voraussetzungen ablief, relativ dicht beieinander. Die H_2O -Menge nimmt zunächst stark zu, bleibt im Bereich zwischen 60 bis 80 s etwa konstant und fällt dann wieder etwas ab. Die Luftmenge nimmt bis ca. 80 s stetig ab, erfährt dann eine geringe Zunahme, die durch das Schließen der großen Bruchöffnung bewirkt wird, und nimmt dann wieder leicht ab.

Die weitere Auswertung der Meßergebnisse hinsichtlich Massenstrom und Gemischzusammensetzung ist zur Zeit im Gange und wird in Kürze abgeschlossen sein.

4212.2 Entwicklung und Anwendung eines Geschwindigkeitsmeßverfahrens mit Radiotracern
(R. Löffel, LIT)

Einleitung:

Die Geschwindigkeitsmessung mittels Radionukliden zeichnet sich gegenüber verschiedenen konventionellen Geschwindigkeitsmeßverfahren vor allem durch folgende Vorteile aus:

1. Die Strömung kann von außen selbst durch Rohre großer Wandstärke und Durchmesser ohne durch zusätzliche Einbauten bedingte Störungen des strömenden Mediums gemessen werden.
2. Das Verfahren ist gegenüber Druck-, Temperatur- und Konzentrationsänderungen, wie sie oft bei instationären Mehrphasenströmungen auftreten, unempfindlich.

Strömungsmessungen in Rohrleitungen unter Verwendung radioaktiver Indikatoren sind bereits vielfach angewendet und beschrieben worden [3,4,5].

Die meisten Arbeiten beziehen sich aber auf Strömungsmessungen von Flüssigkeiten und beschränken sich vorwiegend auf Untersuchungen an Rohren kleiner Durchmesser.

Unter Verwendung der bekannten tracertechnischen Meßmethode (Durchlaufzeitmethode) wurde im LIT ein Meßverfahren entwickelt, das sich zur Untersuchung von stationären und instationären Mehrphasenströmungen in Rohren auch größerer Dimension eignet [2].

Der folgende Bericht beschreibt das Meßverfahren und dessen erste praktische Anwendung bei den Blowdown-Versuchen im Rahmen der Sicherheitsexperimente in der Reaktoranlage Marviken (Schweden). [1, 2].

Meßverfahren:

a) Zwei-Punkt-Methode / periodische Injektion

Meßprinzip

Die Geschwindigkeitsmessung erfolgt nach der sogenannten Durchlaufzeit- oder Zwei-Punkte-Methode. Der in die Strömung eingespritzte radioaktive Tracer wird nach Durchlaufen einer Anlaufstrecke a an zwei in Längsrichtung des Rohres im Abstand s versetzt angebrachten Meßstellen jeweils in Form einer zeitlichen Aktivitätsverteilungskurve registriert.

Über den Zeitabstand der Schwerpunkte dieser Verteilungskurve erhält man die mittlere Laufzeit Δt des Tracers, Abb. 4212-24. Die mittlere Geschwindigkeit \bar{w} ergibt sich dann aus dem Quotienten von Meßstrecke und mittlerer Laufzeit.

$$\bar{w} = \frac{s}{\Delta t} = \frac{\text{Meßstrecke}}{\text{mittlere Laufzeit}}$$

Man erhält so einen Meßwert pro Injektion.

Durch periodische Wiederholung der Injektionen ist es möglich, auch instationäre Strömungen quasi-kontinuierlich zu verfolgen.

Injektionstechnik

Das Tracergas wird periodisch in kurzen Stößen (Injektionszeit ≥ 10 m s.) unter sehr hohem Druck (ca. 120 atü) senkrecht zur Strömungsrichtung in den Strömungskanal eingespritzt (Stoßmarkierung).

Die Zahl der einzelnen Injektionen, ihre Dauer und ihr zeitlicher Abstand können beliebig gewählt und damit dem technischen Problem angepaßt werden. Zur Durchführung solcher Injektionen wurde eine eigene Injektionsvorrichtung gebaut, die zusammen mit der Meßelektronik schematisch in Abb. 4212-20 dargestellt ist.

b) Wahl des geeigneten radioaktiven Tracers

Der in das strömende Medium injizierte Tracer soll gleiche oder zumindest ähnliche physikalische Eigenschaften besitzen wie das zu untersuchende Medium (hier Luft, Dampf, Wasser).

Wegen der ungünstigen Aktivierungseigenschaften der Hauptbestandteile des Gemisches (Sauerstoff, Stickstoff, Wasserstoff) war eine Fremdmarkierung erforderlich.

Zur Markierung der Gasphase eignet sich besonders Ar-41. Die Vorteile des Ar-41 liegen in seiner Eigenschaft als Edelgas, in der hinsichtlich der Strahlenabsorption günstigen harten γ -Energie von 1,29 MeV und seiner kurzen Halbwertszeit ($T_{1/2} = 1,8$ h), in seiner hohen spezifischen Aktivität und in seiner geringen Radiotoxizität, die praktisch zu keiner Umweltbelastung führt.

Versuchseinrichtung:

Die Versuchseinrichtung (Abb. 4112-20 + 21) setzt sich entsprechend ihrer beiden Hauptfunktionen (der Injektion und Detektion der Tracerwolke) aus zwei Hauptbestandteilen zusammen.

a) Injektionsvorrichtung

Die Injektionsvorrichtung (Abb. 4212-20 und 23) besteht im wesentlichen aus einem Druckspeicher mit Ventilschaltgerät zur Steuerung des Ein- und Auslaßventils und einem Einspritzventil mit Steuergerät. Der Druckspeicher ist über ein ferngesteuertes Magnetventil und ein Kapillarrohr mit dem Einspritzventil verbunden. Letzteres wird von einem Taktgene-

rator mit variabel einstellbaren Zeitintervallen für die Einspritzfolge gesteuert. Die Dauer der einzelnen Injektion kann ebenfalls eingestellt werden. Mit einem Programmgeber können die Zeitintervalle während des Versuchs variiert werden.

b) Meßelektronik

Die Detektion der durch Injektion im Meßkanal erzeugten radioaktiven Tracerwolken erfolgt an den beiden Meßstellen durch je zwei in einer Meßebene aufgebaute NaJ-Detektoren, deren Impulse einem Summenverstärker zugeführt werden. Die in den beiden Kanälen anfallenden Meßdaten werden je einem Frequenz-Spannungskonverter zugeführt. Deren Ausgangssignale werden auf einem Magnetband registriert.

Aktivierung:

Um eine gute Meßgenauigkeit zu erzielen, war pro Injektion eine Aktivität von ca. 50 mCi erforderlich. Daraus ergab sich für die Versuchsdurchführung eine notwendige Aktivität von 5 Ci (zur Versuchszeit) bei 100 vorgesehenen Injektionen. Wegen der großen Zeitverluste (ca. 4 h) durch Einfüllen der Aktivität und Transport war wegen der kurzen Halbwertszeit (1,8 h) des Ar-41 eine Gesamtaktivität von 20 Ci nach Bestrahlungsende erforderlich.

Die Aktivierung des Argon wurde am Reaktor R2 in Studsvik durchgeführt. In der zur Verfügung stehenden Bestrahlungsposition betrug die Neutronenflußdichte etwa $3 \cdot 10^{13}$ n/cm² s.

Zur Herstellung der erforderlichen Aktivität von ca. 20 Ci Ar-41 und zum Überführen der Aktivität aus dem Bestrahlungsbehälter in den Aktivitätsspeicher wurde die in Abb. 4212-22 gezeigte Vorrichtung gebaut. Der Bestrahlungsbehälter bestand aus einer zylindrischen Kapsel aus Edelstahl, in die das zu aktivierende Argon unter hohem Druck (ca. 100 atü) eingefüllt wurde.

Nach der Bestrahlung erfolgte das Überfüllen des Ar-41 über die bestehende Kapillarrohrverbindung zwischen Bestrahlungsbehälter und Aktivitätsspeicher durch Öffnen der Absperrventile infolge der hohen Druckdifferenz.

Danach wurde der gefüllte Aktivitätsspeicher per LKW von Studsvik nach Marviken (Entfernung ca. 140 km) gebracht.

Trotz der relativ hohen Aktivität bestand dank der ausreichenden Bleiabschirmung des Aktivitätsspeichers und der guten Bedienbarkeit der Anlage sowohl am Reaktor in Studsvik als auch beim Transport der Aktivität an den Verwendungsort Marviken keine Strahlungsgefährdung des Personals. Die während des Blowdown-Versuchs in dem Reaktor freigesetzte Aktivität blieb in der Druckabbauanlage bis zum vollständigen Abklingen eingeschlossen.

Versuchsdurchführung:

Der auf dem Reaktorgelände in Marviken eintreffende Aktivitätsspeicher wurde in der in Abb. 4212-23 dargestellten Weise an die Versuchsanlage angeschlossen. Das Einschalten der Versuchseinrichtung erfolgte kurz vor Beginn des Blowdowns nach dem in Abb. 4212-20 gezeigten Schema durch Fernbedienung. Das Steuerprogramm wurde durch Wahl der Impulsbreiten und Impulsabstände auf den erwarteten Versuchsablauf abgestimmt.

Die Anzahl der durchführbaren Injektionen konnte bei vorgegebenen Aktivitätsvorrat über die Parameter Impulsbreite, Systemdruck (Gasdruck) und Druckspeicherteilvolumen vorausbestimmt werden.

Versuchsergebnisse:

a) Beschreibung der Diagramme

Die Versuchseinrichtung konnte von Blowdown 14 an eingesetzt werden, so daß im folgenden nur die Resultate der Blowdown-Versuche 14, 15 und 16 beschrieben werden.

Die Meßdaten wurden in der in Abb. 4212-24 gezeigten Form auf dem Magnetband auf 3 Kanälen getrennt aufgezeichnet:

Kanal A: Steuerimpuls des Injektionsventils
(Impulsbreite und Injektionszeitpunkt)
überlagert: Eichfrequenz $f = 50$ Hz zur
Eichung der Zeitachse

Kanal B: Aktivitätskonzentration an der Meßstelle I

Kanal C: Aktivitätskonzentration an der Meßstelle II

In Abb. 4212-25 und 26 sind die Aufzeichnungen der Anlaufphasen der Blowdown-Versuche 14 und 16 ausschnittsweise wiedergegeben.

Als Null-Zeit-Marke ($t = 0$) wurde der Zeitpunkt des Bruches der Berstscheibe festgesetzt; sie wurde als Eichsignal auf der Tonspur des Magnetbandes festgehalten.

Durch vorzeitige Injektion ($t \approx -5$ s) einiger Tracerwolken konnte der Beginn des Strömungsvorganges im Blowdown-Kanal genau gemessen werden. Dabei ergaben sich bei Blowdown 14 und 16 zwischen dem Bruch der Berstscheibe und dem Einsetzen des Strömungsvorganges an der Meßstelle I zeitliche Verzögerungen von ca $1/4$ sec. Von Beginn des Strömungsvorganges an wurde die Injektion periodisch vorgenommen.

Typisch für alle durchgeführten Blowdown-Versuche war das stetige Ansteigen des radioaktiven Untergrundes an der Meßstelle II, während die Meßstelle I einen konstanten, niedrigen Untergrund zeigte.

Dies hat folgende Gründe:

1. Mit zunehmender Zahl der Injektionen stieg die Aktivitätskonzentration in der Dampfverteilerkammer an.
2. Das dem Dampf zugemischte Argon löst sich zum großen Teil bei der Kondensation des Dampfes in der Wasservorlage.

Dadurch bildete sich in der Dampfverteilerkammer und in der Kondensationskammer eine Aktivitätsansammlung, die wegen der räumlichen Nähe vor allem die Meßstelle II beeinflusste.

b) Auswertung

Die Ermittlung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit \bar{w} in Abhängigkeit von der Zeit erfolgte durch graphische Auswertung. Eine rechnerische Auswertung wird in Kürze abgeschlossen sein. Dazu wurden die zeitlichen

Schwerpunktslagen der aufgezeichneten Verweilzeitspektren bestimmt. Die mittlere Strömungsgeschwindigkeit \bar{w} wurde dann aus dem Quotienten aus der Meßstrecke S und dem Zeitintervall Δt (vgl. Abb. 4212-24) errechnet und der Zeit t zugeordnet. Daraus ergaben sich die in den Abb. 4212-27 bis 29 wiedergegebene Geschwindigkeitsdiagramme.

c) Fehlerabschätzung

In den Fehler des einzelnen Geschwindigkeitswertes gehen mehrere Einzelfehler ein.

Die Fehler bei der Bestimmung der Meßstrecke ($< \pm 0,1 \%$) und der Zeitmessung ($< \pm 0,5 \%$) sind gegen den Fehler bei der Bestimmung der Schwerpunktsabstände ($< \pm 4 \%$) vernachlässigbar klein. Insgesamt ergibt sich ein Fehler von max. $\pm 5 \%$ für jeden Meßpunkt.

d) Diskussion der Geschwindigkeitsdiagramme

Anhand der Geschwindigkeits-Zeit-Diagramme sieht man, daß besonders in der Anlaufphase des Blowdown starke Geschwindigkeitsschwankungen auftreten, wie sie auch durch andere Messungen festgestellt wurden. Da die Abweichungen der einzelnen Meßpunkte von einem (gestrichelt eingetragenen) mittleren Verlauf weit außerhalb der Fehlergrenzen liegen, muß es sich hier um echte Geschwindigkeitsschwankungen handeln. Eine genaue Aussage bezüglich der Amplituden und Frequenzen kann aufgrund der geringen Anzahl der Meßpunkte nicht gemacht werden. Nachfolgend werden daher lediglich die gemittelten Kurven diskutiert.

Blowdown 14, Abb. 4212-27:

Die Geschwindigkeit stieg in weniger als 3 Sekunden von 0 auf über 40 m/s an und erhöhte sich nach einer kurzen Abnahme, die auch beim Blowdown 16 festgestellt wurde, auf ca. 50 m/s. Die starke Geschwindigkeitsabnahme bei $t \approx 80$ s ist bedingt durch das Schließen des großen Ventils.^{+) Das kleine Ventil blieb von $t = 0$ bis $t \approx 180$ s geöffnet. Deshalb schloß sich eine Phase nahezu stationärer Strömung mit $\bar{w} \approx 10$ m/s von $t \approx 90$ s bis $t \approx 180$ s an. Die einzelnen Meßpunkte weichen in diesem Bereich maximal um $\pm 3 \%$ von der gemittelten Kurve ab. Damit wird die geringe Fehlerbreite des Meßverfahrens unmittelbar belegt. Nach dem Schließen des kleinen Ventils fiel die Geschwindigkeit innerhalb weniger Sekunden auf Null zurück.}

^{+) Die beiden Bruchöffnungen ($\phi = 150$ mm, $\phi = 350$ mm) konnten durch Kugelventile geschlossen werden (vgl. 4212-1, Seite 67).}

Blowdown 15, Abb. 4212-28:

Wegen technischer Defekte der Reaktoranlage Marviken mißlang der Blowdown-Versuch Nr. 15.

Während das große Ventil festklemmte, konnte nur das kleine geöffnet werden, so daß sich eine mittlere Strömungsgeschwindigkeit von etwa 10 m/s einstellte. Die starken Schwankungen der Geschwindigkeit nach dem Einsetzen der Strömung wurden verursacht durch Schwingungen der Wasservorlage, die auch auf der TV-Bildaufzeichnung zu sehen waren.

Blowdown 16, Abb. 4212-29:

Während bereits beim Blowdown 14 ein gewisser Einschwingvorgang - vorübergehende Geschwindigkeitsabnahme - zu erkennen war, gelang es bei Blowdown 16 durch Wahl kürzerer Injektionsabstände, diese Anlaufphase genauer zu erfassen. Der Grund für diese deutlich erkennbare vorübergehende Abnahme der Geschwindigkeit ist das erforderliche "Freiblasen" der Kondensationsrohre.

Zitierte Literatur:

[1] 1. PNS-Halbjahresbericht 1972, KFK 1702

[2] 2. PNS-Halbjahresbericht 1972, KFK 1787

[3] L.G. Erwall, H.G. Forsberg, K. Ljunggren:
"Radioaktive Isotope in der Technik"
Verlag Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig 1965

[4] K. Ljunggren:
"Review of the use of radioactive tracers for evaluating parameters pertaining to the flow of material in plant and natural systems"
Proceedings of the symposium on radioactive tracers in industry and geophysics held by the International Atomic Energy Agency in Prag, 21.-25. November 1966

[5] K. Ljunggren:
"Evaluation of tracer investigations on flow in systems with recirculation"
dgl. wie [4]

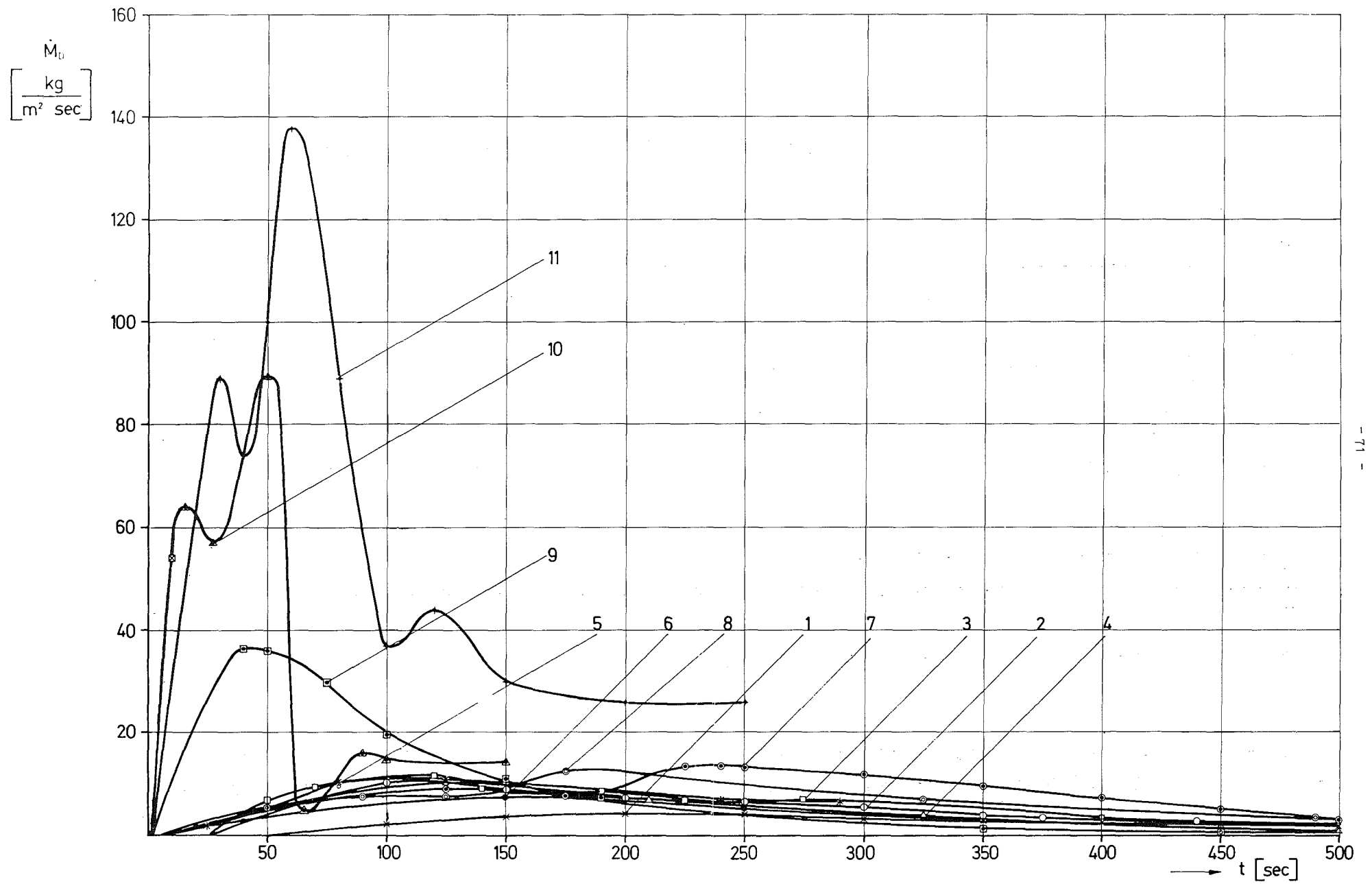


Abb. 4212-1: Abschätzung der Massenstromdichten (aus Wärme- und Massenbilanz in der Kond.-Kammer)

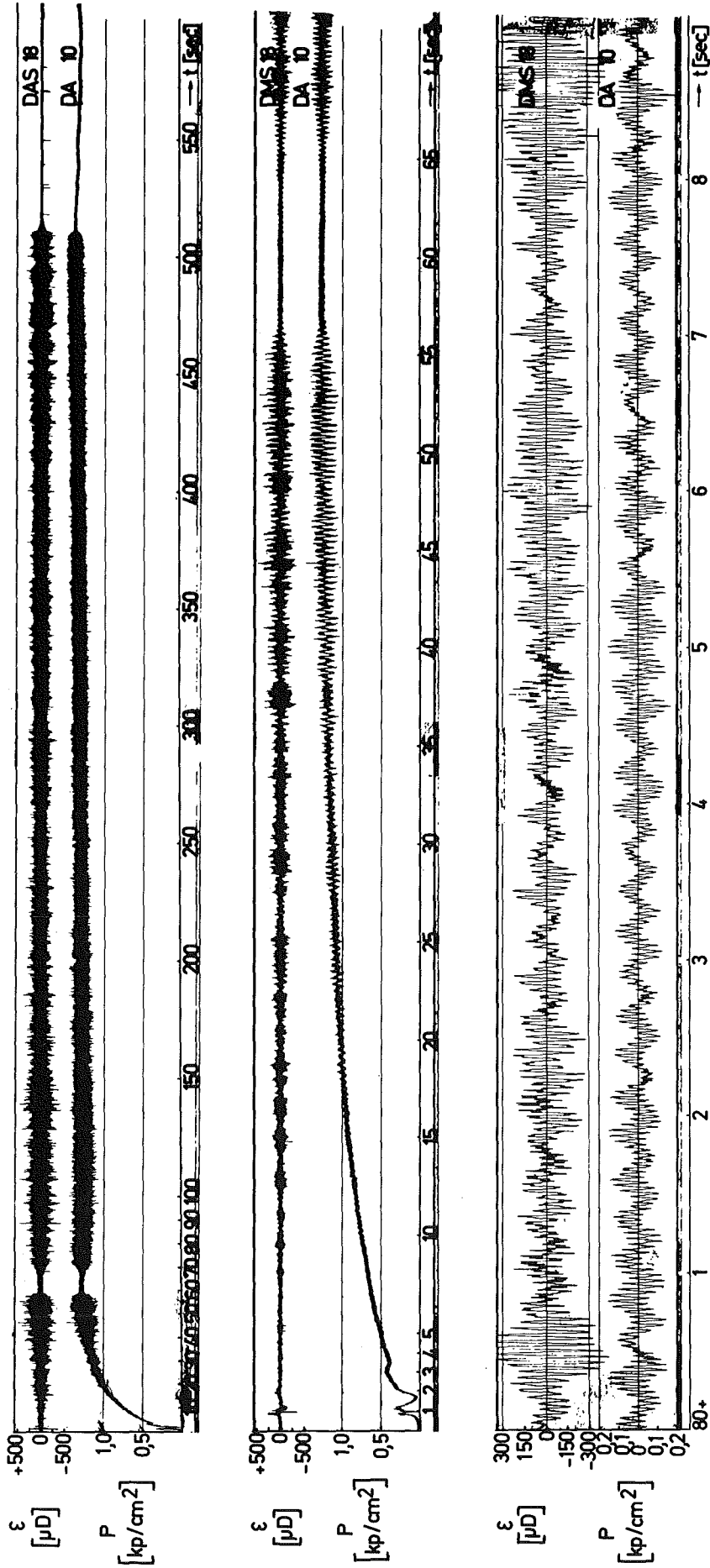


Abb. 4212-2: Typical Oscillograms, Blowdown No. 10

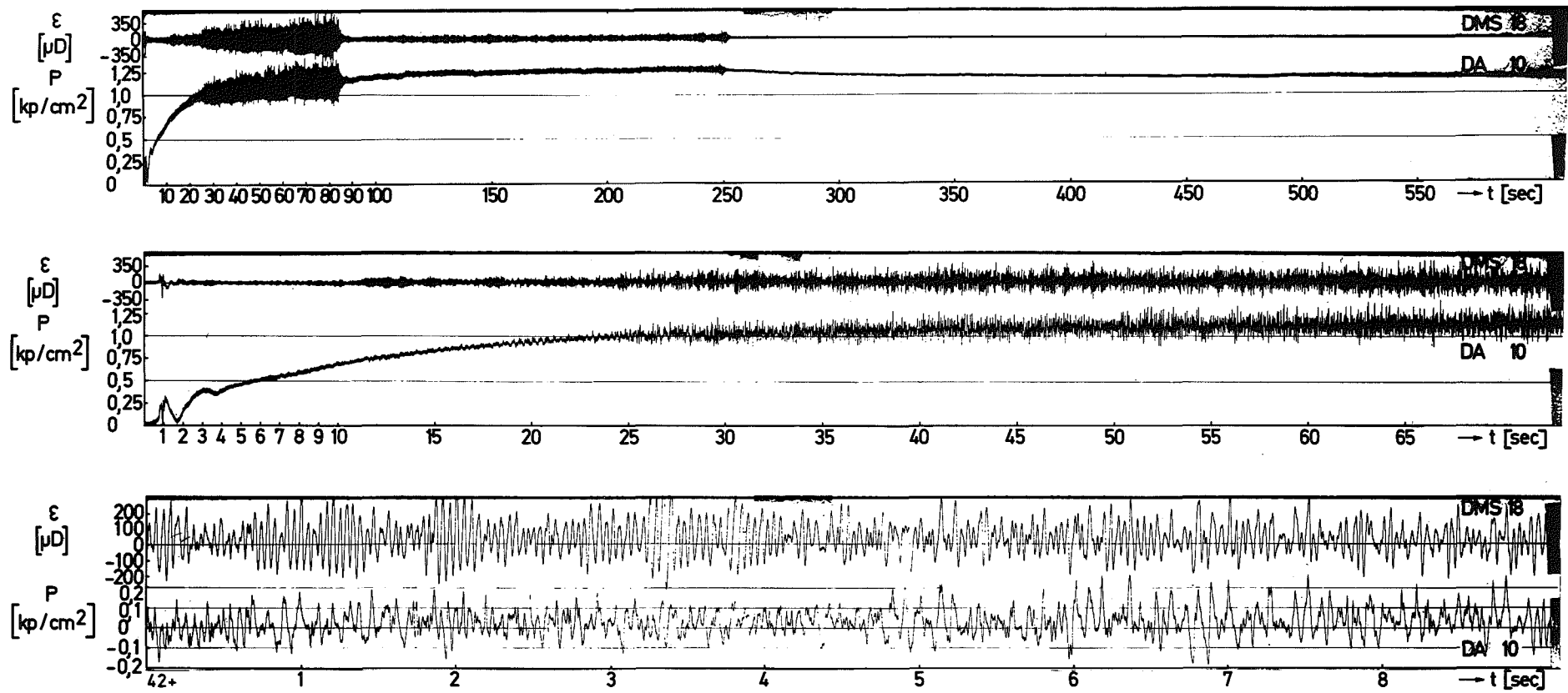


Abb. 4212-3: Typical Oscillograms, Blowdown No. 11

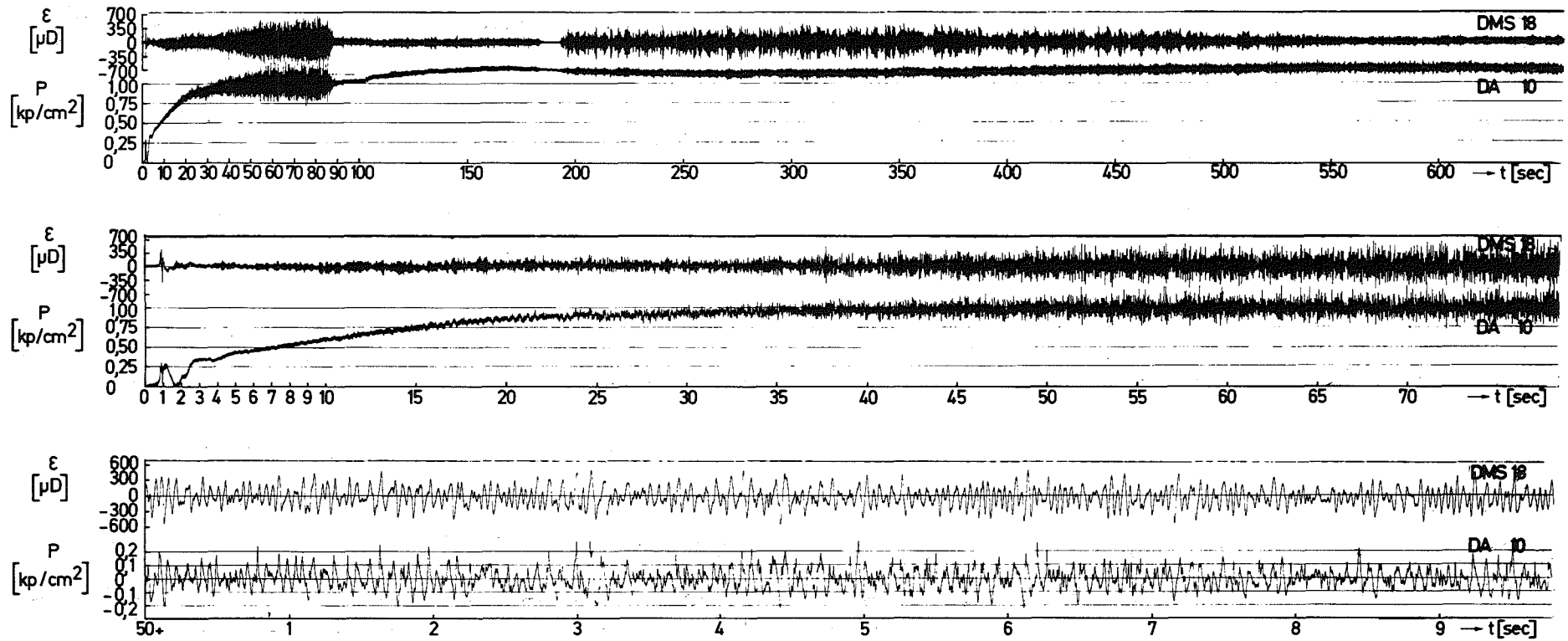


Abb. 4212-4: Typical Oscillograms, Blowdown No. 12

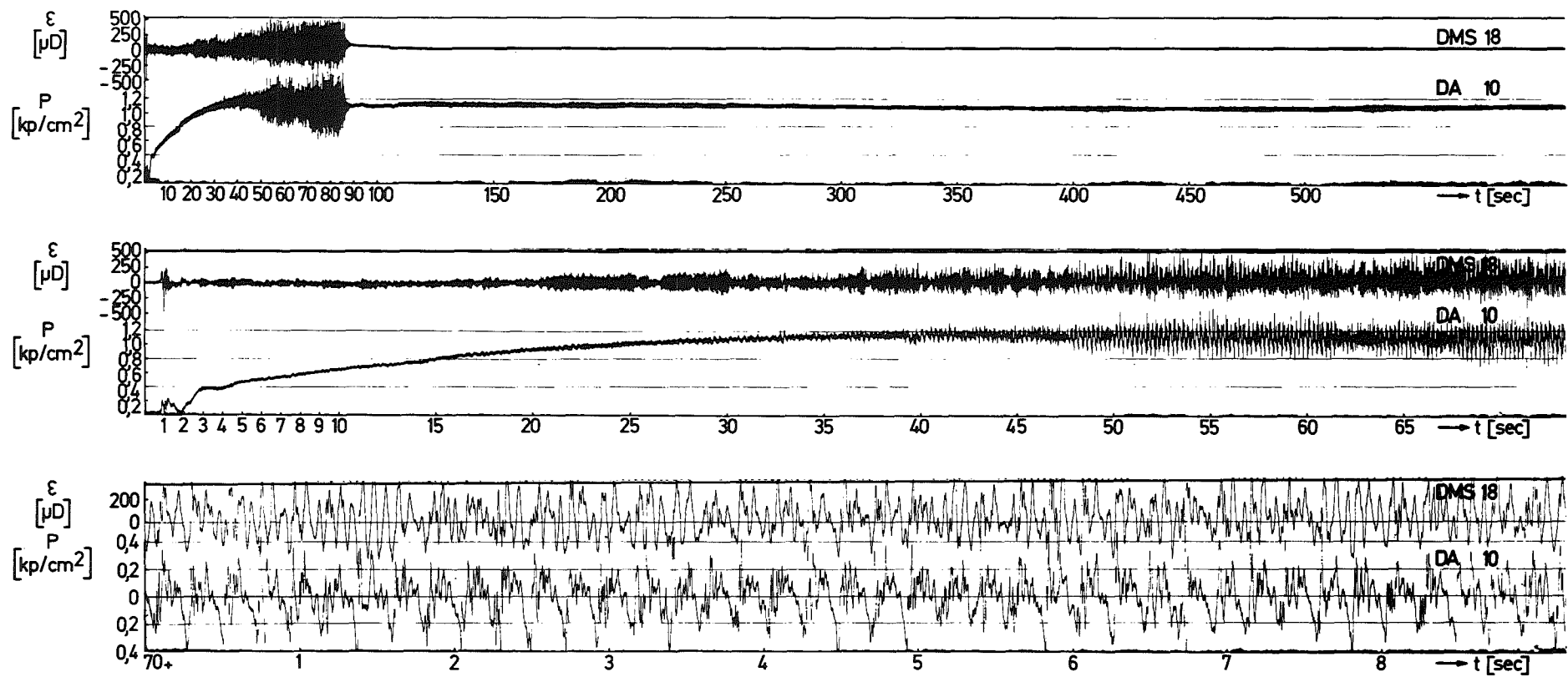


Abb. 4212-5: Typical Oscillograms, Blowdown No. 13

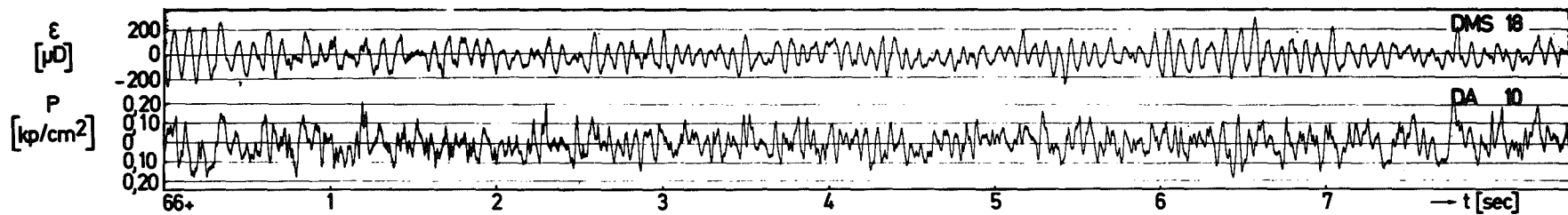
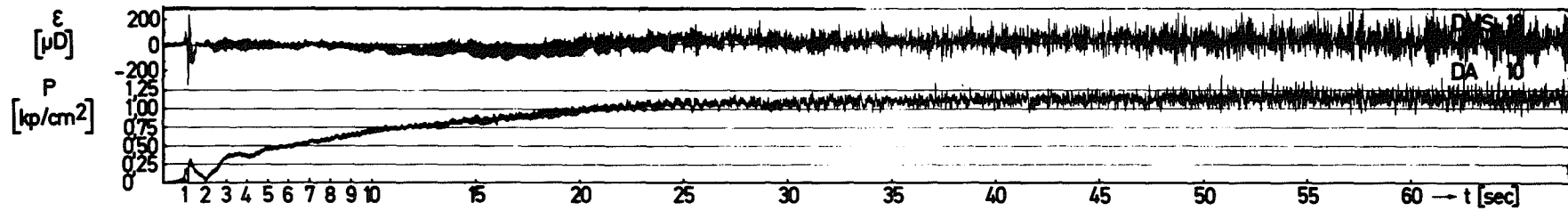
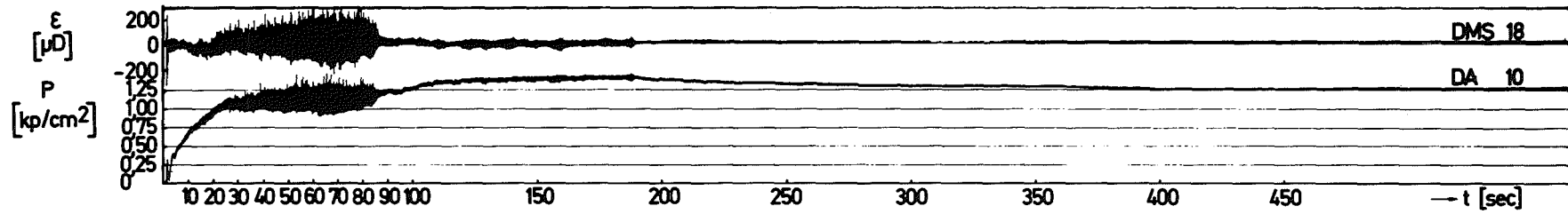


Abb. 4212-6: Typical Oscillograms, Blowdown No. 14

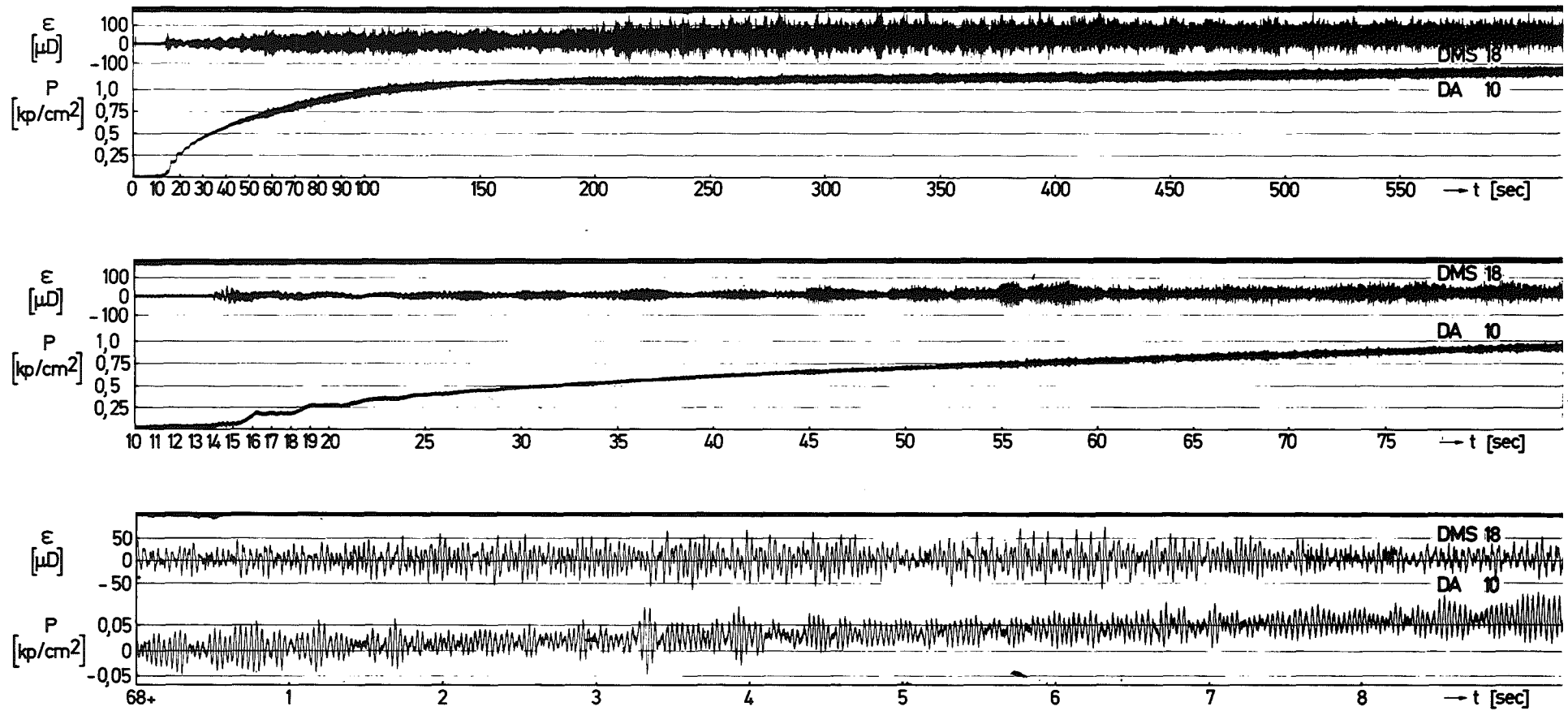


Abb. 4212-7: Typical Oscillograms, Blowdown No. 15

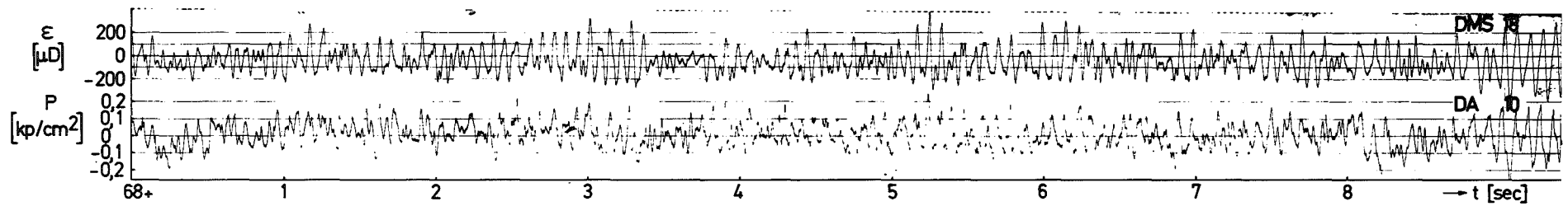
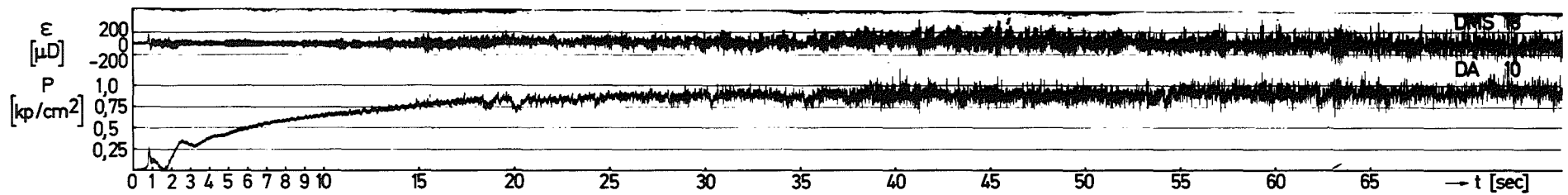
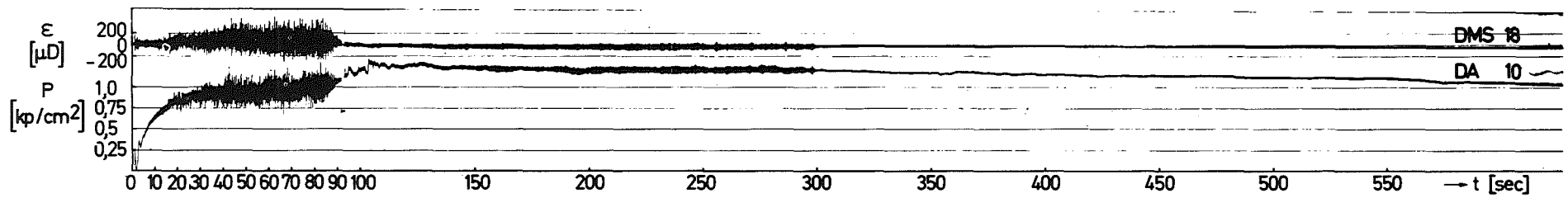


Abb.4212-8: Typical Oscillograms, Blowdown No. 16

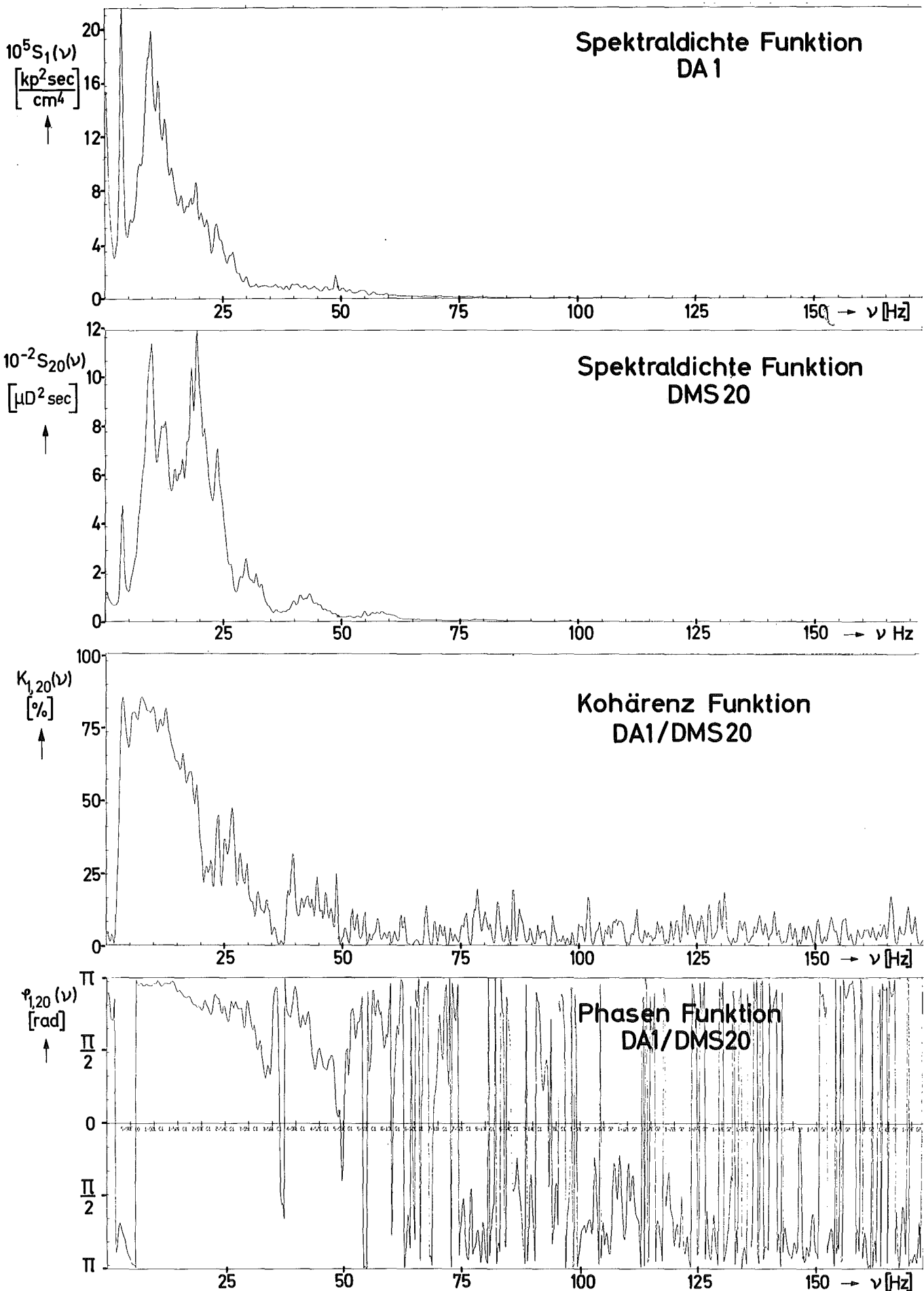


Abb. 4212-9: Ausschnitte der Kreuz-Spektraldichte Funktion Druckaufnehmer DA1 und DMS 20. Blowdown Nr.11

| Blowdown-Versuch Nr. | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 10 | 11 | 12 | 13 | 14 | 15 | 16 |
|---|-------------------|-------------------|---------------|---------------|---------------|---------------|----------------|----------------|---------------|----------------|----------------|--------------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| Art des Leitungsbruches Bruch im Raum Nr. | Dampf- 124 | Dampf- 124 | Dampf- 124 | Dampf- 124 | Dampf- 124 | Dampf- 124 | Wasser- 122 | Wasser- 122 | Dampf- 122 | Wasser- 122 | Wasser- 122 | Wasser- 122 | Wasser- 122 | Wasser- 122 | Wasser- 122 | Wasser- 122 |
| Aufgeheizte Wassermenge im Reaktordruckgefäß [10 ³ kg] | 110 | 108 | 120 | 121 | 119 | 119 | 116 | 118 | 105 | 290 | 290 | 290 | 314 | 290 | 314 | 314 |
| Bruchquerschnitt A_B [m ²] | 0,0123 | 0,02 | 0,026 | 0,031 | 0,031 | 0,031 | 0,018 | 0,018 | 0,07 | 0,088 | 0,088 | 0,088 | 0,07 | 0,088 | 0,0243 | 0,088 |
| Freier Strömungsquerschnitt aller Kondensationsrohre [m ²] | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 4,03 | 2,68 | 1,84 | 1,84 | 1,84 | 1,84 | 1,84 |
| Abgeschätzte Maximalwerte der Massenstromdichte kg/m ² sec | 4 | 11 | 12 | 10 | 11 | 9 | 13 | 13 | 36 | 90 | 138 | Werte liegen noch nicht vor | | | | |
| Verhältnis Druckkammervolumen/ Bruchquerschnitt $10^{-4} \cdot V_{DK} / A_B$ [m] | 17,30 | 9,67 | 7,43 | 6,24 | 6,24 | 6,24 | 10,75 | 10,75 | 2,77 | 2,20 | 2,20 | 2,20 | 2,76 | 2,20 | 7,95 | 2,20 |
| Verhältnis Kond.-Rohrquerschnitt/ Bruchfläche A_{KR} / A_B [1] | 328 | 202 | 155 | 130 | 130 | 130 | 224 | 224 | 57,6 | 45,8 | 30,5 | 20,9 | 26,3 | 20,9 | 75,7 | 20,9 |
| Anfangstemperatur in der Wasservorlage [°C] | 19 | 22 | 19 | 44 | 21 | 17 | 15 | 57 | 17 | 17 | 18 | 18 | 17 | 47 | 17 | 14 |
| Eintauchtiefe der Kondensations- rohre [m] | 2,6 2,7 2,8 | 2,6 2,7 2,8 | 2,8 | 2,9 | 1,6 | 3,4 | 2,8 | 2,8 | 2,8 | 2,8 | 2,8 | 2,8 | 2,8 | 2,8 | 2,8 | 1,6 |
| Maximalwert der gemessenen Druckpulsationen (DA10) [kp/cm ² Spitze-Spitze] | 0,28 | 0,40 | 0,29 | 0,30 | 0,33 | 0,29 | — | 0,30 | 0,27 | 0,32 | 0,52 | 0,49 | 1,0 | 0,5 | 0,12 | 0,5 |

Tab.4212-10: Wichtige Parameter und vorläufige Resultate der bisher durchgeführten Blowdown -Vers.1-16

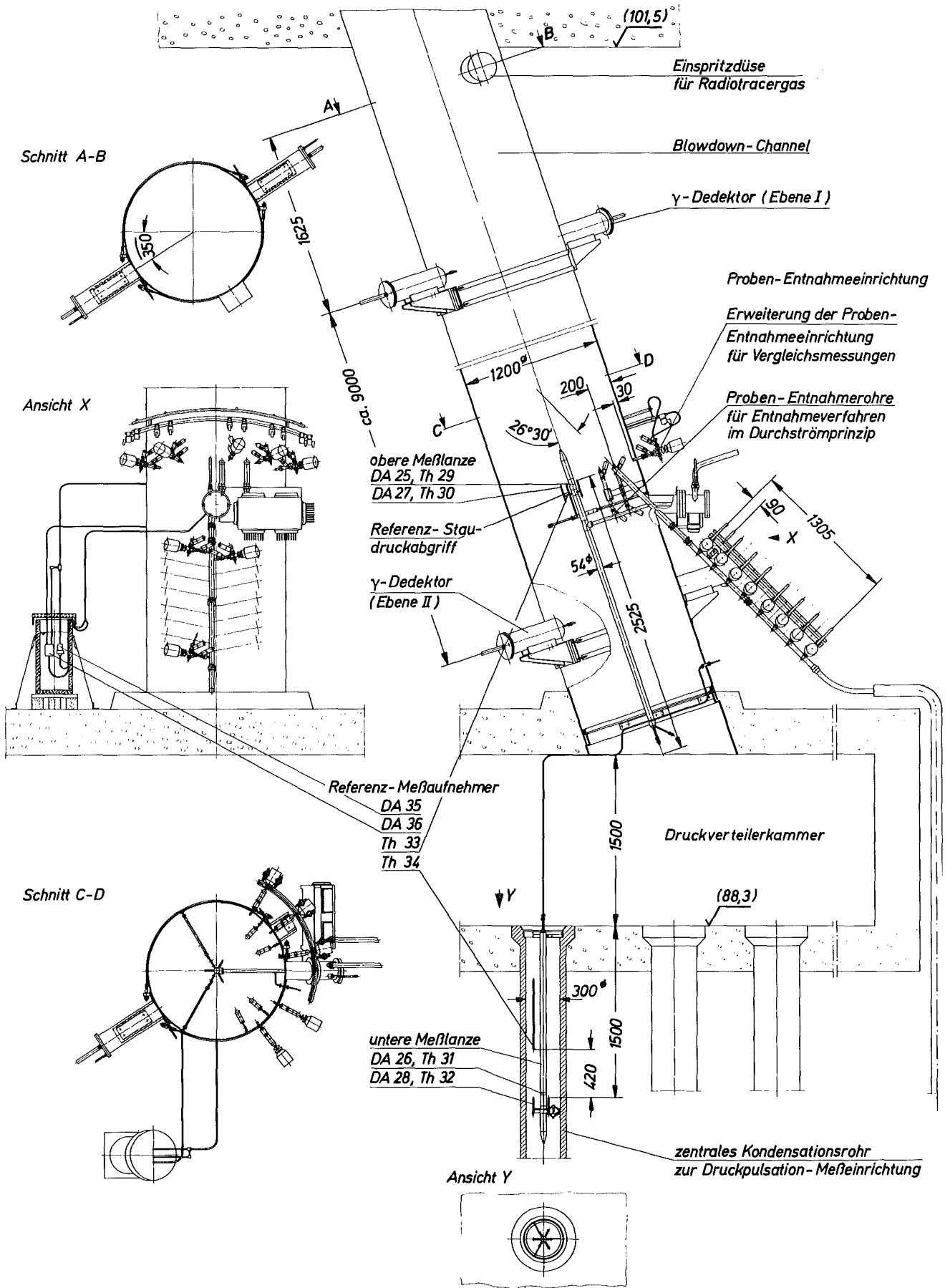


Abb. 4212-11: Anordnung der erweiterten Meßeinrichtung

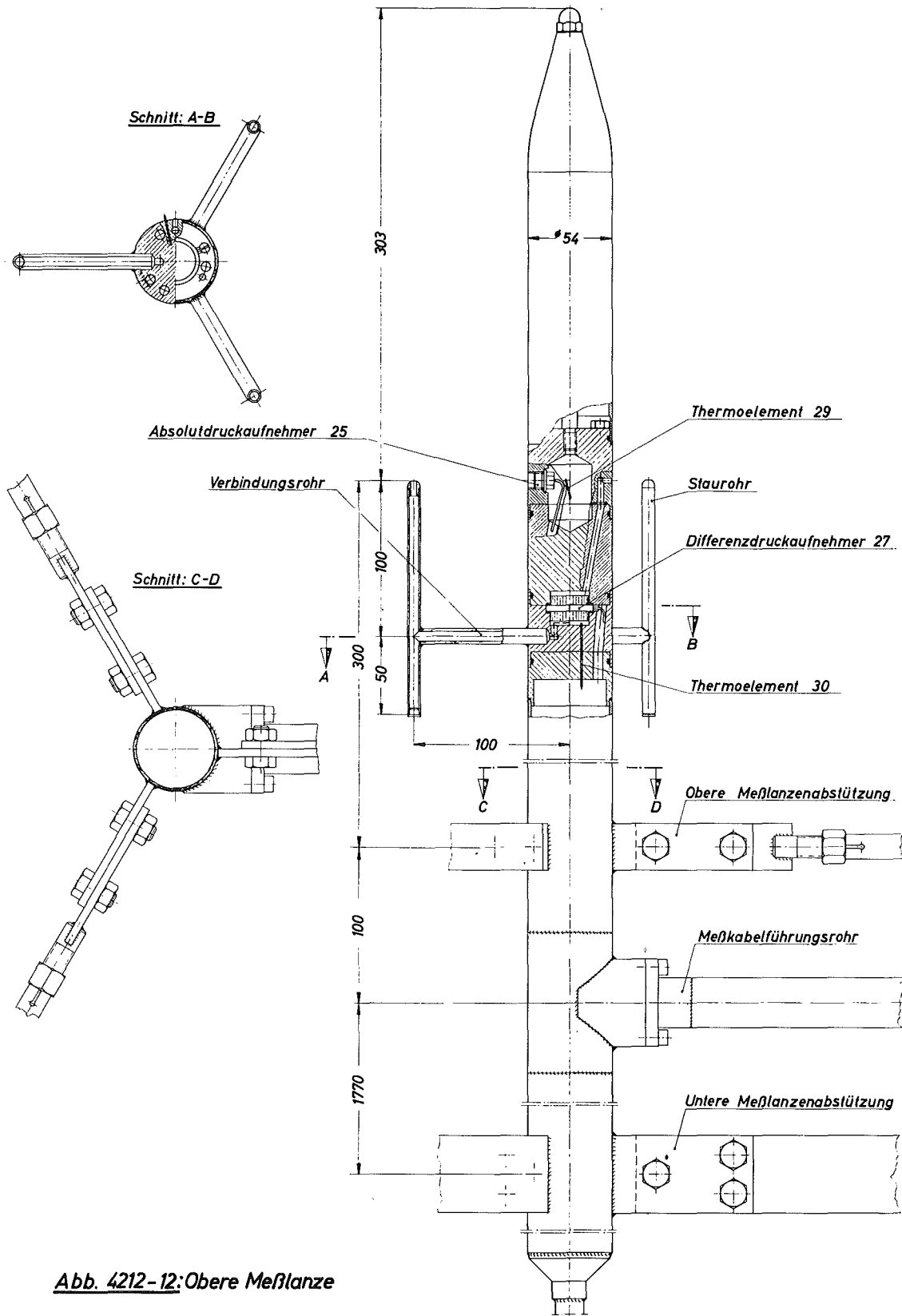


Abb. 4212-12: Obere Meßlanze

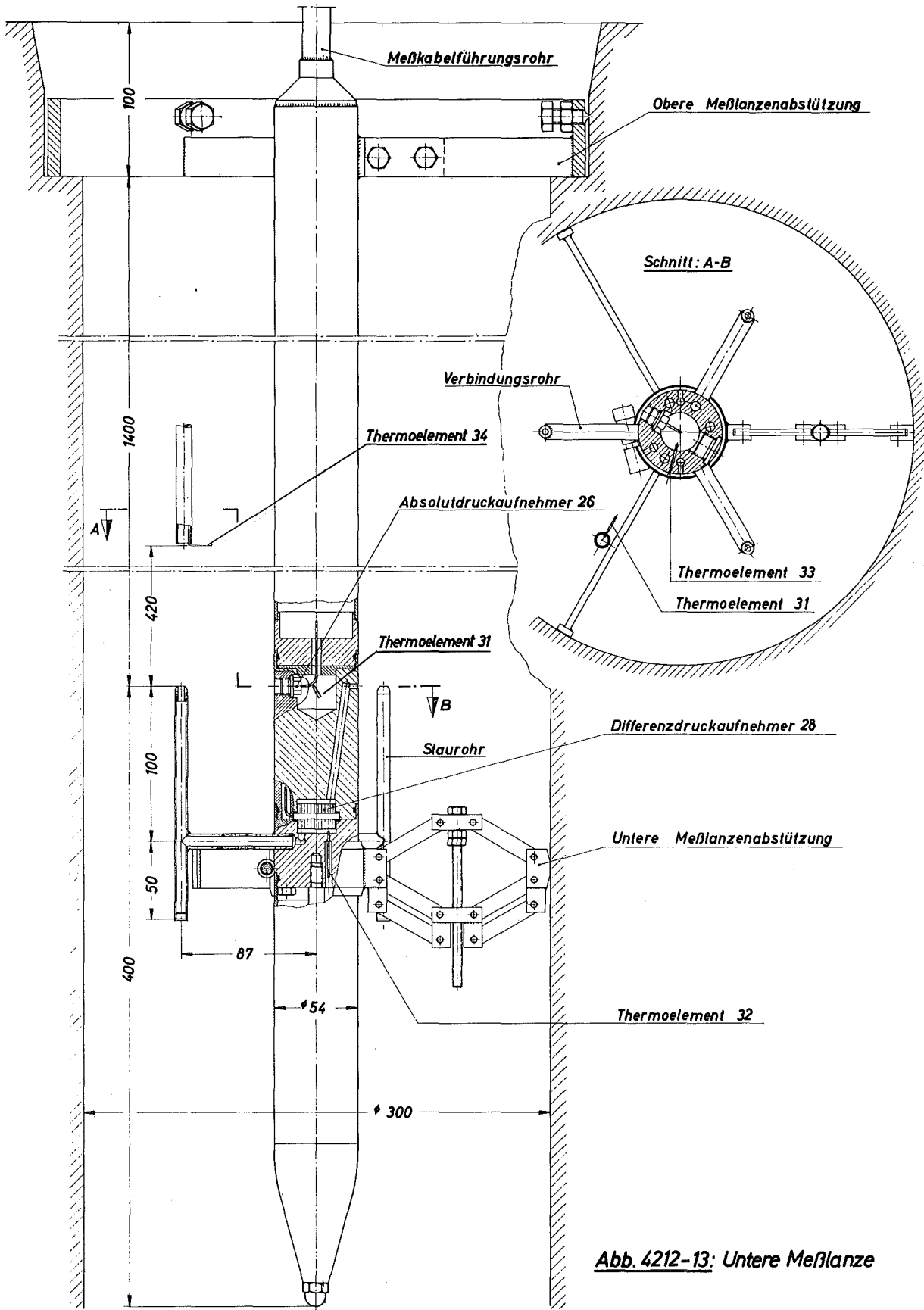


Abb. 4212-13: Untere Meßlanze

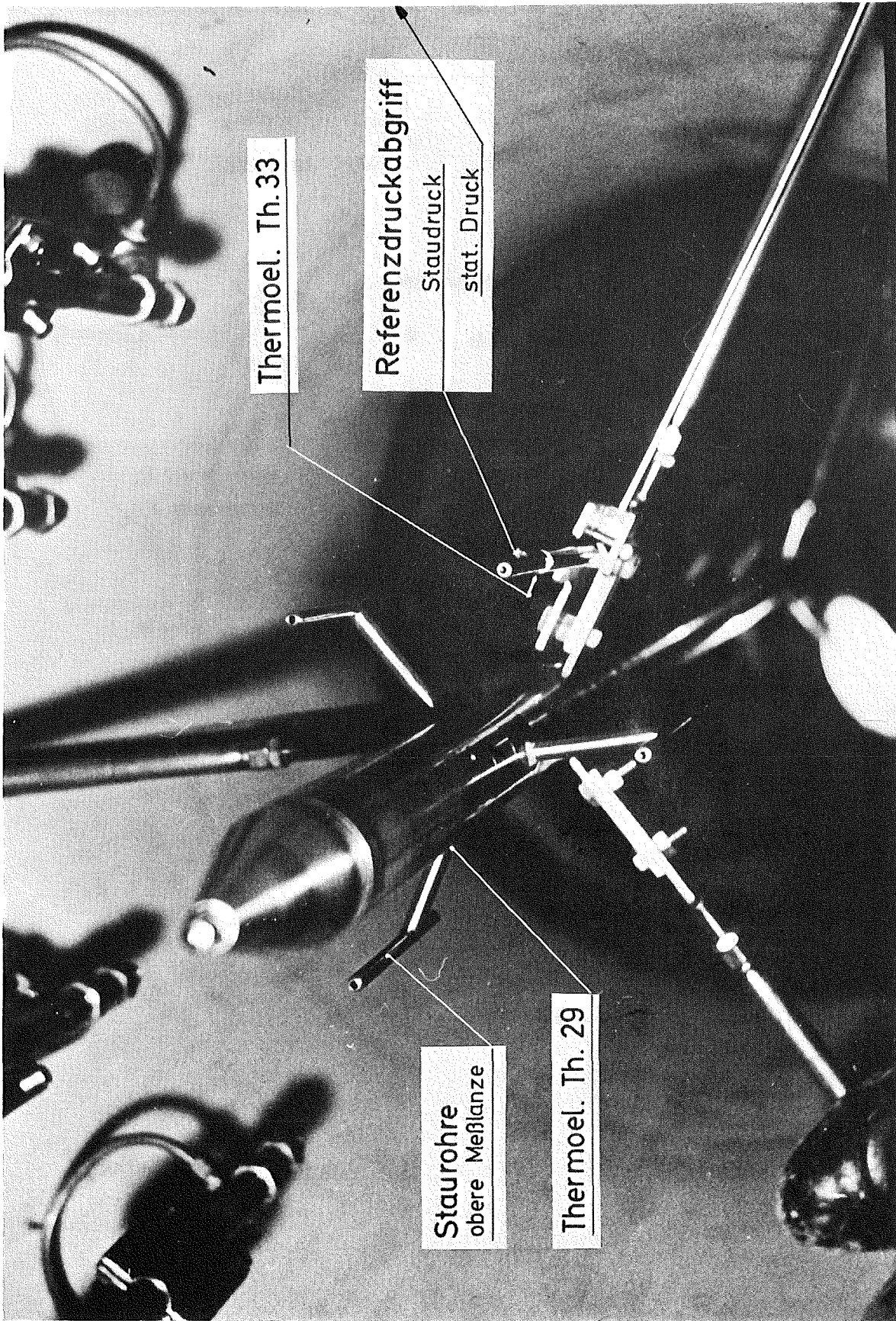
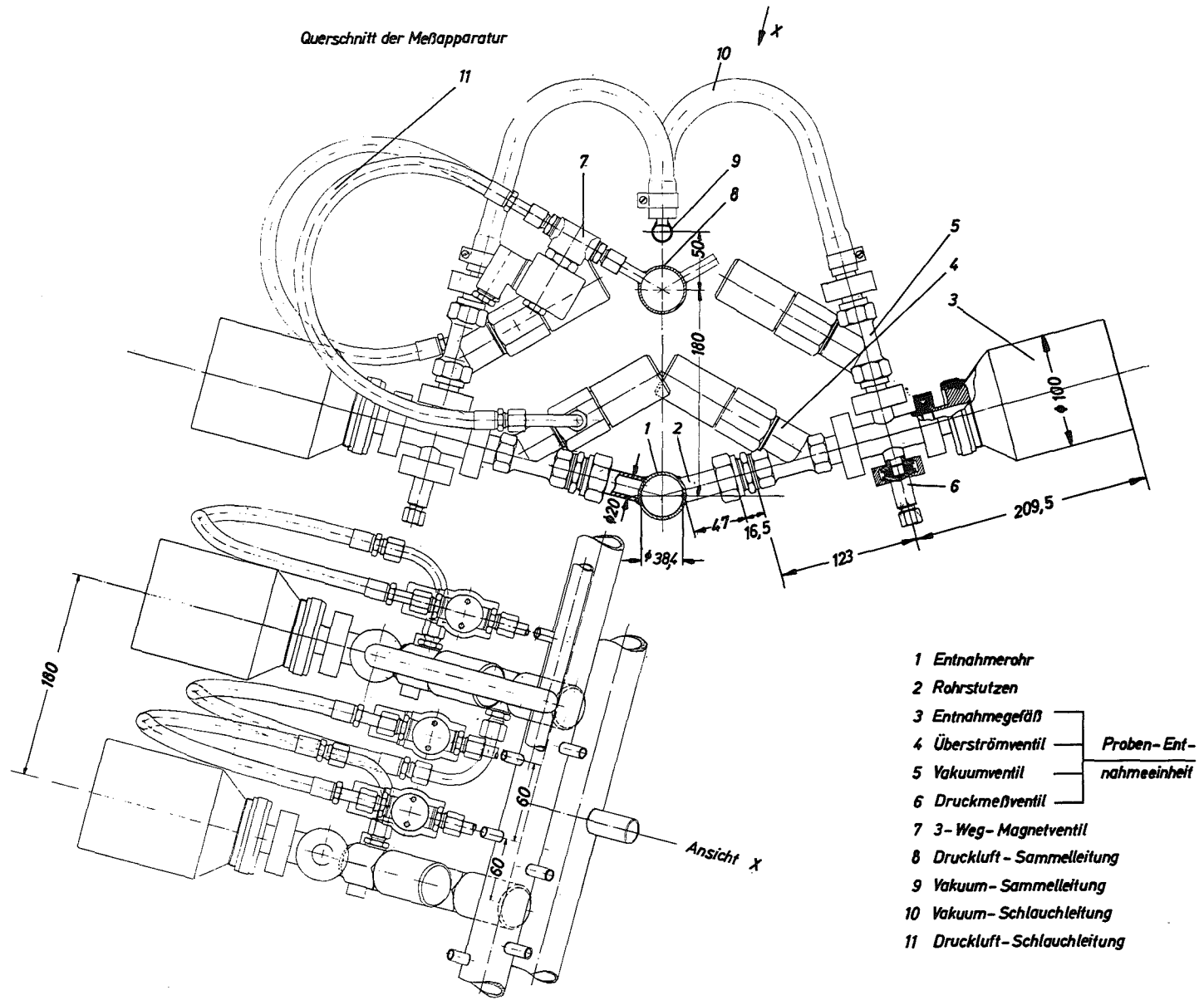


Abb. 4212-14: Blick auf obere Meßlanze in Ausströmrichtung

Abb. 4212-15: Proben-Entnahmearrichtung mit 15 Entnahmeeinheiten



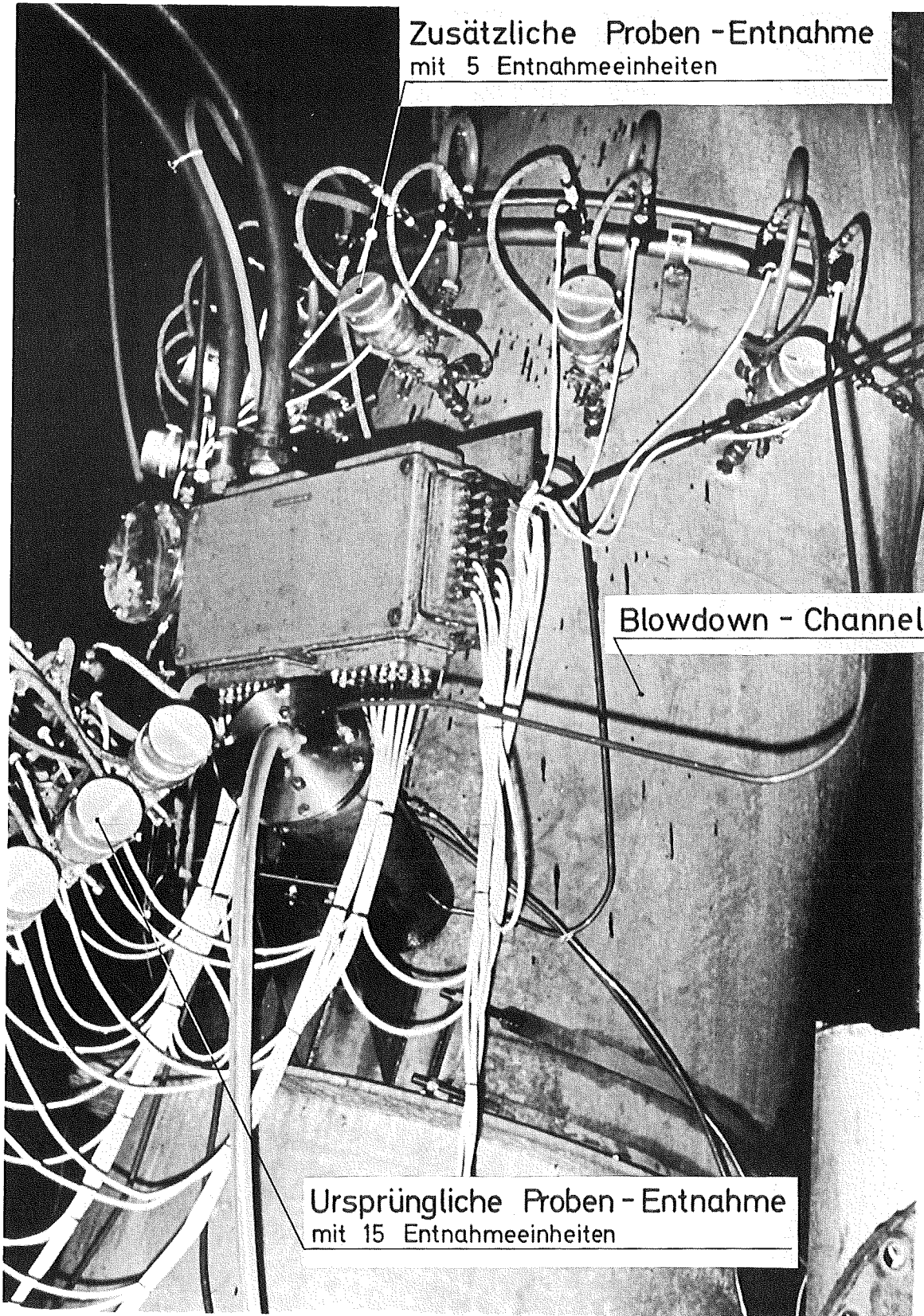


Abb. 4212 - 16a: Proben - Entnahmeeinrichtung
mit Blick auf Blowdown - Channel.

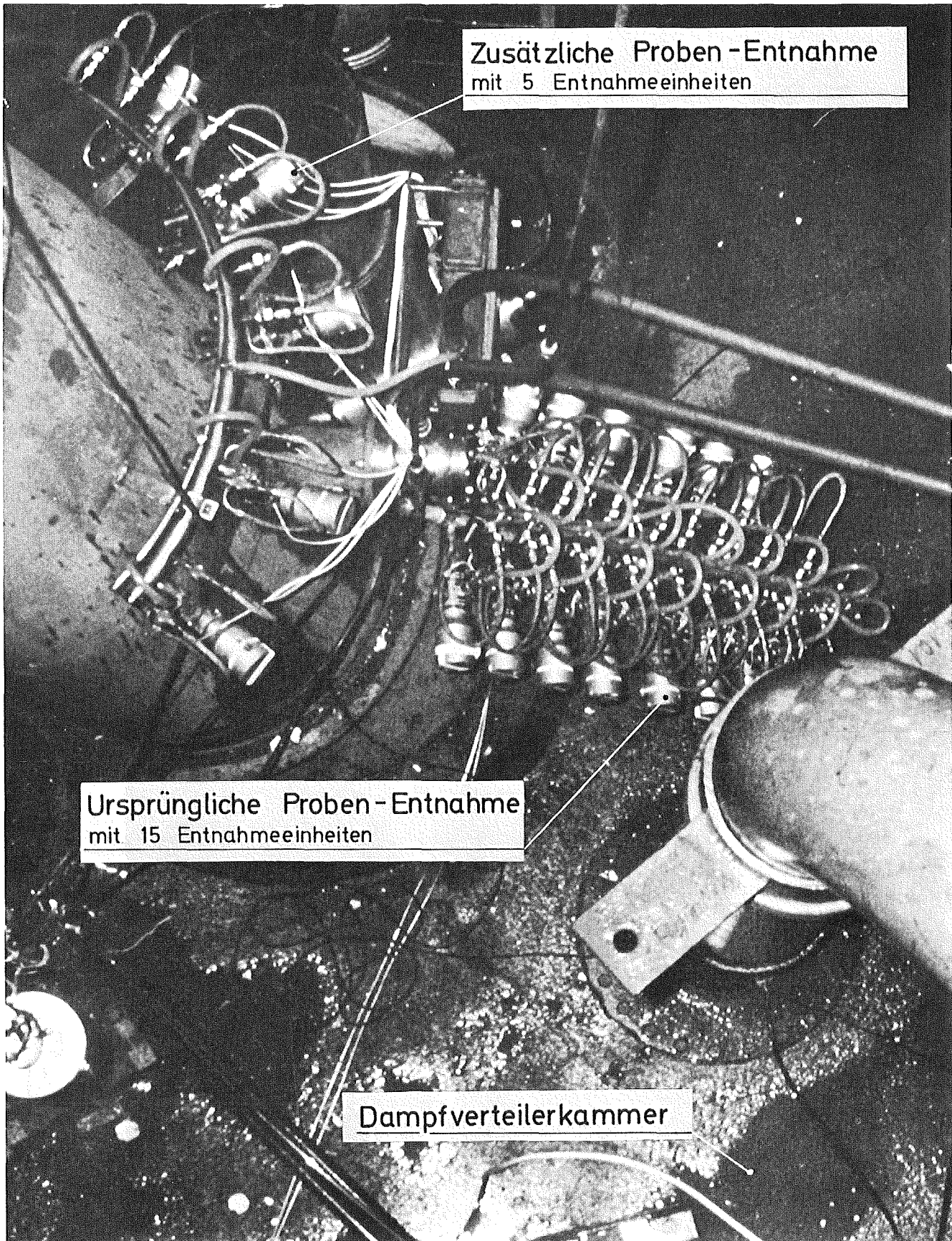


Abb. 4212 - 16 b: Proben - Entnahmeeinrichtung
mit Blick auf Dampfverteilerkammer

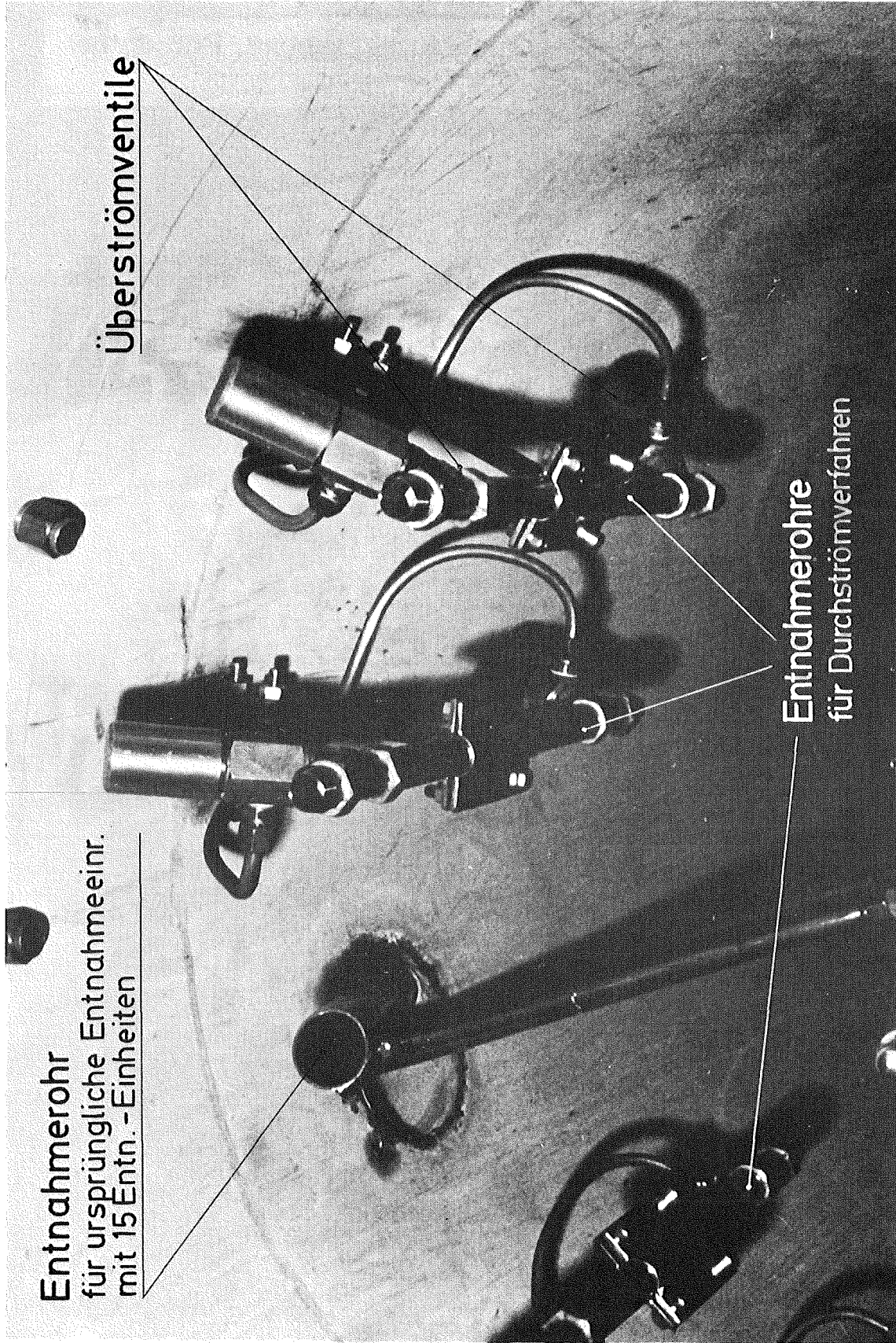


Abb. 4212 - 17: Blick auf Entnahmerohre für Durchström - Entn. - Verfahren

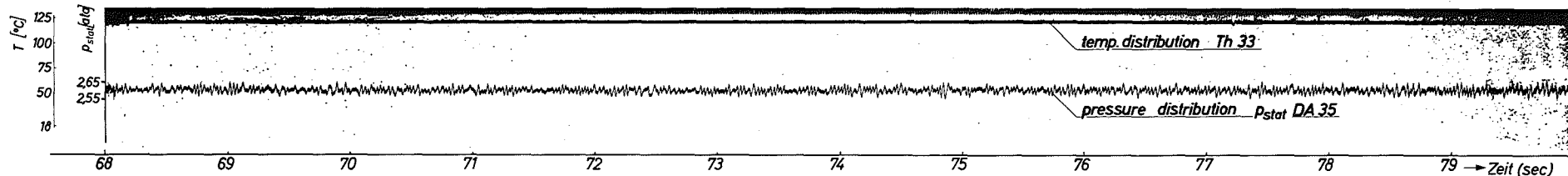
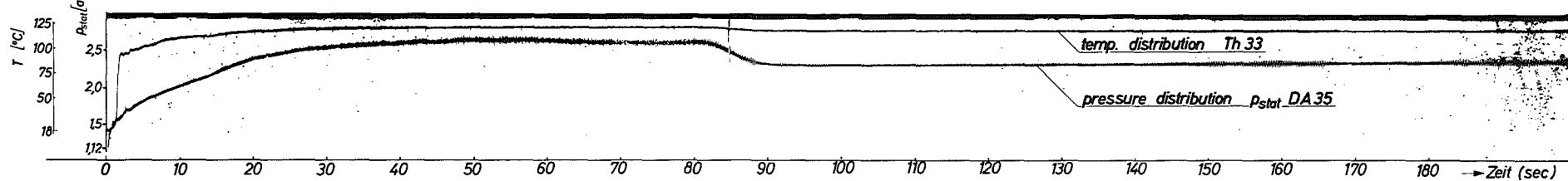
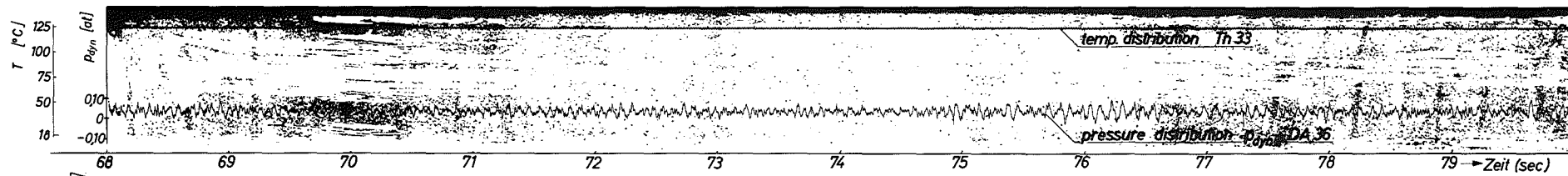
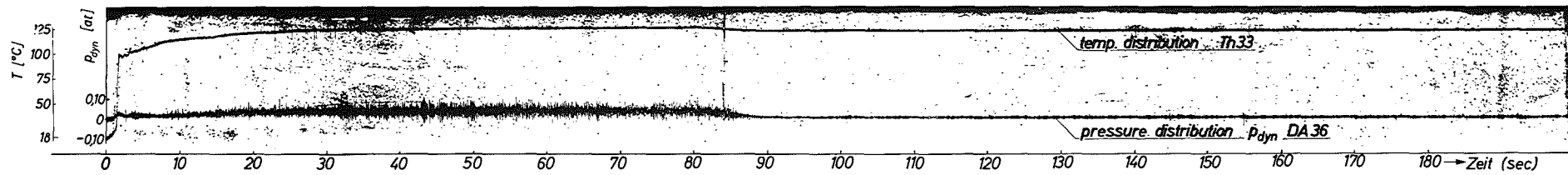


Abb. 4212-18: Typical Oscillograms, Blowdown No. 16

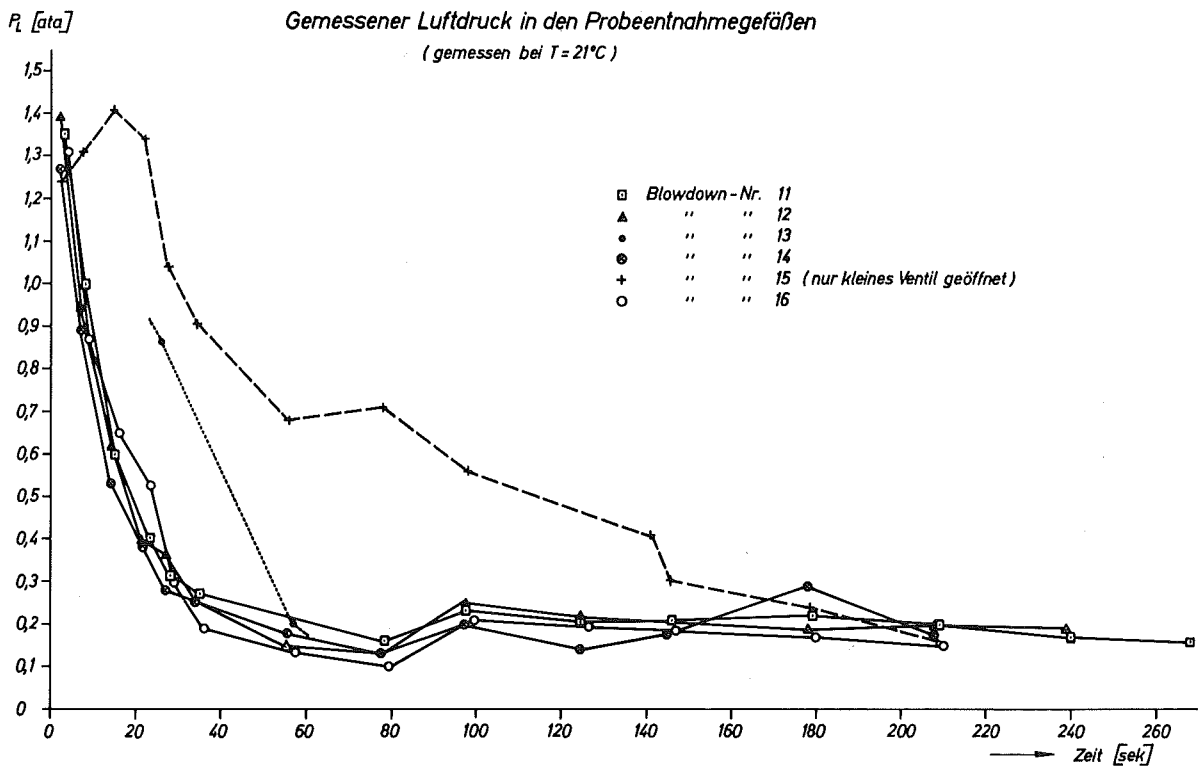
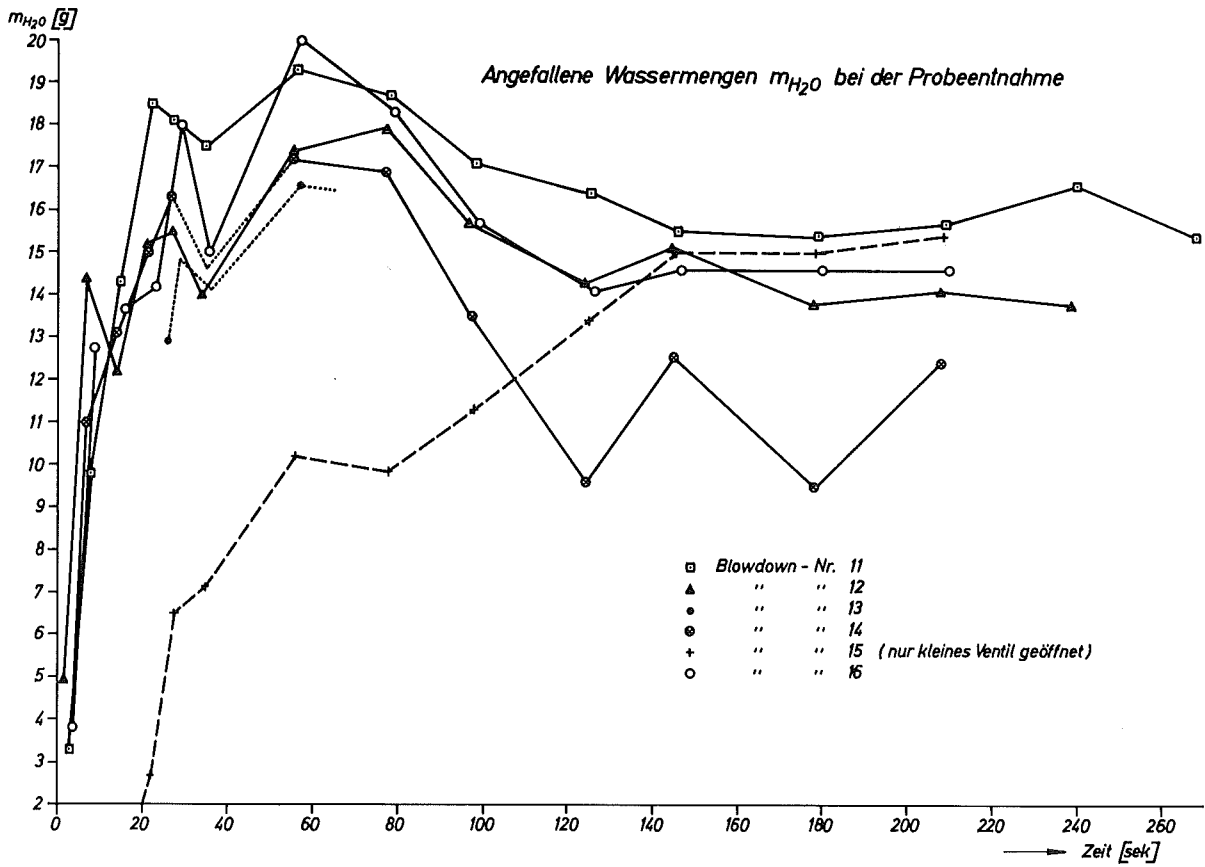


Abb. 4212-19: Füllmengen der entnommenen Proben

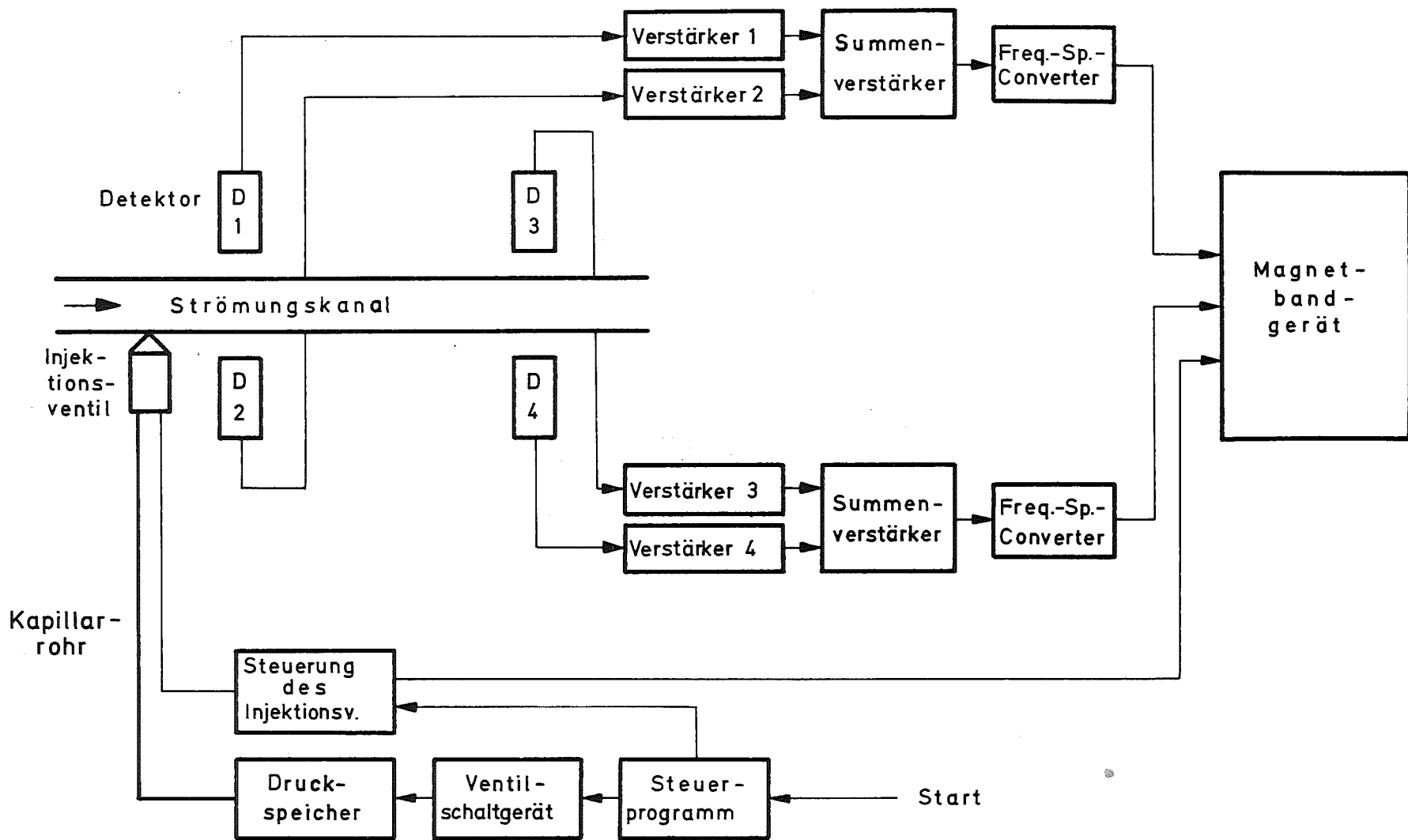


Abb. 4212 - 20: Schematische Darstellung der Versuchseinrichtung

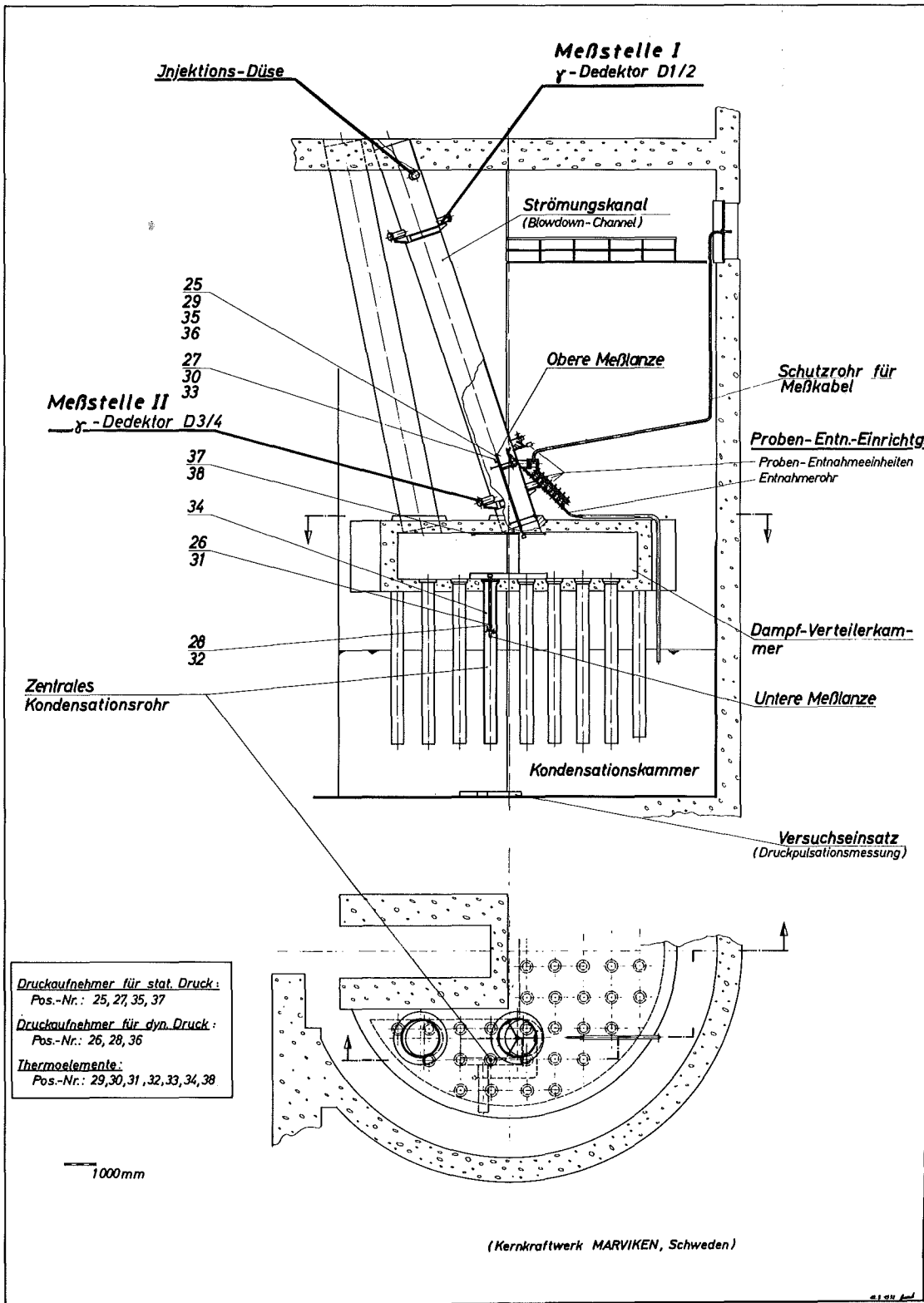


Abb. 4212 - 21: Übersichtsskizze der Meßeinrichtungen (GfK) in Marviken

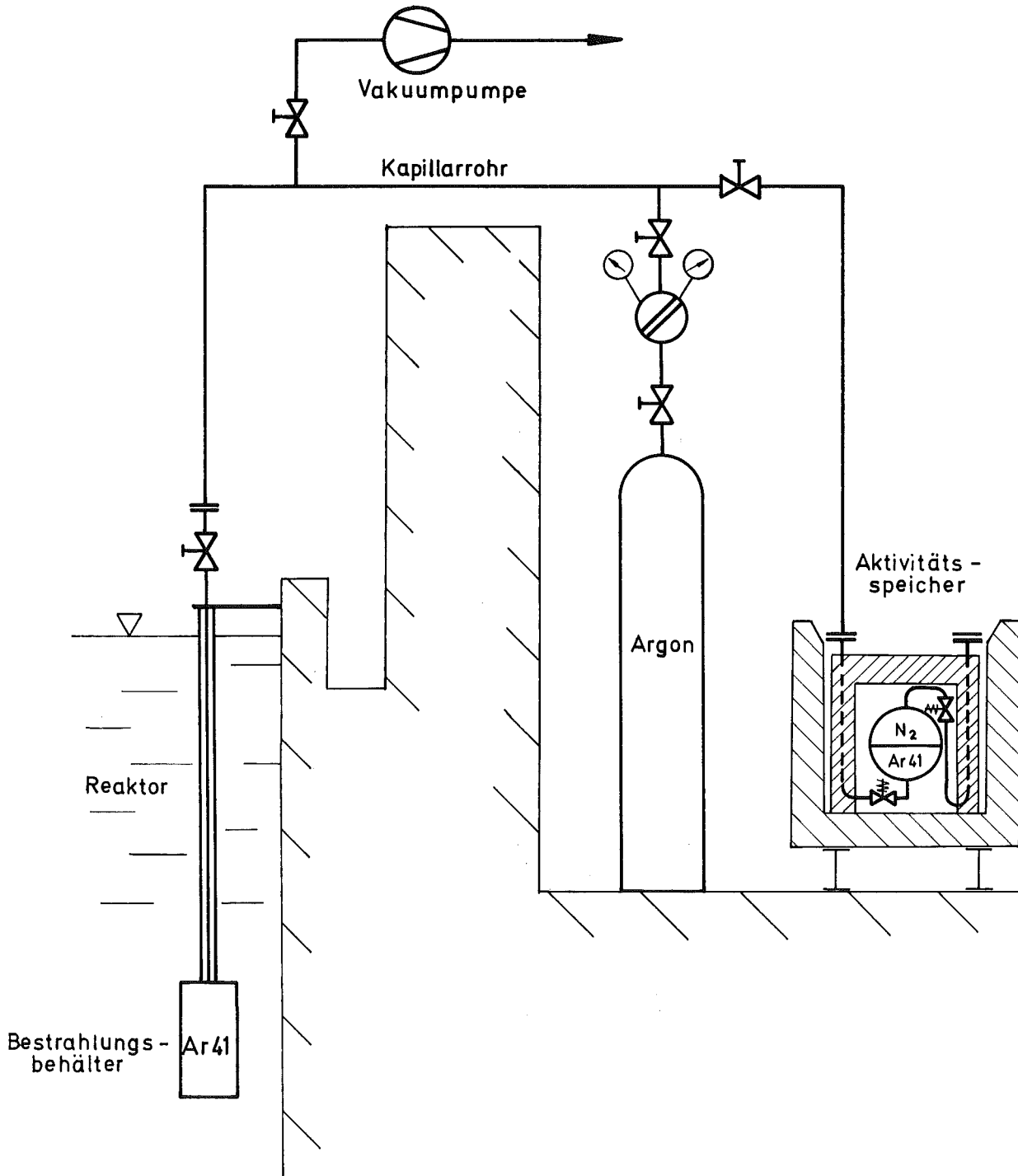


Abb. 4212-22: Schematische Darstellung der Aktivierungseinrichtung

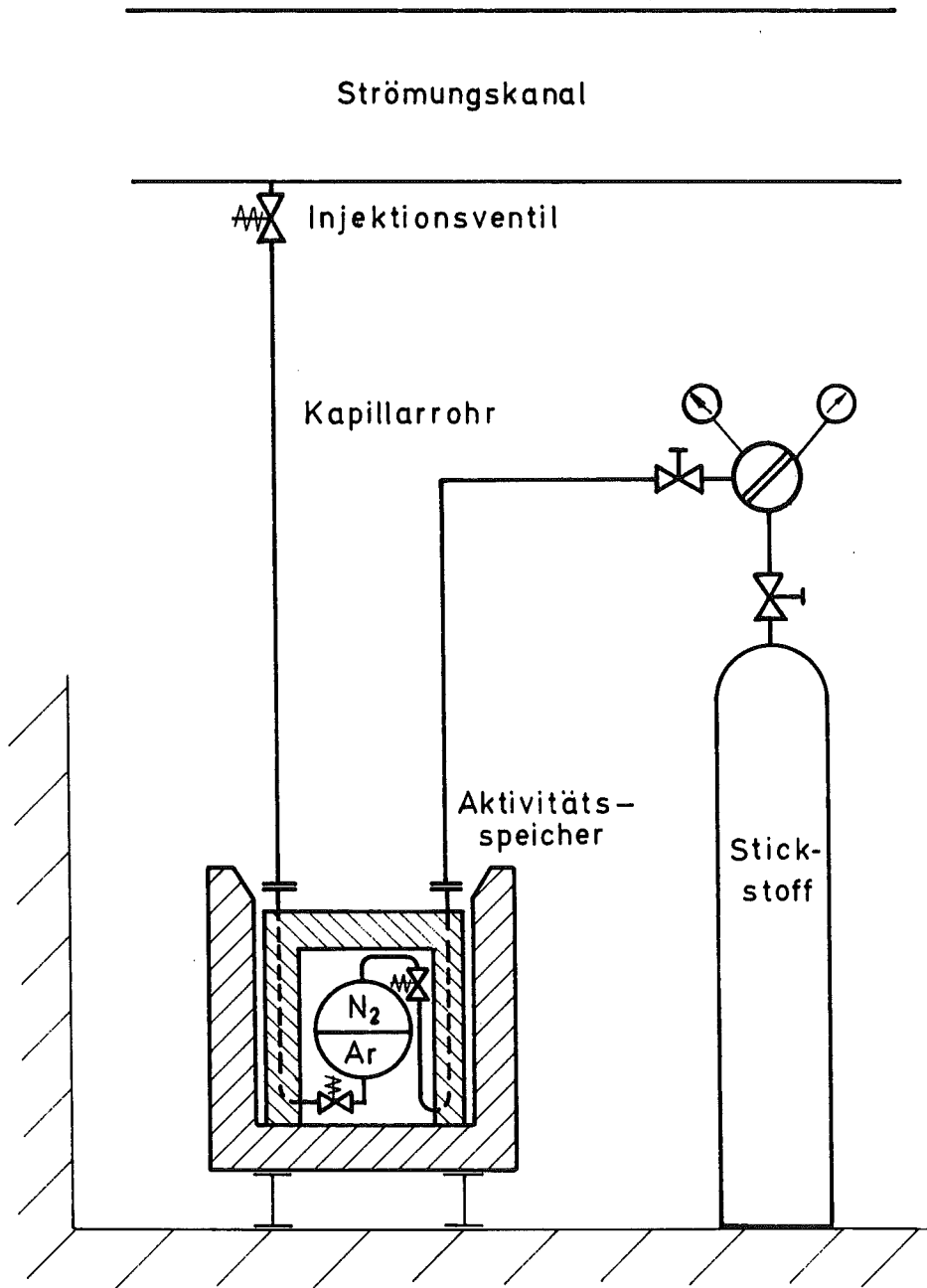


Abb. 4212-23: Schematische Darstellung der Injektionsvorrichtung

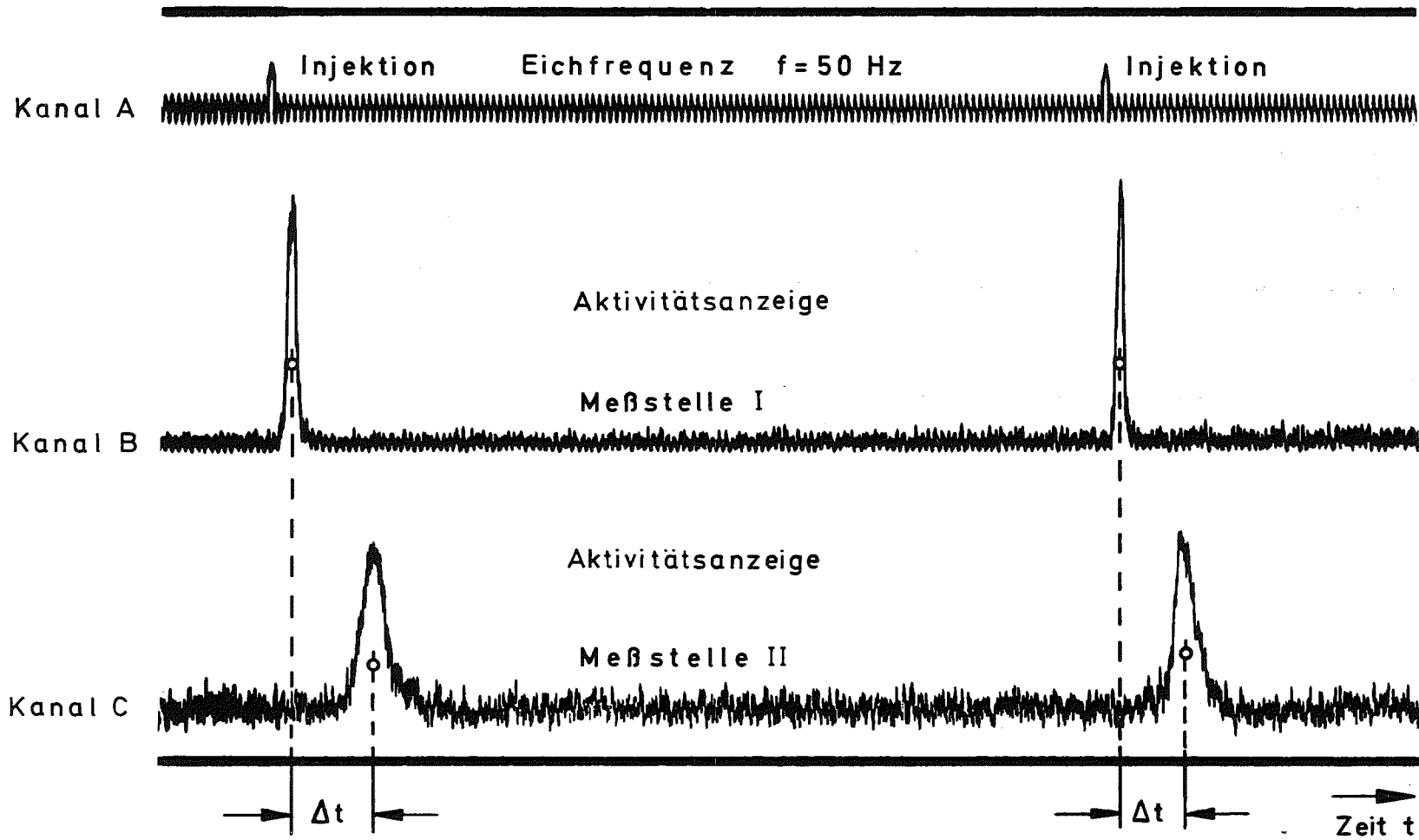


Abb. 4212-24: Ausschnitt aus Diagramm (Blowdown 14)

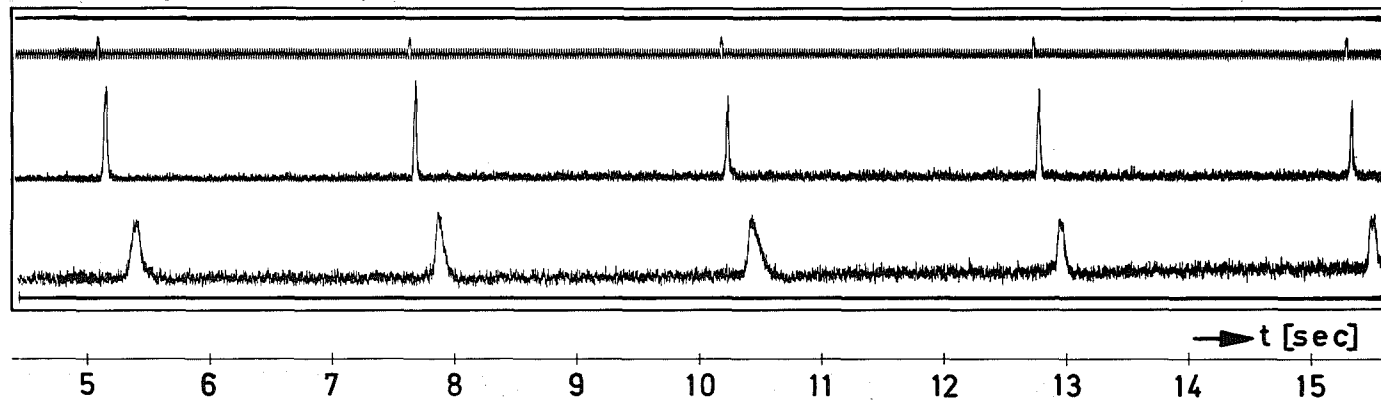
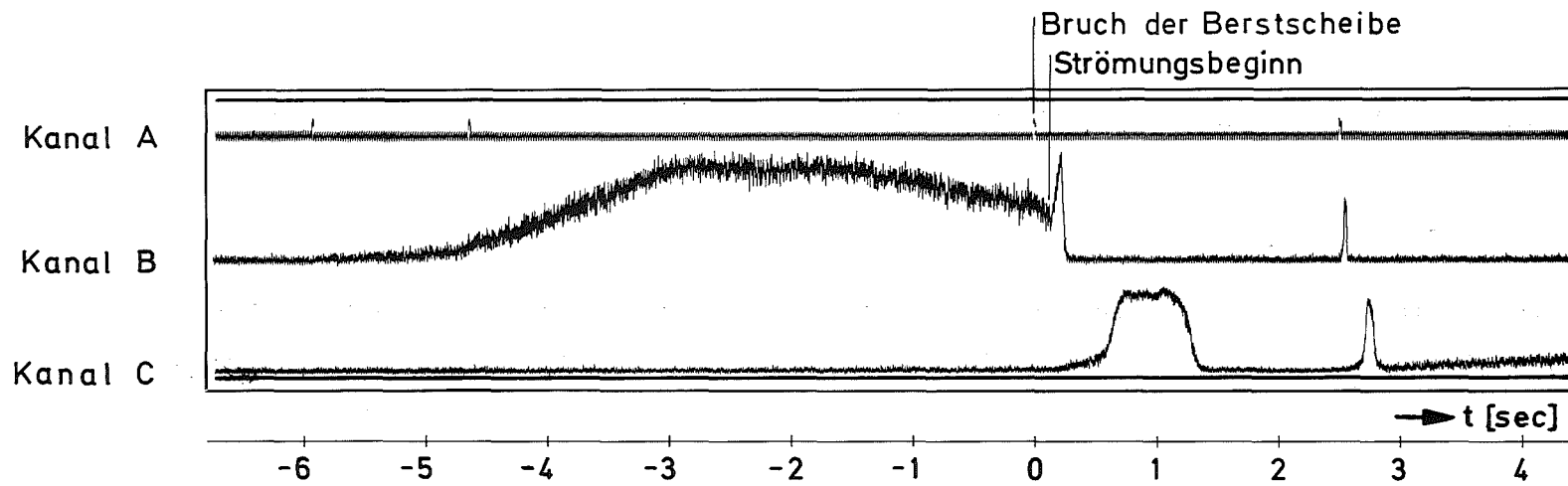


Abb. 4212-25: Anlaufphase Blowdown 14

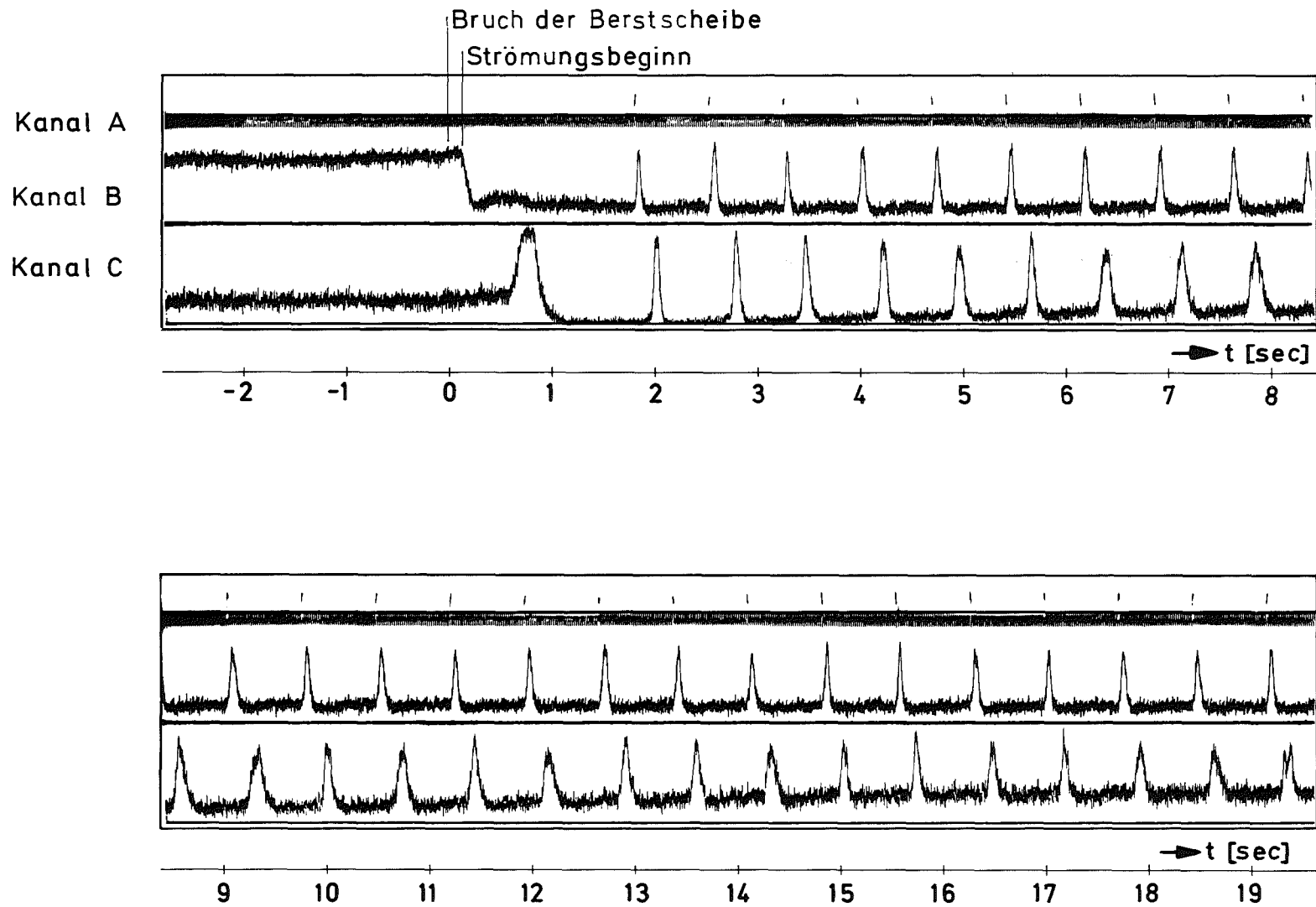


Abb. 4212-26: Anlaufphase Blowdown 16

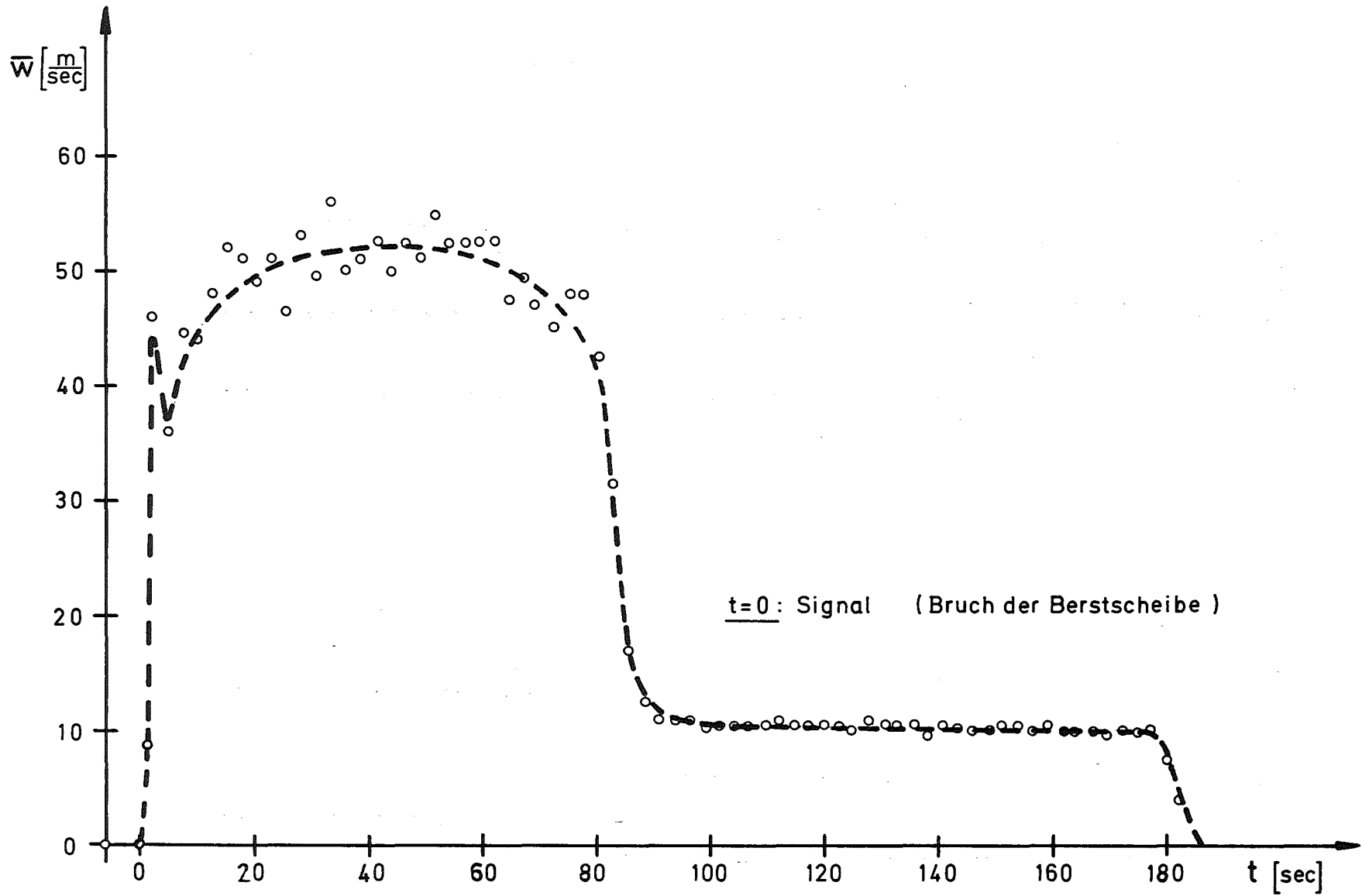


Abb. 4212-27: Mittlere Strömungsgeschwindigkeit im Blowdown-Channel
Blowdown 14

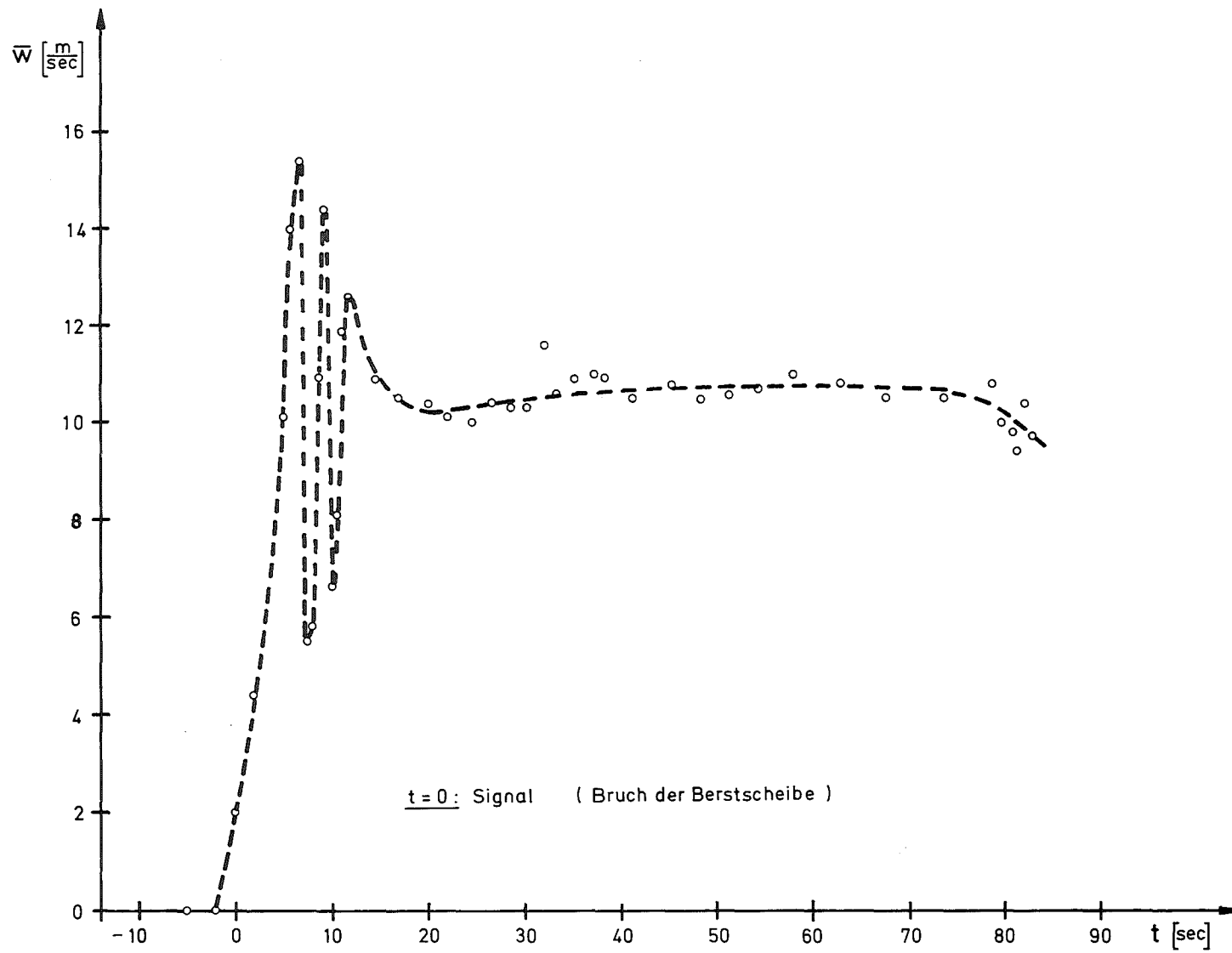


Abb. 4212-28: Mittlere Strömungsgeschwindigkeit im Blowdown-Channel
Blowdown 15

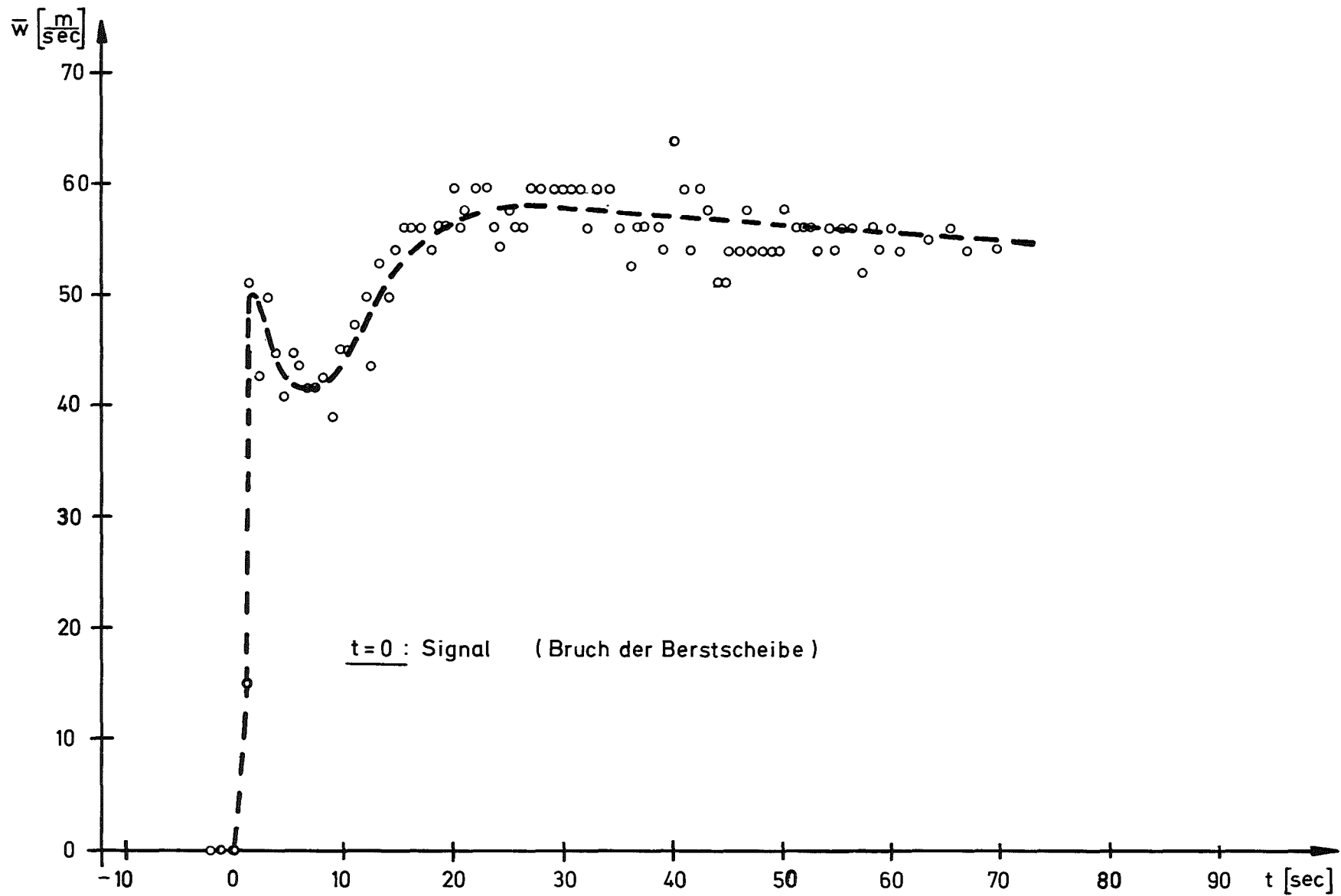


Abb. 4212-29: Mittlere Strömungsgeschwindigkeit im Blowdown-Channel
Blowdown 16

4220 Zweiphasendynamik

4222 Stoßrohrexperimente zur Druckwellenausbreitung in Zweiphasengemischen

(J. Holzinger, Diplomanden, H. Sameith, IRE)

Die Versuche zum Verhalten einzelner Blasen bei der Ausbreitung von Kompressionswellen in Luft/Wasserdampf-Wasser-Blasengemischen wurden weiter ausgewertet. Hierbei konnten in einer umfassenderen Analyse der Versuchsdaten die vorläufigen Ergebnisse bestätigt werden, die bereits im 2. Halbjahresbericht 1972 dargestellt wurden [1].

Weiterhin wurden die Experimente zur Ausbreitung von Expansionswellen in den Zweiphasen-Blasengemischen ausgewertet. Als Parameter waren bei den Versuchen im einzelnen variiert worden:

- Homogenitätsgrad, gekennzeichnet durch den mittleren Blasendurchmesser δ und den Gasvolumengehalt α :
 $1 \text{ mm} < \delta < 5 \text{ mm}, 0,1 \% < \alpha < 4,5 \%$
- Berstdruckverhältnis $\frac{p_T}{p_L} : 1,05 \lesssim \frac{p_T}{p_L} \lesssim 17$
- Temperatur $T : T_1 \approx 25 \text{ }^\circ\text{C}$ und $T_2 \approx 99 \text{ }^\circ\text{C}$

Die Auswertung ergab im wesentlichen die folgenden Resultate:

- Im Gegensatz zum Verhalten der Kompressionswellen (vgl. [2]) flachen die Profile der Expansionswellen mit wachsender Lauflänge immer stärker ab. Diese Erscheinung ist bei der höheren Temperatur $T \approx 99 \text{ }^\circ\text{C}$ wesentlich stärker ausgeprägt als bei Raumtemperatur.
- Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Expansionswellen nimmt ab, wenn der Gasvolumengehalt erhöht wird. Dieses Ergebnis entspricht damit dem Resultat für die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Kompressionswellen in den untersuchten Blasengemischen.

- Bei der höheren Temperatur $T \approx 99 \text{ }^\circ\text{C}$ ist die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Expansionswellen kleiner als bei $T \approx 25 \text{ }^\circ\text{C}$. Diese Temperaturabhängigkeit der Expansionswellengeschwindigkeit entspricht ebenfalls qualitativ dem Verhalten der Kompressionswellengeschwindigkeit.
- Im Gegensatz zu den Kompressionswellen konnte jedoch bei den Expansionswellen keine Abhängigkeit der Ausbreitungsgeschwindigkeit vom Berstdruckverhältnis festgestellt werden. Sie liegt in den untersuchten Homogenitätsbereichen bei $T \approx 99 \text{ }^\circ\text{C}$ etwa zwischen 25 m/s und 300 m/s und bei Raumtemperatur ungefähr im Bereich zwischen 65 m/s und 400 m/s.
- In den Blasengemischen von $T \approx 99 \text{ }^\circ\text{C}$ konnte bei höheren Gasvolumengehalten deutlich festgestellt werden, daß die Ausbreitungsgeschwindigkeit abnimmt, wenn der mittlere Blasendurchmesser bei festgehaltenem Gasvolumengehalt kleiner und damit der Homogenitätsgrad größer wird. Qualitativ entspricht diese Beobachtung wiederum dem Verhalten der Kompressionswellen.

Um das Verhalten von einzelnen Blasen in den Expansionswellen zu erfassen, war - ebenso wie bei den Kompressionsversuchen - ein kleiner Ausschnitt der Blasengemischsäule während der Expansionsversuche unter Zuhilfenahme einer Hochgeschwindigkeitskamera gefilmt worden. Eine erste Auswertung der Filme lieferte in Verbindung mit den Druckschrieben im wesentlichen die beiden folgenden Ergebnisse:

- Mit dem Beginn der Druckabnahme am Anfang der Expansionswelle ist eine Vergrößerung der Blasenabmessungen verbunden, wobei die Zunahme der Blasengröße ohne meßbare Totzeit einsetzt.
- Die Blasenvergrößerung kann in den heißen Gemischen mit $T \approx 99 \text{ }^\circ\text{C}$ in wesentlich größeren Zeiten ablaufen als die Druckabnahme in der Expansionswelle. Dagegen scheint die Zunahme des Blasen Volumens bei Raumtemperatur im allgemeinen zeitkonform mit der Druckabsenkung zu erfolgen.

Über das Ausbreitungsverhalten der Kompressionswellen in den Luft/Wasserdampf-Wasser-Blasengemischen wurde im Berichtszeitraum ein umfassender

Bericht veröffentlicht [3]. Insgesamt kann aufgrund der Meßergebnisse gesagt werden, daß eine Erweiterung der vorhandenen homogenen Gleichgewichtsmodelle zur Berechnung der Wellenausbreitung in Zweiphasengemischen notwendig zu sein scheint. Offenbar muß die Strukturinhomogenität der realen Gemische sowie die dadurch bedingten thermodynamischen Relaxationen - insbesondere wenn Phasenumwandlungen stattfinden können - in die Theorie mit einbezogen werden.

Um in einem ersten Schritt die Frage zu klären, ob und inwieweit die bisherigen Ergebnisse zur Kompressions- und Expansionswellenausbreitung in kondensierbaren und nichtkondensierbaren Blasengemischen auch auf andere Geometrien übertragen werden können, wurde eine zweite Stoßrohranlage aus Glas erstellt. Die Längen von Treibrohr und Lauf sind praktisch ebenso groß wie die des bisher benutzten Stoßrohres. Die Nennweite der neuen Anlage beträgt jedoch 50 mm und ist damit um etwa die Hälfte kleiner als die der alten Anlage. Zwecks besserer Zeitauflösung und weitgehend automatischer Weiterverarbeitung der Daten werden die Druckänderungen mit einer analogen Meßwerterfassungsanlage auf Magnetbändern mit hoher Geschwindigkeit registriert. Aus den analogen Signalen können dann nach Digitalisierung und Eingabe der digitalen Meßdaten in entsprechende EDV-Programme die gesuchten, charakteristischen Größen der Welle, wie Ausbreitungsgeschwindigkeit, räumliche Ausdehnung und Druckverhältnis, automatisch bestimmt werden.

Zitierte Literatur:

[1] 2. Halbjahresbericht 1972, KFK 1787, Mai 1973

[2] 1. Halbjahresbericht 1972, KFK 1702, Dez. 1972

Eigene Veröffentlichung:

[3] H. Sameith:

Untersuchungen zur Ausbreitung von Stoßwellen in relaxierenden Zweikomponenten-Blasengemischen, KFK 1796, Mai 1973

4230 Notkühlung von LWR
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Brennstabverhalten und zur Auswirkung von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung

4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall
(D. Kirsch, IRE; H. Unger, IKE Stuttgart)

Die allgemeine Zielsetzung der theoretischen Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall, die in enger Zusammenarbeit mit dem IKE/Stuttgart durchgeführt werden, ist im 2. Halbjahresbericht des PNS (KFK 1787) spezifiziert. Schwerpunkte der Arbeiten im Berichtszeitraum lagen auf der Bereitstellung vorhandener Codes auf den Rechenmaschinen in Stuttgart und Karlsruhe für die notwendigen analytischen Arbeiten zur Auslegung der geplanten Experimente, auf der Implementierung des Systemkerns (SSYST) für das Codesystem zur Beschreibung des LWR-Brennstabverhaltens beim Kühlmittelverlustunfall und bei der Konzipierung einzelner Detailmodelle für dieses Codesystem.

Neben umfangreichen Vorbereitungsarbeiten allgemeiner Art zur Erstellung des Programmsystems wurden im einzelnen folgende Arbeiten durchgeführt:

1. Verfügbarmachung vorhandener Rechenprogramme

1.1 RELAP-3 (W. Gulden, I. Mögle, D. Kirsch)

Das Rechenprogramm RELAP-3, das im Auftrage der USAEC von ANC, Idaho, entwickelt wurde, beschreibt das Verhalten des Primärkreislaufes von Leichtwasserreaktoren während postulierter Störfälle, also z.B. beim Kühlmittelverlustunfall oder beim Pumpenausfall. Berechnet werden Massenströme, Drücke, Temperaturen, Masseninhalte, Energieinhalte und Dampfanteile im Primärkreislauf während transients Vorgänge bei Leichtwasserreaktoren, doch ist das Programm so flexibel, daß auch einfachere geometrische Anordnungen (z.B. für Experimente) behandelt werden können. Einzelheiten über die geometrische Beschreibung des zu analysierenden Systems, die physikalischen Modelle und die numerische

Lösung sind aus [1] zu entnehmen. Im Berichtszeitraum wurde die große Version des Programms RELAP-3 bereitgestellt. Mit Hilfe des Programms VDRELAP-3 wurde zusätzlich eine flexiblere Version des Programms für Produktionsrechnungen erstellt. RELAP-3 wurde als Modul RELAP in SSYST integriert (vgl. 1.3). Der Code RELAP-3 läuft inzwischen in Stuttgart und auch an der Karlsruhe IBM/370-165. Wegen des Verlusts von 3 bis 4 signifikanten Stellen beim Übergang von der Stuttgarter CDC 6600 zur Karlsruhe IBM/370-165 war in Karlsruhe eine doppelt genaue Version des Programms RELAP-3 zu erstellen. Die Arbeiten hierzu sind abgeschlossen.

1.2 THETA-1B (L. Ehnis)

Das Rechenprogramm THETA-1B, das wie RELAP-3 von ANC, Idaho, entwickelt wurde [2], dient zur Durchführung von thermischen Analysen an Brennstäben von Leichtwasserreaktoren. Es enthält Rechenmodelle zur Erfassung der Wärmeleitung im Brennstab, der Wärmeübergangszahlen und der Strömungsverhältnisse im Kühlkanal (Wasser-Wasser/Dampfgemisch, Schlupf). Vorzugeben sind Druck, Massenstrom und Enthalpie am Einlaß.

Das Programm wurde trotz fehlender Programmbeschreibung verfügbar gemacht. Es besteht aus dem sogenannten Precompiler, der sehr stark vom Maschinencompiler bzw. der Maschine abhängig ist, und dem eigentlichen Rechenprogramm. THETA-1B läuft zur Zeit in Stuttgart als separates Programm. Der Anschluß an das Programmsystem SSYST (vgl. 1.3) ist vorgesehen. Wichtig ist in diesem Zusammenhang der Datentransfer mit anderen Modulen, um die Eingabe zu vereinfachen.

1.3 Programmsystem SSYST (R. Rühle, L. Ehnis, W. Gulden, D. Kirsch)

Der SSYST-Kern, der den Ablauf der SSYST-Modulen steuert und deren Daten verwaltet, wurde in Karlsruhe auf der IBM/370-165 implementiert. Es handelt sich hier um eine vereinfachte Form des Stuttgarter Systemkerns RSYST, die auf einige Vorteile für den Benutzer verzichtet. Die vorgenommenen Vereinfachungen werden jedoch für die Verwendung als Systemkern für das Codesystem zur Beschreibung des LWR-Brennstabverhaltens beim Kühlmittelverlustunfall ohne Bedeutung sein.

Außerdem wurden folgende RSYST-Hilfsmodule an Karlsruhe übergeben und mit dem SSYST-Systemkern verknüpft:

- MATRIX (erzeugt zweidimensionale RSYST-Datenblöcke)
- VEKTOR (erzeugt einen RSYST-Datenvektor - Real)
- IVEKTOR (erzeugt einen RSYST-Datenvektor, Integer)
- PLOT (erlaubt die Darstellung von RSYST-Datenblöcken und -vektoren als Print-Plot)

Die Darstellung der Ergebnisdatenblöcke mit Hilfe des Moduls PLOT erleichtert die Auswertung der RELAP-Ergebnisse wesentlich.

2. Modulentwicklung

2.1 Deformationsmodul (S. Dagbjartsson, E. Munder)

Als erster Schritt zur Erfassung des Hüllrohraufblähens (ballooning) wurde ein eindimensionales Deformationsmodell (HRODEF-1) entwickelt. Vereinfachend wurde vorläufig die Beibehaltung der Axialsymmetrie während der Transiente für Brennstoff und Hülle angenommen. Der Brennstab wird axial in Segmente unterteilt. Geometrie und Spannungszustand vor der Transiente müssen auf der SSYST-Datei bereitstehen. Das mathematische Modell zur Beschreibung der Deformation von Brennstoff und Hülle besteht aus dem Teilmodell für die elastische Verformung von Brennstoff infolge Temperaturänderung und einem elastisch-plastischen Schalenmodell für die Hülle.

Das erstgenannte Teilmodell für den Brennstoff wurde von dem Programm SAS-IA übernommen. Dabei wird von den thermoelastischen Feldgleichungen in Zylinderkoordinaten für rotationssymmetrische Deformation ausgegangen.

Das Hüllrohrmodell basiert auf der Schalentheorie (kleine Wandstärke im Vergleich zum Rohrdurchmesser).

Das Programm läuft bereits als ein Modul des Programmsystems SSYST. Die vollständige Implementierung in eine Programmfolge zur Beschreibung

des thermischen und des mechanischen Verhaltens wird begonnen. Ferner wird das physikalische Modell für die Hüllrohrdeformation durch die Einführung zeitabhängiger Kriechvorgänge verbessert.

2.2 Wärmeleitunterprogramm (L. Ehnis)

Für das Zusammenwirken mit dem Deformationsmodul ist ein Wärmetransportmodul für den Brennstab notwendig, der mit einem zeitlich veränderlichen Maschennetz arbeiten kann. Alle derzeit bekannten Wärmetransport-Programme können diese Forderung nicht erfüllen. Die Arbeiten für den derzeit bearbeiteten Modul für das geplante Codesystem hatten deshalb die Erfüllung dieser Forderung als einen wesentlichen Schwerpunkt.

Das nach der Spezifikation des IRE bearbeitete Unterprogramm berücksichtigt nur Wärmeleitung in radialer Richtung. Eine zeitlich variable Zonenteilung (zeitl. Koordinatenänderung von Maschenstützstellen) kann durch entsprechende Aufrufe des Unterprogramms realisiert werden. Für jede Masche ist das zugehörige Material mit temperaturabhängigen Stoffwerten vorgebar. Das Unterprogramm läßt die Vorgabe von Spalten zu, wobei der Wärmeübergang bzw. -durchgang als fiktive Wärmeleitung behandelt wird. Die Wärmeübergangszahl ist als Funktion der Spaltweite vorzugeben. Ein spezielles Unterprogramm ermöglicht an äußeren Rändern die Vorgabe von Konvektions-Randbedingungen. Variable Kühlmitteltemperaturen und Wärmeübergangszahlen können durch Bereitstellung der entsprechenden Daten realisiert werden.

Das Unterprogramm wird z.Zt. als separates Programm getestet. Im nächsten Schritt soll es an SSYST angeschlossen und der notwendige Datenverkehr organisiert werden.

3. Anwendung des Programmsystems

3.1 Berechnung von Wärmeübergang und Druckverhalten an einer Einrohrteststrecke (R.Roll, S. Dagbjartsson, H. Unger)

Mit RELAP-3 wurden die von Hicken et.al. [3,4,5] durchgeführten Abblasversuche an einer Einrohrversuchsstrecke nachgerechnet, um die Eignung

des Programms für die Nachrechnung relativ kleiner Versuchsanordnungen festzustellen.⁺⁾ Wie sich ergab, ist das Programm mit gewissen Einschränkungen geeignet, derartige Versuchskreisläufe zu berechnen. Das verwendete Zweiphasenmodell gilt z.B. streng genommen nur für große Volumina mit stagnierender Strömung. Durch den sofortigen Sprung in stabiles Filmsieden liegen die berechneten Temperaturen zum Teil höher als die gemessenen. Innerhalb eines Kontrollvolumens wird die Temperatur eines Brennstabs in axialer Richtung als konstant angenommen, so daß Heißstellen gesondert zu rechnen sind.

Trotz der Unzulänglichkeiten des Programms, die zum Teil verbessert wurden (Berücksichtigung des verzögerten Filmsiedens im Programm. Zulassen von Voreilen der Dampfphase bei einem Leck am kalten Strang), konnten die Versuchsergebnisse bezüglich Druck- und Temperaturverlauf für fast alle Leckpositionen und -ausmaße gut bestätigt werden.

3.2 Berechnung von Abblasevorgängen an LWR-Modellen (D. Steiner, S. Dagbjartsson, H. Unger)

Mit Hilfe von RELAP-3 wurden Lecks an LWR-Primärkreislaufsystemen simuliert und das Abblasverhalten analysiert. Eine eingehende Analyse der Ergebnisse und Vergleiche mit den Ergebnissen anderer Programme wird z.Zt. durchgeführt.

3.3 Nachrechnung der In-pile-Versuche der GfK (D. Steiner, Maravic)

Mit den Auslegungsrechnungen der geplanten In-pile-Versuche im Dampf-Kontaminations-Loop des FR2 zur Untersuchung des Brennstabverhaltens in der Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalles (PNS 4237) wurde begonnen. Um die Versuchsbedingungen und -ergebnisse schon von Anfang an möglichst gut zu erkennen, werden die geplanten experimentellen Gegebenheiten mit Hilfe von RELAP-3 vorausberechnet.

+) K. Roll, S. Dagbjartsson, H. Unger:
"Berechnung von Wärmeübergang und Druckverhalten für Abblasversuche mit einer Einrohrteststrecke", Mai 1973
unveröffentlicht

Zitierte Literatur:

[1] W.H. Rettig et. al.: RELAP-3 - A Computer Program for Reactor Blowdown Analysis. Idaho Nuclear Corporation IN-1321, June 1970

[2] C.H. Hocevar et.al.: THETA 1-B, A Computer Code for Nuclear Reactor Core Thermal Analysis. Idaho Nuclear Corporation, IN-1445, February 1971

[3] E. Hicken, F. Agemar: Neue Ergebnisse experimenteller Untersuchungen des Wärmeübergangs beim Abblasen wassergekühlter Reaktoren. Reaktortagung Karlsruhe 10. - 13.4.1973

[4] AEG-Abschlußbericht über die Abblaseversuche mit innendurchströmtem Rohr. AEG-E3-2288.

[5] E. Hicken, E. Koch, O. Schad: Heat Transfer During Blowdown with an Inside Cooled Tube as Test Section, AEG-E3-2376.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall
(M. Boček, C. Petersen, S. Leistikow, D. Jennert, IMF)

1. Ergebnisse einer USA-Reise

Während einer USA-Reise zur Salt Lake City Conference on Light Water Reactor Safety, ANC/Idaho Falls, GE/San Jose und ORNL/Oak Ridge im März/April 1973 wurde das eigene Versuchsprogramm zum Materialverhalten unter den Bedingungen eines Kühlmittelverlustunfalles in zahlreichen Expertengesprächen überprüft, in allen wesentlichen Punkten bestätigt und in den folgenden Themen als besonders bearbeitungsnotwendig befunden.

1.1 Mechanische Untersuchungen

- Vergleichende Untersuchungen zum Festigkeitsverhalten des Zircaloy-Hüllmaterials bei ein- und dreiaxialer Zugbeanspruchung und isothermen sowie transienten Temperaturbedingungen,
- Berstversuche an Rohrkapseln bei Temperaturen unterhalb des $\alpha \rightarrow \beta$ -Umwandlungspunktes und Rohrrinnendrücken von 70-140 at, gegebenenfalls unter Verwendung vorkorrodieren und vorbestrahlten Materials.

1.2 Korrosionschemische Untersuchungen

- Vergleichende Versuche zur Kinetik der isothermen und transienten Zircaloy/Wasserdampf-Reaktion,
- Einfluß betriebsbedingter Voroxidation des Zircaloy auf Ausmaß der Oxidation, Eutektikumbildung mit Abstandshaltermaterialien und oxidative Wechselwirkung des Hüllmaterials mit Brennstoff bzw. Spaltstoff beim Kühlmittelverlustunfall.

1.3 Kombinierte mechanisch-chemische Untersuchungen

- Mechanische Eigenschaften von Zircaloy verschiedenen Sauerstoffgehaltes, unter besonderer Berücksichtigung der O_2 -stabilisierten α -Einwachsungen in die transformierte β -Phase und der dadurch verminderten Duktilität,
- Abschreckversuche an verschieden stark oxidierten Hüllrohren unter Variation der Abschreckgeschwindigkeit (therm. Spannung) und einer überlagerten bzw. nachgeordneten Druckbeanspruchung (mechanische Spannung) unter besonderer Berücksichtigung von Festigkeit und Duktilität.

Die experimentellen Untersuchungen dieser und anderer offener Probleme ist Gegenstand der jetzt beginnenden mechanischen und korrosions-chemischen Untersuchungen.

2. Derzeitiger Stand der experimentellen Untersuchungen

2.1 Röntgenographische und metallographische Untersuchungen von temperaturbedingten Gefügeänderungen von Zircaloy-4-Hüllrohren

Die während eines LOCA auftretenden Temperaturänderungen können Änderungen im ursprünglichen Kristallgefüge hervorrufen. Bekanntlich wird das mechanische Verhalten in plastisch stark anisotropen Werkstoffen wesentlich durch die Texturbeschaffenheit bestimmt. Bisher wurden Texturuntersuchungen nur an reinem Zirkon vorgenommen. Diese wurden an Proben durchgeführt, die bei hohen Temperaturen über längere Zeit (ca. 1 h) geglüht und langsam abgekühlt wurden (ca. $1^{\circ}/\text{sec.}$). R.K. McGeary und B. Lustman [1] untersuchten Proben, die bei 600°C geglüht wurden. Sie fanden bei dieser Temperatur, also noch unterhalb der allotropen Umwandlung des Zirkons aus der hexagonalen α -Phase in die kubisch-raumzentrierte β -Phase, gegenüber dem hoch kaltverformten Ausgangszustand eine Texturänderung. Proben, die bei Temperaturen bis 1400°C geglüht wurden, untersuchten J.H. Keeler und A.H. Geisler [2]. Auch sie stellten eine Texturänderung in Abhängigkeit von der Glüh-temperatur fest.

In den im IMF durchgeführten Experimenten soll die Änderung der Textur bei schnellen Aufheizgeschwindigkeiten, kurzer Glühzeit und schnellen Abkühlgeschwindigkeiten untersucht werden, also unter Bedingungen, wie sie beim LOCA auftreten. Zunächst soll der Einfluß der Glühdauer, in den folgenden Versuchen dann der Einfluß der Aufheiz- und der Abkühlgeschwindigkeit auf Texturänderungen untersucht werden.

Als Probenmaterial diente Zircaloy-4-Hüllrohr, das nach Angaben des Herstellers folgenden Ausgangszustand hatte: ca. 60 % kaltverformt mit anschließender Stress-Relief-Glühung im Vakuum bei $480 - 520^{\circ}\text{C}$ über 3 - 6 Stunden. Um aus dem Rohrabschnitt eine ebene Texturprobe herzustellen, wurden über den Umfang 8 Kreissegmente herausgeschnitten. Um den Anschluß an die bisher vorliegenden Untersuchungen herzustellen, wurden die zur Wärmebehandlung bestimmten Rohrsegmente in einem Vakuumabschreckofen einer 1-stündigen Glühung bei 1100°C unterworfen und daraufhin innerhalb von 10 sec. in Wasser abgeschreckt. Dabei wurde der Phasenübergang zweimal durchlaufen.

Danach wurden die Kreissegmente nebeneinandergelegt eingebettet, so daß eine Probenoberfläche von 20 x 20 mm entstand.

Röntgenographisch wurden die Proben in einem Siemens-Goniometer untersucht und aus den dabei erhaltenen Intensitäts-Schrieben Polfiguren gezeichnet. Metallographische Untersuchungen wurden mit dem Lichtmikroskop gemacht.

Die in Abbildung 4235-1 dargestellte {0002}-Polfigur der Probe im Ausgangszustand zeigt einen Kippwinkel von 34° der (0001)-Ebene gegen die Axial-Radialrichtung (AR-RR). Das in diesem Ausgangszustand vorliegende metallographische Gefüge ist aus Abbildung 4235-2 zu ersehen. Deutlich ist ein feinkörniges Walzgefüge mit länglichen Körnern in Walzrichtung zu erkennen. Die {0002}-Polfigur der bei 1100°C 1 Stunde lang geglühten und in Wasser abgeschreckten Probe, in Abbildung 4235-3, läßt erkennen, daß sich ein neues Belegungsmaximum in Richtung der Rohrachse herausgebildet hat. die (0001)-Ebene ist jetzt um ca. 60° in Richtung Rohrachse-Axialrichtung (RA-AR) geneigt. Das metallographische Gefüge der Körner, in Abbildung 4235-4, hat während des Phasenübergangs eine wesentliche Änderung erfahren. Zur Verdeutlichung der Texturänderung durch Wärmebehandlung ist in Abbildung 4235-5 ein Rohrsegment mit eingezeichneten hexagonalen Elementarzellen dargestellt. Im Ausgangszustand (I) liegt der Elementarkörper um 34° in Radialrichtung (RR) gekippt in der Rohrwandung. Im geglühten Zustand (II) liegt der hexagonale Elementarkörper jetzt unter einem Winkel von 60° in Richtung der Rohrachse (RA).

Die Ausgangstextur stimmt mit der in der Literatur angegebenen weitgehend überein. Vergleicht man jedoch die Texturänderung der wärmebehandelten Probe mit den in der Arbeit von J.H. Keeler und A.H. Geisler [2] dargestellten Texturen, so stellt man fest, daß keine Übereinstimmung zu erkennen ist. Vermutlich ist dieser Unterschied auf unterschiedliche Abkühlungsgeschwindigkeiten zurückzuführen. Übereinstimmend mit den Beobachtungen von R.A. Holt [3] ist die festgestellte Gefügeänderung nach dem Durchlaufen des Phasenüberganges als "martensitisch" zu bezeichnen. Es ist zu erwarten, daß sowohl die Texturänderung als auch die Gefügeänderung das plastische Verhalten beeinflussen werden.

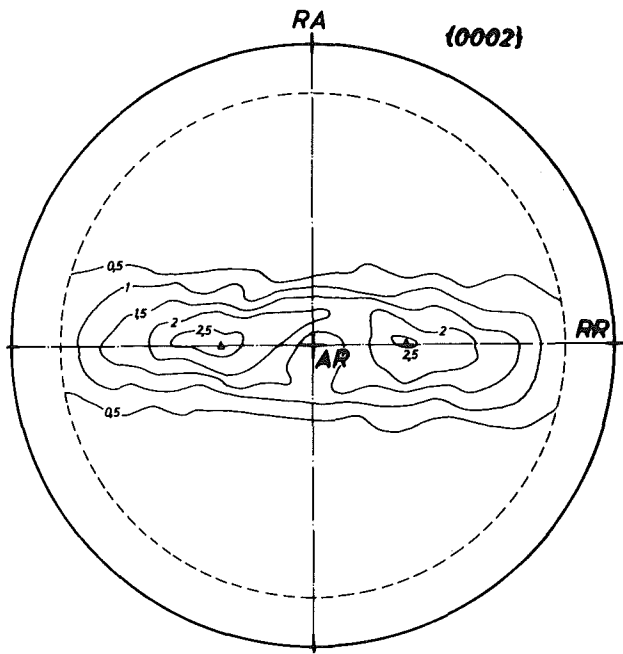


Abb. 4235-1

{0002}-Polfigur; ca. 60% kaltverformt, Zählrohrbestimmung bezogen auf regellose Orientierung, $\Delta(0001) \pm 34^\circ$ AR-RR

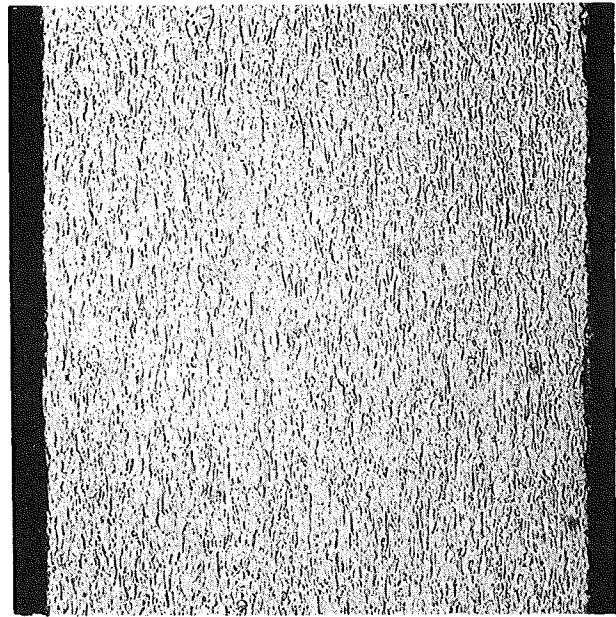


Abb. 4235-2

Längsschliff des Hüllrohres im Ausgangszustand (ca. 60% kaltverformt) 100 x

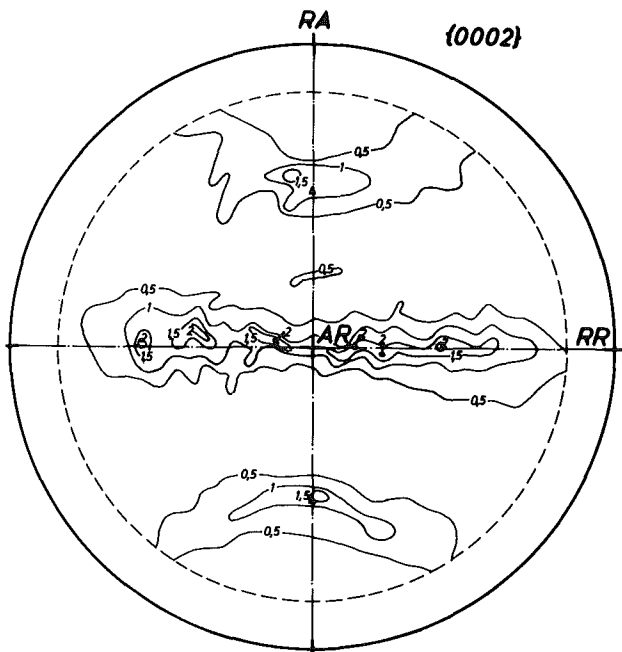


Abb. 4235-3

{0002}-Polfigur; 1100°C, 1h, in 10 sec in Wasser abgeschreckt, Zählrohrbestimmung bezogen auf regellose Orientierung $\Delta(0001) \pm 60^\circ$ RA-AR

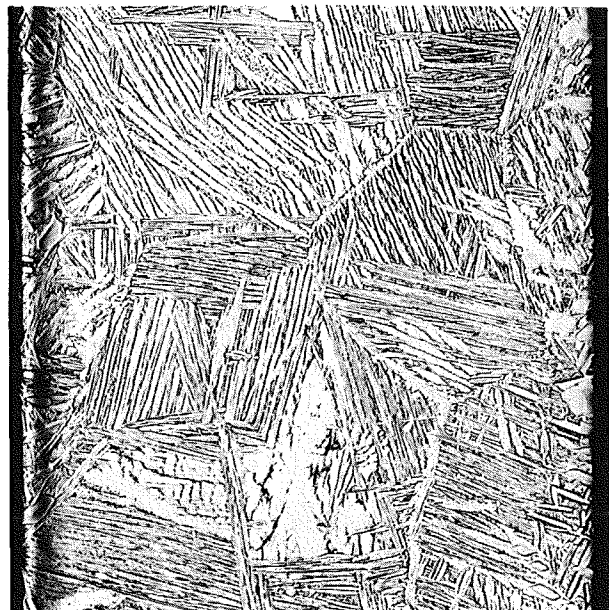


Abb. 4235-4

Längsschliff des Hüllrohres nach Wärmebehandlung: 1100°C, 1h, in 10 sec in Wasser abgeschreckt. 100x

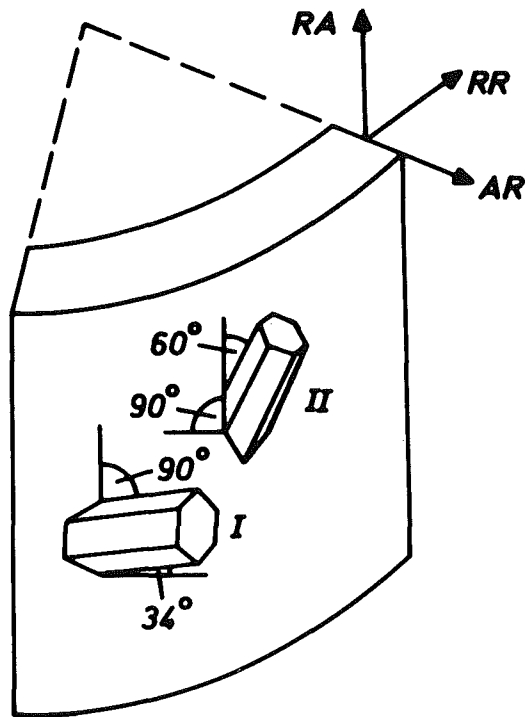


Abb. 4235-5

Lage der hexagonalen Elementarkörper im
Rohrsegmentmodell:

I Ausgangszustand

II Zustand nach Wärmebehandlung

Im folgenden Versuchsablauf soll das gefundene Ergebnis noch durch weitere Experimente erhärtet und bei konstanter Glüh­temperatur von 1100 °C und konstanter Abkühlungsgeschwindigkeit (innerhalb von 10 sec. in Wasser) die Texturänderung bei Glühzeiten im Bereich von 1 h bis zu wenigen Minuten untersucht werden.

Zitierte Literatur:

[1] R.K. McGeary, B. Lustman:
Trans AIME 197, 284-291 (1953)

[2] J. H. Keeler, A.H. Geisler:
Trans AIME 203, 395-400 (1955)

[3] R.A. Holt:
J. of Nuclear Mat. 35, 322-334 (1970)

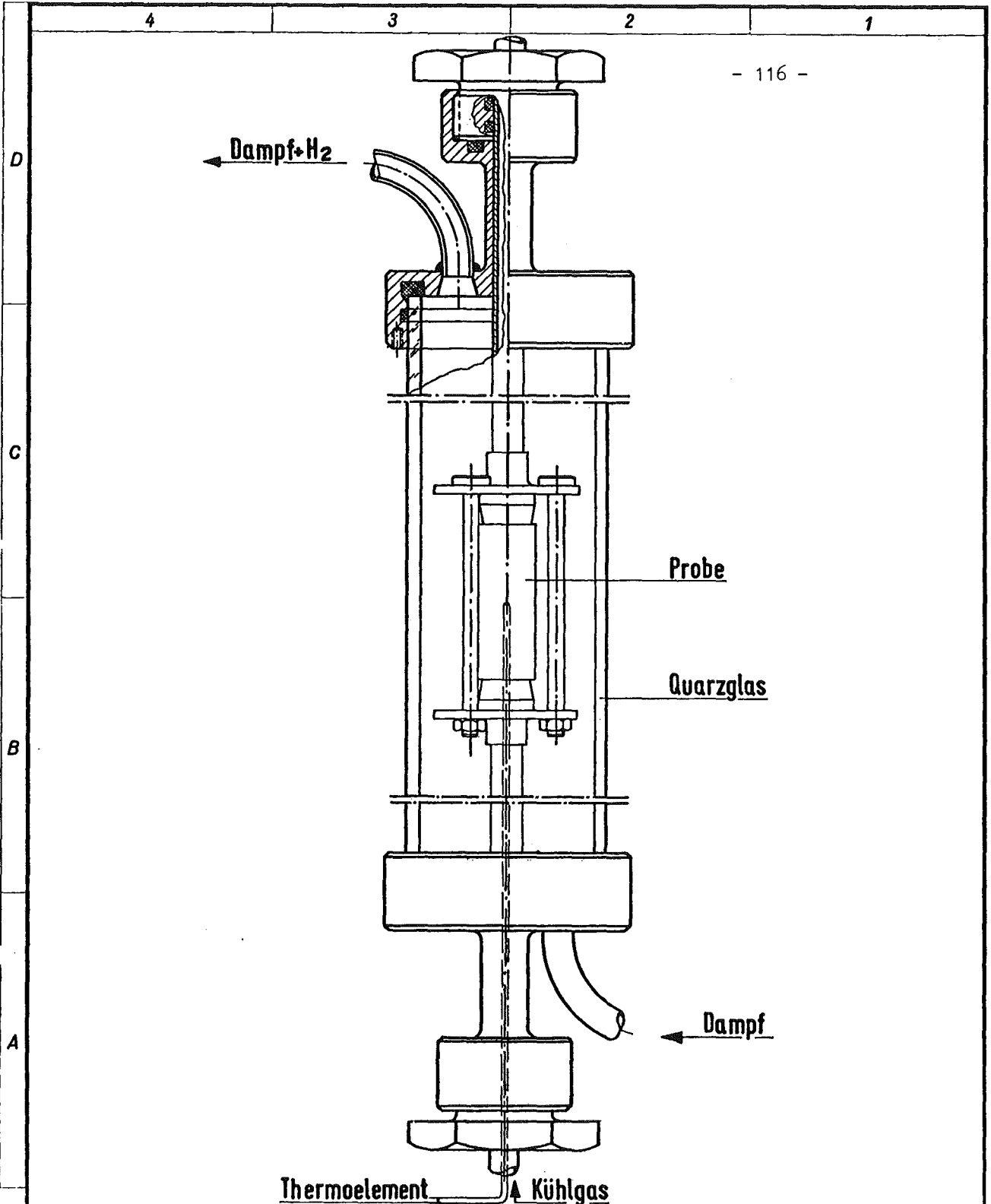
2.2 Literaturübersicht zum plastischen Verhalten von Zircaloy-4
bei hoher Temperatur

Eine sorgfältige Literaturdurchsicht ergab, daß in dem interessierenden Temperaturbereich zwischen 1000 und 1200 °C bisher nur sehr wenige Arbeiten vorliegen, in denen das plastische Verhalten des Werkstoffes untersucht worden ist. Besonders über das Werkstoffverhalten bei schnellen Aufheiz- und Abkühlungsgeschwindigkeiten liegen kaum Ergebnisse vor. Die Ergebnisse, die der Literatur entnommen werden können, werden z.Z. in einem Bericht zusammengefaßt.

Die im IMF geplanten experimentellen Untersuchungen über:

- Plastische Eigenschaften von Zircaloy-4 bei 900 - 1100 °C
- Plastische Eigenschaften während einer Temperaturtransiente von 450 - 1300 °C (α - β -Umwandlung)
- Plastische Eigenschaften während einer Temperaturtransiente unter variablen Spannungsverhältnissen

sollen dazu beitragen, den derzeitigen Kenntnisstand zu erweitern.



D
C
B
A

Thermoelement Kühlgas

| Teil | Stück | Benennung | | | | | Werkstoff | Abmessung | | Zeichngs. Nr. Norm | | Bemerkung |
|---------------------|---------------------------------------|------------------|----|-----|------|-----------------|--|---------------|-----------------|--------------------|-------------------|--------------------|
| Oberflächenzeichen | ~ | ▽ | ▽▽ | ▽▽▽ | ▽▽▽▽ | Freimaßtoleranz | bis | über 6 bis 30 | über 30 bis 100 | über 100 bis 300 | über 300 bis 1000 | über 1000 bis 2000 |
| Rauhtiefe max. in µ | 1000 | 40 | 10 | 4 | 1,6 | | ± 0,1 | ± 0,2 | ± 0,3 | ± 0,5 | ± 0,8 | ± 1,2 |
| 1973 | Tag | Name | | | | Werkstoff | Gesellschaft für Kernforschung m. b. H. 7500, Karlsruhe Postfach 3640 | | Zuegh. Zchnng. | | | |
| gez. | 0.5. | <i>J. M. ...</i> | | | | | | | Ersatz für | | | |
| gepr. | | | | | | | | | Ersetzt durch | | | |
| ges. | | | | | | | | | Zeichnungs-Nr. | | | |
| Maßstab | Benennung Abb. 4235-6 | | | | | | | | KOR-PNS 005 | | | |
| 1:1 | Reaktionsgefäß für Zirkaloy-Korrosion | | | | | | | | | | | |

Patentierung oder Gebrauchsmusteranmeldung. Ohne unsere vorherige Zustimmung darf diese Zeichnung weder vervielfältigt noch Dritten zugänglich gemacht werden; sie darf durch den Empfänger oder Dritte auch nicht in anderer Weise mißbräuchlich verwendet werden. Zuwiderhandlungen verpflichten zu Schadenersatz und können strafrechtliche Folgen haben.

2.3 Korrosionschemische Untersuchungen

Zur Demonstration transienter Temperaturverläufe und zur Durchführung isothermer sowie transienter Korrosionsreaktionen in Dampf (1 at) an Zircaloy-Rohrabschnitten wurde ein Versuchsgefäß (Abb. 4235-6) konstruiert und gefertigt. Dieses wird in einen Klappofen eingebracht und äußerlich beheizt. Eine darin befindliche Rohrprobe wird äußerlich von Dampf umströmt, im Rohrinnenen fließt ein die Oberflächentemperatur der Probe regulierender Gasstrom, dessen Verlangsamung und Unterbrechung einen sofortigen, mit einem Thermoelement kontrollierten Temperaturanstieg zur Folge hat. In Kürze können darin die ersten transienten Korrosionsversuche durchgeführt werden.

Daneben wurde die Konstruktion der für die kombinierten chemisch-mechanischen Versuche an der Zerreißmaschine vorgesehenen Teststrecke ausgeführt und in Fertigung gegeben. In einer vorhandenen Anlage zur hochfrequenten induktiven Beheizung (15 kW) soll noch im Herbst mit Vorversuchen zu diesen kombinierten Versuchen begonnen werden.

4236 Untersuchung zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase
 eines Kühlmittelverlustunfalles
 Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben
 (G. Class, U. Hitzschke, IRE; K. Hain, T. Vollmer, RBT)

Die allgemeine Zielsetzung dieses Vorhabens ist im 2. PNS-Halbjahresbericht 1972 (KFK 1787) dargestellt.

Das Hauptproblem des Vorhabens stellt die Entwicklung eines geeigneten elektrisch beheizten Simulationsbrennstabes dar; mit ihm soll die Möglichkeit geschaffen werden, den Mechanismus des Brennstabversagens während der Blowdown-Phase out-of-pile zu untersuchen. Daraus ergibt sich unmittelbar, daß der Simulationsbrennstab sowohl in seinem thermischen wie auch in seinem mechanischen Verhalten mit dem Originalreaktorbrennstab weitgehend übereinstimmen muß.

Ein weiteres Problem betrifft die Nachbildung der mechanischen Beanspruchung des Simulationsbrennstabes. Beim stationären Betrieb eines Druckwasserreaktors herrscht ein Betriebsdruck von etwa 160 at. Dagegen steigt der Innendruck der Originalbrennstäbe, hervorgerufen durch Helium-Vordruck und Spaltgase, auch bei hohem Abbrand kaum wesentlich über 100 at an. Demnach stehen die Originalbrennstäbe im stationären Betriebszustand unter Außendruck. Insbesondere bei großen Brüchen im Primärkreis fällt beim Blowdown der Systemdruck eines Reaktors anfangs sehr schnell und später langsam ab. Der erste Druckabfall auf etwa 100 at findet im Bruchteil einer Sekunde statt. Es kann also der Fall eintreten, daß gerade bei den interessanten Innendrücken der Brennstäbe die die Hülle belastende Druckdifferenz schneller aufgebaut wird, als dies durch eine alleinige innere Druckerhöhung durch Gaszuführung wegen des Strömungswiderstandes der Innenfüllung des Brennstabes möglich erscheint. Von daher gesehen dürfte es sinnvoll sein, die mechanische Beanspruchung des Hüllrohres in gleicher Weise wie im Reaktor zu erzeugen: Der Innendruck im Brennstab steht stationär an, während der Außendruck entsprechend den Blowdown-Bedingungen nach einer Zeitfunktion abfällt.

Am günstigsten lassen sich diese Bedingungen realisieren, wenn in der Versuchsapparatur ein Blowdown nachgefahren wird. Weil jedoch in einer kleinen Versuchsapparatur andere Blowdown-Bedingungen herrschen werden als im wirklichen Reaktor und weil die kleine Versuchsapparatur aus Gründen der Meßtechnik (Zweiphasenmassenstrom) ohne Primärkreisschleifen ausgeführt wird, muß der Blowdownablauf in der Versuchsapparatur bis zu einem gewissen Grade gesteuert werden. Diese Steuerung soll sich aber in erster Linie nur auf den Massendurchsatz in der Teststrecke (Stagnationszeit, Strömungsumkehr) beziehen.

Die bisher vor allem im IRE durchgeführten Entwicklungsarbeiten waren hauptsächlich theoretischer Natur. Unter der Annahme, daß auch im Simulationsbrennstab als Wärmespeichermasse (und gleichzeitig als elektrischer Isolator) UO_2 verwendet wird, wurde die Lage eines rohrförmigen Heizelements im Simulationsbrennstab vorläufig festgelegt. Diese vorläufige Dimensionierung des Brennstabes mit Wolfram-Heizer wurde mit Hilfe eines eindimensionalen instationären FORTRAN IV-Wärmeleitprogramms überprüft. Das Programm berücksichtigt die Spalte zwischen dem Heizleiter und dem Brennstoff sowie zwischen dem

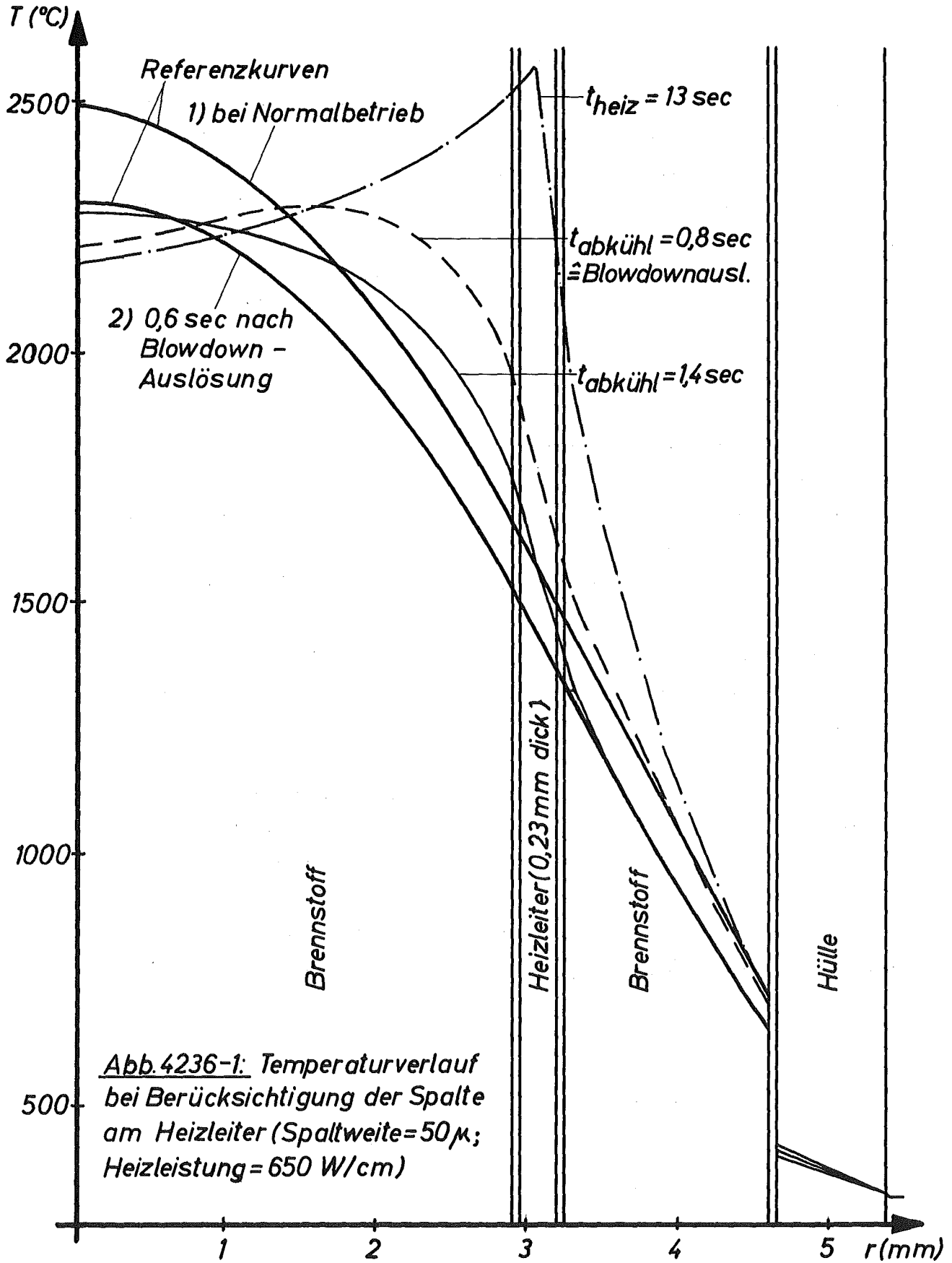
Brennstoff und der Hülle. Aus Abb. 4236-1 können einige charakteristische Aufheiz- und Abkühlkurven entnommen werden. Die Abbildung zeigt, daß ein derartig aufgebauter Brennstab auch die Hot-spot-Bedingungen eines Reaktor-brennstabes (Stableistung bis 650 W/cm) recht gut nachzubilden gestattet. Im Experiment muß ein Brennstab so betrieben werden, daß die elektrische Heizleistung knapp eine Sekunde vor der Blowdown-Auslösung ausgeschaltet wird. Damit ist gewährleistet, daß zum Zeitpunkt der Blowdown-Auslösung die Temperaturverteilung (und damit die Wärmespeicherung) im Simulationsbrennstab den Verhältnissen des Reaktor-brennstabes weitgehend entspricht.

Der vorgesehene Aufbau des Brennstabes ist aus Abb. 4236-2 zu ersehen. Als Heizleiter soll ein 500 mm langes Wolframrohr von 6 mm Durchmesser und einer Wandstärke von 0,1 bis 0,3 mm verwendet werden. Das Rohr wird an beiden Enden auf Molybdän- oder Wolframstopfen aufgeklemmt, die mit Kupferstäben als Stromzuführung verbunden sind. Das Heizleiterrohr wird mit UO_2 -Pellets gefüllt. Zwischen Rohr und Zircaloyhülle werden UO_2 -Ringpellets eingesetzt. Die Wandstärke der Ringpellets beträgt 1,5 mm, der äußere Durchmesser des Brennstabes bei 0,7 mm Hüllrohrwandstärke 10,7 mm.

Hinsichtlich der UO_2 -Pellets liegen bereits zwei Firmenangebote vor. In beiden Angeboten werden relativ große Toleranzen genannt. Zwei Firmen wollen erst im Rahmen eines Entwicklungsauftrages Erfahrungen sammeln und dann ein Angebot abgeben. Da die Ringpellets aus thermodynamischen Gründen sehr enge Druckmessertoleranzen haben sollten, erscheint es zweckmäßig, auch innen geschliffene Ringpellets zu verwenden.

Auch bezüglich der Heizleiterausführung wurden von RBT Firmenkontakte aufgenommen. Es sieht so aus, als ob der vorgesehene Aufbau sich realisieren läßt. Es müssen hierzu allerdings noch Vorversuche, besondere bezüglich der Verbindung Heizrohr/Molybdän- bzw. Wolframstopfen, durchgeführt werden.

Das Problem der Herstellungstoleranzen machte in Verbindung mit der Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstandes des Heizermaterials weitere theoretische Untersuchungen notwendig. Um die



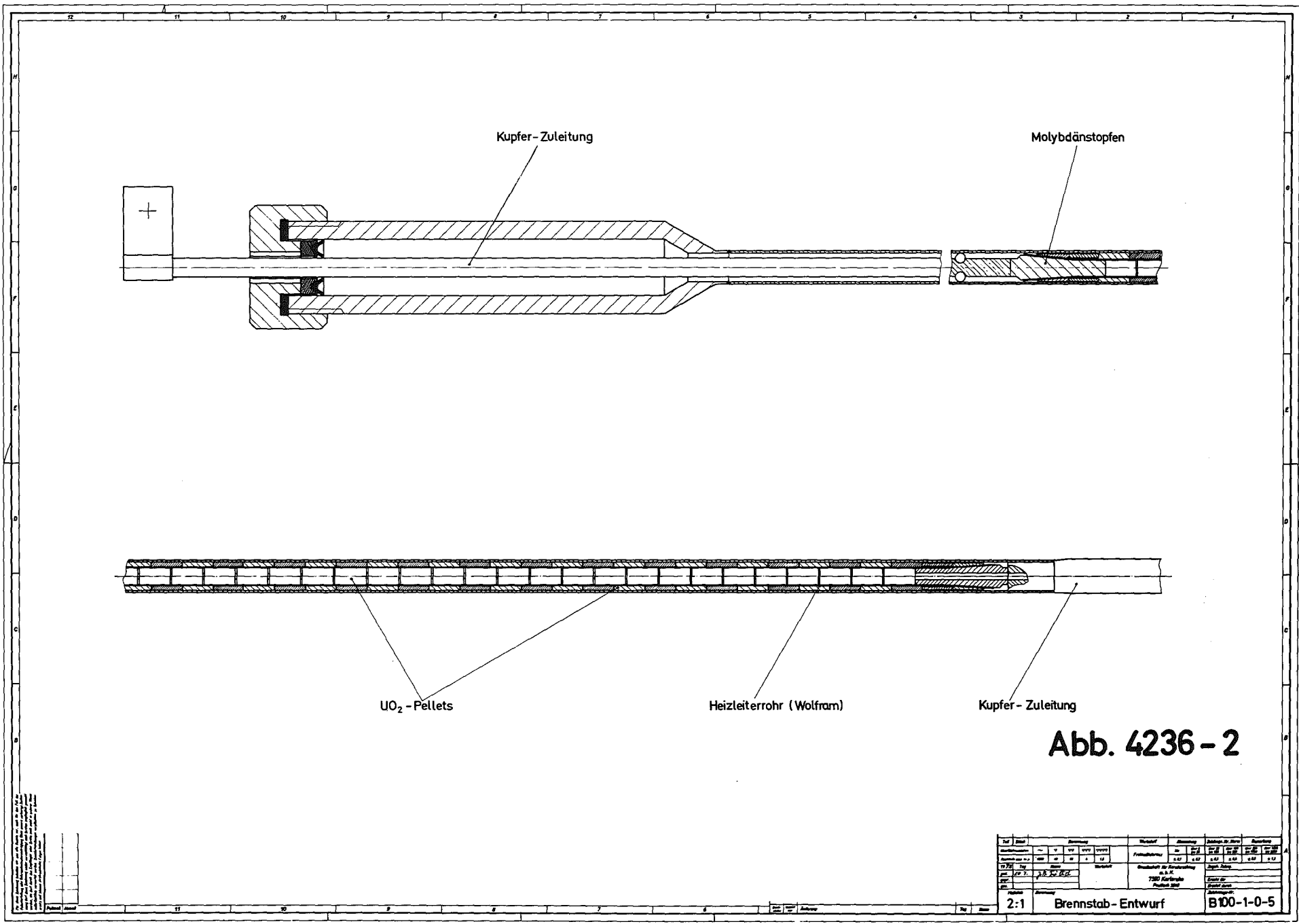


Abb. 4236 - 2

| Titel | | Arbeitszeichnung | | | | Merkmal | | Abmessung | | Maßstab | | Blattgröße | | Blattnummer | |
|--|-----|------------------|----|-----|------|---------------|----|-----------|----|---------|-----|------------|-----|-------------|------|
| Arbeitszeichnung | 2:1 | v | vv | vvv | vvvv | Formelzeichen | mm | cm | dm | m | 1:1 | 2:1 | 1:2 | 1:5 | 1:10 |
| Blattgröße | 11 | 12 | 13 | 14 | 15 | Blattnummer | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | |
| Name: AE RZ Datum: 1967 Projekt: Brennstab - Entwurf Blattgröße: B100-1-0-5 | | | | | | | | | | | | | | | |

gegenseitigen Einflüsse der axialen und radialen Koppelung in einem elektrisch beheizten Simulationsbrennstab zu erfassen, wurde ein zweidimensionales instationäres Wärmeleitprogramm (in FORTRAN IV) erstellt, in dem auch die axiale elektrische Kopplung der einzelnen Heizleiterzonen berücksichtigt wird. Außerdem berücksichtigt das Programm die Veränderlichkeit der Spaltweiten in den einzelnen Zonen, sowie die Temperaturabhängigkeit der Stoffwerte. Infolge des positiven Temperaturkoeffizienten des elektrischen Widerstandes von Wolfram wird sich z.B. an einer örtlich verschwächten Zone des Heizleiters bei gleichzeitig verschlechterter Wärmeabfuhr durch erweiterte Spalte (Herstellungstoleranzen) eine örtliche Temperaturerhöhung ergeben; hierdurch wird eine weitere örtliche Erhöhung des elektrischen Widerstandes und damit eine Konzentration der Wärmefreisetzung auf diese Stelle bewirkt. Mit der quantitativen Ermittlung der Auswirkungen der zu erwartenden Herstellungsungenauigkeiten wurde begonnen.

Obwohl nach dem bisherigen Stand der Untersuchungen erwartet wird, daß der Simulationsbrennstab mit UO_2 und Wolfram gute Aussichten auf Verwirklichung der gestellten Forderungen zeigt, wird als Backup-Lösung ein Simulationsbrennstab mit UO_2 und Graphit als Heizleiter untersucht. Über das Ergebnis dieser Untersuchungen wird gesondert berichtet werden. Außerdem ist vorgesehen, in einem späteren Stadium der Blowdown-Untersuchungen besonders sorgfältig instrumentierte Brennstäbe einzusetzen, mit denen Fragen des inneren und äußeren Wärmeübergangs des Brennstabes untersucht werden sollen.

Neben den Arbeiten zur Brennstabentwicklung wurde mit der Auslegung der Versuchsanlage begonnen. Die Behälterabmessungen und die Rohrleitungen wurden vorläufig dimensioniert. Hierbei stand der Gesichtspunkt der Anpassung der hydraulischen Verhältnisse an die Reaktorbedingungen im Mittelpunkt. Als Vorbereitung von Blowdown-Rechnungen mit Hilfe des RELAP-3-Blowdown-Rechenprogrammes wurden die Durchsätze

und die Druckabfälle in der Versuchsapparatur ermittelt. Eine Schaltungsänderung an der Apparatur (vgl. KFK 1787) ermöglicht es, während des Blowdown eine Umkehrung des Massenstromes in der Teststrecke zu erzwingen. Hierdurch wird es möglich, bis zu einem gewissen Grade in der kleinen Versuchsapparatur den Einfluß der Primärkreisschleifen auf den Blowdown-Ablauf zu simulieren. Die vorgesehenen RELAP-3-Rechnungen sollen vor allem auch dazu dienen, diese Vorstellungen zu überprüfen.

Auch die Möglichkeiten der Instrumentierung der Versuchsapparatur wurden weiter diskutiert. Eine Studienarbeit (H.Lenz) wird durchgeführt, in der die Anforderung an γ -Durchstrahlungsmessungen zur Feststellung der zeitabhängigen Kühlmitteldichte in verschiedenen Anlageteilen (oberes und unteres Kühlmittelplenum) formuliert werden. Da es nicht möglich erscheint, die Hüllen der Simulationsbrennstäbe ausreichend mit Thermoelementen zu instrumentieren, wird erwogen, die Hüllentemperaturen mit Hilfe von optischen Methoden während des Versuchs zu messen; dies erscheint möglich, weil die interessierenden Versagenstemperaturen im Bereich oberhalb 750°C liegen.

Zusätzliche Überlegungen bezogen sich auf die Messung des aus der Bruchstelle austretenden Zweiphasenmassenstroms, um zusammen mit den Durchstrahlungsmessungen in der Anlage ein gutes Bild über die Massenströme in der Versuchsapparatur während des Blowdown zu erhalten. Hierdurch wird der Vergleich mit Blowdown-Rechnungen erleichtert, so daß die Versuchsinterpretation ebenfalls erleichtert ist.

Neben diesen Arbeiten wurde die Mitarbeit von Herrn Dr. Class im Sachverständigenkreis Notkühlung des BMFT und im Redaktionskomitee für den Statusbericht Notkühlung fortgeführt.

- 4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalles
In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR 2
(E. Karb, T. Schmidt, L. Sepold, RBT)

Wie im vorangegangenen Halbjahresbericht ausführlich dargestellt, ist das Ziel der geplanten in-pile-Versuche die Untersuchung des Einflusses der nuklearen Parameter auf die Mechanismen des Brennstabversagens. Darüber hinaus soll geprüft werden, ob die Vorgänge beim Brennstabversagen in out-of-pile-Versuchen unter Verwendung elektrisch beheizter Brennstabsimulatoren mit genügender Genauigkeit nachgebildet werden können.

Hierzu werden unterschiedlich vorbestrahlte Einzelstäbe im DK-Loop des FR2 Temperaturtransienten unterzogen, die für die 2. Aufheizphase im Verlauf eines Kühlmittelverlustunfalles (LOCA) typisch sind.

Es werden zwei Gruppen von in-pile-Versuchen gefahren: Versuche zum duktilen Versagen (Aufblähen, Bersten) und Versuche zur Versprödung (Zeit bei Temperatur).

Zu Anfang des Berichtszeitraumes wurde die Problemdefinitionsphase abgeschlossen. Die Einzelheiten der Aufgabenstellung, die bei der Durchführung des Vorhabens zu bearbeitenden Problemkreise und ein vorläufiges Versuchsprogramm wurden in einer internen Notiz⁺ zusammengestellt.

Das Schwergewicht der Aktivitäten im Berichtszeitraum lag auf den Vorarbeiten zur Spezifikation der Prüflinge.

- Um die Versuchsparameter und Randbedingungen möglichst repräsentativ wählen zu können, werden die entsprechenden Daten von in Betrieb, im Bau und in Planung befindlichen Reaktoren zusammengetragen. Es interessieren hier vor allem die Brennstabauslegung und

⁺E. Karb, L. Sepold:
Brennstabversagen, in-pile-Versuche, PX8/72
Februar 1973
unveröffentlicht

und die für den LOCA berechneten Temperaturverhältnisse deutscher Reaktoren.

- Zur Auslegung der Prüflinge, zur Festlegung der Geometrie der in-pile-Strecke und zur Ermittlung der am Kreislauf notwendigen Veränderungen zur Anpassung an instationären Betrieb sind thermo-hydraulische Berechnungen erforderlich. Der Einfluß der verschiedenen Parameter auf die Temperaturverhältnisse während der Transiente und des vorangehenden Stationärbetriebes kann nur durch ein umfangreiches Rechenprogramm ermittelt werden.

Es hat sich gezeigt, daß keines der vorhandenen Rechenprogramme dieses Problem geschlossen erfaßt und daß keines dieser Programme direkt auf die Geometrie des Reaktoreinsatzes (Gegenstrom des Kühlmittels, Wärmedurchgang durch den Isolierspalt) anwendbar ist. Es wird daher z.Zt. vom IKE Stuttgart ein Rechenmodell erarbeitet, das die Hydrodynamik und Thermodynamik des Kühlmittelstroms im Kreislauf unter Verwendung von RELAP 3 erfaßt. Die Ergebnisse dieser Rechnungen dienen dann als Eingabedaten für das Programm RELAX des IRB zur Bestimmung der Temperaturverläufe am Prüfling und an der Struktur der in-pile-Strecke. Unter Umständen muß durch wechselseitige Anwendung beider Programme iteriert werden.

Das IKE-Rechenmodell soll zunächst durch Nachrechnung des derzeit laufenden Stationärbetriebes mit P55a-Prüflingen getestet werden.

- Das Aufblähen und evtl. Aufplatzen des Brennstabes ist nach den Ergebnissen der in den USA durchgeführten out-of-pile-Versuche an der heißesten Stelle zu erwarten. Bei verkürzten Stäben, wie sie hier eingesetzt werden, läge diese Stelle bei axial konstanter Stableistung am Ende der Brennstoffzone, was zu einem atypischen Versagensverlauf führen könnte. Es muß daher eine ausgeprägte axiale Leistungsprofilierung geschaffen werden, was wegen des im Reaktoreinsatz relativ flachen Neutronenflußdichteverlaufs nur über eine Profilierung der Spaltstoffkonzentration verwirklicht werden kann. Das erforderliche Leistungsprofil wurde berechnet, z.Zt. laufen die Berechnungen bei RBT/Ph zur Bestimmung der dazu notwendigen Anfangsanreicherung; es ist dabei zu prüfen, ob Bestrahlungen mit dieser

Anreicherung im Rahmen der Kühlbedingungen des FR2 in einfacher, BE-ähnlicher Geometrie durchgeführt werden können.

- Zur Interpretation der Versuchsergebnisse, vor allem jedoch, um den Zeitpunkt des duktilen Versagens bestimmen zu können, muß während der Transiente der Prüflingsinnendruck bestimmt werden. Wegen der beschränkten Platzverhältnisse im Reaktoreinsatz und wegen der hohen Strahlenbelastung und hohen Temperatur konnte bisher kein Meßgeber gefunden werden, der nahe am Prüfling, z.B. direkt am Spaltgasplenum, anzuordnen ist. Die Druckmessung wird daher über eine Kapillare von einigen Metern Länge erfolgen müssen. Die durch die Kapillare verursachte Meßverfälschung (Druckhöhe und zeitlicher Verlauf) soll in Vorversuchen ermittelt werden.

Hierzu wurde ein Prüfstand gebaut, der die Variation aller wesentlichen Parameter erlaubt. Erste Versuche mit Luft als Füllgas wurden bereits durchgeführt, die Ergebnisse berechtigen zu der Hoffnung, daß die Meßverfälschung in tolerierbaren Grenzen gehalten werden kann.

- Mit dem Problem der Druckmessung ist die konstruktive Ausführung des Prüfling-Endstopfens verknüpft. Die Druckmeßkapillare muß wegen der Aktivität der vorbestrahlten Prüflinge fernbedient in der Abschirmzelle des FR2 an den Endstopfen angekoppelt werden. Hierzu wurde im Berichtszeitraum eine Konzeption erarbeitet, die in Vorversuchen erprobt werden muß.
- Die für die in-pile-Versuche erforderlichen Kühlmittelzustände im DK-Loop liegen außerhalb des bisher interessanten und erprobten Bereichs. Für den Stationärbetrieb wird ein möglichst großer Durchsatz angestrebt bei kleinerem Systemdruck und niedrigerer Temperatur als bisher; für die Auslösung der Transienten wird ein möglichst rascher Abfall des Durchsatzes und des Systemdruckes gefordert.

Da der Kreislauf bis Ende 1973 noch mit P55a-Prüflingen in Betrieb ist, konnten diesbezüglich bisher nur theoretische Überlegungen durchgeführt werden. Für Betriebsphase E/73 (August) sind anlässlich eines Prüflingswechsels einige Stationär- und Abblaseversuche geplant. Weitere Versuche können nicht vor Januar 1974 erfolgen.

4238 Untersuchung zur Wechselwirkung zwischen Brennstabversagen
 und Kernnotkühlung in der Wiederauffüll- und Flutphase eines
 Kühlmittelverlustunfalles
 (H.J. Neitzel, K. Wiehr, IRB)

Eine teilweise oder völlige Blockage der Kühlkanäle durch das Aufblähen der Hüllen kann die Notkühlwirkung des Flutwassers reduzieren. Ziel der Untersuchungen ist es daher, die gegenseitige Beeinflussung zwischen Blockage und Kühlung und das Ausmaß der Beeinträchtigung der Notkühlung während der Wiederauffüll- und Flutphase kennenzulernen. Beim Ablauf derselben und vor allem beim Eintreten des Aufblähens der Hülle, spielen die instationären thermo- und fluiddynamischen Vorgänge im Spalt zwischen Brennstoff sowie in der Hülle eine entscheidende Rolle.

Mit den Arbeiten wurde Anfang April 1973 begonnen. Einen wichtigen ersten Schritt des Vorhabens stellt die Entwicklung eines geeigneten Brennstabsimulators dar. Zur Auslegung des Brennstabsimulators wurde ein auf die Auslegungsprobleme abgestimmtes kleineres Rechenprogramm weitgehend fertiggestellt. Es befindet sich z.Zt. in der Testphase. Das Rechenprogramm behandelt den stationären und instationären Wärmeübergang eindimensional unter Berücksichtigung der Wärmestrahlung in den Spalten und der Wärmeausdehnung der verschiedenen Materialien. Die Aufteilung der Wegschritte auf Zonen verschiedener Materialien ist beliebig vorgebar. Sämtliche Stoffwerte können als Funktion der Temperatur eingegeben werden.

Zur Anpassung der vom Brennstabsimulator geforderten Eigenschaften an die des Brennstabes, ist es notwendig, eine Vielzahl von Material- und, bzw. Geometrievariationen durchzuführen. Hierfür bietet dieses Programm gegenüber vorhandenen zu modifizierenden Programmsystemen

bezüglich Handhabung und Rechenkosten erhebliche Vorteile.

Zur experimentellen out-of-pile-Untersuchung des vorliegenden Problems wurde mit der Entwicklung eines elektrisch beheizten Brennstabsimulators begonnen. Dieser besitzt eine Zircaloy-Hülle mit Originalabmessungen eines DWR-Brennstabes und steht unter Innendruck. Als Heizleiter wird zunächst eine bereits vorhandene Ausführung verwendet, welche elektrisch isoliert ist, so daß beim Platzen der Zircaloy-Hülle ein Kurzschluß infolge Eindringens von Wasser oder Wasserdampf zwischen Heizleiter und Hülle verhindert wird. In ersten Vorversuchen wurde festgestellt, daß der Heizleiter bei einer Heizleistung von 35 W/cm eine Heizleiterhüllentemperatur von 1050 °C erreicht.

Es muß darauf geachtet werden, daß die thermischen Eigenschaften des Brennstabes, die für den instationären Wärmetransport - besonders während des Aufblähens - verantwortlich sind, beim Brennstabsimulator so gut wie möglich nachgebildet werden. Die Wärmedehnung der den Spalt zwischen Brennstoff und Hülle bestimmenden Werkstoffe sollte möglichst genau übereinstimmen.

Es ist daher vorgesehen, zwischen Heizleiterhülle und Zircaloy-Hüllrohr Ringpellets aus UO_2 -Material anzuordnen. Damit sind am Spalt möglichst repräsentative Verhältnisse hinsichtlich der Ausdehnung und Strahlung gewährleistet. Da beim Simulator am Außenradius echte Kühlbedingungen vorliegen und die zeitlich abhängige Hülltemperatur echt nachgefahren wird, ergeben sich dann für die Hülle, den Spalt und die äußerste "Brennstoffschicht" des Pellets echte thermische und geometrische Verhältnisse. Nur im Inneren des Brennstabsimulators (Heizleiter) werden unterschiedliche thermische Verhältnisse im Vergleich zum wirklichen Brennstab vorliegen. Es wird erwartet, daß sich mit diesem Konzept für die Zircaloy-Hülle Ballooning-Bedingungen ansteuern lassen, die denen während eines Kühlmittelverlustunfalles sehr nahe kommen.

An die Herstellungstoleranzen des UO_2 -Ringpellets müssen hohe Anforderungen gestellt werden.

Durch spitzenloses Schleifen wie bei den Pellets für DWR-Brennstäbe läßt sich der Außendurchmesser des Ringpellets ohne große Schwierigkeit

mit den gewünschten Toleranzen herstellen. Das Schleifen des Innendurchmessers ist jedoch sehr aufwendig und teuer. Es wurde daher begonnen, ein wirtschaftliches Sortierverfahren für den Durchmesser und die Exzentrizität der Innenbohrung zu entwickeln.

4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockagen auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles
(G. Hofmann)

Es ist das Ziel dieser Arbeit, den Einfluß einer durch aufgeblähte Brennstabhüllen entstandenen Kühlkanalblockage auf die Strömungsform des Dampf-Wasser-Gemisches in der Flutphase zu beobachten und den Einfluß auf die Kühlwirkung hinter der Blockage zu messen, wobei die Größe und die Form der Blockage variiert werden sollen.

Zur Vorbereitung der Experimente werden 5 Teilaufgaben verfolgt:

1. Entwurf, Konstruktion und Aufbau eines Versuchskreislaufes
2. Entwurf, Konstruktion und Herstellung der Teststrecken
3. Auswahl, Beschaffung und Instrumentierung geeigneter Heizstäbe und Blockagekonfigurationen
4. Auswahl und Vorprüfung geeigneter Meß- und Beobachtungsverfahren
5. Bereitstellung von Rechenverfahren für die Auslegung und für die Auswertung der Meßergebnisse.

Teilaufgabe 1:

Mit dem Entwurf des Versuchskreislaufes wurde begonnen. Er dient der Einspeisung von Flutwasser in die Teststrecke mit wahlweise vorzugebendem Zulaufdruck oder Durchfluß; mit ihm wird durch Heizung bzw. Kühlung die Flutwassertemperatur eingestellt und der Systemdruck hinter der Teststrecke zwischen 1 und 10 bar gehalten; die Teststrecke wird zur Einstellung der Anfangsbedingungen mit einem geringen Dampfstrom gespült.

Teilaufgabe 2:

Beim Entwurf der ersten Teststrecke, die eine Stabreihe von 6-8 Stäben aufnehmen wird, stehen Maßnahmen zur Vermeidung von unzulässig hohen Wandeinflüssen und Abstrahlungsverlusten bei gleichzeitiger optischer Beobachtungsmöglichkeit im Vordergrund. Die Teststrecke wird eine beheizte Länge der Stabanordnung von 3,90 m zulassen, um einen für den Reaktornotkühlfall typisches Wasser-Dampf-Gemisch in der Ebene der Stabmitte zu erhalten, wo eine Blockage angebracht ist.

Teilaufgabe 3:

Als Brennstabsimulatoren werden indirekt elektrisch beheizte Stäbe mit 3,90 m beheizter Länge und angenähert cosinusförmiger axialer Leistungsverteilung gebraucht. Mit einer Hülle aus Cr-Ni-Stahl und einem Stromleiter, dessen elektrischer Widerstand möglichst weitgehend temperaturunabhängig ist, muß dieser Heizstab bei Hüllentemperaturen bis zu 1000 °C eine maximale Stableistung von etwa 50 W/cm entwickeln können. Ein von der Firma Siemens, Bad Soden, hergestellter und von der KWU Erlangen in den Wiederauffüll-Bündel-Experimenten benutzter Heizstab wird zur Zeit auf seine Eignung geprüft.

Teilaufgabe 4:

Die Oberflächentemperatur der Heizstäbe wird durch in die Hülle eingelötete Mantelthermoelemente gemessen. Vorversuche werden zum zweckmäßigsten Verfahren für den Thermoelementeinbau führen. Zur Beobachtung soll die Hochgeschwindigkeitsfotographie benutzt werden, und für die örtliche Geschwindigkeitsmessung soll die Rauschanalyse gemessener Temperatursignale herangezogen werden; zu beiden Verfahren sind Vorversuche geplant.

Teilaufgabe 5:

Die thermodynamische Ähnlichkeit zwischen Brennstab und Heizstab und die thermischen Vorgänge an der Kanalwand und durch sie hindurch nehmen Einfluß auf das Dampf-Wasser-Gemisch bei seiner Entstehung und seinem Transport zur Blockage. Zur Ermittlung der Wärmeübergangszahlen hinter der Blockage während der Abkühlung wird neben der gemessenen Temperaturdifferenz die örtliche Wärmestromdichte gebraucht. Eine Aussage sowohl über die Ähnlichkeit aus auch über den Kanalwandeinfluß und die örtliche Wärmestromdichte setzt Rechnungen über die transienten Wärmeleitvorgänge voraus, die im 2. Halbjahr 1973 beginnen werden.

4240 Coreschmelzen von LWR

- 4241 Experimentelle Untersuchungen der Abschmelzphase von UO_2 -Zircaloy-Brennstäben bei versagender Notkühlung
(A. Alexas, W. Schikarski, IASR/RPU)

Das Arbeitsprogramm zur Untersuchung der Abschmelzphase von UO_2 -Zircaloy-Brennstäben durch out-of-pile-Experimente wurde konkret in Angriff genommen, nachdem mit dem Sachverständigenkreis "Coreschmelzen" des BMFT die zu untersuchende Thematik abgegrenzt wurde und die wesentlichen Randbedingungen festgelegt worden sind.

Das damit zunächst festgelegte Programm ELNA (= Elektrische LWR-Brennstab-Niederschmelz-Anlage) hat folgende Zielsetzung:

1. Die Untersuchung des Verhaltens des Systems Hülle-Pellet bei verschiedenen Temperaturen und Temperaturgradienten
2. Die Untersuchung des Verlaufs des Abschmelzvorganges und des Wiedererstarrens der herunterlaufenden Schmelze an kälteren Teilen des Brennstabes.

Bei der Durchführung des Arbeitsprogramms kann von den Erfahrungen, die im Rahmen des EPBF-Programms (PSB-1234.1) gemacht wurden, ausgegangen werden. Das Programm ist in folgenden fünf Arbeitsschwerpunkten aufgliedert:

- A1 : Literaturstudie und -Auswertung
- A2 : 1. Störfallanalyse
2. Technische Durchführung, Simulationsgrenzen
dazu jeweils Parameter-Identifizierung
 - a) Stab
 - b) Umgebung
- A3 : Versuchsplanung (Durchführung, Ablauf, zu messende Werte, Auswertung)
- A4 : Konstruktion, Aufbau des Versuchsstandes
- A5 : Theorie und Experiment, Extrapolation

Folgende Randbedingungen sind zu beachten:

1. Die Versuche sind jeweils mit einem Brennstab durchzuführen.
2. Der Brennstab soll so lang wie möglich sein und ein kaltes Ende besitzen (z.B. Tantal).
3. Wegen der grundsätzlichen Bedeutung der Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle darf kein Spalt vorhanden sein.
4. Für die radiale Temperaturverteilung gilt nur die Bedingung eines nach innen hin positiven Temperaturgradienten an der Kontaktstelle zwischen Brennstoff und Hülle.
5. Axiale Temperaturverteilung ist durch Kühlung des Tantal-Brennstabteiles zu erzeugen.
6. Die Sicherstellung der Stromzufuhr solange wie möglich ist anzustreben.
7. Die Hülle des jeweiligen Versuchsstabes ist vor dem Versuch von außen her zu oxydieren. Die erforderliche Oxydationstiefe wird von der AG_3^+ ausgerechnet und soll für alle Versuche konstant bleiben.
8. Der größere Teil der Versuche ist unter H_2O -Dampf-Atmosphäre durchzuführen. Das Aufheizen hat unter Inertgas-Atmosphäre zu erfolgen. Es ist anzustreben, den Übergang von Inertgas auf H_2O -Dampf bei $1000^\circ C$ durchzuführen.
9. Das Aufheizen soll sowohl langsam als auch schnell erfolgen. Bei schnellem Aufheizen kann in der Phase bis zu ca. $1000^\circ C$ beliebig geheizt werden. Danach ist eine Temperaturanstiegs-geschwindigkeit von ca. $3^\circ C/s$ anzustreben. Wird jedoch die Versuchsdurchführung dadurch erschwert oder gar behindert, so soll mit der maximal möglichen Geschwindigkeit aufgeheizt werden.
10. Es ist wünschenswert, bei einigen Versuchen Abstandshalter zu simulieren.

Das Arbeitsprogramm wird vom IASR in Zusammenarbeit mit IMF und RBT durchgeführt.

⁺) Arbeitsgruppe 3 des Sachverständigenkreises "Coreschmelzen" des BMFT

4242 Theoretische Untersuchungen zur Wasserstoffbildung beim
LWR-Coreschmelzen
(S. Dorner, INR)

Zum Problem der Wasserstoffbindung sowie zur Wasserstoffausbreitung und Bildung spontan reagierender H_2/O_2 -Gemische im Containment bei einem angenommenen, hypothetischen Coreschmelzenunfall in LWR wurde eine erste Studie durchgeführt.

Im Verlauf eines hypothetischen Coreschmelzenunfalls in LWR könnten prinzipiell folgende Vorgänge zur Bildung spontan reagierender H_2/O_2 -Gemische führen:

1. Thermische Zersetzung des H_2O bei hohen Temperaturen -
Dissoziation
2. Zersetzung des Wassers durch Strahlung - Radiolyse
3. Reaktion des Wassers mit den Komponenten der Coreschmelze -
chemische Reaktion.

Von diesen drei möglichen wasserstofferzeugenden Vorgängen beim Coreschmelzen ist die Radiolyse ein relativ langsam ablaufender Prozess. Die thermische Dissoziation führt auch bei hohen Temperaturen und höheren Drücken wie z.B. bei $3000^\circ K$ und 10 ata erst zu einer Dissoziation von 7,64 %. Dagegen kann die chemische Wasserstoffbildung und -Freisetzung sehr schnell verlaufen, so daß dieser Prozess nach einem Coreschmelzen am problematischsten erscheint.

Bei einer chemischen Reaktion wird der Sauerstoff gebunden und nur der Wasserstoff wird freigesetzt. Als Reaktionspartner bei einem hypothetischen Unfall des Kernschmelzens kommen vor allem die elementaren bzw. metallischen Komponenten der Kernschmelze in Frage. Da sich die oxidische Brennstoffschmelze weitgehend indifferent gegenüber dem Wasserdampf verhält, d.h. die Bildung der sauerstoffreicheren Oxide reaktionsträge verläuft, kann dieser Teil der Schmelze für die ersten Betrachtungen außer acht gelassen werden.

In diesem Zusammenhang sind auch thermische Explosionen zu beachten. Darunter soll hier die äußerst rasche Umwandlung von thermischer in mechanische Energie verstanden werden. Als Beispiel für die thermische Explosion kann die "Natrium-Brennstoff-Reaktion" angeführt werden. Ähnliche Explosionen wurden auch beim Zusammenbringen von geschmolzenen Metallen mit Wasser beobachtet und untersucht.

Die entscheidende Forderung zur Vermeidung solcher Reaktionen scheint die sichere Trennung der Reaktionspartner zu sein.

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen (H. Albrecht, C. Keller, IRCH; O. Götzmann, IMF; E. Hutter, D. Perinic, B. Stuka, RBT)

Das bereits im 2. Halbjahresbericht 1972 [1] in seinen Grundzügen dargestellte Arbeitsprogramm zur experimentellen Untersuchung der Spaltprodukt-Freisetzung wurde im März dem Sachverständigenkreis "Coreschmelzen" des BMFT vorgelegt. Nach ausführlichen Diskussionen - auch in den Arbeitsgruppen dieses Ausschusses - wurde es bezüglich Zielsetzung und Vorgehen in allen wesentlichen Punkten befürwortet.

Die Arbeiten im Berichtszeitraum konzentrierten sich auf die Stufe I dieses Programmes: Out-of-pile-Schmelzversuche mit schwach aktivem Brennstoff. Hierbei geht es zunächst um die Entwicklung der Versuchsanlage mit ihren Komponenten, um die Schmelztechnik, die Temperaturmeßtechnik und um eine Methode zur quantitativen Erfassung der freigesetzten Spalt- und Aktivierungsprodukte. Die angestrebten Versuchsbedingungen (Schmelzguttemperaturen ≥ 2800 °C unter Wasserdampf-atmosphäre) übersteigen die üblichen Anforderungen an Schmelzanlagen beträchtlich, so daß dafür auch bei der Industrie nur sehr wenig Erfahrungen vorliegen.

1. Verträglichkeitsversuche zur Bestimmung des Tiegelmaterials

Voraussetzung für die Durchführbarkeit des Vorhabens ist ein Tiegelmateriale, das unter den erwähnten extremen Bedingungen eine ausreichende Standzeit aufweist. Zur Klärung dieses Problems werden Verträglichkeitsversuche mit verschiedenen Tiegelmaterialien durchgeführt.

Nach derzeitigem Wissensstand kommen in oxidierender Atmosphäre nur oxidkeramische Tiegel in Frage. In Zusammenarbeit zwischen RBT, IMF und IRCH sollen Tiegel aus folgenden Materialien untersucht werden:

ThO_2 , UO_2 , UO_2 mit ThO_2 beschichtet und ggf. HfO_2 .

Als Schmelzgut werden die als "Corium-A" bzw. "Corium-E" festgelegten Materialzusammensetzungen eingesetzt:

(Angaben in Gewichts %):

| | UO ₂ | Zircaloy-4 | Stahl (W.Nr. 4550) |
|----------|-----------------|------------|--------------------|
| Corium A | 65 | 18 | 17 |
| Corium E | 35 | 10 | 55 |

Das Urndioxid wird in Pelletform, der Stahl und das Zircaloy als Rohrstücke in den Schmelztiegel eingebracht. Als Randbedingungen sind vorgesehen:

| | |
|-------------------------|-----------------------|
| Ofenatmosphäre | : 1 at Wasserdampf |
| Aufheizdauer | : ca. 30 min |
| Haltezeit der Schmelze | : ca. 1 h |
| Füllstand des Tiegels | : ca. 25 % |
| Temperatur der Schmelze | : variabler Parameter |

Da auch außerhalb des Kernforschungszentrums experimentelle Arbeiten zum Coreschmelzen aufgenommen wurden, bei denen die Wechselwirkung zwischen dem Tiegelmateriale und der Coreschmelze eine wichtige Rolle spielt, so z.B. bei der Bestimmung der verschiedenen Stoffkonstanten der Schmelze (Viskosität, Oberflächenspannung, Wärmeleitfähigkeit ...), fand zwischen den betreffenden Arbeitsgruppen (KWU, Battelle, Euratom/Ispra und GfK) im Juni ein Erfahrungsaustausch über die Eignung verschiedener Tiegelwerkstoffe und Fragen der Schmelztechnik statt. Ein weiteres Treffen dieser Art ist für September 1973 vorgesehen.

2. Ofentechnik

Für die Verträglichkeitsversuche und die anschließenden ersten Experimente zur Spaltprodukt-Freisetzung mit kleinen Schmelzgutmengen (ca. 50 g) ist ein Ofen erforderlich, der wegen der H₂O-Dampf-atmosphäre und der Forderung nach längerer Aufrechterhaltung des Schmelz-

zustandes mit einer Induktionsheizung arbeiten soll. Der Ofenbehälter wird doppelwandig ausgeführt und ebenso wie die Induktionsspule an ein Heiz- und Kühlaggregat mit Thermostat angeschlossen. Die Heizung dient zur Einstellung und Aufrechterhaltung der Dampf-atmosphäre vor Inbetriebnahme der Induktionsheizung. Bei eingeschalteter Induktionsheizung übernimmt das Aggregat die erforderliche Kühlung von Ofenbehälter und Spule.

Bei einem Überdruck von mehr als 100 Torr wird ein Teil des Wasserdampfes über ein Drosselventil abgelassen. Eine zusätzliche Berstsicherung dient zur Beherrschung eventuell auftretender Knallgasreaktionen. Die Temperaturmessung erfolgt von oben oder durch seitliche Fenster mit einem Zweifarben-Quotientenpyrometer.

3. Temperaturmeßtechnik

Die erwarteten Schmelztemperaturen liegen zwischen 2400° und 2800°C . Zur Temperaturbestimmung der Schmelze wurde ein Quotientenpyrometer ausgewählt, welches eine Messung ohne Kenntnis des Emissionsverhaltens der Probe gestattet. Das Quotientenverfahren kann auch bei beschlagenem Sichtfenster des Hochtemperaturofens betrieben werden. Meßfehler durch selektiv absorbierende Metalldämpfe werden durch eine synchron durchgeführte spektralphotometrische Bestimmung des Transmissionsgrades korrigiert.

Vergleichsmessungen sollen mit Thermoelementen durchgeführt werden, die in definiertem Abstand von der Tiegelwand zwischen die Strahlenschirme eingesetzt werden.

In einigen Vorversuchen soll diese Anordnung erprobt werden. Dazu wird z.Zt. ein vorhandener kleiner Schmelzofen mit Widerstandsheizung, der zum Betrieb unter Vakuum und Inertgas geeignet ist, so umgebaut, daß mit ihm Temperaturen bis 3000°C erreichbar sind. Dann werden Eichmessungen bei verschiedenen Temperaturfixpunkten durchgeführt. Um außerdem das spektrale Absorptionsverhalten der Metalldämpfe über dem Tiegel zu untersuchen, sollen die wichtigsten in der Schmelze enthaltenen Komponenten verdampft und bei den Referenzwellenlängen

des Quotienten-Pyrometers vermessen werden.

4. Filtersystem

Die beim Aufheizen und Schmelzen des Coriums freigesetzten Spalt- und Aktivierungsprodukte werden im Wasserdampfstrom zu einem Filtersystem transportiert, dort - mit Ausnahme der Spalteredelgase - möglichst quantitativ abgeschieden und dann γ -spektroskopisch nach Art und Menge analysiert. Dazu beginnt unmittelbar über dem Schmelztiegel ein Rohrsystem, durch das der Dampf zu einer Anzahl verschiedenen feiner Filter und danach zu einem Kondensator geführt wird. Dieser wirkt wie eine Pumpe mit hoher Saugleistung und erzeugt - wenn das Kondensat auf Zimmertemperatur abgekühlt wird - einen Druck von etwa 20 Torr. Um eine vorzeitige Kondensation des Dampfes zu vermeiden, muß die gesamte Transportstrecke bis zum Kondensator auf über 100 °C gehalten werden, was durch Umwickeln der Rohre und des Filtersystems mit Heizbändern erreicht wird.

Es ist nicht zu vermeiden, daß sich ein gewisser Anteil der Spaltprodukte während des Transports im Rohrsystem ablagert. Um diesen Anteil möglichst niedrig zu halten, sind folgende Randbedingungen zu beachten:

- kurzer Transportweg zu den Filtern
- geringe Rauigkeit der inneren Rohrwände
- keine starke Rohrbiegungen
- möglichst wenig Ventile, Drosseln etc. in der Leitung

Die in USA durchgeführten Schmelzversuche mit vorbestrahlten UO_2 -Proben haben ergeben, daß die vom Transportgas mitgeführten Teilchen hauptsächlich im Größenbereich

0,015 μ 1,5 μ

liegen. Dementsprechend ist also die Porenweite der Filter zu wählen. Außerdem ist bei der Auswahl der Filter auf das Korrosionsverhalten und die Temperaturempfindlichkeit zu achten.

Aufgrund der bisher eingeholten Informationen kommen folgende Filtertypen bzw. Materialien in Frage (in Klammern wird die kleinste bei jedem Filter verfügbare absolute Porenweite angegeben):

- gesintertes Stahlfaservlies (8 μ)
- Metallfiltergewebe aus Edelstahl (6 μ)
- Poral-Inox (gesintertes Stahlpulver) (3 μ)
- Glasfaserpapier aus Borsilikat (0,3 μ)
- ferner Membranfilter aus
- Zellulose-Acetat (ca. 0,2 μ)
- Zellulose-Nitrat (ca. 0,03 μ)
- gemischte Zellulose-Ester (ca. 0,025 μ).

5. Stand der Arbeiten

a) Vorversuche:

Zur Untersuchung der Ankopplung eines UO_2 -Sinterkörpers an ein HF-Feld und zur Sammlung erster praktischer Erfahrungen beim Schmelzen von UO_2 und Corium wurde eine Reihe von Versuchen in einem auswärtigen Institut⁺) mit einer dort installierten Schmelzanlage (Leistung: 25 kW, Frequenz: 430 kHz) durchgeführt. Die dabei verwendeten Tiegel waren aus Al_2O_3 bzw. ThO_2 . Bei der induktiven Aufheizung erwies sich folgendes Verfahren als geeignet: Die UO_2 -Probe wird innerhalb des Tiegels zunächst von einem Stahlrohr umschlossen, das bis zu Temperaturen von ca. 1000 °C die Ankopplung an das HF-Feld übernimmt. Dann ist der elektrische Widerstand des UO_2 so weit zurückgegangen, daß es selbst ankoppeln kann. Will man nur UO_2 schmelzen, so muß man zu diesem Zeitpunkt das Stahlrohr aus dem Tiegel herausziehen. Obwohl das Tiegelmateriale Al_2O_3 einen um fast 800° niedriger liegenden Schmelzpunkt aufweist als das UO_2 , gelang es in einem Fall, ein UO_2 -Pellet in einem solchen Tiegel zu schmelzen, ohne

⁺) Herrn Dipl.-Phys. Skoutajan von Battelle/Frankfurt danken wir für die Bereitstellung seines Labors und die persönliche Mitwirkung bei den Versuchen.

daß dieser zerstört wurde (er wies lediglich einen großen und mehrere kleine Risse auf). Der Grund dafür liegt in der Bildung eines unter 2000 °C schmelzenden Eutektikums. Der Temperaturgradient in der Tiegelwand war dabei so groß, daß die Wechselwirkung mit dem UO_2 praktisch nur an der Oberflächenschicht der Tiegelinnen-seite zustande kam.

Bei den Versuchen mit ThO_2 -Tiegeln konnten 3 g Corium-E (s.o.) unter Luftatmosphäre zum Schmelzen gebracht werden. Die Tiegel wurden dabei in einem äußeren Schutztiegel aus Al_2O_3 eingesetzt und der Zwischenraum mit MgO ausgefüllt.

Durch sehr langsames Aufheizen des Schmelzgutes und die gute Wärmeisolation nach außen sollten Wärmespannungen im ThO_2 -Tiegel vermieden werden. Dabei zeigte sich jedoch ein unerwarteter Effekt, nämlich ein starkes, schwammartiges Aufquellen des Schmelzgutes bis über den Tiegelrand.

Durch schnelles Hochheizen (Temperaturanstieg auf 1800 °C in 4 min) ließ sich dieses Quellen vermeiden; außerdem blieb dabei die Schmelzenoberfläche für die Beobachtung und pyrometrische Temperaturmessung zugänglich.

Da die metallographischen und chemischen Nachuntersuchungen von Schmelzgut und Tiegel noch ausstehen, ist vorläufig noch keine Interpretation der Versuche möglich.

b) Beschaffung der Schmelzanlage

Über die Lieferung eines Ofens mit HF-Generator für Verträglichkeitsversuche unter Wasserdampf-atmosphäre und Freisetzungsexperimente mit schwach aktivem Brennstoff wurden mit mehreren Lieferfirmen Verhandlungen geführt. Erste Angebote liegen bereits vor.

Der Umbau des vorhandenen widerstandsbeheizten Ofens, der für die Erprobung der Temperaturmessung vorgesehen ist, wurde in die Wege geleitet. Die Lieferung der zusätzlich erforderlichen Teile erfolgt im 2. Halbjahr 1973. Auch der Umbau von Kühlwasserversorgung und

Vakuumsystem sind in Arbeit.

Für die Temperaturmessung wurde ein Quotientenpyrometer bestellt. Das zusätzlich vorgesehene Spektralphotometer ist vorhanden und wird für die Montage vorbereitet. Ferner wurde eine Reihe von Schmelztiegeln bestellt, und zwar (1) für die Eichung der Temperatur-Meßgeräte anhand der Schmelzpunkte verschiedener Metalle (2) für weitere systematische Vorversuche sowie (3) die eigentlichen Verträglichkeitsversuche unter Wasserdampf.

Literatur:

[1_] 2. Halbjahresbericht 1972 des PNS, KFK 1787, S. 58-65

4245 Untersuchungen zu einem passiven Core-Catcher-Kühlsystem
(A. Mack, D. Perinic, RBT)

In einer Durchführbarkeitsstudie wurde gezeigt, daß 80 % der Nachwärmeleistung eines 3000 MWth -Reaktors, die 30 min nach dem Schadenseintritt entbunden wird, mit dem vorgeschlagenen Kühlsystem unter statischen Verhältnissen an die Umgebungsluft abgeführt werden kann. Die der Untersuchung zugrundegelegten Berechnungsunterlagen basieren auf empirisch ermittelten Formeln, deren Gültigkeit für den vorliegenden Anwendungsfall experimentell nachgewiesen werden muß. Dazu wurde eine Versuchsanlage vorgeschlagen, mit der die verschiedenen Betriebszustände simuliert werden können.

Zur Auswahl einer geeigneten Wärmequellsimulation für den Verdampfer-einsatz wurde ein Vorversuch durchgeführt, bei dem die maximale Belastung eines Miniaturmantelheizleiters getestet wurde.

Die Durchführbarkeitsstudie beschränkt sich auf die Untersuchung der Wärmeabfuhr über die Corecatcherwandung an das Wärmeträgermedium und die Auslegung des Kühlkreislaufes, ohne auf die Vorgeschichte und die nachfolgenden Konsequenzen des angenommenen, hypothetischen Unfalls

näher einzugehen. Die vorgegebenen Randbedingungen müssen durch z.Z. an anderen Stellen laufende und noch durchzuführende Untersuchungen bestätigt oder an deren Ergebnisse angepaßt werden. Diese Untersuchungen umfassen insbesondere:

1. Unfallablauf bis zum Vorliegen der Coreschmelze im Core-Catcher.
2. Chemisches, thermisches und hydraulisches Verhalten der Coreschmelze.
3. Verträglichkeit Linermaterial - Coreschmelze.
4. Einfluß der Wärmequellen aus exothermen chemischen Reaktionen.
5. Konstruktion des Core-Catchers und Belastung durch dynamische Beanspruchungen.
6. Exakte Stoffwerte für Struktur- und Linermaterialien bei hohen Temperaturen.

Die Arbeiten am Teilprojekt PNS 4245 wurden auf Beschluß des Projekt-rates vorläufig zurückgestellt, bis detailliertere Kenntnisse über die o.g. Problemkreise vorliegen.

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN
 BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktions-
 vorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Stör-
 fällen

4311 Nukleare Schadstoffe in der Nachunfall-Atmosphäre eines Leicht-
 wasser-Reaktor (LWR)-Containments
 (J.P. Hosemann, H. Jordan, IASR/RPU)

Die im Juni 1973 fertiggestellte Studie "Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines Leichtwasser-Reaktor(LWR)-Containments (Übersicht und Stand der Kenntnis)" [1] zeigt unter anderem, daß über die Abscheidung partikelförmiger Schadstoffe in der Luft-Dampf-Atmosphäre, wie sie bei Störfällen eines LWR erwartet wird, nur sehr wenig bekannt ist. Experimentelle und theoretische Untersuchungen galten bisher überwiegend den Möglichkeiten, Spaltjod mit Hilfe von Sprühanlagen auszuwaschen.

Ziel der eigenen Arbeiten ist die Entwicklung eines Modells zur Berechnung des Aerosolverhaltens in der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Sicherheitsbehälters (NAUA). Zunächst war zu klären, welche physikalischen Effekte am Abbau von Partikelkonzentrationen beteiligt sind und welche dieser Effekte im Rechenprogramm berücksichtigt werden müssen.

Das Verhalten des Misch aerosols, bestehend aus löslichen festen Partikeln, unlöslichen festen Partikeln, Wassertröpfchen mit löslichen und unlöslichen Partikeln als Kern, Wassertröpfchen mit Aitken-Kernen und Wassertropfen aus Sprühdüsen wird bestimmt durch

- Auslegung des Sprühsystems
- Koagulation
- Impaktion
- Interzeption
- Sedimentation
- Diffusion
- Diffusiophorese
- Thermophorese

- Stephan-Strömung
- Kondensation
- Konvektion und Turbulenz.

Über den Stand der Voruntersuchungen zur Sedimentation, zur Impaktion und Interzeption und zur Kondensation an unlöslichen Partikeln wird im folgenden berichtet. Dabei werden zunächst nur die Wechselwirkungen innerhalb der dispersen Phase des Aerosols betrachtet. Sehr wesentlich werden sich jedoch auch die meisten der oben aufgeführten Effekte auf die Abscheidung der Partikel an den Behälterwandungen auswirken.

Sedimentation

Die Radien der Partikel, Tröpfchen und Tropfen in der LWR-Atmosphäre liegen in einem für die Aerosolmechanik sehr großen Intervall. Sie reichen von etwa 0,01 μm bei den festen Partikeln bis zu 0,3 cm bei den Sprühtropfen. In einem so ausgedehnten Bereich existiert keine geschlossene Theorie für die Bewegung des Aerosols in gasförmigem Medium.

Für den Widerstand, den das Medium den Partikeln bzw. Tropfen entgegensetzt, gilt bei einem zugelassenen Fehler von 10 % im Bereich

$$0,05 \mu\text{m} < r < 10 \mu\text{m}$$

die empirisch erweiterte Formel von Cunningham [2]

$$(1) F_{\mu} = -6\pi\eta r \cdot v \left(1 + A \frac{1}{r} + Q \frac{1}{r} e^{-br/l}\right)^{-1}$$

- mit b, A, B : Konstanten
 r : Partikelradius
 η : dynamische Zähigkeit des Mediums
 v : Geschwindigkeit der Partikel
 l : freie Weglänge der Moleküle des Mediums

Es sind die folgenden von Millikan [2] gefundenen Werte gebräuchlich:

$A = 0,864$; $Q = 0,29$; $b = 1,25$, die jedoch neuerdings in Frage gestellt werden.

Die mittlere freie Weglänge der Moleküle kann mit

$$l = 0,0653 \mu\text{m} \text{ angenommen werden [3].}$$

Für den Bereich $0,8 \mu\text{m} \leq r \leq 35 \mu\text{m}$ gilt bei einem zugelassenen Fehler von 10 % die Stokes-Formel [3].

$$(2) \quad F_{\mu} = -6\pi\eta r V$$

Im Bereich von $5 \cdot 10^{-4} \mu\text{m} < r < 0,02 \mu\text{m}$ läßt sich für den Reibungswiderstand die Gleichung aus der Molekularkinetik bei einem maximalen Fehler von 10 % anwenden:

$$(3) \quad F_{\mu} = - \frac{6\pi\eta r^2 V}{(A+Q) l}$$

Der Zahlenwert von $(A+Q)$ hängt von der Art der Reflexion der Gasmoleküle an den Partikeln ab.

Für Spiegelreflexion gilt: $(A+Q) = 1,175$,

für diffuse Reflexion mit Erhaltung der absoluten Geschwindigkeit der Moleküle ist $(A+Q) = 1,091$ und bei diffuser Reflexion, bei der sich eine Geschwindigkeitsverteilung der Moleküle in Übereinstimmung mit der Oberflächentemperatur der Partikel einstellt, ist $(A+Q) = 1,131$ [4].

Die Gleichungen 1 - 3 sind anwendbar für Reynoldszahlen $Re \leq 3$. Im Bereich größerer Reynoldszahlen ($3 \leq Re \leq 1000$) können Trägheitskräfte nicht mehr vernachlässigt werden. Im Gegensatz zu molekularer oder viskoser Strömung ist der Strömungswiderstand nicht mehr der Geschwindigkeit proportional. Er ändert sich vielmehr mit V^{α} , wobei α stetig mit Re zunimmt. Im Bereich $Re \leq 1000$ kann diese Tatsache durch Einführung des dimensionslosen drag-Faktors ψ berücksichtigt werden. Für den Widerstand gilt dann

$$(4) \quad F_{\mu} = \psi \frac{\rho_L V^2}{2} \pi r^2 \quad (\rho_L : \text{Dichte des Mediums})$$

Nach Klyachko [9] gilt für den Zusammenhang $\psi(Re)$:

$$(5) \quad \psi = \frac{Re}{24} + \frac{4}{3\sqrt{Re}} \quad \text{Mit}$$

$$(6) \quad Re = \frac{2r \rho_L V}{\eta} \quad \text{und mit Hilfe}$$

von Gl. (4) läßt sich die Sedimentationsgeschwindigkeit einer gegebenen Partikel mit dem Radius r und der Dichte ρ finden, wenn man F_{μ} durch die Gravitationskraft ersetzt.

Es wird dann

$$(7) \quad \text{Re}^2 \psi = \frac{32}{3} \cdot \frac{r^3 \rho \rho_L g}{\eta^2}$$

Besonders schwierig zu behandeln ist der Größenbereich von $35 \mu\text{m} < r < 3000 \mu\text{m}$. Da es sich hierbei nur um Wassertropfen handeln kann, verformen sich diese mit zunehmender Masse zu Ellipsoiden unter dem Einfluß der Reibung bei der Sedimentation. Dadurch wird aber auch der Widerstand erheblich vergrößert, so daß sich Sinkgeschwindigkeiten ergeben, die sehr viel geringer sind, als die von Kugeln mit gleichem Volumen.

Die Abplattung der Tropfen kann durch Einführung eines dynamischen Formfaktors f' in die Stokes-Gleichung (2) berücksichtigt werden:

$$(8) \quad F_{\mu} = -6\pi\eta a f' V$$

a bedeutet die Länge der Äquatorhalbachse,

Für polar abgeplattete Kugeln (oblate ellipsoid) und eine Bewegung in Richtung der polaren Achse läßt sich der Formfaktor f' angeben. Ist β das Verhältnis von Äquatorachse zu Polarachse, dann gilt:

$$(9) \quad f' = \frac{4}{3} (\beta^2 - 1) \left[\frac{\beta (\beta^2 - 2)}{\sqrt{\beta^2 - 1}} \arctan \sqrt{\beta^2 - 1} + \beta \right]^{-1} \quad [7]$$

Für Berechnungen zweckmäßiger ist die Einführung eines äquivalenten Radius $r_{\text{ä}}$ einer Kugel mit gleichem Volumen wie das Ellipsoid. Für den an den Polen abgeplatteten Tropfen ist:

$$(10) \quad r_{\text{ä}} = a \cdot \beta^{-1/3}. \quad \text{Damit wird}$$

$$(11) \quad a f' = r_{\text{ä}} \cdot \beta^{1/3} f' = r_{\text{ä}} \cdot f$$

Gl. (8) kann nun ersetzt werden durch

$$(12) \quad F_{\mu} = -6\pi\eta r_{\text{ä}} f \cdot V.$$

Die Sinkgeschwindigkeit V_K einer Kugel mit dem Radius $r_{\ddot{a}}$ zur Sinkgeschwindigkeit V_P einer abgeplatteten Kugel mit gleichem Volumen verhält sich wie

$$(13) \quad \frac{V_K}{V_P} = f.$$

Schließlich kann man noch einen Sedimentationsradius r_s definieren als den Radius einer Kugel, die mit derselben Geschwindigkeit sedimentiert wie das Ellipsoid mit gleicher Dichte. m_s und $m_{\ddot{a}}$ seien die Massen der Tropfen.

Aus

$$\frac{m_s}{m_{\ddot{a}}} = \frac{r_s}{r_{\ddot{a}} \cdot f} \quad \text{folgt dann}$$

$$(14) \quad f = (r_{\ddot{a}} / r_s)^2$$

Da für Wassertropfen experimentelle Daten über die Sinkgeschwindigkeit in Luft bei 20 °C und 760 Torr vorliegen [5, 6], haben wir für die spätere Verwendung im Rechenmodell die Werte der folgenden Tabelle 4311-1 berechnet, die mit genügender Genauigkeit linear interpolierbar sind.

Der starke Einfluß der Verformung fallender Tropfen auf die Sinkgeschwindigkeit wird deutlich. Ein kugelförmiger Tropfen mit einem Radius von 277,45 µm sinkt (unter Vernachlässigung des drag-Faktors) genauso schnell wie ein deformierter Tropfen mit einer 1142 mal größeren Masse.

Die Reynoldszahlen für die Tropfen nach Tabelle 4311-1 liegen alle im Bereich von

$$Re = 1,4 \cdot 10^3 \text{ bis } Re = 2,8 \cdot 10^5.$$

Damit ist keine der oben angegebenen Gleichungen mehr zulässig. Für spätere Rechnungen werden aber nur die Sedimentationsgeschwindigkeiten der Tropfen benötigt, die mit der Tabelle 4311-1 bekannt sind, oder die relativen Strömungsgeschwindigkeiten zwischen zwei verschieden

| $\frac{r_g}{\mu\text{m}}$ | $\frac{v_s}{\text{cm/s}}$ | $\frac{r_s}{\mu\text{m}}$ | f |
|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------|
| 50 | 27 | 47,61 | 1,103 |
| 100 | 72 | 77,74 | 1,654 |
| 150 | 117 | 99,10 | 2,291 |
| 200 | 162 | 116,62 | 2,941 |
| 250 | 206 | 131,50 | 3,614 |
| 300 | 247 | 143,99 | 4,341 |
| 350 | 287 | 155,22 | 5,085 |
| 400 | 327 | 165,68 | 5,829 |
| 450 | 367 | 175,52 | 6,573 |
| 500 | 403 | 183,93 | 7,390 |
| 600 | 464 | 197,36 | 9,243 |
| 700 | 517 | 208,33 | 11,290 |
| 800 | 565 | 217,78 | 13,494 |
| 900 | 609 | 226,10 | 15,844 |
| 1000 | 649 | 233,41 | 18,355 |
| 1100 | 690 | 240,67 | 20,890 |
| 1200 | 727 | 247,04 | 23,596 |
| 1300 | 757 | 252,08 | 26,595 |
| 1400 | 782 | 256,21 | 29,858 |
| 1500 | 806 | 260,11 | 33,255 |
| 1600 | 826 | 263,32 | 36,920 |
| 1700 | 844 | 266,18 | 40,791 |
| 1800 | 860 | 268,69 | 44,880 |
| 1900 | 872 | 270,55 | 49,317 |
| 2000 | 883 | 272,26 | 53,964 |
| 2100 | 892 | 273,64 | 58,895 |
| 2200 | 898 | 274,56 | 64,206 |
| 2300 | 903 | 275,32 | 69,787 |
| 2400 | 907 | 275,93 | 75,652 |
| 2500 | 909 | 276,24 | 81,907 |
| 2600 | 912 | 276,69 | 88,299 |
| 2700 | 914 | 276,99 | 95,014 |
| 2800 | 916 | 277,30 | 101,959 |
| 2900 | 917 | 277,45 | 109,253 |

Tab. 4311-1: Sinkgeschwindigkeit v_s von Wassertropfen in Luft, Formfaktor f und Sedimentationsradius r_s in Abhängigkeit vom Äquivalentradius r_g bei 20°C, 760 Torr und $\eta = 18,3 \cdot 10^{-5}$ Poise

großen Tropfen. In diesem Fall werden die Reynoldszahlen viel kleiner so daß jeweils für berechenbare Radien der kleineren Tropfen oder Partikeln $Re \leq 1000$ ist. Z.B. muß der Radius einer Partikel, die in das Strömungsfeld um einen Tropfen mit $r_g = 500 \mu\text{m}$ gelangt, $r \leq 2,5 \mu\text{m}$ sein, damit die Bedingung $Re \leq 100$ erfüllt ist und somit die Gleichungen (1-12) anwendbar sind.

Impaktion

Eine vereinfachte Form der Bewegungsgleichung von Partikeln, in der z.B. der Widerstand vernachlässigt ist, den das Medium einer beschleunigten Partikel entgegensetzt, lautet

$$(15) \quad m \frac{dV}{dt} = F(t) + F_{\mu}(V). \quad | \quad F(t) \text{ ist darin eine von außen auf die}$$

Partikel wirkende Kraft.

Wenn nur die Schwerkraft mg wirkt, dann stellt sich für $t \rightarrow \infty; \frac{dV}{dt} = 0$ die Sedimentationsgeschwindigkeit V_s ein, die der Erdbeschleunigung proportional sein muß:

$$(16) \quad 0 = g + \frac{F_{\mu}(V_s)}{m},$$
$$V_s = g \tau = - \frac{F_{\mu}(V_s)}{m} \tau.$$

Im Gültigkeitsbereich des Stokes'schen Gesetzes (Gl. 2) wird

$$V_s = g \tau = \frac{6\pi\eta r V_s}{m} \quad \text{und daraus}$$

$$\tau = \frac{m}{6\pi\eta r} \quad ; \quad V_s = \frac{mg}{6\pi\eta r} .$$

τ ist die sogenannte Relaxationszeit. Ein weiterer Begriff, der erklärt werden muß, ist die Stagnationsstrecke l :

Eine Partikel werde zur Zeit $t = 0$ an der Stelle $x = 0$ mit einer Geschwindigkeit v_0 in ein ruhendes Medium gebracht. Keine äußere Kraft soll wirken.

Aus Gl. (15) folgt dann für den zurückgelegten Weg auf der x-Achse:

$$x = v_0 \tau (1 - e^{-t/\tau}).$$

Für $t \rightarrow \infty$ wird

$$(17) \quad x = l_i = v_0 \tau, \text{ d.h. } l_i \text{ ist die Strecke,}$$

die die Partikel zurücklegt, bis sie zum Stillstand kommt. Wenn umgekehrt eine ebene Strömung auf eine Kugel gelangt, dann stagniert sie in Strömungsrichtung gerade im Abstand $l_i = u_0 \tau$ vom Mittelpunkt der Kugel. u_0 ist die Strömungsgeschwindigkeit in unendlicher großer Entfernung von der Kugel. Kennzeichnend für eine solche Strömung sind daher die Parameter: Radius der Kugel (R), Geschwindigkeit in großer Entfernung von der Kugel (u_0) und Relaxationszeit (τ).

Für physikalisch ähnliche Strömungen muß der Ausdruck

$$R^2 u_0^\beta \tau^\gamma \text{ dimensionslos werden.}$$

Wählt man willkürlich $\gamma = 1$, dann folgt $\beta = 1$ und $\alpha = -1$. Eine Kennzahl einer Strömung ohne Wirkung äußerer Kräfte ist somit

$$(18) \quad \frac{u_0}{R} = \frac{l_i}{R} = \text{StK, die sogenannte Stokes-Zahl.}$$

Sie spielt eine Rolle für die weiteren Betrachtungen.

Eine wesentliche Schwierigkeit bei der modelltheoretischen Behandlung von Strömungen mit Partikeln liegt darin begründet, daß man zwischen viskoser Strömung und Potential-Strömung unterscheiden muß. Bei viskoser Strömung um eine Kugel bzw. einen Tropfen, drängen sich die Stromlinien nicht zusammen, d.h. das strömende Medium erfährt keine Druckunterschiede, im Gegensatz zur Potential-Strömung mit z.T. erheblichen Druckanstiegen (kompressible Strömung in der Gasdynamik).

In unserem Fall gilt viskose Strömung etwa im Bereich $Re \leq 3$ und Potentialströmung für $Re \leq 5000$. Bisher existieren für den Zwischenbereich keine Strömungsgleichungen. Für die folgenden Abschätzungen werden daher stets Werte sowohl für viskose Strömung als auch für Potential-Strömung angegeben. Wie der Bereich $3 \leq Re \leq 5000$ im endgültigen Modell behandelt werden kann, ist noch nicht geklärt. Langmuir [9] schlägt z.B. vor, zwischen beiden Strömungsarten zu interpolieren,

Fuchs [3] hält diese Methode jedoch für falsch.

Strömungslinien schneiden sich nie und umhüllen Hindernisse, die sich in der Strömung befinden. Aufgrund ihrer Trägheit können Partikel im strömenden Medium die Stromlinien verlassen und auf dem Hindernis abgeschieden werden. Diesen Vorgang nennt man "Impaktion". In großem Abstand vom Hindernis verlaufen die Stromlinien geradlinig, in der Nähe des Hindernisses gekrümmt, um das Hindernis herum. Der Krümmungsradius wird mit wachsendem Abstand von der Mittelachse größer. Je größer aber der Krümmungsradius wird, desto eher können Partikel in der Strömung den Stromlinien folgen. In großer Entfernung von einer umströmten Kugel gibt es daher für eine gegebene Partikel den Abstand h einer Stromlinie von der Mittelachse der Kugel mit dem Radius R , die eine solche Krümmung hat, daß die Partikel gerade noch auf der Kugel abgeschieden wird. Das Verhältnis der Fläche πh^2 senkrecht zur Strömungsrichtung (innerhalb der Impaktion möglich ist), zur Querschnittsfläche der Kugel πR^2 ist der Impaktionswirkungsfaktor E .

$$(19) \quad E = \left(\frac{h}{R}\right)^2 \quad \text{ist somit die Wahrscheinlichkeit dafür,}$$

daß eine - zunächst als infinitesimal klein angenommene - Partikel mit gegebener Masse, die sich irgendwo in einem vertikalen Zylinder mit dem Radius R befindet, von einem senkrecht fallenden Tropfen mit gleichem Radius ausgewaschen wird, d.h. mit der Fallgeschwindigkeit des Tropfens sedimentiert.

Die Impaktionswahrscheinlichkeit E hängt von der Stokes-Zahl StK der Partikel oder des kleinen Tropfens ab.

Sowohl für viskose Strömung als auch für Potentialströmung gibt es eine kritische Stokes-Zahl StK_{Kr} , unterhalb der keine Impaktion mehr auftritt. Für viskose Strömung ist $StK_{Kr} = 1,214$, für Potentialströmung ist $StK_{Kr} = 1/12$ [3].

In der Literatur existieren für die Impaktionswahrscheinlichkeit an einer Kugel bei viskoser Strömung zwei empirische Formeln. Nach Langmuir und Blodgett [9] ist

$$(20) \quad E_v = \left[1 + \frac{0,75 \ln(2 \text{ StK})}{\text{StK} - 1,214} \right]^{-2}$$

und nach Khimach und Shishkin [10] ist

$$(21) \quad E_v = \left(1 - \frac{1,214}{\text{StK}} \right)^2 .$$

Im uns interessierenden Größenbereich von Partikeln und Tropfen ist E_v nach Gl. (21) maximal um 11 % größer als E_v nach Gl. (20). Da es um Reaktorsicherheitsfragen geht, haben wir uns für E_v nach Langmuir (Gl. (20)) entschieden.

Für Potential-Strömung ist nur die empirische Gleichung

$$(22) \quad E_p = \left(\frac{\text{StK}}{0,25 + \text{StK}} \right)^2 \quad \text{bekannt [9].}$$

Für Partikel oder Tröpfchen mit Radien $0,05 \mu\text{m} \leq r \leq 50 \mu\text{m}$ und fallende Tropfen mit Radien $50 \mu\text{m} \leq R \leq 3000 \mu\text{m}$ haben wir E_v und E_p berechnet. Einige Ergebnisse für Wasserdampfatosphäre mit $\eta = 14,6 \cdot 10^{-5}$ Poise bei 150°C und 736 Torr sind in Tabelle 4311-2 wiedergegeben. Die Fallgeschwindigkeit der Tropfen wurde nach Tabelle 4311-1 angenommen, die Sinkgeschwindigkeit der kleinen Tropfen wurde demgegenüber vernachlässigt. Die Stokes-Zahl für die Partikel, bzw. die Relaxationszeit wurde nach Gl. (1) bestimmt.

Interzeption

Bisher wurden die Partikel als infinitesimal klein angenommen. Wenn sie jedoch einen Radius $r > 0$ besitzen, dann wird der Abscheidewirkungsgrad dadurch erhöht, daß die Oberfläche der Partikel die Oberfläche des fallenden Tropfens berührt und die Partikel damit am Tropfen haften bleibt, obwohl der Schwerpunkt der jeweiligen Stromlinie um den Tropfen herum folgen kann. Diesen zusätzlichen Abscheidemechanismus nennt man "Interzeption". Bei Kenntnis des Verlaufs der Stromlinien um eine Kugel für viskose Strömung und für Potential-Strömung konnten wir den Zuwachs ΔE zum Impaktionswirkungsfaktor infolge von Interzeption berechnen.

| $\frac{r}{\mu\text{m}}$ | $E_v \overline{[\%]} \text{ Gl. (20)}$ | | | | $E_p \overline{[\%]} \text{ Gl. (22)}$ | | | |
|-------------------------|--|-----------------------|-----------------------|------------------------|--|-----------------------|-----------------------|------------------------|
| | R = 100 μm | R = 200 μm | R = 500 μm | R = 1000 μm | R = 100 μm | R = 200 μm | R = 500 μm | R = 1000 μm |
| 1 | 0 | 0 | 0 | 0 | - | - | - | - |
| 2 | 0 | 0 | 0 | 0 | 42,03 | 45,52 | 45,38 | 38,98 |
| 4 | 14,35 | 19,01 | 18,82 | 10,00 | 77,09 | 79,23 | 79,14 | 75,08 |
| 5 | 30,35 | 34,06 | 33,91 | 26,91 | 84,27 | 85,83 | 85,77 | 82,78 |
| 10 | 65,52 | 67,82 | 67,72 | 63,40 | 95,64 | 96,11 | 96,09 | 95,18 |
| 15 | 79,16 | 80,75 | 80,69 | 77,68 | 98,02 | 98,24 | 98,23 | 97,81 |
| 20 | 86,00 | 87,15 | 87,10 | 84,92 | 98,88 | 99,00 | 99,00 | 98,75 |
| 25 | 89,91 | 90,77 | 90,74 | 98,10 | 99,28 | 99,36 | 99,36 | 99,20 |
| 30 | 92,36 | 93,03 | 93,01 | 91,72 | 99,50 | 99,55 | 99,55 | 99,44 |
| 40 | 95,15 | 95,59 | 95,58 | 94,73 | 99,72 | 99,75 | 99,75 | 99,69 |
| 50 | 96,63 | 96,94 | 96,93 | 96,33 | 99,82 | 99,84 | 99,84 | 99,80 |

Tab. 4311-2:

Impaktionswirkungsfaktoren für viskose Strömung E_v und Potentialströmung E_p für Partikeln mit Radien r und Tropfen mit Radien R bei 150°C , $\eta = 14,6 \cdot 10^{-5}$ Poise und 736 Torr

ΔE hängt ausschließlich von der Größe

$$(23) \quad AK = 1 + \frac{r}{R} \quad \text{ab.}$$

Für viskose Strömung um eine Kugel gilt:

$$(24) \quad \Delta E_v = AK^2 - \frac{3}{2} AK + \frac{1}{2AK}$$

und für Potentialströmung

$$(25) \quad \Delta E_p = AK^2 - \frac{1}{AK}$$

Einige Werte für ΔE_v und ΔE_p in Wasserdampfatosphäre bei 150 °C, $\eta = 14,6 \cdot 10^{-5}$ Poise und 736 Torr zeigt Tabelle 4311-3.

Auswaschen durch Impaktion und Interzeption

Für eine Abschätzung des Auswascheffektes durch Impaktion und Interzeption soll im folgenden die Halbwertszeit t_H berechnet werden, nach der eine Konzentration von Partikeln oder kleinen Tröpfchen durch Auswaschen mit Sprühtropfen auf die Hälfte abgesunken ist.

Ist Q die Durchflußmenge der Flüssigkeit, die zu Tropfen mit dem Radius R zersprüht wird, dann gelangen pro Zeiteinheit

$$N_t = \frac{3Q}{4\pi R^3} \quad \text{Tropfen in das Containment}$$

mit der Grundfläche A und der Höhe H .

1 Tropfen wäscht pro Zeiteinheit das Volumen

$$V_t = \pi R^2 V_s \quad \text{aus.}$$

Ist $Z(t)$ die Anzahlkonzentration der monodispersen Partikel oder kleinen Tröpfchen, dann ist die Anzahl der Kollisionen mit einem Tropfen Sprühflüssigkeit pro Zeiteinheit

$$N_k = (E+\Delta E) \pi R^2 V_s Z(t) = (E+\Delta E) \pi R^3 V_s \frac{n(t)}{A H},$$

| $\frac{r}{\mu\text{m}}$ | ΔE_v [%] Gl. (24) | | | | ΔE_p [%] Gl. (25) | | | |
|-------------------------|-----------------------------|---------------------|---------------------|----------------------|-----------------------------|---------------------|---------------------|----------------------|
| | R=100 μm | R=200 μm | R=500 μm | R=1000 μm | R=100 μm | R=200 μm | R=500 μm | R=1000 μm |
| 0,05 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0,150 | 0,075 | 0,030 | 0,015 |
| 0,20 | 0,001 | 0 | 0 | 0 | 0,600 | 0,300 | 0,120 | 0,060 |
| 0,50 | 0,004 | 0,001 | 0 | 0 | 1,500 | 0,750 | 0,300 | 0,150 |
| 1,00 | 0,015 | 0,004 | 0,001 | 0 | 3,000 | 1,500 | 0,600 | 0,300 |
| 2,00 | 0,060 | 0,015 | 0,002 | 0,001 | 6,001 | 3,000 | 1,200 | 0,600 |
| 5,00 | 0,369 | 0,093 | 0,015 | 0,004 | | 7,501 | 3,000 | 1,500 |
| 10,00 | 1,455 | 0,369 | 0,060 | 0,015 | 30,09 | 15,01 | 6,001 | 3,000 |
| 15,00 | 3,228 | 0,824 | 0,134 | 0,033 | 45,29 | 22,54 | 9,002 | 4,500 |
| 20,00 | 5,667 | 1,455 | 0,237 | 0,060 | 60,67 | 30,09 | 12,006 | 6,001 |
| 25,00 | 8,750 | 2,257 | 0,369 | 0,093 | 76,25 | 37,67 | 15,012 | 7,501 |
| 30,00 | 12,46 | 3,228 | 0,530 | 0,134 | 92,08 | 45,29 | 18,02 | 9,002 |
| 40,00 | 21,71 | 5,667 | 0,936 | 0,237 | 124,6 | 60,67 | 24,05 | 12,01 |
| 50,00 | 33,33 | 8,750 | 1,455 | 0,369 | 158,3 | 76,25 | 30,09 | 15,01 |

Tab. 4311-3: ΔE_v und ΔE_p durch Interzeption bei 150°C,
 $\eta = 14,6 \cdot 10^{-5}$ Poise und 736 Torr

wobei $n(t)$ die Anzahl der Partikel im Containment bedeutet.

Damit folgt für die Konzentrationsabnahme durch Impaktion und Interzeption im Containment

$$- dZ = \frac{3Q}{4 AR} (E + \Delta E) \cdot Z \cdot dt$$

Für die Konzentration der Partikel ergibt sich

$$(26) \quad Z(t) = Z_0 \cdot e^{-t/\tau'} \quad \text{mit}$$

$$Z_0 = \text{Anfangskonzentration und } \tau' = \frac{4 AR}{3Q (E + \Delta E)}$$

Die Halbwertszeit ist

$$(27) \quad t_H = \tau' \cdot \ln 2.$$

Einige Ergebnisse für t_H bei viskoser Strömung (t_{HV}) und mit Potentialströmung (t_{HP}) sind in Tabelle 4311-4 wiedergegeben.

Das Verhältnis $\frac{Q}{A}$ ist wegen

$$\frac{Q}{A} = \frac{dV/dt}{A} = \frac{A \frac{dx}{dt}}{A} = \frac{dx}{dt} = v$$

gleich der Wasserausströmgeschwindigkeit durch die Containmentgrundfläche A . Für die Werte in Tabelle 4311-4 wurde angenommen: $Q = 100$ Liter/s; $A = 20 \text{ m} \times 20 \text{ m}$ und daraus $v = 0,025$ cm/s.

Kondensation

Es ist anzunehmen, daß kurz nach einem Kühlmittelverlust-Unfall die Atmosphäre des Containments eines wassergekühlten Reaktors ihr Gleichgewicht findet und sich daraufhin über Tage hinaus quasi-stationär verhält. Dies bedeutet, daß die Luft sowohl Träger von verschiedenen Aerosolpartikeln und Gasen als auch Träger einer Sättigungsmenge von Wasserdampf bei hohen Temperaturen ist.

| $\frac{r}{\mu\text{m}}$ | $t_{\text{HV}} \text{ [s]}$ | | | | $t_{\text{HP}} \text{ [s]}$ | | | |
|-------------------------|-----------------------------|---------------------|---------------------|-----------------------|-----------------------------|---------------------|---------------------|----------------------|
| | R=100 μm | R=200 μm | R=500 μm | R= 1000 μm | R=100 μm | R=200 μm | R=500 μm | R=1000 μm |
| 0,05 | 3,10 E6 | - | - | - | 2,47 E2 | 9,86 E2 | 6,21 E3 | 2,49 E4 |
| 0,20 | 5,91 E4 | 5,17 E5 | 3,45 E6 | 7,75 E6 | 6,16 E1 | 2,47 E2 | 1,54 E3 | 6,16 E3 |
| 0,50 | 9,94 E3 | 7,95 E4 | 1,29 E6 | 3,10 E7 | 2,47 E1 | 9,86 E1 | 0,17 E2 | 2,47 E3 |
| 1,00 | 2,48 E3 | 1,99 E4 | 2,95 E5 | 2,58 E6 | - | - | - | - |
| 2,00 | 6,20 E2 | 4,96 E3 | 7,97 E4 | 5,91 E5 | 0,77 | 1,52 | 3,97 | 9,34 |
| 5,00 | 1,20 | 2,17 | 5,45 | 13,74 | 0,37 | 0,79 | 2,08 | 4,39 |
| 10,00 | 0,55 | 1,08 | 2,73 | 5,83 | 0,29 | 0,66 | 1,81 | 3,77 |
| 15,00 | 0,45 | 0,91 | 2,29 | 4,76 | 0,26 | 0,61 | 1,72 | 3,61 |
| 20,00 | 0,40 | 0,83 | 2,12 | 4,35 | 0,23 | 0,57 | 1,67 | 3,53 |
| 25,00 | 0,37 | 0,79 | 2,03 | 4,15 | 0,21 | 0,54 | 1,62 | 3,47 |
| 30,00 | 0,35 | 0,77 | 1,98 | 4,02 | 0,19 | 0,51 | 1,57 | 3,41 |
| 40,00 | 0,32 | 0,73 | 1,92 | 3,89 | 0,16 | 0,46 | 1,49 | 3,31 |
| 50,00 | 0,28 | 0,70 | 1,88 | 3,82 | 0,14 | 0,42 | 1,42 | 3,22 |

Tab. 4311-4:

Auswaschhalbwertszeiten t_{H} in Abhängigkeit vom Partikelradius r und vom Tropfenradius R bei t 150°C, $\eta = 14,6 \cdot 10^{-5}$ Poise, 736 Torr und $v = 0,025$ cm/s

Durch Wärmetransport der Wände des Containments wird eine ständige Übersättigung einer dünnen Luftschicht an den Wänden bedingt. Diese bedingt ihrerseits Kondensation von Wasserdampf an den Wänden und damit sowohl einen Wasserdampfkonzentrations- wie einen Temperaturgradienten. Solche Gradienten erzeugen zum einen Auftriebskräfte und damit Konvektion und eine Durchmischung des Systems. Zum anderen aber bewirkt der Temperaturgradient eine thermophoretische Strömung, der Konzentrationsgradient eine diffusiophoretische Strömung von Partikeln an die Wände.

Diese Effekte wirken aber auf das System proportional dem Verhältnis von Wandfläche zu Volumen des Containments und spielen daher womöglich eine untergeordnete Rolle im Vergleich zu Wechselwirkungen innerhalb der dispersen Phase des Aerosols. Wir wollen aus diesem Grunde nur auf die letzteren näher eingehen.

Der Dampfdruck über einem Wassertropfen ist eine Funktion der Krümmung des Tröpfchens und ist gegeben durch die Thomsongleichung [11]:

$$(28) \quad P_r = P_\infty \exp(2\sigma M / \rho_w R T r)$$

wo

- P_∞ : Dampfdruck über einer unendlichen Fläche
bei Temperatur T
- T : Temperatur °K
- R : Gaskonstante
- M : Molekulargewicht
- ρ_w : Spezifische Dichte von Wasser
- σ : Oberflächenspannung von Wasser
- r : Radius des Tropfens

Da P_r immer größer als P_∞ ist, kann keine Kondensation in der dispersen Phase des Aerosols stattfinden, es sei denn, es wird eine künstliche Übersättigung, z.B. durch Sprühsysteme, erzeugt. Ist dies der Fall, dann sagt die Gleichung aus, daß ein kritischer Tropfenradius existiert. Tropfen mit kleineren Radien als der kritische verdampfen, größere Tropfen aber wachsen durch Kondensation so lange, bis die Übersättigung abgebaut ist.

Betrachten wir nur nichtlösliche Aerosolpartikel, so folgt, daß diese Kondensationskerne bilden, sobald sie größer als die oben erwähnte Mindestgröße sind. (Für lösliche Partikel genügt ein geringerer Radius.) Dieses bedeutet aber, daß genügend große Aerosolpartikel ständig wachsen. Da nun die oben behandelten Abscheideeffekte der Sedimentation, Impaktion und Interzeption stark von der Aerosolpartikel-Größe abhängen, ist es wichtig, neben der Mindest- oder Kerngröße auch die Wachstumsrate der Partikel zu erfassen. Dies geschieht z.B. durch eine von Mason entwickelte Gleichung [11].

Mason betrachtet das Wärme- und Massentransport-Gleichgewicht an der Oberfläche eines Wassertropfens in einer unendlichen, übersättigten Atmosphäre. Unter Annahme sphärischer Symmetrie lauten die Transportgleichungen:

$$(29) \quad \frac{d\eta_1}{dt} = 4\pi Kr (T_r - T_\infty) \quad : \text{Wärmeleitung durch Molekular-Diffusion}$$

$$(30) \quad \frac{d\eta_2}{dt} = 4\pi \rho_w L r^2 \frac{dr}{dt} \quad : \text{Latentwärmefluß}$$

$$(31) \quad \frac{dm}{dt} = 4\pi rD (\rho_\infty - \rho_r) \quad : \text{Massentransport}$$

Hier sind

$$\frac{d_i}{dt} \quad : \text{Wärmefluß von und zu dem Tropfen}$$

$$\frac{dm}{dt} \quad : \text{Massenfluß zum Tropfen}$$

D : Diffusionskonstante

K : Wärmeleitfähigkeit des Dampfes

L : Latente Wärme von Wasser

T_r : Temperatur des Tropfens

T_∞ : Temperatur der Atmosphäre

Vernachlässigt man Oberflächenerweiterungs-Energie und die Wärmekapazität des Tropfens, dann muß unter Gleichgewichtsbedingungen, die Wärmezufuhr durch Kondensation gleich der Wärmeabfuhr durch Molekulardiffusion, also Gl.(30) gleich Gleichung (29) sein. Hierdurch wird die Tropfentemperatur in Beziehung zu der Wachstumsrate gebracht.

Nun kann man aber diese Temperatur mit Hilfe der integrierten Clausius-Clapeyron-Gleichung als Sättigungsdampfdruck ausdrücken und diesen über den Begriff der Übersättigung auf den tatsächlichen Druck beziehen. Dieser bewirkt wiederum den Dampftransport zu dem Tropfen hin und das Gleichungssystem ist geschlossen. Es ergibt sich eine implizite Gleichung für $\frac{dr}{dt}$, [12], die nur in Näherungen explizit lösbar ist.

Unter der Annahme, daß

$$(32) \quad \frac{ML}{RT_{\infty}^2} (T_r - T_{\infty}) \ll 1,$$

$$(33) \quad T_r - T_{\infty} \ll 1$$

und daß das ideale Gasgesetz für die Tropfenumgebungsatmosphäre gilt, reduziert sich diese Gleichung auf die Mason-Gleichung

$$(34) \quad r \frac{dr}{dt} = \frac{S - \exp(20 M/\rho_w RTr)}{\frac{L\rho_w}{KT_{\infty}} \left(\frac{LM}{RT_{\infty}} - 1\right) + \frac{\rho_w RT_{\infty}}{MDP_s(T_{\infty})}}$$

worin die noch nicht definierten Größen

$$\begin{aligned} S &: \text{Dampfsättigung} \\ P_s(T_{\infty}) &: \text{Sättigungsdampfdruck} \end{aligned}$$

bedeuten.

Diese Gleichung wurde von uns für eine Atmosphärentemperatur von 130°C für verschiedene Übersättigungen ausgerechnet. Einige der Ergebnisse sind in Tabelle 4311-5 aufgetragen. Um ein Maß für die durch Sedimentation begrenzte Aufenthaltszeit der Partikel in einem makroskopischen Volumen zu gewinnen, wird in der Tabelle sowohl die Fallgeschwindigkeit (velocity)

INITIAL TEMPERATURE = 130.000 DEG.C $\Delta T = -0.100$ DEG.C
 PER CENT SATURATION = 100.2989
 MINIMUM RADIUS (MU) = 0.2213

| TIME (SEC) | RADIUS (MU) | VELOCITY (CM/SEC) | DISTANCE (METER) |
|---------------|----------------|----------------------|---------------------|
| 0.0 | 0.223 | 0.0 | 0.0 |
| 23.809 | 7.720 | 0.870 | 0.102 |
| 33.657 | 9.234 | 1.243 | 0.207 |
| 40.835 | 10.201 | 1.515 | 0.307 |
| 46.769 | 10.936 | 1.741 | 0.404 |
| 52.549 | 11.609 | 1.960 | 0.512 |
| 57.916 | 12.201 | 2.165 | 0.623 |
| 61.399 | 12.571 | 2.298 | 0.701 |
| 66.376 | 13.081 | 2.487 | 0.821 |
| 70.376 | 13.478 | 2.640 | 0.924 |
| 74.619 | 13.886 | 2.802 | 1.040 |

INITIAL TEMPERATURE = 130.000 DEG.C. $\Delta T = - 0.500$ DEG.C
 PER CENT SATURATION = 101.5062
 MINIMUM RADIUS (MU) = 0.0442

| TIME (SEC) | RADIUS (MU) | VELOCITY (CM/SEC) | DISTANCE (METER) |
|---------------|----------------|----------------------|---------------------|
| 0.0 | 0.045 | 0.0 | 0.0 |
| 10.102 | 11.616 | 1.963 | 0.100 |
| 14.435 | 13.895 | 2.805 | 0.204 |
| 17.602 | 15.348 | 3.421 | 0.304 |
| 20.225 | 16.455 | 3.932 | 0.401 |
| 22.783 | 17.468 | 4.429 | 0.509 |
| 25.160 | 18.359 | 4.891 | 0.620 |
| 27.239 | 19.104 | 5.296 | 0.726 |
| 28.911 | 19.683 | 5.621 | 0.818 |
| 30.685 | 20.280 | 5.966 | 0.921 |
| 32.568 | 20.894 | 6.332 | 1.037 |

Tab. 4311-5: Tropfenwachstumsgeschwindigkeiten für verschiedene
 Temperatursenkungen (Erklärung siehe Text)

INITIAL TEMPERATURE = 130.000 DEG.C $\Delta T = - 0.010$ DEG.C
PER CENT SATURATION = 100.0298
MINIMUM RADIUS (MU) = 2.2197

| TIME (SEC) | RADIUS (MU) | VELOCITY (CM/SEC) | DISTANCE (METER) |
|---------------|----------------|----------------------|---------------------|
| 0.0 | 2.242 | 0.0 | 0.0 |
| 125.764 | 2.501 | 0.092 | 0.101 |
| 208.103 | 3.305 | 0.161 | 0.201 |
| 259.555 | 4.032 | 0.238 | 0.303 |
| 296.914 | 4.589 | 0.308 | 0.406 |
| 325.837 | 5.019 | 0.368 | 0.504 |
| 350.580 | 5.381 | 0.424 | 0.603 |
| 373.614 | 5.712 | 0.478 | 0.708 |
| 394.284 | 6.004 | 0.527 | 0.812 |
| 411.886 | 6.247 | 0.571 | 0.909 |
| 430.570 | 6.501 | 0.618 | 1.021 |

INITIAL TEMPERATURE = 130.000 DEG.C $\Delta T = - 0.050$ DEG.C
PER CENT SATURATION = 100.1492
MINIMUM RADIUS (MU) = 0.4428

| TIME (SEC) | RADIUS (MU) | VELOCITY (CM/SEC) | DISTANCE (METER) |
|---------------|----------------|----------------------|---------------------|
| 0.0 | 0.447 | 0.0 | 0.0 |
| 36.467 | 6.372 | 0.594 | 0.101 |
| 50.435 | 7.622 | 0.848 | 0.202 |
| 61.687 | 8.504 | 1.054 | 0.310 |
| 70.199 | 9.117 | 1.211 | 0.407 |
| 78.474 | 9.678 | 1.364 | 0.515 |
| 84.551 | 10.071 | 1.477 | 0.601 |
| 91.120 | 10.480 | 1.599 | 0.703 |
| 98.220 | 10.905 | 1.731 | 0.822 |
| 103.920 | 11.236 | 1.837 | 0.924 |
| 109.963 | 11.576 | 1.949 | 1.039 |

als auch die Fallstrecke (distance) in Abschnitten von 10 cm bis zu 1 m angegeben.

Man erkennt, daß bereits für einen Temperaturrückgang von nur $\frac{1}{2}^{\circ}\text{C}$ Partikeln größer als $r = 0,05 \mu\text{m}$, also der größte Teil der Gesamtmasse der zu erwartenden Partikeln, Kondensationskerne bilden. Diese verschwinden aber durch Sedimentation aus dem Containment in einer Zeitspanne von nur wenigen Minuten.

Einige Ergebnisse unserer Berechnungen zur Klärung des Einflusses von Sedimentation, Impaktion, Interzeption und Kondensation bei der Abscheidung von Partikeln und Tropfen in LWR-Containments wurden in den Tabellen 4311-1 - 5 gezeigt. Generell stellte sich folgendes heraus:

Die Impaktion bei viskoser Strömung trägt merklich zur Abscheidung bei, wenn $r > 3 \mu\text{m}$. Mit wachsendem r wird der Impaktionswirkungsfaktor größer, ändert sich aber nur noch wenig für $r > 25 \mu\text{m}$. Der Wirkungsfaktor nimmt zunächst auch mit wachsendem R zu, erreicht bei $R = 260 \mu\text{m}$ ein Maximum und nimmt anschließend mit weiter wachsendem R wieder ab.

Bei Potential-Strömung ist der Einfluß der Impaktion für $r \geq 2 \mu\text{m}$ zu berücksichtigen. Er nimmt ebenfalls mit wachsendem r zu und ändert sich nur noch unwesentlich für $r > 10 \mu\text{m}$. Auch hier existiert ein - allerdings noch flacheres - Maximum bei $R = 260 \mu\text{m}$. Der Impaktionswirkungsfaktor für Potential-Strömung ist größer als der für viskose Strömung.

Der zusätzliche Effekt der Interzeption bei der Partikel- oder Tröpfchen-Abscheidung nimmt mit wachsendem r zu und mit wachsendem R ab. Bei viskoser Strömung wird der Einfluß erst für $r \geq 20 \mu\text{m}$ und $R \leq 100 \mu\text{m}$ nennenswert.

Für $r \leq 2 \mu\text{m}$ wirkt sich nur die Interzeption allein auf die Abscheidung aus. Der Effekt ist jedoch sehr gering.

Bei Potential-Strömung ist der Interzeptionswirkungsfaktor erheblich größer. Er erreicht für $r \geq 25 \mu\text{m}$ und $R \leq 200 \mu\text{m}$ die Größenordnung des Wirkungsfaktors der Impaktion. Für $r \leq 1 \mu\text{m}$ wirkt nur noch die Interzeption allein.

Wie stark durch Impaktion und Interzeption eine Partikel- oder Tröpfchenkonzentration in einem angenommenen Containment abgebaut werden kann, zeigen die von uns berechneten Halbwertszeiten.

Unter den oben genannten Annahmen kommt es zu einem merklichen Auswascheffekt und damit zu deutlich verkürzten Halbwertszeiten für $r \geq 4 \mu\text{m}$ bei viskoser Strömung und für $r \geq 2 \mu\text{m}$ bei Potential-Strömung. Für beide Strömungen wächst die Halbwertszeit mit zunehmendem R und nimmt ab mit zunehmendem r. Partikel oder Tröpfchen mit $r \geq 10 \mu\text{m}$ werden praktisch gleichgut abgeschieden.

Da die festen Partikel im Containment nach einem Störfall sehr wahrscheinlich Radien unter $0,2 \mu\text{m}$ besitzen, kann Impaktion, Interzeption und Sedimentation nur dann zur Abscheidung beitragen, wenn sie durch Kondensation wachsen. Nach unseren Berechnungen muß dazu die Containment-Atmosphäre z.B. von 130°C um mindestens $0,1^\circ\text{C}$ durch Sprühwirkung schnell abgekühlt werden. Nach 20 sec. sind aus den Partikeln Tröpfchen mit Radien $r > 7 \mu\text{m}$ entstanden, so daß die Abscheideeffekte wirksam werden können. Die Kondensation ist somit eine notwendige Bedingung dafür, daß die hier behandelten Abscheideeffekte zum Tragen kommen.

Eigene Veröffentlichungen:

- [1] J.P. Hosemann, H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild:
"Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines Leichtwasserreaktor (LWR)-Containments (Übersicht und Stand der Kenntnis)"
KFK 1800, Juni 1973

Zitierte Literatur:

- [2] Millikan, R.:
Phys. Rev. 22, 1 (1923)
- [3] Fuchs, N.A.:
"The Mechanics of Aerosols"
Pergamon, 1964

- [4] Eppstein, P.
Phys. Rev., 23, 710 (1924)
- [5] Gunn, R.
M. Meteor., 6, 243 (1949)
- [6] Best, A.
Quart. J. Roy. Meteor. Soc. 76, 302 (1950)
- [7] Happel, J., Brenner, H.
"Low Reynold Number Hydrodynamics"
Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs, N.J., 1965
- [8] Klyachko, L.
Otopl. i ventil., No. 4 (1934)
- [9] Langmuir, I.
J. Meteor., 5, 175 (1948)
- [10] Khimach, M., Shishkin, N.
Trudy 660, No. 31 (93); 29 (1951)
- [11] Mason, B.J.
"The Physics of Clouds"
Oxford Press (1957)
- [12] Israel, H., Nix, N.
"Untersuchungen der Kondensation von Wasserdampf auf Luftkolloiden
im Hinblick auf deren Anwendung im Rahmen der Reinhaltung der Luft"
Forschungsberichte des Landes Nordrhein-Westfalen, Nr. 2135
Westdeutscher Verlag, Köln und Opladen (1970)

4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase

4312.1 Modelluntersuchungen

(W. Hübschmann, K. Nester, ASS)

Die Arbeiten auf dem Gebiet der Ausbreitung radioaktiver Gase wurden sowohl im theoretischen als auch im praktischen Teil planmäßig fortgeführt. Die in 100 m Höhe am meteorologischen Meßturm installierte Vektorfahne konnte in den Routinebetrieb übernommen werden. Zunächst wird ein Vergleich der Horizontal-Fluktuationen der Vektorfahne mit denen der herkömmlichen Lambrecht-Windfahnen durchgeführt, um festzustellen, wieweit auch aus dem Verhalten der letzteren mit ausreichender Sicherheit auf die Turbulenz und die Ausbreitung in der Atmosphäre geschlossen werden kann.

Die im Berichtszeitraum abgeschlossenen theoretischen Arbeiten umfassen Dosisstatistiken mit thermischer Überhöhung, die Auswertung von Kr-85-Messungen zur Überwachung der Emissionen aus der WAK sowie Untersuchungen zur diskontinuierlichen Aktivitätsabgabe aus einer kerntechnischen Anlage.

1. Dosisstatistik für Emittenten mit thermischer Überhöhung

Zur Beurteilung der Umweltbelastung durch Schadstoffemissionen aus einer Einzelquelle und zum Vergleich mit Messungen ist es notwendig, neben den maximalen Bodenkonzentrationen auch die statistische Verteilung der Konzentrationen an einem Netz von Punkten in der Umgebung in Abhängigkeit von der Mittelungszeit zu kennen. Statistiken der Dosis (zeitlich integrierte Konzentration) stellen eine solche Beurteilungsgrundlage dar und wurden anhand der meteorologischen Daten der Jahre 1968/69 am Beispiel eines Emittenten mit thermischem Auftrieb aus einem 100 m hohen Kamin berechnet. Die Ergebnisse werden auf dem 3. Internationalen Kongress "Reinhaltung der Luft" in Düsseldorf, Oktober 1973, vorgetragen [1]. Es zeigte sich bei den Untersuchungen, daß auch bei starker thermischer Überhöhung die höchsten 1- bis 3-h-Dosen in kurzen Entfernungen vom Emittenten auftreten, d.h. den labilen Situationen zuzuordnen sind. Ihre Häufigkeit und Beständigkeit sind allerdings gering.

2. ^{85}Kr -Überwachung in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage

Im Rahmen der Überwachung der ^{85}Kr -Emissionen aus der WAK wurden während einer Reihe von Auflösevorgängen Luftproben in der Umgebung genommen und im Labor ausgemessen. Anhand der im KFZ vorliegenden meteorologischen Daten wurden außerdem an den Sammelstellen die theoretisch zu erwartenden ^{85}Kr -Konzentrationen in der Luft berechnet und mit den gemessenen verglichen [2]. Dabei zeigte sich, daß bei Verwendung der PASQUILL'schen Ausbreitungsparameter und trotz Berücksichtigung gewisser Schwankungsbreiten der meteorologischen Parameter in den Rechnungen die Meßwerte an Sammelstellen in der Nähe der mittleren Ausbreitungsrichtung deutlich geringer waren als die theoretisch bestimmten.

3. Umgebungsbelastung durch diskontinuierliche Emission radioaktiver Gase

Werden radioaktive Abgase nicht kontinuierlich emittiert, wie z.B. bei einer Wiederaufarbeitungsanlage, so stellt sich die Frage, ob durch diese Betriebsweise wesentlich andere, insbesondere höhere Dosen in der Umgebung auftreten können als bei kontinuierlicher Emission. Die größten Abweichungen sind dann zu erwarten, wenn die Emissionen stets zur selben Tageszeit stattfinden. Es wurde für die WAK angenommen, daß diese jeweils

- a) nur zwischen 24 Uhr und 6 Uhr
- b) nur zwischen 10 Uhr und 16 Uhr

emittiert. Die Annahme a) führt in größerer Entfernung von der Quelle zum Maximum und in kurzer Entfernung von der Quelle zum Minimum.

Die Annahme b) liefert die beiden anderen Extremwerte. Die dem Fall b) entsprechenden Isolinien sind in Abb. 4312-1 dargestellt [3]. Die Abweichungen gegenüber kontinuierlicher Emission sind nicht gravierend. Es können in der Umgebung bis zu einem Faktor 2 höhere Dosen als bei gleichmäßiger Emission auftreten.

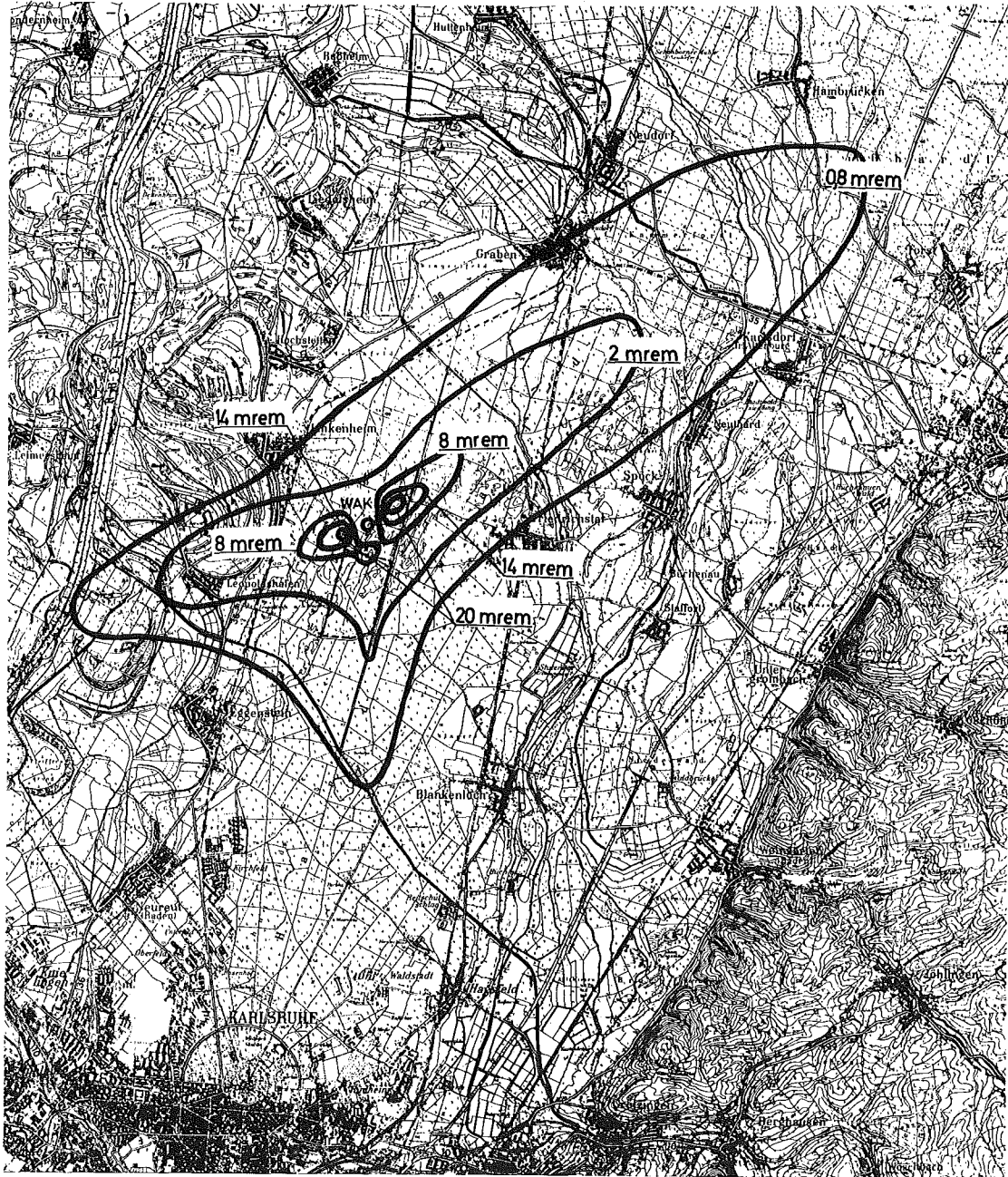


Abb. 4312-1: Isolinien der β -Dosen durch intermittierende Kr-85-Emission der WAK

(Emissionszeitraum 10 - 16 Uhr)

Eigene Veröffentlichungen und Vorträge:

[⁻1₋] K. Nester, W. Hübschmann:

Die Dosisstatistik als Mittel zur Beurteilung der Umweltbelastung durch Schadstoffemissionen in die Atmosphäre
3. Internationaler Kongress Reinhaltung der Luft,
8.-12.10.1973, Düsseldorf

[⁻2₋] H. Fessler, L.A. König, K. Nester, M. Winter:

Preliminary Experience Gained in Monitoring ⁸⁵Krypton-
Immissions in the Neighborhood of the Karlsruhe Reprocessing
Plant
Symposium on Environmental Behaviour of Radionuclides Released
in the Nuclear Industry, Aix-en-Provence, 14.-18. Mai 1973,
France

[⁻3₋] H. Kiefer, W. Koelzer ed.:

ASS-Jahresbericht 1972, KFK 1818

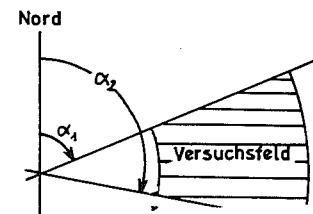
4312.2 Experimentelle Untersuchung der atmosphärischen Ausbreitung
mit tritiiertem Wasserdampf als Tracer
(L.A. König, M. Winter, D. Schwenke, ASS)

Die Experimente zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung mit tritiiertem Wasserdampf als Tracer wurden fortgesetzt. Im ersten Halbjahr 1973 wurden insgesamt 7 Ausbreitungsexperimente durchgeführt. Bei jedem Ausbreitungsexperiment bestand das Versuchsfeld aus 25 Sammelstellen, an denen in 3 Sammelperioden von je 30 min Dauer Luftfeuchteproben genommen wurden. Lediglich beim Experiment Nr. 16 wurden nur zwei Sammelperioden durchgeführt. Einzelheiten zur organisatorischen Durchführung der Versuche, zur Technik der Probenahme und zur Meßtechnik wurden bereits in [⁻1₋] und [⁻2₋] ausführlich beschrieben.

Tabelle 4312-1 gibt eine Übersicht über die Versuchsbedingungen bei den Ausbreitungsexperimenten Nr. 13 bis 19 (Fortsetzung der entsprechenden Tabelle in [⁻3₋]). Neben den Zeitangaben enthält diese

| fort- lau- fende Ver- suchs- Nr. | Zeitangaben | | | Zur Wetterlage während d. Versuchs | | | | | | Versuchsfeld | | | | | Emis- sions- rate A in Ci/h | Zahl der Proben |
|---|-------------|------------------|------------------|------------------------------------|--------|--------------------|-----|----------------------------------|-----|-----------------|-------|------------------------------|------------|----------------|--------------------------------------|-----------------------|
| | Datum | Uhrzeit | | Diffusions- kategorie | | u_{60} in m/s | | f_{abs} in g/m ³ | | Radien in km | | Winkel gegen Nord in Grad | | | | |
| | | von | bis | progn. | diagn. | min | max | min | max | r_i | r_a | α_1 | α_2 | $\Delta\alpha$ | | |
| 13 | 11.1.73 | 14 ⁰⁰ | 15 ³⁰ | D+C | C/D | 3,8 | 5,2 | 3,3 | 3,4 | 0,78 | 4,30 | 277 | 315 | 38 | 3,64 | 74 |
| 14 | 25.1.73 | 14 ⁰⁰ | 15 ³⁰ | C/D | C/D | 4,0 | 5,7 | 3,6 | 3,7 | 0,54 | 2,21 | 216 | 264 | 48 | 3,77 | 75 |
| 15 | 8.2.73 | 14 ⁰⁰ | 15 ³⁰ | C/D | D | 4,0 | 6,3 | 5,4 | 5,5 | 0,47 | 2,09 | 24 | 74 | 50 | 3,99 | 75 |
| 16 | 22.2.73 | 14 ⁰⁰ | 15 ³⁰ | D | D | 4,8 | 7,4 | 5,0 | 5,1 | 0,63 | 4,02 | 67 | 108 | 41 | 4,10 | 50 |
| 17 | 8.3.73 | 10 ⁴⁰ | 11 ⁴⁰ | D | C/D | 5,8 | 7,8 | 5,5 | 5,8 | 0,10 | 0,93 | 150 | 218 | 68 | 4,29 | 75 |
| 18 | 20.3.73 | 14 ³⁰ | 16 ⁰⁰ | C | B/C | 2,1 | 3,8 | 4,2 | 4,3 | 0,37 | 2,03 | 161 | 233 | 72 | 4,42 | 74 |
| 19 | 22.5.73 | 14 ⁰⁰ | 15 ³⁰ | B | B | 2,0 | 3,4 | 9,0 | 9,3 | 0,13 | 1,52 | 68 | 162 | 94 | 3,76 | 75 |

Tabelle 4312-1: Versuchsbedingungen zu den Ausbreitungs-
experimenten Nr. 13 - 19



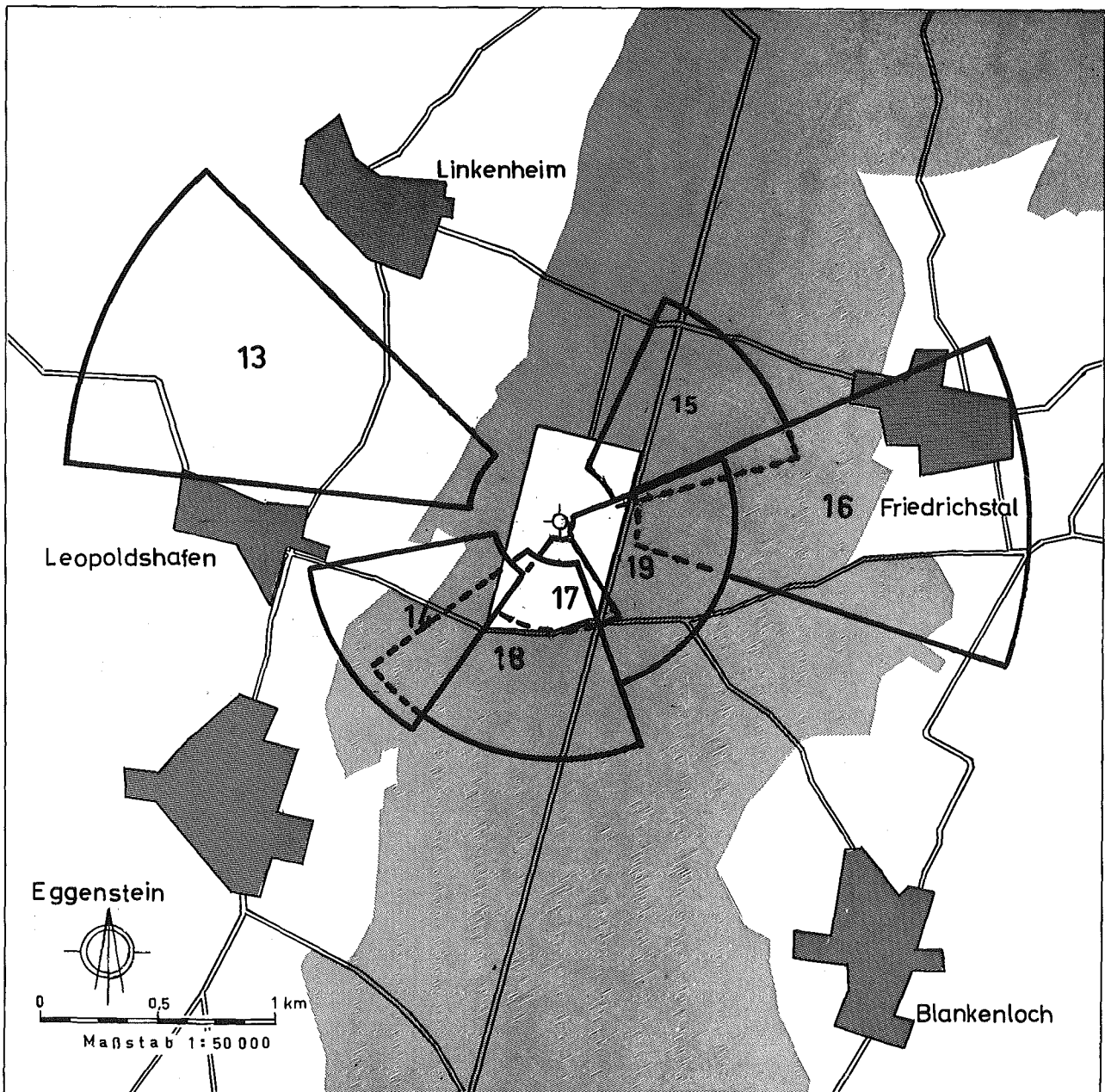


Abb. 4312-2: Lage der Versuchsfelder bei den Ausbreitungsversuchen Nr. 13 - 19.

Emissionsort: Abluftkamin des FR 2 (100 m)


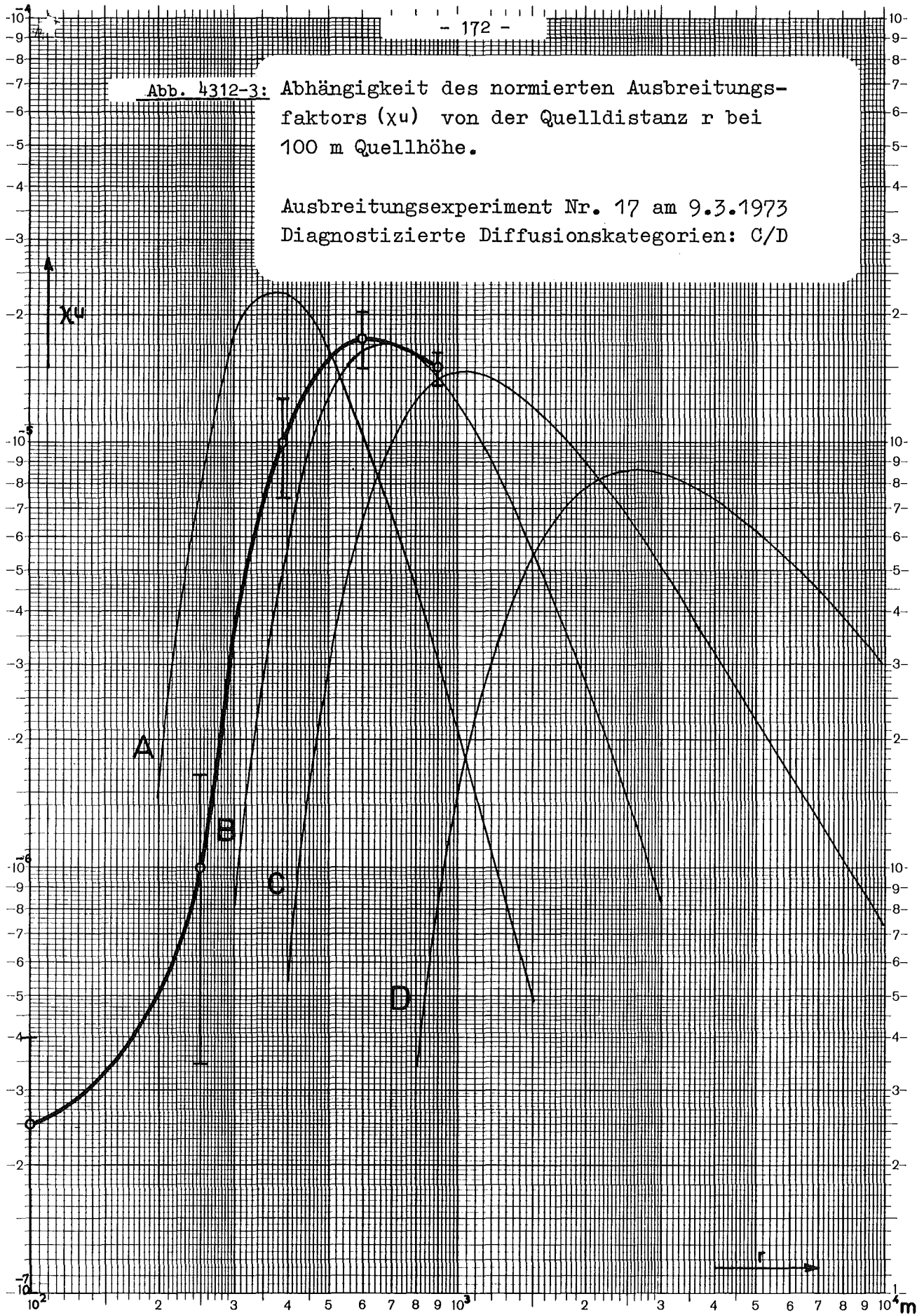
 Waldgebiet

Abb. 4312-3: Abhängigkeit des normierten Ausbreitungsfaktors (χ_u) von der Quelldistanz r bei 100 m Quellhöhe.

Ausbreitungsexperiment Nr. 17 am 9.3.1973
Diagnostizierte Diffusionskategorien: C/D

m^{-2}



MADE IN GERMANY

Tabelle Angaben über die Ausbreitungsbedingungen (Diffusionskategorie, Windgeschwindigkeit), die Luftfeuchte, die Lage des Versuchsfeldes, die Emissionsrate sowie die Anzahl der zur Messung der Immissionskonzentration gewonnenen Proben. Es wird sowohl die unmittelbar vor dem Versuch prognostizierte Wetterkategorie angegeben als auch die nach dem Versuch diagnostizierte. Abb. 4312-2 veranschaulicht die Lage der Versuchsfelder bei den einzelnen Experimenten. Das Waldgebiet, in dem das Kernforschungszentrum liegt, ist durch Schattierung gekennzeichnet. Ab Versuch Nr. 13 wurde, außer bei Versuch Nr. 17, parallel zum tritiierten Wasserdampf Tetrachlorkohlenstoff als Tracer emittiert. Die Ergebnisse werden im Beitrag von Herrn Schüttelkopf (PNS 4312.3) mitgeteilt.

Mit Versuch Nr. 17 wurde zum ersten Mal ein Nahfeldversuch durchgeführt, dessen Ziel die Bestimmung des Ausbreitungsfaktors im Bereich zwischen der Quelle und 1 km Entfernung war. Hierdurch wurden Informationen über den Ausbreitungsfaktor in Quellnähe gewonnen, über den die Ausbreitungsformeln keine Auskunft geben. Die Radialverteilung des auf die Windgeschwindigkeit $u = 1$ m/sec normierten Ausbreitungsfaktors (χu), die sich bei diesem Experiment ergab, ist in Abb. 4312-3 dargestellt. In die Abbildung wurden zum Vergleich außer der experimentell gewonnenen Radialverteilung des normierten Ausbreitungsfaktors auch die Pasquill'schen "Normkurven" für die Diffusionskategorien A, B, C und D eingezeichnet. Der Vergleich zeigt, daß die experimentell bestimmte Radialverteilung erheblich besser durch eine "Normkurve" beschrieben wird, deren zugehörige Diffusionskategorie um 1 bis 2 Stufen unter der diagnostizierten Wetterkategorie liegt.

Sowohl dieser Versuch als auch alle anderen im ersten Halbjahr 1973 durchgeführten Ausbreitungsexperimente bestätigen die schon bei den vorangegangenen Experimenten gemachten Beobachtungen:

1. Das Maximum der Bodenkonzentration ist gegenüber der theoretischen Erwartung deutlich zur Quelle hin verschoben.
2. Die beobachteten maximalen Bodenkonzentrationen liegen bis zu einem Faktor 1,9 höher als es der theoretischen Erwartung entspricht.

Wiederum zeigte es sich bei der Durchführung der Experimente, wie schwierig es ist, unter den hier gegebenen Standortbedingungen die Windrichtung für zwei bis drei Stunden zuverlässig vorherzusagen, was für das Gelingen eines Ausbreitungsexperiments, d.h. die Erfassung der Ausbreitungsrichtung der Abluftfahne im Versuchsfeld, von entscheidender Bedeutung ist. Aussagekraft und Auswertbarkeit der Meßergebnisse der einzelnen Versuche sind deshalb unterschiedlich zu beurteilen. Eine realistische Einschätzung dieser Schwierigkeiten ist auch in einer Notfallsituation von Bedeutung.

Eigene Veröffentlichungen:

[1] H. Kiefer, L.A. König und M. Winter:

Untersuchung der atmosphärischen Ausbreitung mit Hilfe von Tritium
Kerntechnik 5/6 (1970) 212-218

[2] L.A. König, M. Winter:

Graphische Auswertung von Experimenten zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung mit tritiiertem Wasserdampf als Tracer
KFK 1667 (1972)

[3] A. Gorenflo, W. Hübschmann, L.A. König, K. Nester, M. Winter:

Beitrag zum 1. Halbjahresbericht 1972 des Projekts Nukleare Sicherheit, KFK 1702 (Dez. 1972) 56-63

4312.3 Die Messung von Ausbreitungsfaktoren mit halogenierten Leitsubstanzen
(H. Schüttelkopf, ASS)

Um die Ausbreitung von radioaktiven Gasen experimentell prüfen zu können, wurden in der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit seit 1969 Ausbreitungsexperimente mit HTO als Leitsubstanz durchgeführt. Nachteile dieses Verfahrens sind der durch die Art der Probenahme bedingte

hohe Personalbedarf. Außerdem kann der Wunsch, mehrere Leitsubstanzen gleichzeitig in verschiedenen Höhen emittieren und die Konzentrationen der Leitsubstanzen getrennt messen zu können, mit dem HTO-Verfahren nicht erfüllt werden.

Daher wurde zur erweiterten Fortsetzung dieser Experimente ein gaschromatographisches Verfahren entwickelt, mit dem es möglich ist, als Leitsubstanzen geeignete halogenierte Verbindungen zu trennen und extrem niedrige Konzentrationen in Luft zu messen. Diese Methode ermöglicht die Emission unterschiedlicher Leitsubstanzen in verschiedenen Höhen und, durch weitgehend selbsttätige Probenahme, die Sammlung von fast dreimal mehr Luftproben bei gleichem Personalaufwand. Die untersuchten Leitsubstanzen sind ungefährlich in der Handhabung und unter Einsatzbedingungen vollständig ungiftig.

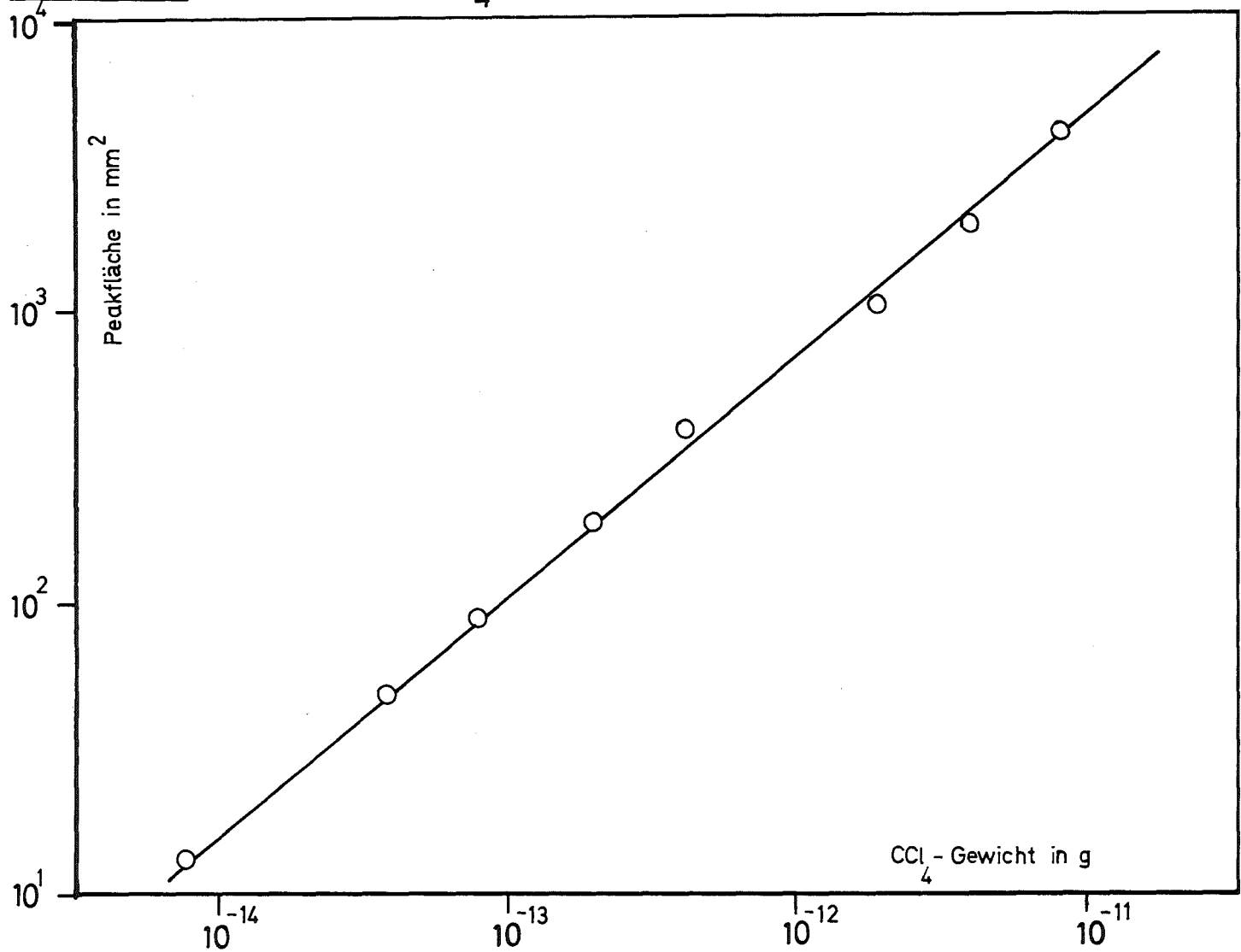
1. Vorarbeiten im Laboratorium

Ziel war es, den Elektroneneinfangdetektor, dessen Empfindlichkeit für halogenierte Verbindungen bekannt ist, für die Messung der Ausbreitung von gasförmigen Leitsubstanzen zu verwenden. Dazu wurde die relative Empfindlichkeit des Detektors für ca. 30 halogenierte Verbindungen gemessen. Die Retentionszeiten unter gleichen Arbeitsbedingungen und die Nachweisgrenzen für die Substanzen, auf welche der Detektor am empfindlichsten war, wurden bestimmt. Für CCl_4 , eine besonders geeignete Verbindung, wurden die Betriebsbedingungen des Gaschromatographen optimiert. Die Saugspannung, der Trägergasdurchfluß, die Arbeitstemperatur und das Trägergas wurden variiert. Eine Regenerationsmethode für den Detektor wurde geprüft.

Unter den für CCl_4 optimierten Arbeitsbedingungen wurden mit den folgenden Substanzen Nachweisgrenzen $\leq 5 \cdot 10^{-14}$ g erreicht: CCl_4 , C_6F_6 , CF_2Br_2 und CFCl_3 . Zur Bestimmung von höheren Ausbreitungsfaktoren sind zusätzlich geeignet: CH_2Br_2 , $\text{CCL}_2\text{FCCl}_2\text{F}$, $\text{CHCl} = \text{CCl}_2$ und CHCl_3 . Die Eichkurve für CCl_4 ist in Abb. 4312-4 dargestellt.

Die Empfindlichkeit des Elektroneneinfangdetektors gegenüber den genannten Substanzen ist so hoch, daß eine Anreicherung der Leitsubstanzen nicht notwendig ist. Ein Probenahmegefäß wurde konstruiert

Abb.4312-4: Eichkurve für CCl_4 gemessen mit einem EC-Detektor



(Gasmaus), das eine exakte Mittelung der Leitsubstanzkonzentration während der Probenahmezeit erlaubt und welches mit Sicherheit eine Verunreinigung der Luftprobe mit halogenierten Verbindungen zwischen Probenahme und Analyse verhindert. Da die Konzentration der halogenierten Leitsubstanzen durch Adsorption an den Glaswänden des Probenahmegefäßes rasch abnimmt, wurde ein Lösungsmittel für die verwendeten Verbindungen gesucht und in Toluol und Benzol gefunden. Alle käuflichen Lösungsmittel sind direkt nicht verwendbar wegen der hohen Empfindlichkeit des verwendeten Detektors auf Verunreinigungen. Eine Reinigungsmethode für Toluol und Benzol wurde entwickelt.

Außerdem wurde eine Emissionsanlage entworfen und geprüft; eine Reinigungsmethode für die Probenahmegefäße wurde entwickelt. Ein Tischrechenprogramm zur Auswertung der Analysen wurde erarbeitet und die Konzentration der wichtigsten ins Auge gefaßten Verbindungen wurde in der Umgebung gemessen.

2. Die Verwendung als Feldmethode

Nach Abschluß der Laboruntersuchungen wurde ein Ausbreitungsversuch mit CCl_4 und CFCl_3 als Leitsubstanzen mit einer Quellstärke von je ca. 5,5 kg/h durchgeführt. Es wurden in einer Entfernung von 1000 - 1300 m vom Emittenten (FR2-Kamin, 99,5 m hoch) quer zur Hauptwindrichtung 21 Probenahmegeräte aufgestellt und durch 7 Mitarbeiter bedient. Die Ergebnisse zeigten, daß die Labormethode durchaus für den Feldeinsatz geeignet ist.

Nachdem über 100 neue Gasmäuse gekauft, gereinigt und für den Einsatz präpariert worden waren, wurden zwischen Januar 1973 und Mai 1973 sechs Ausbreitungsexperimente mit je 25 Probenahmestellen und je zwei bis drei 30-min-Sammelperioden durchgeführt. Während dieser Zeit wurden folgende methodische Verbesserungen eingeführt: Das benötigte Toluol und die Gasmäuse wurden durch geeignete und sorgfältig geprüfte Reinigungsmethoden vor dem Einsatz vollständig CCl_4 -frei gemacht. Als beste Dichtungsscheiben für die Quickfitansätze an den Gasmäusen wurden Silicongummischeiben mit Teflonbeschichtung gefunden. Diese sind undurchlässig für Toluol und adsorbieren kein CCl_4 . Als Dichtungsmaterial für die NS4-Hähne an den Gasmäusen erwies sich ein schweres Siliconfett für Hochvakuum als am besten geeignet.

Es ist in Toluol schlecht löslich, dichtet gut und enthält keine Substanzen, welche bei der gaschromatographischen Messung stören würden.

Die Vollständigkeit der Emission der höchstsiedenden Leitsubstanz, CCl_4 , wurde bewiesen. Die Emissionsanlage wurde verbessert und auf die Emission vom meteorologischen Mast ausgerichtet. Die mit den gläsernen Probenahmegefäßen erwarteten hohen Ausfälle sind nicht eingetreten. Außer einigen unwesentlichen Beschädigungen bei den ersten zwei Ausbreitungsexperimenten, wurden kaum Ausfälle verzeichnet. Eventuell vorkommende Fehlbedienungen und andere Störungen können in allen Fällen während der Analyse erkannt werden.

Der für die Messungen wichtige Grundstrom des Elektroneneinfangdetektors blieb bei pausenlosem Analysenbetrieb mindestens 15 Stunden konstant.

Die Auswertung erfolgte mit dem Tischrechner Algotronic der Fa. Diehl. Methodische Verbesserungen machten mehrfach die Erstellung neuer Programme notwendig. Da nun eine endgültige Form der Durchführung und damit der Auswertung erreicht ist, erfolgt die zukünftige Auswertung an einem Großrechner der DVZ.

Die Ergebnisse, normierte Ausbreitungsfaktoren, liegen für die Experimente, Nr. 14, Nr. 15, Nr. 18 und Nr. 19 vor. Das erste Experiment, Nr. 13, und das Experiment Nr. 16 lieferten durch Störungen während der Analysen keine verwendbaren Daten. Die Ursachen der aufgetretenen Störungen wurden beseitigt, so daß eine Wiederholung ausgeschlossen werden kann.

Beim Vergleich der Ergebnisse mit den Pasquill'schen Kurvenscharen wurden folgende Punkte festgestellt:

- Der radiale Verlauf der gemessenen Konzentrationen entspricht dem von F. Pasquill gefundenen Verlauf.

- Die Lage des Maximums und der Verlauf des Ausbreitungsfaktors als Funktion des Abstandes Emittent-Probenahmezone weisen auf eine Verschiebung um mindestens eine Wetterkategorie (gegenüber der prognostizierten) in Richtung instabilerer Wetterkategorien hin (Abb. 4312-5).
- Die Lateralprofile sind breiter und in größerem Abstand von der Hauptwindrichtung ist die Konzentration der Leitsubstanz CCl_4 größer als nach den Paquill'schen Werten zu erwarten wäre (Abb. 4312-6).

3. Weitere Arbeiten und Ziele für 1973

Mit dem Ausbreitungsexperiment Nr. 19 wurde der Übergang von der Labormethode zur Feldmethode abgeschlossen. Als Ziele, welche bis Ende 1973 erreicht werden sollen, sind folgende zu nennen:

- Die Messung von Ausbreitungsfaktoren mit den Verbindungen CFCl_3 und CF_2Br_2 .
- Die Durchführung von Ausbreitungsexperimenten mit gleicher Zahl von Meßergebnissen, aber wesentlich reduziertem Personalaufwand.
- Die Durchführung von Ausbreitungsexperimenten mit gleichem Personalaufwand und wesentlich höherer Zahl von Meßergebnissen.
- Die Emission der Leitsubstanzen vom meteorologischen Mast und die gleichzeitige Emission mehrerer Leitsubstanzen in verschiedenen Höhen vom meteorologischen Mast.

Am 17.7.1973 wurde das erste Ausbreitungsexperiment durchgeführt, bei dem die erhaltene Information gleich groß war wie bei den früheren, der Personalaufwand aber auf weniger als die Hälfte reduziert worden war.

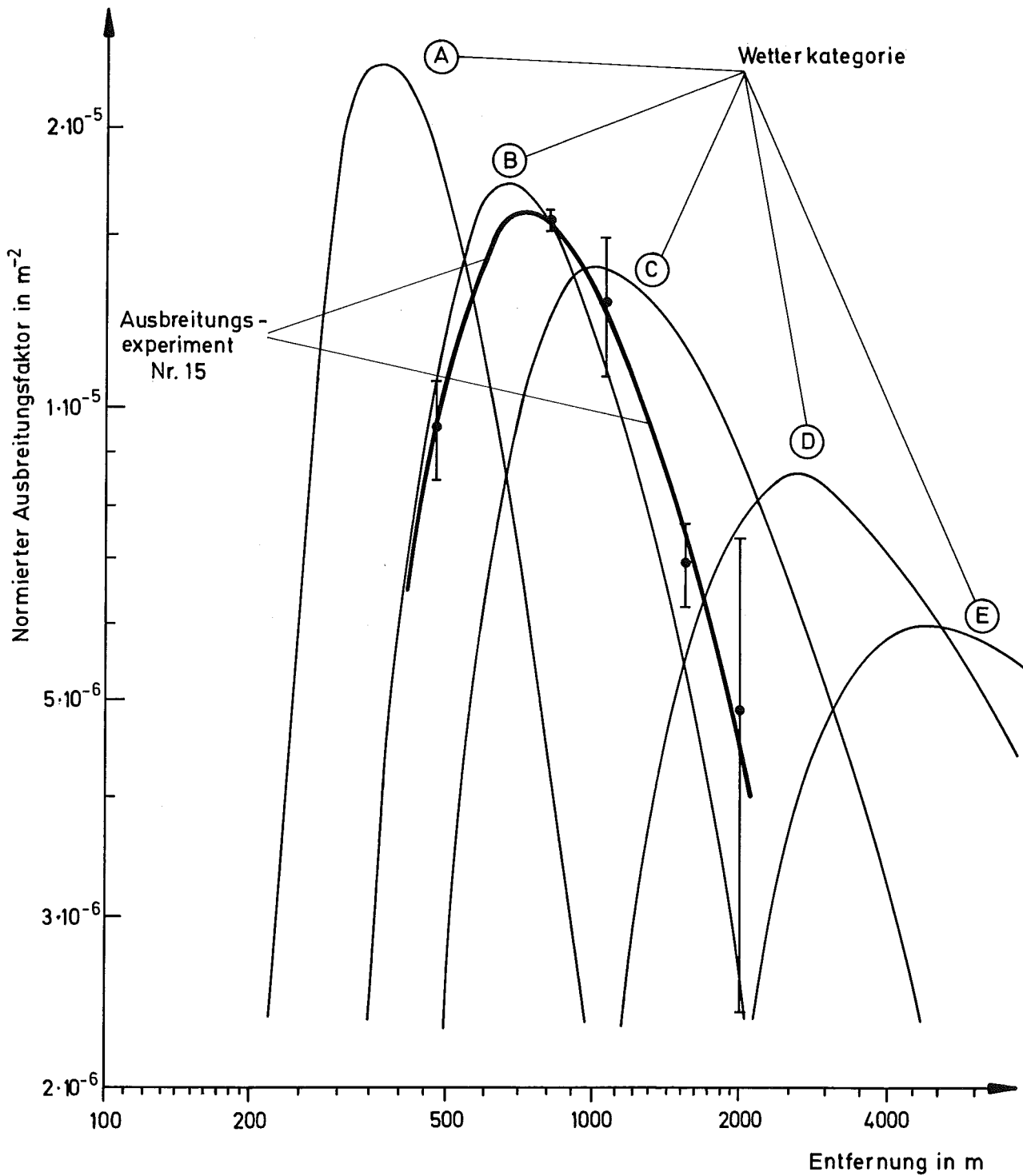


Abb.4312-5: Abhängigkeit der gemessenen, normierten Ausbreitungsfaktoren vom Abstand Probenahmestelle - Emittent. Zum Vergleich wurden die Pasquill'schen Kurvenscharen für 100 m Quellhöhe u. die Wetterkategorien A bis E eingezeichnet.

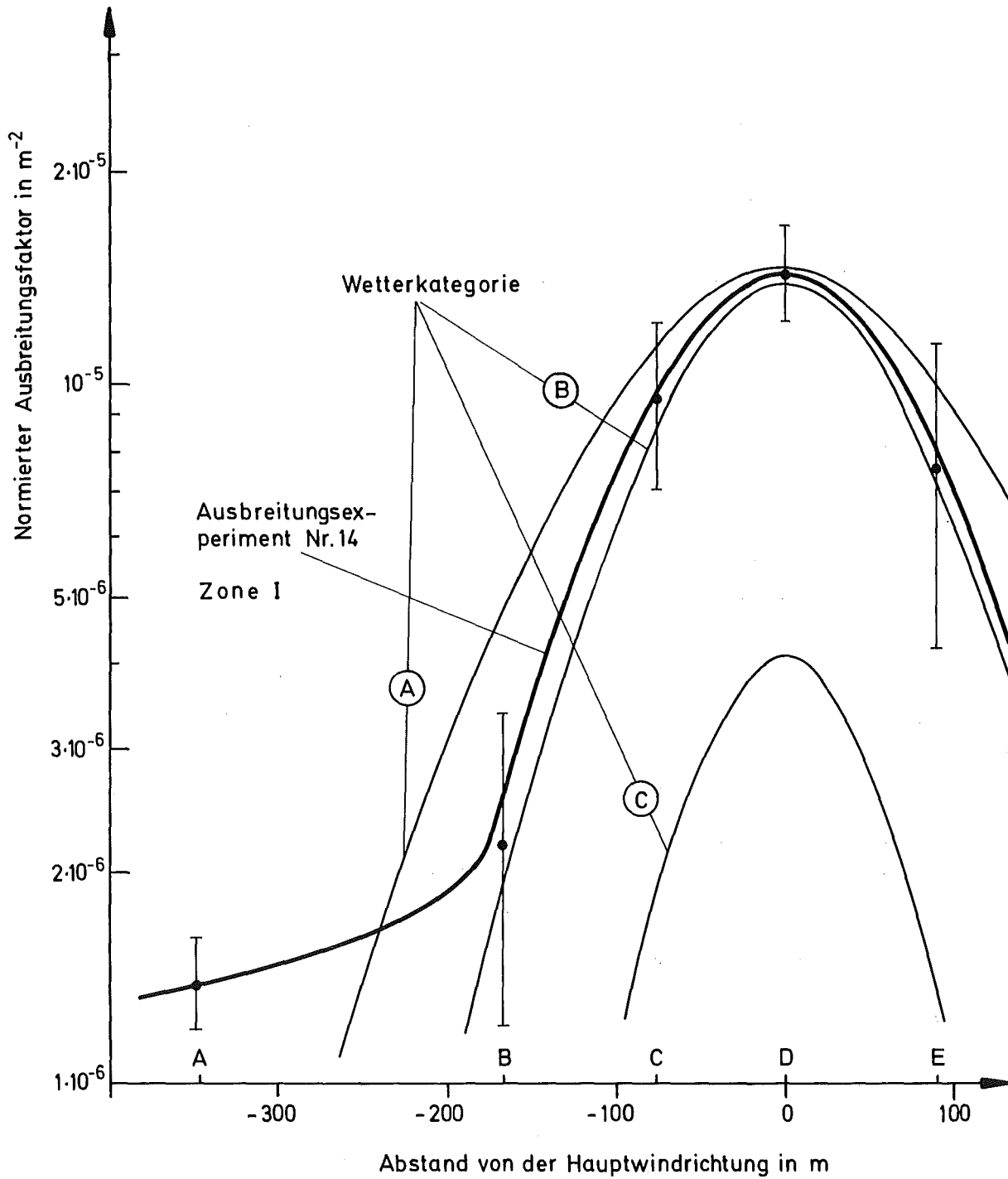


Abb.4312-6: Vergleich eines gemessenen Lateralprofil mit den Pasquill'schen Kurvenscharen für die Wetterkategorien A - C und die Quellhöhe 100m. Die Meßwerte stammen aus dem Ausbreitungsexperiment Nr.14, Zone I. Die eingetragenen Fehler basieren auf der Mittelung über die Sammelperioden.

4312 FA Statistische Analyse des Ausbreitungsverhaltens von Abluft-
fahnen nach Störfällen in Norddeutschland
(E. Völz, H. Schultz, TU Hannover)

Um die Umgebungsbelastung nach Störfällen bestimmen zu können, ist es nicht nur wichtig, das stationäre Ausbreitungsverhalten der Abluftfahnen in der Atmosphäre zu kennen, wie es durch die momentanen meteorologischen Parameter vorgegeben ist, sondern auch dessen zeitliche Entwicklung. Ob es in dem zeitlichen Verlauf nach einem Störfall für diese Parameter charakteristische Entwicklungen gibt, die innerhalb der statistischen Genauigkeit von den Ausgangsparametern zu Beginn des Störfalles oder aus der Zeit davor auf die zukünftige Ausbreitung schließen lassen, soll hierin untersucht werden.

Dazu sind aus den in der GfK vorhandenen, stündlichen meteorologischen Beobachtungen des Jahres 1965 für Hamburg, Bremen und Hannover die Ausbreitungskategorien nach Klug [1] nach einem vorliegenden Unterprogramm bestimmt worden und anschließend mit einem ebenfalls vorliegenden Programm nach Windrichtung und Windgeschwindigkeit statistisch aufgeschlüsselt worden. Dabei haben sich für die Diffusionsklassen folgende Häufigkeiten, aufsummiert über alle Windrichtungssektoren, für die drei Stationen für 1965 ergeben.

| Klasse | 6 | 5 | 4 | 3 | 2 | 1 | 7 |
|----------|-----|-----|------|------|------|-----|-----|
| Hamburg | 0,4 | 5,6 | 17,5 | 53,1 | 11,2 | 9,7 | 2,5 |
| Bremen | 0,4 | 6,8 | 16,5 | 53,4 | 11,7 | 8,6 | 2,6 |
| Hannover | 0,5 | 6,4 | 17,3 | 53,6 | 11,4 | 9,1 | 1,7 |

Unter diesen ist die Diffusionsklasse 6 nach Klug die labilste, Klasse 3 entspricht der neutralen, Klasse 1 ist die stabilste Lage und Klasse 7 tritt immer bei Nebel auf.

Die drei Stationen zeigen keine wesentlichen Unterschiede in ihrer Klassenhäufigkeit. Die Windrichtungshäufigkeit ist nach 30°-Richtungssektoren aufgeschlüsselt worden. Die Ergebnisse dazu sind in Abb. 4312 FA-1 wiedergegeben. Übereinstimmend zeigen alle Stationen ein Maximum der Auftrittshäufigkeit des Windes aus dem Richtungssektor

um 240° . Es beträgt 17,5 % und darüber, bezogen auf alle Meßwerte. Ferner liegt ein Minimum für den Wind aus nördlichen Richtungen vor, das sich allerdings in Hannover etwas verwischt. Zusätzlich treten bei allen Stationen jeweils ein Nebenmaximum bei Wind aus östlichen und ein weiteres Minimum bei Wind aus südlichen Richtungen auf. Diese Extrema sind aber stark verwischt und decken sich bei den drei Stationen bezgl. ihrer Richtung nicht genau.

Die Relativstatistik der Ausbreitungsklassen (Abb. 4312 FA - 2) - d.h. die prozentuale Häufigkeit für das Auftreten der Klassen innerhalb eines Sektors, bezogen auf die Fälle, in denen der Wind aus diesem Sektor weht - zeigt für alle Stationen gleiche Tendenzen: In der Richtung um 240° ein deutliches Maximum mit ungefähr 70 % für die neutrale Lage, dementsprechend Minima für die labilen und stabilen Klassen. Ferner ein Minimum der neutralen Lage für die Richtung um 120° (für Hannover ist es etwas verschoben). Dem entspricht hier bei den labilen und stabilen Lagen ein erkennbares, wenn auch schwaches und breites Maximum. Auffallend ist ferner, daß für 330° bei allen Stationen ein deutliches Maximum von ungefähr 28 % für die leicht instabile Lage auftritt. Eine Aussage über die labilste Diffusionskategorie ist wegen ihrer geringen Auftrittswahrscheinlichkeit nicht möglich.

Zusätzlich ist die Erhaltungstendenz bei Zuständen mit verschiedenen Kombinationen der meteorologischen Bestimmungsgrößen für die Ausbreitungsrechnungen, nämlich für die Diffusionskategorie, die Windrichtung und Windgeschwindigkeit untersucht worden. Hierzu gibt die Abbildung 4312 FA-3 an, in wieviel Prozent aller möglichen Fälle von einem festen Zeitpunkt an über einen vorgegebenen Zeitraum hinweg sich die Diffusionskategorie nicht oder nur wenig ändert, die Windrichtung nur innerhalb eines begrenzten Sektors schwankt und sich die Extremwerte der Geschwindigkeit höchstens bis zu einer vorgegebenen Anzahl von Knoten ändert. So bedeutet in Abb. 4312 FA-3 die Zahl 133, daß die Ausbreitungsklasse einmal (1. Ziffer:1) innerhalb der Zeitspanne einen anderen Wert annimmt, daß der Richtungssektor $3 \cdot 10^{\circ}$ (2. Ziffer:3) beträgt und daß sich Maximum und Minimum der Geschwindigkeit um höchstens 3 kn (3. Ziffer:3) unterscheiden dürfen. Ein diesbezüglicher Vergleich zeigt, daß über drei und sechs Stunden gesehen die Verhältnisse für

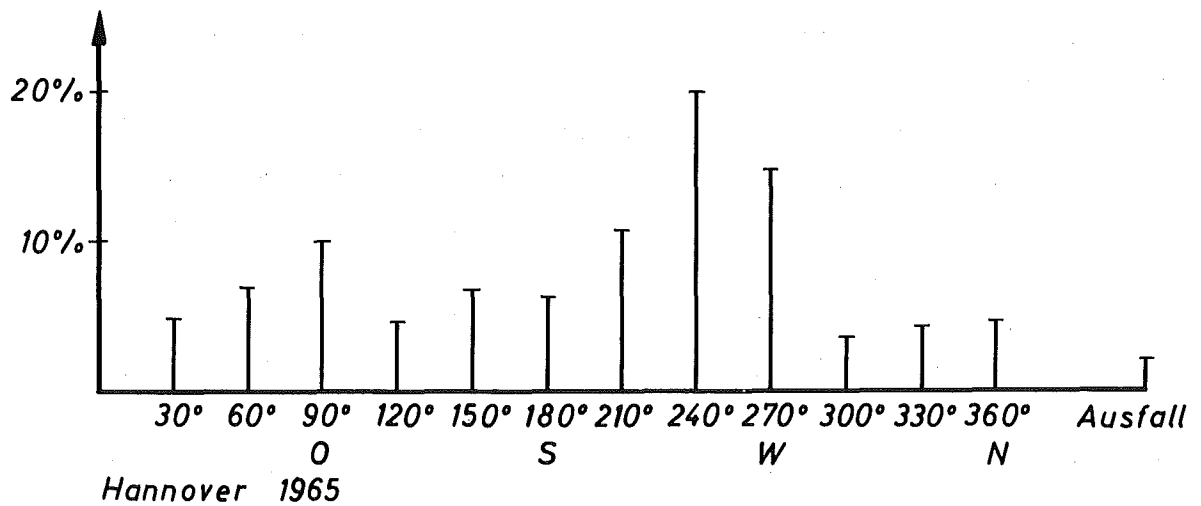
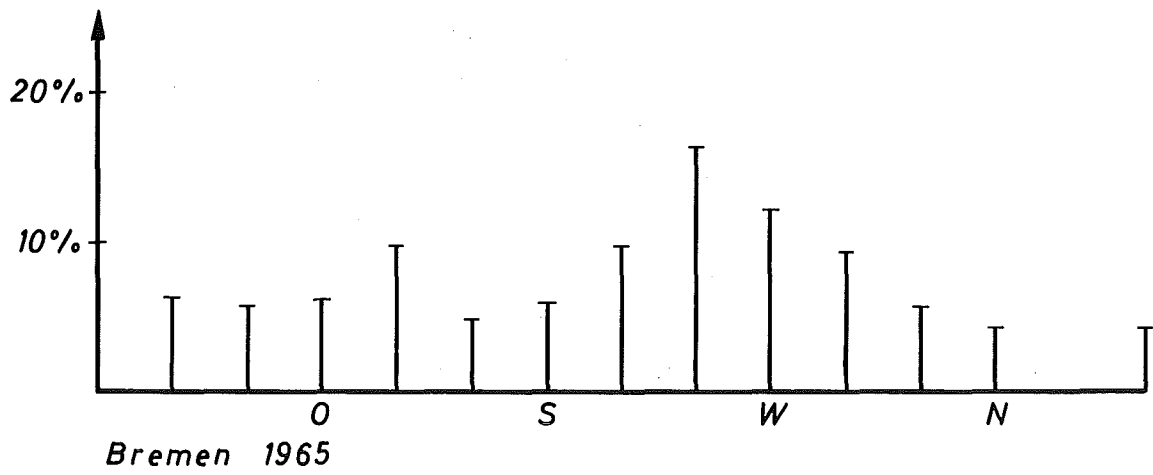
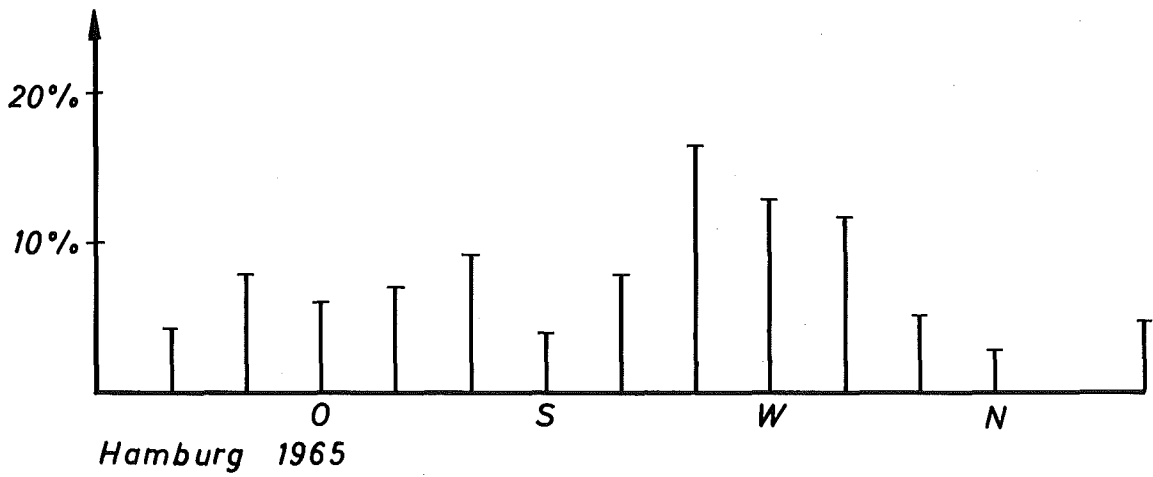


Abb.4312 FA-1 Richtungshäufigkeit des Windes für 30°-Sektoren in [%] bezogen auf alle Messungen des Jahres 1965 für Hamburg, bzw. Bremen und Hannover und Richtungsausfälle des Windes wegen Windstille oder unbestimmbarer Richtung.

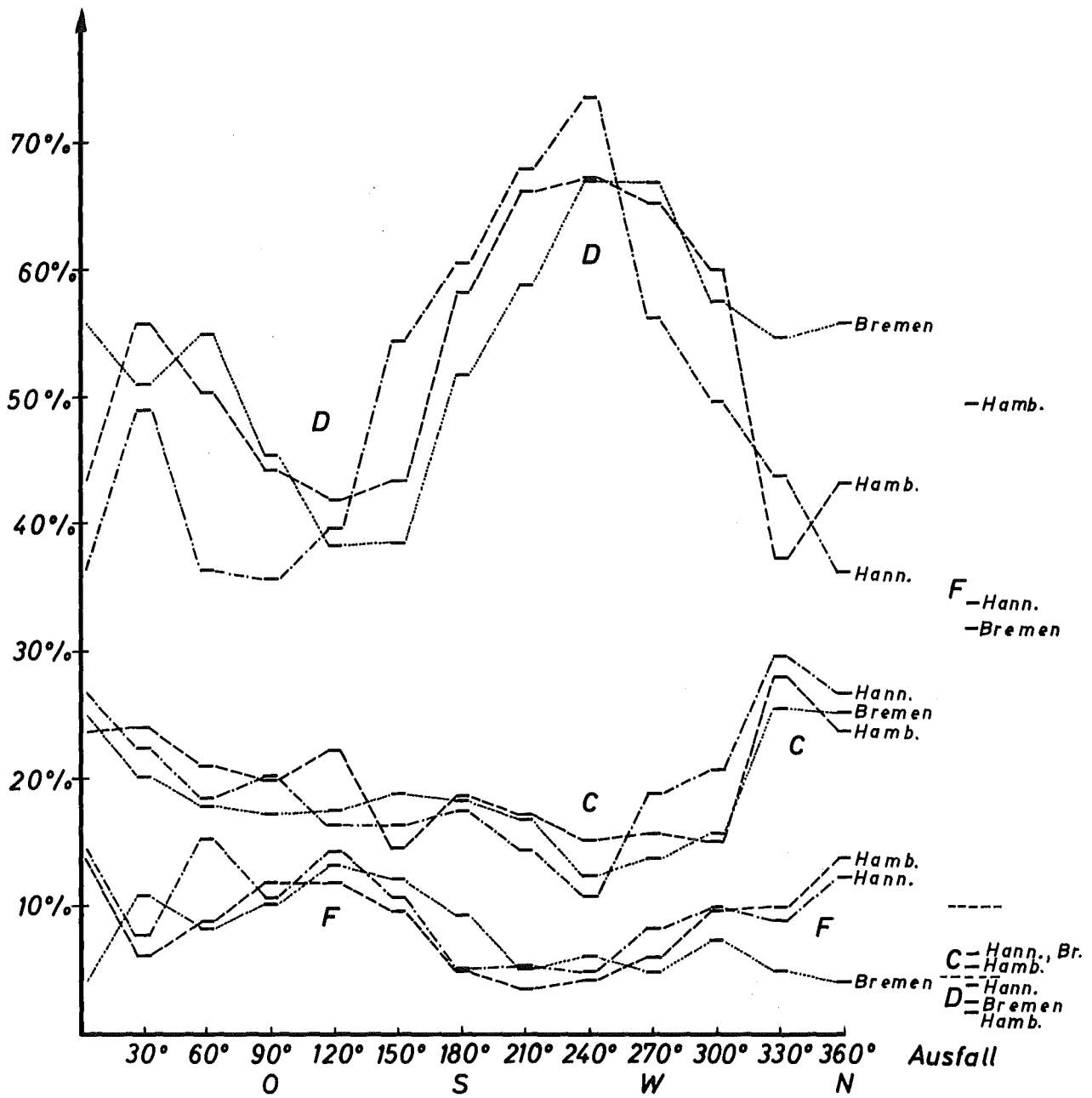


Abb. 4312 FA-2 Relative Häufigkeit für das Auftreten einer Diffusionskategorie in [%], wenn der Wind innerhalb eines 30°-Sektors weht, bezogen auf die gesamte Anzahl von Ereignissen, bei denen der Wind aus diesem Sektor weht. Zusätzlich ist das Verhältnis der Wind-Richtungsausfälle innerhalb einer Klasse bezogen auf die Gesamtzahl der Ausfälle eingetragen.

(D = neutral, C = leicht instabil, F = mäßig stabil)

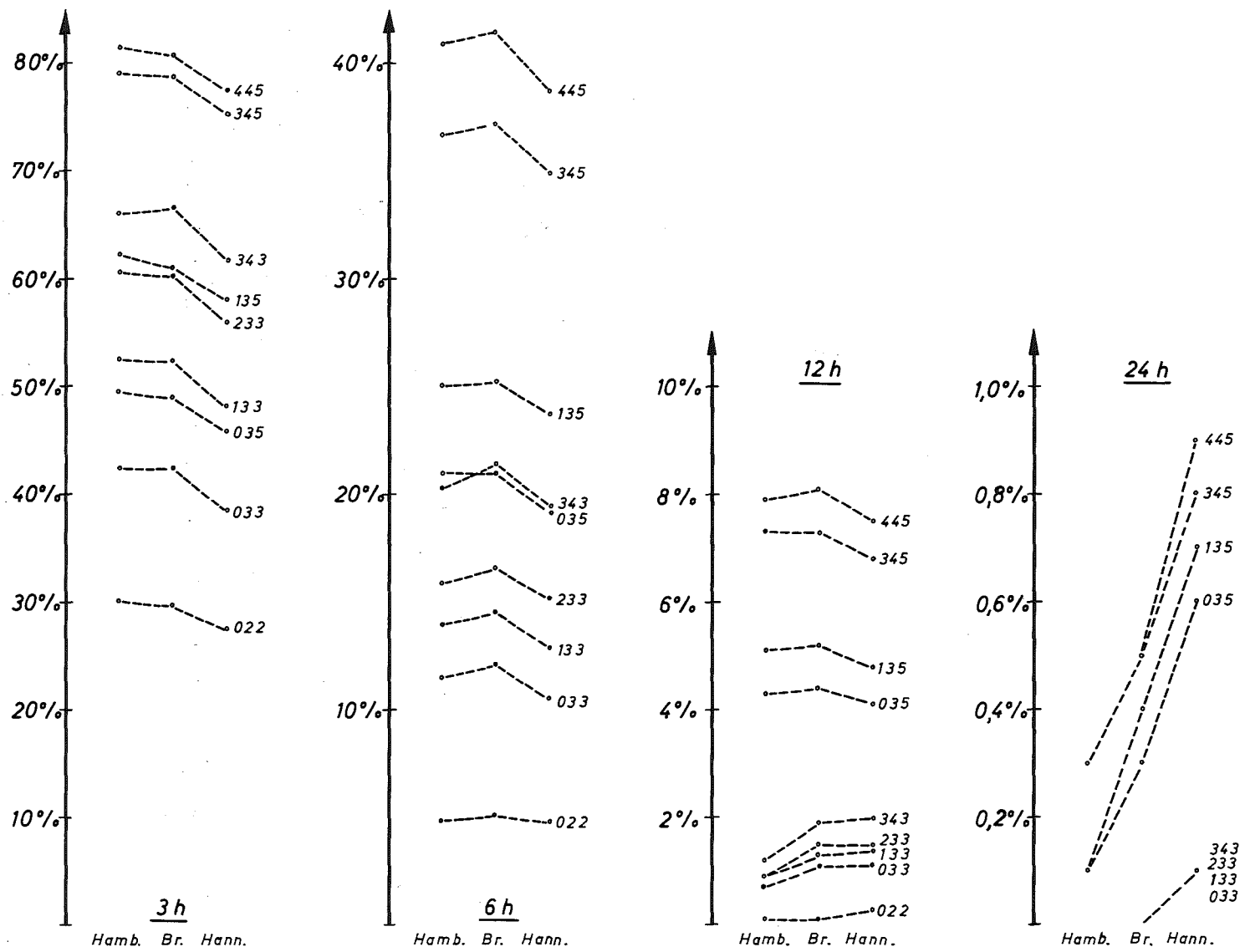


Abb. 4312 FA-3 Erhaltungstendenz von Kombinationen der meteorologischen Bestimmungsgrößen für Ausbreitungszustände in der Atmosphäre über ein Zeitintervall in [%] bezogen auf alle vorhandenen Messungen einer Station.

1. Ziffer: Änderung der Diffusionsklasse um je eine Größe
2. Ziffer: Anzahl der Änderungen der Windrichtung um je 10°
3. Ziffer: Anzahl der Änderungen der Windgeschwindigkeit um je 1 Knoten

1965 in Hannover wechselhafter gewesen sind als in Hamburg und Bremen, ebenso während zwölf Stunden für höhere Erhaltungswahrscheinlichkeiten. Bei zwölf Stunden mit niedriger Erhaltungswahrscheinlichkeit und bei 24 Stunden weist Hannover stabilere Tendenzen auf.

Zitierte Literatur:

[1] W. Klug, Ein Verfahren zur Bestimmung der Ausbreitungsbedingungen
Staub-Reinhalt. Luft 29 Nr. 4, April 1969

4312 FB Analyse der Berechnungen und Messungen zur Ausbreitung
radioaktiver Stoffe beim amerikanischen Plowshare-Programm
zwecks Prüfung der Übertragbarkeit auf Reaktorschadensfälle
(C.-D. Wünecke, H. Schultz, TU Hannover)

Anhand eines Quellenstudiums zum US-Plowshare-Programm wurde untersucht, ob die in den USA gewonnenen Erfahrungen zu einer Verbesserung der bestehenden Ausbreitungsmodelle für eine zeitliche und räumliche Vorhersage der Radioaktivitätskonzentration in der Atmosphäre nach einem Reaktorschadensfall herangezogen werden können. Unterlagen in ausreichendem Umfang, um einen Überblick über diesen Problemkreis zu gewinnen, konnten von den in Frage kommenden Informationszentren in den USA beschafft werden: Radiation Shielding Information Center (RSIC) in Oak Ridge [1], AEC Technical Information Center, Lawrence Livermore Laboratory [2], AEC Nevada Operation Office, Las Vegas [3] und dem Civil Engineering Department der Stanford University, California (über russische Unternehmungen auf diesem Gebiete [4]). Ferner wurden die Nuclear Science Abstracts und ein Compendium über eine Tagung über Umweltaspekte bei der friedlichen Anwendung von Kernexplosionen in Las Vegas 1969 [5] als Quellen herangezogen.

Insgesamt wurde etwa 300 Literaturhinweisen nachgegangen, von denen sich aber nur 100 Literaturstellen als brauchbar erwiesen. Von 43 in Form von

Kopien und Mikrokarten zur Verfügung stehenden Berichten erwiesen sich 23 für eine nähere Auswertung als geeignet (siehe Literaturverzeichnis).

Aus den Unterlagen geht hervor, daß etwa seit 1958 Hunderte von Plowshare-Versuchen in den USA durchgeführt worden sind (Tabelle 4312 FB-1). Während zunächst die Grenze zu unterirdischen Waffentests fließend war, begann 1961 das US Plowshare-Programm mit der Einrichtung der Division of Peaceful Nuclear Explosives der AEC. Nachdem anfangs die interessierenden Ergebnisse nur als Nebenprodukte bei unterirdischen Waffentests und anderen kerntechnischen Experimenten anfielen, wurde die eigentliche Plowshare-Versuchsreihe 1961 mit den Experimenten "Gnome" und "Sedan" eröffnet.

Man kann die Plowshare-Versuche grob in zwei Gruppen einteilen: Die "Krater"-Explosionen, die zum Zwecke der Aushebung von künstlichen Kanälen, Häfen und dergleichen angestellt wurden und die "Kavernen"-Explosionen, die zur Schaffung von großen unterirdischen Kavernen zum Zwecke der Speicherung und Sekundär-Förderung von Erdgas und Erdöl durchgeführt wurden.

Es zeigte sich bald, daß die in den Bereichen über Kraterexplosionen enthaltenen Studien und Ergebnisse für eine Prüfung der in Deutschland verwendeten Berechnungsmethoden zur Ausbreitung von Radioaktivität in der Atmosphäre bei Reaktorschadensfällen nicht geeignet sind. Zwar werden in einigen Berichten über Kraterexplosionen (Sedan, Dany Boy, Schooner usw.) Daten von Rechnungen und Messungen verglichen, z.B. von Knox, Tewes, Mueller und Crawford [6 bis 9]. In diesen Fällen entstanden wegen der geringen Zündtiefe im Erdboden und der großen Stärke der Sprengladung momentan große Wolken mit sehr starker Radioaktivität, deren Ausbreitung im Verlauf von Tagen über weite Entfernungen (Hunderte von Kilometern) und in sehr großen Höhen (5 bis 10 km) verfolgt wurde.

Für die Ausbreitung derartiger großer radioaktiver Wolken wurden bereits Rechenprogramme entwickelt und erprobt, wie z.B. im Lawrence Livermore Laboratory der 2BPUFF-Code von Crawford [6] und [10].

Tabelle:4312 FB-1

PLOWSHARE-Versuche

| Lfd.Nr. | Name | Kennziffer | Ort | Datum | Energie [kt] | Tiefe Z | Bemerkungen |
|---------|--------------|------------|----------|-------|-------------------|--------------|--------------------------------------|
| 1. | Sedan | K H | | 1962 | 100 | 635 ft | |
| 2. | Teapot Ess | K | | | 1,2 | 67 ft | |
| 3. | Johnnie Boy | K | | | 0,5 | 2 ft | |
| 4. | Danny Boy | K | | | 0,42 | 109 ft | |
| 5. | Schooner | K A | | 1968 | | | |
| 6. | Rulison | U A | Colorado | 1969 | 40 | 8425,5 ft | |
| 7. | Palanquin | K | | 1965 | | | |
| 8. | Trinidad | | | | | | |
| 9. | Rio Blanco | U A | Colorado | 1973 | 3x30 | 5800-6700 ft | |
| 10. | Wagon Wheel | U | Wyoming | | 5x100 | | |
| 11. | Sulky | K A | | | 0,1 | 90 ft | (nur Buckel) |
| 12. | Cabriolet | K H | | 1968 | 2,3 | 52 m | |
| 13. | Buggy | K | | 1968 | 5,5 | 135 ft | |
| 14. | Pre-Gondola | K | | 1966 | | | |
| 15. | Dragon Trail | U | | | | | |
| 16. | Wasp | U | | | | | |
| 17. | Pinedale | U | | | | | |
| 18. | Sloop | U | | | | | |
| 19. | Ketch | U | | | | | |
| 20. | Dugout | K | | 1964 | | | |
| 21. | Gasbuggy | U A | | 1967 | 29 | 4240 ft | 1. Sekundärförderungs- experiment |

| Lfd.Nr. | Name | Kennziffer | Ort | Datum | Energie [kt] | Tiefe Z | Bemerkungen |
|---------|-------------|------------|-----|-------|-------------------|------------|-------------|
| 22. | Gnome | | | 1961 | | | |
| 23. | Jangle U | | | | 1,2 | 17 ft | |
| 24. | Blanca | | | | 19 | 8,35 ft | |
| 25. | Apple II | T | | | | | |
| 26. | Zucchini | T | | | | | |
| 27. | Jangle S | | | | 1,2 | 0 ft | |
| 28. | Neptune | | | | 0,115 | 100 ft | |
| 29. | Scooter | | | | | | |
| 30. | Handcar | U | | | | | |
| 31. | Hardhat | U | | | | | |
| 32. | Pile Driver | U | | | | | |
| 33. | Salmon | U | | | | | |
| 34. | Baneberry | U A | | 1970 | | | |

Interpretation der Kennziffer:

K = Krater-Explosionen

U = Kavernen-Explosionen

T = Explosionen am Turm

H = Hauptwolke

A = Berechnung der Ausbreitung der
Radioaktivität in der Atmosphäre

Wegen der großen Reichweiten und Höhen der Wolken berühren diese Ausbreitungsvorgänge die Probleme der Reaktorschadensfälle nur am Rande. Denn bei Reaktorschadensfällen ist mit Ausbreitungen von relativ geringen, aber meistens kontinuierlichen Ausflüssen von Radioaktivität zu rechnen, wie sie vergleichsweise auch bei Kavernenexplosionen vorkommen könnten. Außerdem sind Kavernenexplosionen auch noch aus einem anderen Grunde besser mit Reaktorschadensfällen vergleichbar. Nach Tewes [7] verwendet man bei Kavernenexplosionen vorzugsweise reine Spaltsprengsätze, da bei der Verwendung von Fusionsexplosionen, wie sie bei Kraterexplosionen üblich sind, die Gefahr einer Einlagerung von zuviel radioaktivem Tritium in die Kohlenwasserstoffe (Gas, Öl) besteht.

Aus der Vielzahl der Kavernenexplosionen [2] heben sich vier wegen der Größe der Sprengkraft und des zum Umweltschutz getriebenen rechnerischen und meßtechnischen Aufwandes besonders hervor: Gasbuggy [11], Rulison [12 und 13], Rio Blanco [14 und 15] und Wagon Wheel [16]. Von diesen wurden die drei ersten bereits durchgeführt (Gasbuggy 1967, New Mexiko; Rulison 1969 und Rio Blanco 1973 in Colorado), während Wagon Wheel in Wyoming noch aussteht. Im Verlauf der Versuchsreihe wurde die Sprengkraft ständig gesteigert: 29; 40; 3x30; 5x100 kt, wobei die beiden letzteren aus mehreren Sprengsätzen bestehen, sogenannten "row charges".

Die drei bisherigen Versuche liefen offensichtlich mit einer bemerkenswert guten Koordination zwischen den zuständigen Behörden und den in Frage kommenden Forschungszentren (Air-Resource Laboratory, Los Alamos Scientific Laboratory usw.) ab. Schon mehrere Tage vorher wurden laufend Hochrechnungen für einen eventuellen Austritt von Radioaktivität durch Risse im Erdboden usw. nach der Explosion unter Berücksichtigung der örtlichen meteorologischen Verhältnisse durchgeführt und auf turnusmäßigen Einsatzbesprechungen diskutiert.

Besonders ausführlich ist in dieser Hinsicht der Bericht von Stout über Rulison [12]. Aber auch in den Berichten von Bernhardt über Rulison [13] von Armstrong über Gasbuggy [11] und von der CER-Geonuclear, Las Vegas über Rio Blanco [14] finden sich entsprechende Hinweise.

Um eine zuverlässige Wetterprognose für die Konzentrationsberechnungen zu ermöglichen, wurde außer den üblichen Wetterinformationen der vorhandenen staatlichen Wetterstationen auch noch Meßergebnisse von speziell für diese Versuche eingerichteten Wetterstationen berücksichtigt. Der dabei getriebene meßtechnische Aufwand ist erheblich. Neben Rauchbomben, Windtürmen, ballongetragenen Instrumenten zur Messung des Vertikalprofils von Temperatur, Druck, Feuchtigkeit und Wind und den üblichen Wetterballons wurden sogenannte Tetroons verwendet, das sind Ballons, die während des Fluges in Luftschichten mit konstanter Luftdichte schweben bleiben. Mit diesen Hilfsmitteln wurden Vorausberechnungen für die Trajektorien in teilweise stündlichen Intervallen meßtechnisch kontrolliert und korrigiert.

Die Abschätzung der Konsequenzen eines länger anhaltenden Austritts von Radioaktivität nach der Explosion erfolgt in allen Fällen mit der Berechnungsmethode zur Ausbreitung von Radioaktivität in der Atmosphäre bei stationären Wetterbedingungen nach Pasquill mit der Modifizierung von Gifford, wie sie in den Handbüchern von Turner [17] und Slade [18] beschrieben ist. Wegen unvorhergesehener Änderungen der Wetterlage und der Austrittsbedingungen ist jedoch nach Tewes [7] eine zuverlässige quantitative Abschätzung der größtmöglichen Umweltgefährdung durch Radioaktivität genauso schwierig wie bei einem größtmöglichen Schadensfall an einem Reaktor.

Obwohl man für diese Tests geeignete Wetterlagen aussuchen konnte und deshalb eventuell Niederschläge kaum in Betracht zu ziehen brauchte, wurden auch Untersuchungen über die Folgen des Auswaschens von Radioaktivität durch Niederschläge angestellt (Knox [19]). Besonders entscheidend wird das Auswaschen bei Krater-Explosionen mittleren Kalibers, wo es zu Aufpunkten mit besonders hohen Radioaktivitätskonzentrationen am Erdboden, sogenannten "hot spots" führt. Dabei muß die Größenverteilung und Art der Staubteilchen abgeschätzt und berücksichtigt werden (Heft [20]). Bei Kavernenexplosionen sind die Folgen des Auswaschens auf die Konzentrationsverteilung am Erdboden wegen der weitaus geringeren zu erwartenden Staubmasse und der langen Zeitdauer der Abgabe in die Atmosphäre nicht so schwerwiegend.

Wie bei Kraterexplosionen und Prüfstandsversuchen mit Nuklearraketen (Knox [6]), bei denen große radioaktive Staubwolken entstanden, wurde auch bei den drei Kavernenexplosionen: Gasbuggy, Rulison und Rio Blanco vorsorglich der Einsatz von Flugzeugen geplant, die mit NaJ-Zählern eine mögliche radioaktive Staubwolke ausmessen sollten (Public Health Service, Las Vegas [21]). Da aber in den bislang ausgewerteten Kavernenexplosionen Gasbuggy [11] und Rulison [12 und 13] und einigen anderen [22] keine Radioaktivität austrat, ergaben die Messungen bisher keine auswertbaren Ergebnisse. Bei einem Kavernenversuch "Baneberry" trat zwar etwas Radioaktivität aus, die jedoch nur in einer einzigen Meßstation mit einem über dem Strahlungsuntergrund liegenden Meßwert nachgewiesen wurde, wobei die Untergrundanzeige eine größere Varianz besaß als die Meßwerte (Anspaugh [23]).

Aus den Unterlagen geht hervor, daß Abluftfahnen bisher offenbar einfach nach der Pasquill'schen Diffusionsmethode berechnet wurden, während man besondere Anstrengungen zur Berechnung der Konzentrationsverteilung in einer großräumigen wandernden radioaktiven Wolke gemacht hat, indem man z.B. die oben erwähnten Programmsysteme entwickelte [6 und 10]. Das dazu im Lawrence Livermore Laboratory verwendete Programm ADPIC (Knox [19]) ist wegen seiner großen Flexibilität vermutlich auch für Probleme eines Reaktorunfalles anwendbar. Es berechnet zunächst aus der anfänglichen Konzentrationsverteilung mit Hilfe der Diffusionsgleichung und des Windgeschwindigkeitsfeldes die Versetzung charakteristischer Teilchen in einem vorgegebenen Zeitabschnitt. Aus den neuen Teilchenpositionen wird dann eine neue Dichteverteilung berechnet, die als Grundlage für den nächsten Schritt der Diffusionsrechnung dient. Dabei können Turbulenz, Windscherung, verzerrte Horizontal-Windfelder, Flauten und Inversionsschichten berücksichtigt werden.

Das vorläufige Ergebnis der bisherigen Quellenstudien zum Plowshare-Programm läßt sich wie folgt zusammenfassen:

1. Eine unmittelbare Übertragung von Kraterexplosionen auf Reaktor-schadensfälle ist wegen der sehr verschiedenen Ausgangsbedingungen nicht möglich.

2. Die bei Kavernenexplosionen bisher erzielten Meßergebnisse reichen zur Prüfung der Konzentrationsberechnungen nicht aus.
3. Der Aufwand an meteorologischen Vorstudien für die Konzentrationsberechnungen ist erheblich und umfaßte stets einen Zeitraum von mehreren Jahren.
4. Die mit Schwerpunkt auf Kraterexplosionen bezogenen theoretischen Rechenansätze für die Konzentrationsverteilungen über längere Zeiträume und größere Entfernungen lassen sich wahrscheinlich auch auf Berechnungen für Abluftfahnen übertragen.

Zitierte Literatur:

- [1] Computer-Liste 1973 des Radiation Shielding Information Center im ORNL, Oak Ridge
Key-words: Project Plowshare, Radioactive Clouds, Fallout
- [2] Higgins, G.H.:
Summary of Nuclear Explosion Data for Underground Engineering Applications
UCRL-50853, April 1970
Lawrence Livermore Laboratory
- [3] Reports Available in Plowshare Open File
Nevada Operations Office (AEC), Las Vegas
Jan. 1973 NVO-86
- [4] Kruger, P.:
Summary of USSR Reports on Mechanical and Radioactivity Effects of Underground Nuclear Explosions
Civil Engineering Dept., Stanford University
Stanford/California CONF-700101
- [5] Proceedings for The Symposium on Public Health Aspects of Peaceful Uses of Nuclear Explosives
Southwestern Radiological Health Laboratory,
Las Vegas, Nevada, April 1969 SWRHL-82

- [6] Knox, J.B.:
Radioactivity Released From Underground Nuclear Detonations:
Source, Transport, Diffusion, and Deposition
UCRL-50230, March 2, 1970
Lawrence Livermore Laboratory
- [7] Tewes, H.A.:
Radioactivity From Plowshare Applications
- Safety Considerations CONF-700101
Lawrence Radiation Laboratory, Livermore/Calif.
- [8] Mueller, H.F.:
Meteorological Requirements and Operational Fallout
Prediction Techniques for Plowshare Nuclear Detonations
Air Resources Laboratory, Las Vegas/Nevada SWRHL-82
1969
- [9] Crawford, Todd, V.:
Atmospheric Transport, Diffusion, and Deposition of
Radioactivity
Lawrence Radiation Laboratory, Livermore/Calif.
SWRHL-82, 1969
- [10] Crawford, T.V.:
Computer Program for Calculating the Atmospheric Dispersion
of Large Clouds
UCRL-50179 (unclas), Nov. 23, 1966
Lawrence Radiation Lab., Livermore
- [11] Armstrong, R.H.:
Gasbuggy - Weather Predictions and Surface Radiation Estimates
PNE-1008
Air Resources Laboratory, Las Vegas, Nevada
- [12] Stout, A.H., White, R.E. and Quinn, V.E.:
Weather Predictions and Surface Radiation Estimates for the
Rulison Event
Final Report, ARLV-351-4, January 1970
Air Resources Laboratory, Las Vegas

- [13] Evans, R.B., Bernhardt, D.E.:
Public Health Evaluation Project Rulison
Programs and Plans
SWRHL-96, August 1970
Southwestern Radiological Health Laboratory
- [14] Environmental Impact Evaluation Project Rio Blanco 1971
PNE-RB-4
CER-Geonuclear Corp. Las Vegas
- [15] LLL Technical Studies, Project Rio Blanco
PNE-RB-6 (unclas), Aug. 2, 1971
CER-Geonuclear Corp., Las Vegas/Nevada
- [16] Project Wagon Wheel. Technical Studies Report
PNE-WW-1 (unclas), Dec. 31, 1971
El Paso Natural Gas Co., Tex.
- [17] Turner, D.B.:
Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates
- [18] Slade, D.H.:
Meteorology and Atomic Energy 1968
Air Resources Laboratories
- [19] Knox, J.B.:
An Investigation of Scavenging of Radioactivity
from Nuclear Debris Clouds
URCL-51328, Jan. 17, 1973
Lawrence Livermore Laboratory
- [20] Heft, R.E., Phillips, W., and Steele, W.:
Radionuclide Distribution in the Particle Population
Produced by the Schooner Cratering Detonation
Bio-Medical Div., Lawrence Radiation Lab., Livermore/Calif.
Nuclear Technology, Vol. 11, Juli 1971

- [21] Off-Site Radiological Safety and Resident
Evacuation Program for Project Rulison
SWRHL-94-r (unclas), Jan. 1970
Public Health Service, Las Vegas/Nev.
- [22] Carter, M.W.:
Technical Discussions of Offsite Safety Programs
for Underground Nuclear Detonations
NVO-40 (Rev. 2) (unclas) May 1969
Reynolds Electrical and Engineering Co., Inc.
Mercury, Nev.
- [23] Anspaugh, L.R.:
Wind-Driven Redistribution of Surface-Deposited Radioactivity
UCRL-74329, May, 11, 1973
Bio-Medical Div.
Lawrence Livermore Laboratory

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG VON KONTAMINATIONEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren

Entwicklung eines Reinigers für Dekontaminationszwecke

(S. Kunze, ADB)

Die Anforderungen, die an einen Reiniger für Dekontaminationszwecke gestellt werden, umfassen neben der Dekontaminationswirkung auch eine gute Verträglichkeit mit den Methoden der Beseitigung radioaktiver Abwässer.

Die bei Dekontaminationsarbeiten anfallenden radioaktiven Abwässer werden über einen Verdampfungsprozess aufgearbeitet. Dabei treten Temperaturen um 100 °C auf. Die Vielzahl der eingesetzten Dekontaminations-Reagenzien bedingt dabei ein mehr oder weniger ausgeprägtes Schäumen des Abwassers, das den Aufarbeitungsprozess stark stört. Ein optimaler Reiniger soll deshalb bei der Aufarbeitung möglichst wenig Schaum bilden bzw. der gebildete Schaum soll nur sehr geringe Schaumbeständigkeit aufweisen. Um diese beiden wesentlichen Eigenschaften eines Dekontaminationsmittels optimal zu verknüpfen, wurden zunächst eine Anzahl üblicher Reiniger untersucht. Daran schloß sich die Entwicklung und Prüfung eines speziellen Reinigers für Dekontaminationszwecke an.

a) Untersuchung der Dekontaminationswirkung handelsüblicher Reiniger

Zur Dekontamination von Fußböden, Wänden und Einrichtungen in kerntechnischen Anlagen und radiochemischen Laboratorien, d.h. an Stellen, an denen mit Kontaminationen zu rechnen ist, können die im Handel befindlichen Reiniger für Industrie und Haushalt dienen. Ferner gibt es eine Reihe von speziell für Dekontaminationszwecke entwickelten Reinigern, die ähnlich aufgebaut sind, jedoch Zusätze zum Lösen von radioaktiven Stoffen enthalten. Eine Auswahl dieser Stoffe wurde auf ihre Brauchbarkeit zu Dekontaminationszwecken getestet. Tab. 4411-1 zeigt die Ergebnisse.

Die Prüfungen umfaßten: pH-Wert, Feststoffgehalt nach Trocknen bei 105 °C und Veraschen bei 875 °C, Schaumentwicklung und -beständigkeit durch Reiben mit einer Perlonbürste an einem Siebzylinder bei konstanter Tourenzahl sowie die Dekontaminationswirkung. Zu deren Bestimmung wurden Edelstahlplättchen (Werkstoff-Nr. 1.4541, 2,5 x 2,5 x 0,1 cm) mit 0,1 ml einer Nuklidlösung, welche ^{45}Ca , ^{137}Cs , ^{106}Ru und ^{60}Co in annähernd gleicher Konzentration enthält, kontaminiert (spezifische Aktivität der Lösung 10 $\mu\text{Ci/ml}$). Die aufgetropfte Lösung wurde 2 Stunden mit dem Fön eingetrocknet. Danach wurden 2 kontaminierte Plättchen an einen Rührer befestigt und bei 500 Upm 5, 10 und 20 Minuten lang in jeweils 400 ml einer 1 %-igen wässrigen Reinigerlösung bei 60 °C gerührt. Nach dem Herausnehmen wurden die Plättchen 10 sec. in dest. Wasser gespült, getrocknet und die Restaktivität bestimmt.

Nach der Dekontamination lagen unter 10 % Restaktivität: Muster 7 (sehr hoher Polymerphosphatgehalt), Muster 11 (hohe Schaumentwicklung und -beständigkeit bei 100 °C), Muster 14 (mittlere Schaumentwicklung und -beständigkeit bei 100 °C), Muster 19 (ein unter anderem oxalsäurehaltiger Reiniger). Hervorzuheben ist, daß von den untersuchten 20 Reinigern nur 4 im sauren pH-Bereich liegen. Davon gehören drei zu denen mit der niedrigsten Restaktivität (höchsten Dekontaminationswirkung). Haushalts-, Industrie- und Laborreiniger sowie teilweise Metallreiniger sind in bezug auf den Dekontaminationserfolg - abgesehen von den Spitzenprodukten 7, 11, 14 und 19 - überwiegend besser als jene Produkte, die als Dekontaminationsmittel auf dem Markt angeboten werden.

b) Entwicklung eines Dekontaminationsreinigers mit geringer Schaumbildung

Aufgrund dieser Ergebnisse wurde ein eigener Reiniger entwickelt, der hervorragende Dekontaminationswirkung mit relativ geringer Schaumbildung verbindet. Eine zu geringe oder gar keine Schaumentwicklung während des Dekontaminationsprozesses war gleichfalls unerwünscht, weil dann der Benutzer nicht in der Lage ist zu beurteilen, wie weit seine Reinigungslösung verbraucht ist. Die Dekontaminationswirkung dieses Reinigers, der als Papan-Dekopan 85 bezeichnet wird, ist ebenfalls in Tab. 4411-1 eingetragen. Um die Dekontaminationswirkung

in Abhängigkeit von der Konzentration des Reinigers zu prüfen, wurden Edelstahlplättchen auf die oben beschriebene Weise kontaminiert und bei 60 °C dekontaminiert. Wie aus Abb. 4411-1 hervorgeht, nimmt das Dekontaminationsvermögen des Reinigers bis hinunter zu Verdünnungen von 1 : 100 nur wenig ab. Erst über dieses Verdünnungsverhältnis hinaus erfolgt eine schnelle Abnahme der Entfernbarekeit der radioaktiven Rückstände. Erhöht man die Einwirkzeit von Papan-Dekopan 85 über 20 min., so läßt sich keine wesentliche Verbesserung der Dekontaminierbarkeit feststellen.

Die gezielte Auswahl geeigneter nicht-ionogener Tensidmischungen im Papan-Dekopan 85 liefert bei niedrigen Temperaturen (20 °C) eine mäßige Schaumentwicklung und -beständigkeit, Abb. 4411-2. Mit zunehmender Temperatur wird die Schaumbeständigkeit geringer und sinkt bei 100 °C unter 1 Minute. In der Praxis bedeutet dies, daß Papan 85 bei 100 °C nicht mehr schäumt. Dies ist darauf zurückzuführen, daß es aus einem Gemisch mehrerer waschaktiver Substanzen besteht, von denen die eine praktisch kein Schaumvermögen bei deutlich ausgeprägtem Wasch- und Reinigungsvermögen und vorzüglicher Netzkraft besitzt, während die andere eine temperaturabhängige Schaumentwicklung zeigt. Diese Komponente bewirkt, daß die Reinigerlösung mit steigender Temperatur trüber und wasserunlöslicher wird und sogar in einem vorgegebenen Temperaturbereich ausflockt. Dieser Vorgang ist reversibel und beeinträchtigt somit die Reinigungskraft von Papan-Dekopan nach dem Abkühlen nicht. Im Vergleich dazu ergeben Reinigerlösungen, die anionenaktives Natriumalkylsulfonat in gleicher Konzentration, vgl. Abb. 4411-3, enthalten, nicht nur bei 20 °C, sondern vor allem auch bei erhöhter Temperatur eine unerwünschte Zunahme der Schaumentwicklung mit ziemlich stabiler Schaumdichte. Da Natriumalkylsulfonat noch in vielen Reinigern enthalten ist, tritt z.B. durch dieses Tensid bei der Aufkonzentrierung des Verdampferinhaltes zeitweise starke Schaumbildung auf. Die im Schaum mitgerissenen aktiven Substanzen führen somit im Destillat des Verdampfers zu unerwünschter erhöhter Aktivität.

Übereinstimmend in beiden Fällen ist, daß bei Raumtemperatur (20 °C) die Schaumwerte der tensidreicheren Lösungen, bei Siedetemperatur (100 °C) die der tensidärmeren höher liegen.

Tab.4411-1: Untersuchungsergebnisse von Reinigungsmitteln

| Reiniger | pH-Wert | | Feststoffgehalt in % nach | | Schaumentwicklung ^x in ml bei | | Schaumbeständigkeit in Minuten bei | | Restaktivität ^{xx} in % nach | | |
|----------------------------------|----------|-------------|---------------------------|--------------|--|--------|------------------------------------|-------|---------------------------------------|---------|---------|
| | Original | 1%ige Lösg. | 2h bei 105°C | 1h bei 875°C | 20°C | 100°C | 20°C | 100°C | 5 min. | 10 min. | 20 min. |
| Haushaltsreiniger | | | | | | | | | | | |
| Muster 1 | fest | 8 | 95,1 | 63,2 | 1000 | > 1500 | > 30 | 10 | 22,3 | 15,9 | 10,9 |
| Muster 2 | 7,6 | 7,1 | 40,1 | 4,4 | 900 | 1500 | > 30 | 30 | 15,1 | 13,6 | 12,6 |
| Industrie-u.Laborreiniger | | | | | | | | | | | |
| Muster 3 | fest | 11,8 | 94,7 | 84 | 1050 | >1500 | 30 | 7 | 18 | 16,8 | 13,9 |
| Muster 4 | 13 | 11,4 | 10,4 | 7,5 | 550 | 1000 | 30 | 5 | 25,2 | 17,8 | 17,6 |
| Muster 5 | 12,6 | 11,8 | 51,3 | 34,9 | 600 | 300 | > 30 | 5 | 19 | 16,9 | 16,1 |
| Metallreiniger | | | | | | | | | | | |
| Muster 6 | fest | 5 | 99,8 | 66,7 | 600 | 150 | 17 | < 1 | 22,9 | 21,9 | 18,4 |
| Muster 7 | fest | 10,1 | 99,3 | 94,9 | 1000 | 400 | 10 | 2 | 4,8 | 3,8 | 2,8 |
| Muster 8 | fest | 12,8 | 92,6 | 80,8 | 500 | 750 | 5 | 2 | 40,4 | 38,6 | 37 |
| Dekontaminationsmittel | | | | | | | | | | | |
| Muster 9 | 13 | 11,6 | 14,2 | 7,2 | > 1500 | 800 | 15 | 10 | 40,9 | 32,9 | 31,8 |
| Muster 10 | 13,5 | 10,8 | 16,2 | 11,2 | 1500 | 400 | 10 | 3 | 15 | 13,4 | 10,8 |
| Muster 11 | 8,1 | 7,7 | 41,4 | 0,8 | 950 | 1050 | 25 | 10 | 6,5 | 5,3 | 3,7 |
| Muster 12 | 8,2 | 8,5 | 18,4 | 3,1 | 700 | 800 | > 30 | 10 | 27,5 | 23,1 | 21,6 |
| Muster 13 | 8,2 | 8,5 | 18,6 | 3,2 | 650 | 1050 | 25 | 30 | 19,9 | 12,1 | 10,5 |
| Muster 14 | 4,4 | 4,9 | 14,1 | 2,7 | 650 | 850 | > 30 | 5 | 7,3 | 6,4 | 4,6 |
| Muster 15 | 13,2 | 10,2 | 13,5 | 12,4 | 950 | 500 | 20 | 2 | 31,7 | 31,3 | 29,5 |
| Muster 16 | 9 | 9,2 | 36,6 | 4,7 | 200 | 100 | 1 | 1 | 19 | 14,8 | 11,4 |
| Muster 17 | 8,9 | 9,1 | 16,3 | 4,7 | 1000 | 750 | 30 | 7 | 30,1 | 28,6 | 23,9 |
| Muster 18 | fest | 12,8 | 99,8 | 80,7 | 200 | 50 | 1 | 1 | 64,9 | 62,8 | 59,4 |
| Muster 19 | fest | 4,1 | 89,2 | 1,6 | > 1500 | 350 | 1 | 1 | 6,6 | 3,5 | 1,8 |
| Papan- Dekopan 85 | 4,3 | 4,7 | 38,8 | 1,8 | 700 | 200 | 15 | < 1 | 2,9 | 1,7 | 0,8 |

x geprüft mit dem Reibschäumgerät 90 der Fa. Ehrhardt u. Metzger, Darmstadt; Reiniger zu Wasser im Verhältnis 1:200
xx an mischnuklidkontaminierten Edelstahlproben (1.4541) in 1%iger wässriger Reinigerlösung.

Abb:4411-1 Zeitabhängigkeit der Dekontamination bei verschiedenen Konzentrationen von Papan-Dekopan85

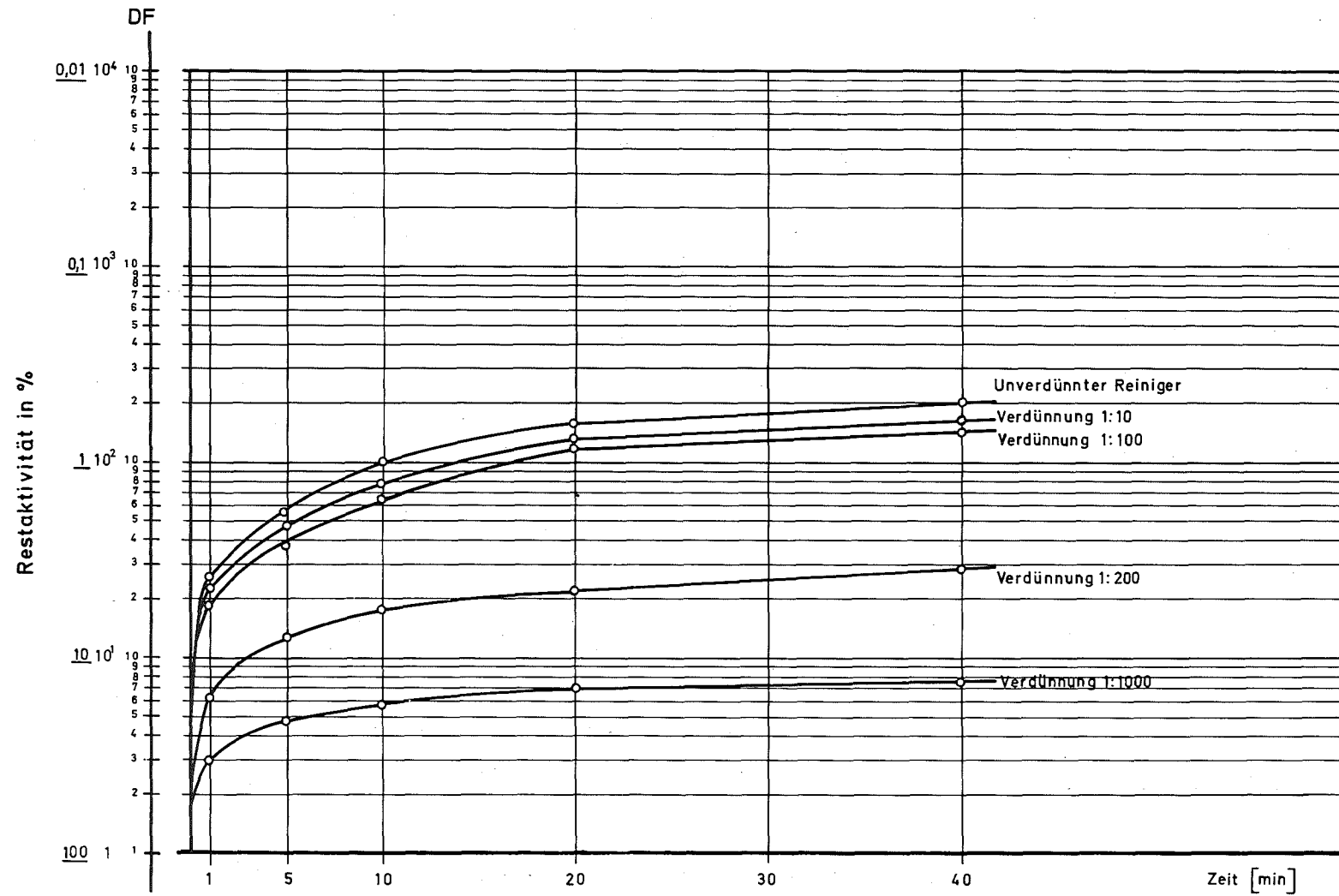


Abb.4411-2: Schaumentwicklung und Schaumbeständigkeit von Papan-Dekopan 85

Reiniger: 0,5 Teile Nonylphenolpolyglycoläther u. 0,5 Teile Fettalkohol-Alkylenoxid-Additionsprodukt und Komplexbildner und Wasser (pH=4,5)

Bemerkungen: Bei 100°C sofort nach Abstellen des Rührwerks kein Schaum mehr.

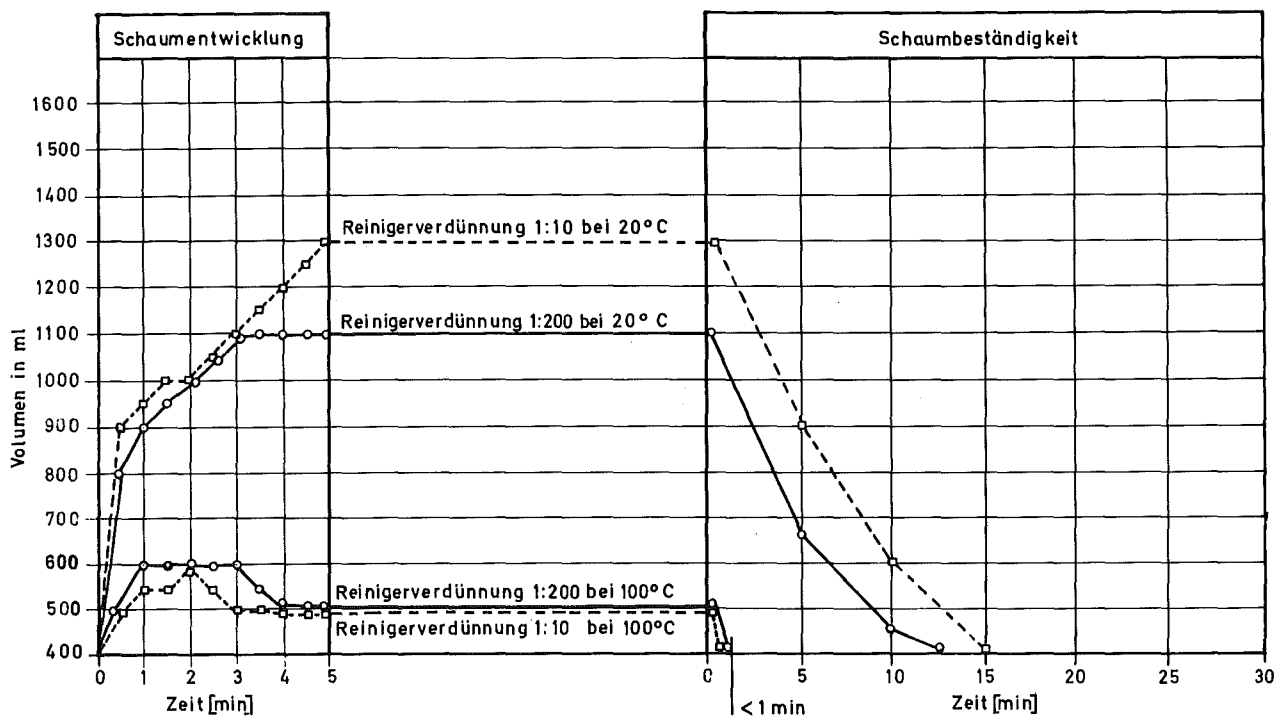
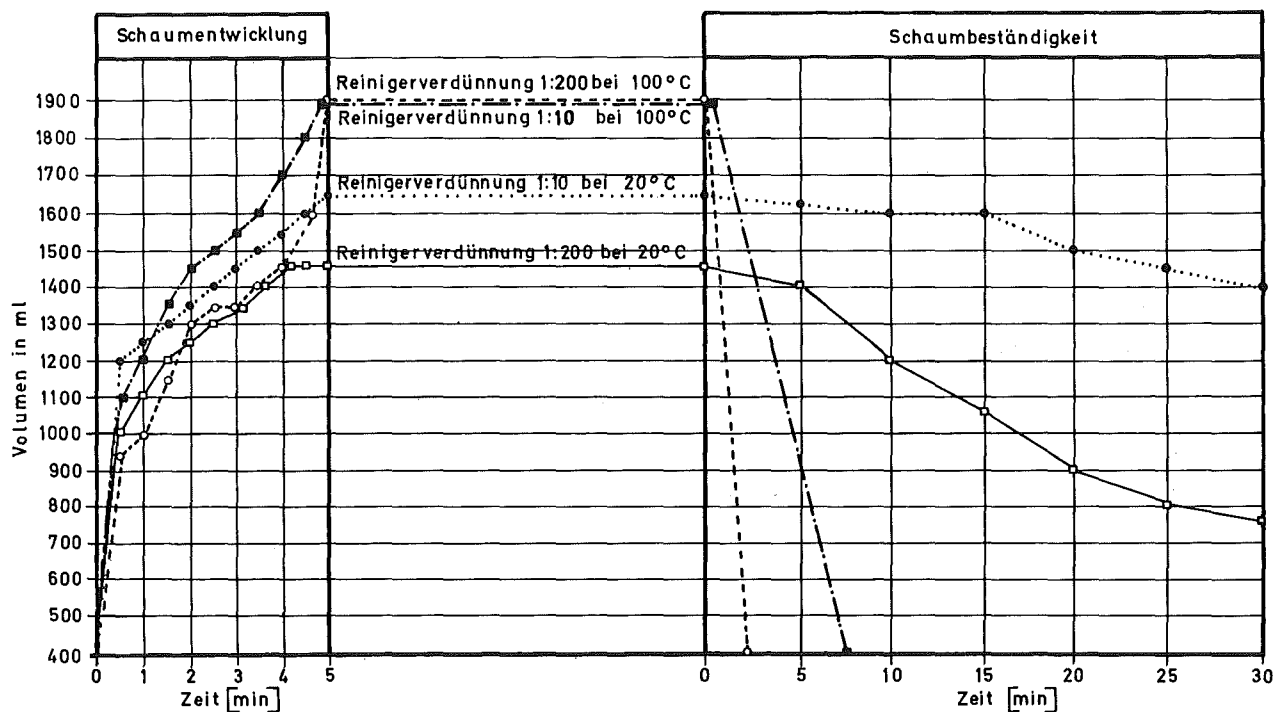


Abb.4411-3: Schaumentwicklung und Schaumbeständigkeit eines anionaktiven Waschrohstoffes

Reiniger: 1 Teil Natriumalkylsulfonat (30% ige Lösung) und Wasser

Bemerkungen: Schaumentwicklung bei 100°C größer als bei 20°C



Die Ergebnisse zeigen, daß das entwickelte Produkt Papan-Dekopan 85 ein für Dekontaminationszwecke geeigneter Reiniger ist. Papan-Dekopan 85 enthält schaumregulierte, nichtionogene Tenside sowie wirksame Komplexbildner und ist auf pH = 4,5 eingestellt.

Papan-Dekopan 85 ist

- nicht brennbar
- in jedem Verhältnis mit Wasser mischbar
- phosphat- und chloridfrei (also umweltfreundlich, haut- und metallschonend)
- in radioaktiven Lösungen gut aufzuarbeiten.

Papan-Dekopan 85 wurde in der Gerätedekontamination sowie beim Einsatz des Dekontaminationstrupps intensiv getestet und wird in Lizenz von der Firma Max Morant, Aschau/Chiemgau, hergestellt. Die Versuche werden in der zweiten Jahreshälfte 1973 abgeschlossen und veröffentlicht [17].

Eigene Veröffentlichungen:

[17] S. Kunze:

Entwicklung eines Reinigers für Dekontaminationszwecke mit reguliertem Schaumvermögen.

KFK 1848, erscheint demnächst

Methoden zur Entfernung des Natriums von kerntechnischen Anlagen

(Th. Dippel, ADB)

Der Dekontamination von Komponenten und Anlagenteilen aus kerntechnischen Betrieben mit dem Ziel, sie zu inspizieren, zu warten oder zu reparieren, zu dem Zweck solche Komponenten wieder einzusetzen, kommt heute eine immer größere Bedeutung zu. Mit Hilfe in der Regel empirischer Verfahren gelingt es heute, Teile, die nicht mehr weiterverwendet werden sollen, so weit zu dekontaminieren, daß sie als aktivitätsfreie Gegenstände betrachtet und behandelt werden können.

Dies ändert sich jedoch, wenn Komponenten und Anlagenteile erneut unter Betriebsbedingungen eingesetzt werden müssen bzw. wenn man auf Experimentiereinrichtungen übergeht, die Natrium als Kühlmittel benutzen. Vor jeglicher weiterer Handhabung natriumbehafteter Teile ist das Natrium wegen seiner leichten Brennbarkeit vollständig zu entfernen, unabhängig davon, ob es mit radioaktivem Material oder auch nur mit Korrosionsprodukten verunreinigt ist. Dieser Prozeß muß insbesondere der Dekontamination vorangehen, da letztere Medien erfordert, die mit Natrium in keiner Weise verträglich sind. Unter diesem Aspekt hat die Internationale Arbeitsgruppe für Schnelle Reaktoren der IAEA zu einem Treffen⁺⁾ eingeladen, auf dem über die bisherigen Erfahrungen bei der Entfernung des Natriums von kern-technischen Komponenten in 18 Beiträgen berichtet wurde.

In Abhängigkeit von den Anforderungen der Reinigungsaufgaben werden heute drei Verfahren zur Entfernung des Natriums benutzt:

- Umsetzen von Natrium in Dampf-Inertgasgemisch mit anschließendem Nachwaschen
- Ausschmelzen im Schutzgas bzw. Abdestillation des Natriums im Hochvakuum mit anschließendem Nachwaschen
- Auflösen des Natriums in geeigneten Lösungsmitteln.

Die Feuchtgasbehandlung und Abdestillation des Natriums erfordern mit zunehmender Größe des zu reinigenden Teiles einen erheblichen apparativen Aufwand.

Mit diesen Verfahren läßt sich in der Regel zufriedenstellend arbeiten; es wurde aber darauf hingewiesen, daß bei allen Methoden doch noch Natriumreste zurückbleiben können. Die Reste sind im allgemeinen um so größer, je umfangreicher die zu reinigenden Teile sind. Problematisch ist außerdem die sichere Entfernung sehr kleiner Natrium- bzw. Natriumoxid-Natriumhydroxidmengen aus Schlitzten, Bohrungen und Gewindegängen.

⁺⁾ International Atomic Energy Agency
Int. Working group of fast reactors
Specialist's meeting on decontamination from sodium and
activity
Dounray, April 1973

Diese Stellen werden mit keinem der genannten Verfahren zuverlässig gereinigt, wie übereinstimmend berichtet wurde. Die Restmengen müssen vielmehr durch sorgfältige Inspektion, verbunden mit einer Nachreinigung, entfernt werden. Andernfalls ist damit zu rechnen, daß die alkalischen Rückstände Materialsveränderungen auslösen, die beim späteren Wiedereinsatz zu Spannungsrißkorrosion führen. Einzelheiten dazu wurden in amerikanischen und französischen Beiträgen berichtet. Datenmaterial über die Empfindlichkeit einzelner Stahlsorten gegenüber wässrigen alkalischen Lösungen sowie über die Schädigung dieser Materialien in Abhängigkeit von der Temperatur wurde in einem deutschen Beitrag mitgeteilt. Dabei wurde mehrfach betont, daß das Korrosionsrisiko nur dann beseitigt oder verringert werden kann, wenn für Anlagenteile, die einem Natriumentfernungsprozeß unterworfen worden waren, Requalifikationskriterien erarbeitet würden.

Über die Beseitigung größerer Natriummengen - kontaminiert und/oder aktiviert - liegen noch wenig Erfahrungen vor. Es besteht nur in Dounray eine sehr kleine Verbrennungsanlage. Ihre Kapazität reicht jedoch nur für den britischen Bedarf aus. Auf diesem Gebiet sind noch weitere Entwicklungsarbeiten erforderlich.

Dekontamination von Kreislaufnatrium

(D. Hentschel, ADB)

In einer Literaturstudie wurde geprüft, welche Verunreinigungen das aus natriumgekühlten Brutreaktoren zur Dekontamination anfallende Natrium enthalten kann und welche Möglichkeiten für dessen Reinigung bzw. Vernichtung bestehen. Wegen der Aufteilung der Kreisläufe im Reaktor ergeben sich zwei Möglichkeiten der Verunreinigung des Natriums.

1. Das Natrium des Primärkreislaufes, in dem sich neben dem durch neutronenaktiviertem Natrium noch radioaktive Korrosions- und Spalt-

produkte befinden [1], deren Konzentration sich mit steigender Betriebsdauer des Reaktors erhöht. Alle genannten Stoffe verteilen sich über den gesamten Kreislauf und setzen sich teilweise an den Wänden ab.

2. Das Natrium des Sekundärkreislaufes, das normalerweise keine radioaktiven Stoffe, sondern nur Korrosionsprodukte enthält. Eine Kontamination des Sekundärkreislaufs mit Aktivmaterialien ist durch Störfälle im Betrieb möglich.

Die Isolierung der radioaktiven Substanzen aus dem kontaminierten Natrium kann auf zwei Wegen geschehen. Unter Umwandlung des Natriums in Natronlauge mit Hilfe von Wasserdampf - Inertgasgemisch, der Umsetzung in geeigneten Lösungsmitteln oder der kontrollierten Verbrennung. Unter Erhaltung des metallischen Natriums sind Fremdstoffe aus ihm durch Filtration oder Destillation entfernbar. Alle Verfahren zur Umwandlung des Natriums haben die gemeinsamen Nachteile, daß sie nur in speziellen Anlagen sicher durchgeführt werden können und daß sie nur vergleichsweise kleine Natriummengen zu bewältigen in der Lage sind. Darüber hinaus fallen beträchtliche Mengen von Natronlauge an, die in hoher Verdünnung die radioaktiven Substanzen enthalten. Um diese Lösungen der Endlagerung zuzuführen, sind sie zu neutralisieren und zu konzentrieren, wobei die radioaktiven Bestandteile des Konzentrats von großen inaktiven Salzmengen begleitet sind. Dies ergibt eine unrationelle Belastung des Endlagers.

Die beiden das Natrium direkt bearbeitenden Verfahren erfordern zwar ebenfalls entsprechende technische Ausrüstungen, doch sind in der Literatur exakte Angaben über die Arbeitsbedingungen vorhanden. Das Destillationsverfahren wird hauptsächlich zur Abtrennung des störenden Sauerstoffs vom Natrium benutzt: es gibt aber auch teilweise Erfahrungen über die Destillation des Natriums von anderen Radionukliden. Außerdem wird die an die Dekontamination gestellte Anforderung des geringen Anfalls an Waste-Volumen voll erfüllt.

Um die Erfahrungen auf dem Gebiet der Natriumreinigung für die ADB auszubauen, wird eine Apparatur zur Natriumdestillation aufgebaut und Dekontaminationsexperimente durchgeführt. Die Apparatur besteht

im wesentlichen aus einer Destillationsapparatur (Glas), einem Pumpstand zur Erzeugung des notwendigen Vakuums, einem HF-Generator zur Induktionserwärmung, einer Glove-Box, in der aus Sicherheitsgründen die notwendigen Präparierarbeiten durchgeführt werden sollen, sowie aus Strahlenmeßgeräten je nach Bedarf.

Zitierte Literatur:

[1] Ullmann, H., Künstler, K., Richter, W.:
Kernenergie 16, Heft 4 (1973) 96

Verbreiterungsmechanismen von Plutonium auf und in dem Boden
(Literaturauswertung)

(A. Jakubick, ADB)

Ein schwerer nuklearer Unfall, bei dem die Ausbreitung der freigesetzten Spalt- und Aktivierungsprodukte bzw. Kernbrennstoffe nicht auf das Innere des Containments beschränkt bleibt, kann direkt oder indirekt über den Fallout aus der Nachunfallatmosphäre zu einer Bodenkontamination führen. Die Entfernung der radioaktiven Schadstoffe von der Bodenoberfläche und aus den oberen Bodenschichten erfordert einen erheblichen Aufwand. Um die Gesamtheit der diesbezüglichen Unfallfolgen einigermaßen zuverlässig beurteilen zu können und effiziente Dekontaminationsmethoden zu erarbeiten, sind möglichst genaue Kenntnisse über das Verhalten der Radionuklide im Boden unabdingbare Voraussetzung.

Die Mobilität in verschiedenen Böden einiger der wichtigeren, bei einem nuklearen Unfall zu erwartenden Nuklide, wie z.B. Cs, Sr, Ru wurden vielerorts bereits eingehend untersucht; wenig Unterlagen existieren jedoch über das Verhalten von Plutonium, obwohl gerade diesem Radionuklid wegen seiner hohen Toxizität und langen Halbwertszeit im Zusammenhang mit Unfallfolgen große Bedeutung zukommt, die sich im Hinblick auf Leichtwasserreaktoren, Brutreaktoren, Transporten von abgebrannten Brennelementen und radioaktiven Abfällen noch verstärken wird.

In der Natur findet sich Plutonium nur als Spurenbeimengung in Uranvorkommen, wobei das Verhältnis Pu/U bei $1/10^{12}$ liegt. Anhand dieser geringen Mengen können die bodenspezifischen Eigenschaften des Plutoniums nicht studiert werden. Man untersucht ausschließlich an den heute durch den Fallout in höheren Konzentrationen im Boden vorliegenden, künstlich hergestellten Pu-Isotopen (10^{-8} bis 10^{-7} μCi Pu-239 in 1 g Boden), bzw. im Laboratorium. Im folgenden wird nur über das Verhalten von in partikulärer Form auf den Boden abgesetzten Pu-239 berichtet.

Meßbare Mengen dieses Isotops sind in den Bodenproben erst seit der ersten Atombombenexplosion am 16. Juli 1945 feststellbar. Im Zuge der Kernwaffenversuche gelangte bis zur Einstellung der oberirdischen Tests durch die USA und die UdSSR eine Gesamtmenge von etwa 500 kCi ($8 \cdot 10^6$ g) an Pu-239 in die Umwelt. Dieser weltweite Plutoniumbestand der Natur wurde lokal vermehrt durch Unfälle in der Kernindustrie und in Forschungslaboratorien, die mit abnehmender Häufigkeit (36 %, 15 %, 11 %) durch Explosion, Feuer und Überdruck verursacht wurden.

Aus der Atmosphäre abgesetztes Plutonium, gleichgültig, aus welcher der erwähnten Quellen es stammt, behält zunächst auf der Bodenoberfläche seine Partikelform, wobei die Teilchen Korngröße breit log-normal verteilt ist. Chemisch gesehen handelt es sich teils um schwer, teils um etwas leichter lösliche Verbindungen, vorwiegend um Oxide, weniger häufig um Nitrate, Oxalate, Peroxide oder Fluoride. Das abgelagerte Material kann entweder in situ verbleiben oder am bzw. in den Boden weiterverteilt werden. Man kennt verschiedene Verteilungsmechanismen. Welcher der Prozesse bevorzugt abläuft, ist abgesehen vom physikalischen und chemischen Zustand der Einzelpartikel weitgehend von den Bodenverhältnissen und den klimatischen Gegebenheiten abhängig.

Trockenes Wetter begünstigt die Resuspension in die Atmosphäre und damit die Kontaminationsverschleppung durch die Luft. Es ist anzunehmen, daß bei diesem Prozess hauptsächlich Pu-Partikel mit einem Teilchendurchmesser von 30 μ vom Wind erfaßt und weitergetragen werden.

Je nach Oberflächenbeschaffenheit des Bodens und der Stärke der Luftbewegung wird ein schmalerer oder breiterer Korngrößenbereich der Pu-Partikel in den Vorgang miteinbezogen. Zum Beispiel werden abgelagerte PuO_2 -Aerosole aus einem Plutoniumbrand, deren Mediandurchmesser üblicherweise 0,5 bis 6 μ beträgt, nur in sehr geringem Maße resuspendiert, wobei selbst diese kleine Resuspensibilität (Resuspensionsfaktor K^+) im Gelände ca. 10^{-6} m^{-1}) mit der Zeit stark abnimmt (bis zu etwa $K = 10^{-10} \text{ m}^{-1}$). Als Ursache hierfür wird in der Literatur "Verwitterung" angegeben.

Langanhaltende Regenfälle bewirken eine Ausbreitung der Plutoniumkontamination durch Wegschwemmen. Das Ausbreitungsausmaß hierbei ist keinesfalls allein vom Geländegefälle abhängig. Ein Überangebot an Regenwasser bei einem gesättigten Boden und ungünstiger Permeabilität im Oberboden kann auch bei ganz ebenem Gelände zu einem nicht unerheblichen Oberflächenabfluß führen.

In den Boden dringt das Plutonium mit dem absickernden Regenwasser, wobei die Eindringtiefe bei gegebenen Bodenverhältnissen wohl als eine Funktion der Niederschlagsmenge angenommen werden kann. Die Bodenwasserbewegung läßt sich anhand der Permeabilität und des hydraulischen Gradienten, also zwei gut meßbarer Größen, quantitativ voraussagen. Würde man zusätzlich die für die vorliegende Bodenbeschaffenheit gültige Sorption der zuständigen Plutoniumform kennen, so könnte man Geschwindigkeit und Richtung der Kontaminationsvorrückung gut abschätzen. Systematische Untersuchungen, die alle diese Faktoren berücksichtigen, wurden bislang jedoch noch nicht durchgeführt.

Die Mobilisierung des Plutoniums durch das perkolierende Bodenwasser ist im allgemeinen sehr gering. Insbesondere trifft das für die extrem niedriglöslichen Pu-Oxide zu (Löslichkeit von $\text{Pu}(\text{OH})_4$ ist 10^{-56}). Bei den pH- und Redox-Bedingungen des Bodens bewegt sich der Verteilungskoeffizient von Pu^{4+} zwischen etwa $5 \cdot 10^3$ und 10^4 ml/g. In der gleichen

$^+)$ Resuspensionsfaktor $K \text{ [m}^{-1}] = \frac{\text{Aktivität in der Luft [}\mu\text{Ci/m}^3\text{]}}{\text{Aktivität auf der Oberfläche [}\mu\text{Ci/m}^3\text{]}}$

Größenordnung dürfte aufgrund dessen das Verhältnis zwischen Bodenwasserbewegung und Plutoniumvorrückung angenommen werden. Bei dieser Überlegung wird allerdings nicht in Rechnung gesetzt, daß Plutonium im Bodenwasser vermutlich als positiv geladenes Polymer $(\text{Pu}(\text{OH})_n)$, das von Bodenpartikeln und Huminstoffen bereitwillig gebunden wird, vorliegt, wodurch seine Beweglichkeit weiter eingeschränkt wird.

Aus dem bisher gesagten wäre zu schließen, daß die Pu-Vorrückung auf einer Verlagerung von Partikeln beruht. Anhand der in der Geochemie üblichen Stabilitätsdiagramme läßt sich dagegen zeigen, daß unter den normalen physikochemischen Verhältnissen im Boden ($\text{pH} = 4$ bis 9 , $\text{Eh} = -0,5$ bis $0,3$ V) das Bodenwasser einige Pu-Ionen ($\text{PuO}_2(\text{OH})_3^-$, $\text{PuO}_2 + \text{PuOH}^{2+}$, Pu^{3+}) unter Umständen in Quantitäten lösen kann, die bereits die RCG (Radiation Concentrations Guide)-Toleranzgrenze für gelöstes Plutonium ($5 \cdot 10^{-6}$ $\mu\text{Ci/ml}$) überschreiten. Ebenfalls kann durch Komplexbildung mit CO_3^{2-} oder organischen Anionen aus biologischen Zersetzungsprozessen die Plutoniumlöslichkeit deutlich erhöht werden. Infolgedessen kann also auch eine Plutoniumwanderung in gelöster Form, zumindest im beschränkten Umfang, nicht ausgeschlossen werden.

Nach Pu-Bodenkontaminationen durch Unfälle wurden an Ort und Stelle eingehende und wiederholte Bodenuntersuchungen vorgenommen. Trotz einer Fülle an neugewonnenen Daten blieben die Aussagen über das Verhalten von Plutonium im Boden ziemlich unsicher und die Interpretationen der Pu-Bodenanalysen mehrdeutig. Die Analysenergebnisse sowohl der γ und α -Meßmethoden als auch der naßchemischen Nachweisverfahren, die im allgemeinen für genauer gehalten werden, weisen eine sehr breite Streuung auf, was nach Sachlage allerdings auch nicht anders zu erwarten ist. Die zu bestimmenden Pu-Konzentrationen liegen nahe der Nachweisgrenze und überlagern sich mit dem weltweiten Fallout, der auch innerhalb enger örtlicher Bereiche stark schwankt, wodurch die Auswertung der lokalen Emissionen sehr erschwert wird.

Die relative Unergiebigkeit der Felduntersuchungen läßt es sinnvoll erscheinen, die Mechanismen und das Ausmaß der Ausbreitung der ver-

schiedenen bodenspezifischen Plutoniumformen zunächst anhand einer Modellanlage unter simulierten Unfallbedingungen und unter Einsatz höherer Pu-Konzentrationen zu studieren.

4416 Verfahren zum Abdichten von Öffnungen
(P. Boldyreff, W. Krüger, RBT)

Das im 1. Halbjahresbericht 1972 formulierte Ziel des Vorhabens hat sich nicht geändert.

Stand der Arbeiten:

Es wurden Versuche zu Verschließen von Öffnungen von $1,20 \times 1,35 \text{ m}^2$ in einer Betonwand durchgeführt. Der Versuchsaufbau, Abb. 4416-1, besteht aus einem Fertigwandelement mit offener Fensterfläche. Zum Einstellen eines Unterdrucks von 10-80 mm Wassersäule ist hinter der Fensterfläche ein Ventilator montiert.

Zum Abdichten der Öffnung wird diese zunächst mit einem groben Gewebe (Sackleinwand) abgedeckt. Die seitliche Befestigung des Gewebes erfolgt durch festgedübelte Holzleisten. Bei laufendem Ventilator (Luftdurchsatz ca. 6000 m^3 pro Std.) wird das Gewebe mit Polyurethan-Schaum (PU-Schaum) bis zur vollständigen Abdichtung beschichtet. Der PU-Schaum, der mit Hilfe einer Spritzmaschine mit einem Durchsatz von ca. 1 kg pro min aufgetragen wird, hat eine Aufschäumzeit von ca. 3 sec. und eine Aushärtezeit von ca. 60 sec. Zum Abdichten der Öffnung sind etwa 15 min erforderlich. (Arbeitszeit vor der Öffnung ohne Vorbereitungszeit.) Die Spritzarbeit muß wegen der Giftigkeit der PU-Schaumkomponenten unter Atemschutz ausgeführt werden.

Die abgedichtete Öffnung hält schon bei geringen Schichtstärken (ca. 3-5cm) einem Unterdruck von 80 mm Wassersäule stand. Für die Festigkeit der Schaumschicht ist es wesentlich, daß das Beschichten bei gespanntem Gewebe erfolgt. Damit wird verhindert, daß bei Belastung

der Schaumschicht eine Formänderung erfolgt. Bei anstehendem Unterdruck liegt die tragende Gewebeschicht in der Zugzone des belasteten Materials.

Das Verfahren ist ohne wesentliche Änderung auf größere Öffnungen übertragbar. Zur Erreichung der erforderlichen Festigkeit, können zusätzliche Zuganker in Form von Nylon- oder Stahlnetzen mit in die PU-Schicht eingebracht werden.

Aufgrund des Ausscheidens, des mit der praktischen Durchführung der Versuche betrauten Mitarbeiters aus der GfK, mußten die Arbeiten am Projekt Mitte April 1973 zunächst eingestellt werden. Eine Fortführung der Arbeiten von seiten RBT/KTH ist mit dem vorhandenen Personal nicht möglich.

}

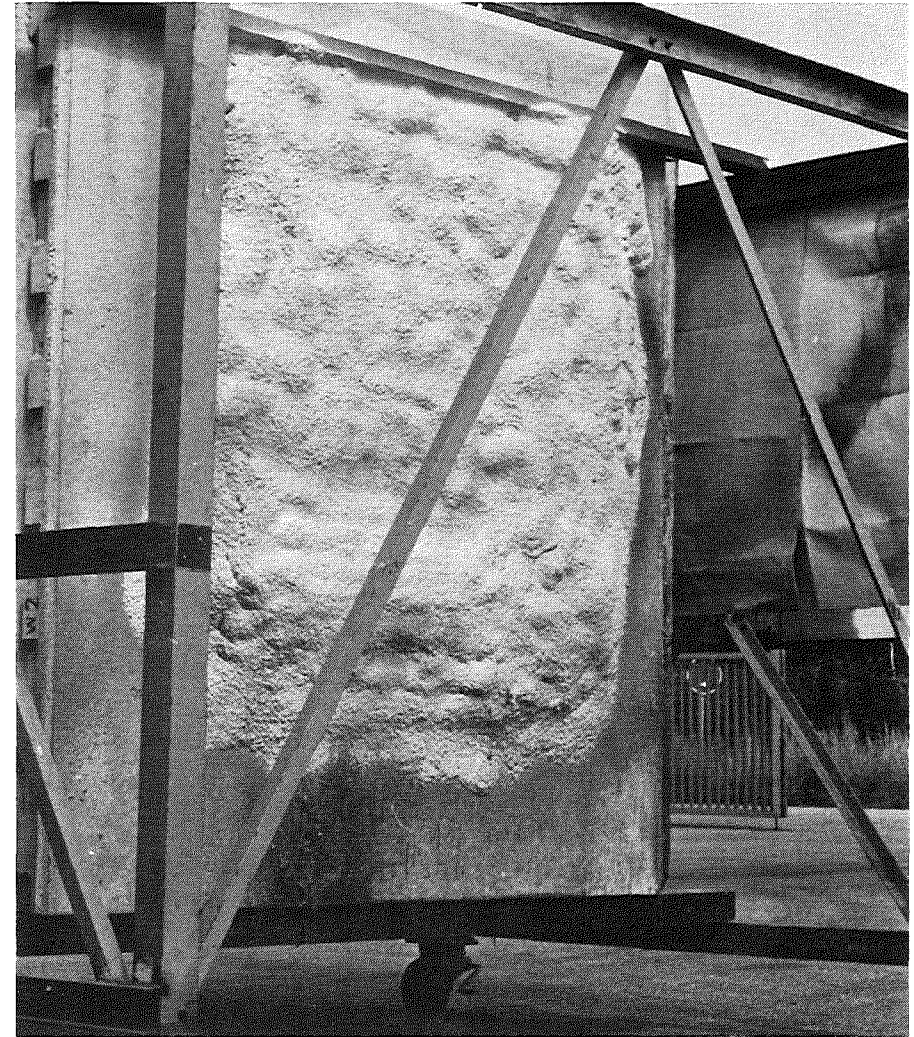
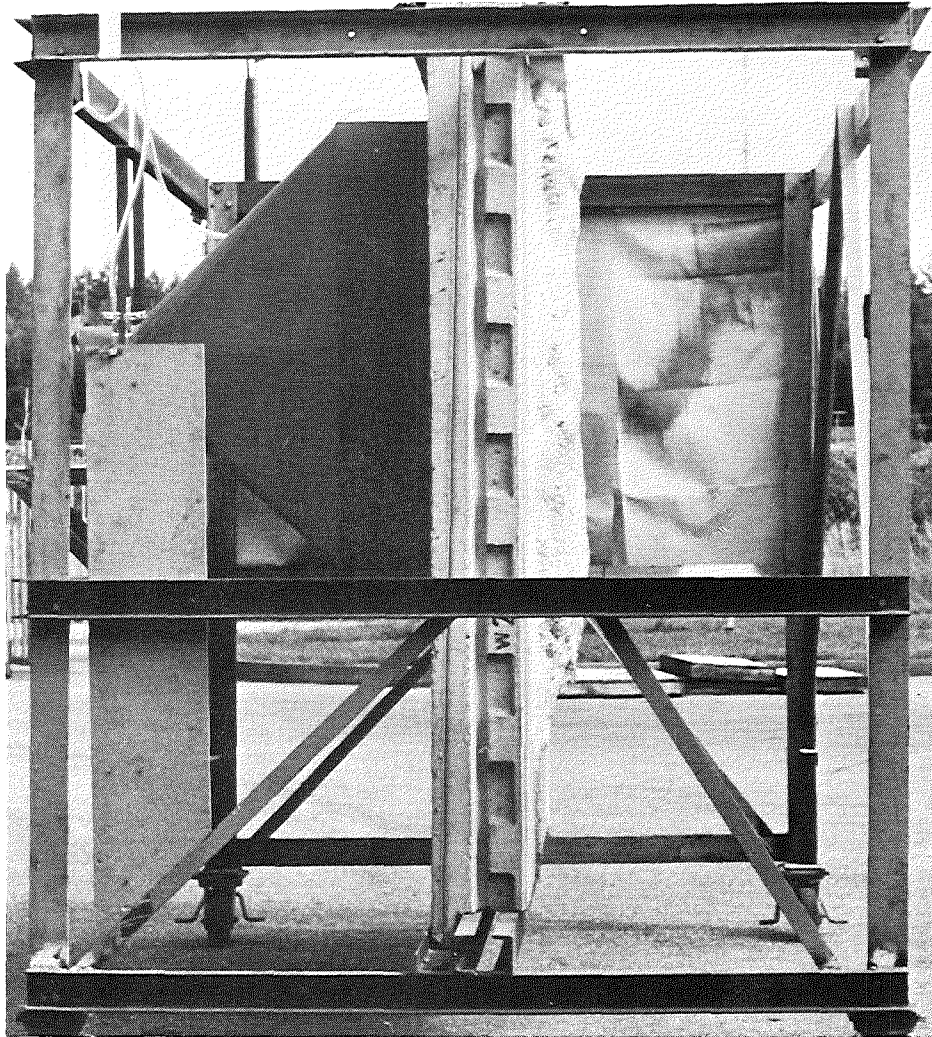


Abb.4416-1: Mit Polyurethan-Schaum bei 80mm Wassersäule Unterdruck abgedichtete Betonöffnung 1,20 x 1,35m

4420 Technik der Räum- und Demontearbeiten

4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte

(L. Bösch, W. Köhler, M. Salaske, G. Scholer, M. Selig, RBT)

1. Mittleres Manipulator-Fahrzeug "MF2"^{+))}

Das Fahrzeug und der Manipulator wurden durch unsere Fertigungskontrolle eingehenden Abnahme-Prüfungen unterzogen. Die Ergebnisse waren zufriedenstellend bis auf einen Punkt. Es wurde eine Nacharbeit an einem der Schaltgetriebe notwendig. Ferner wurden die Schutzeinrichtungen gegen Überlastungen der Fahrtriebe ergänzt. Die Arbeiten waren am Ende des Berichtszeitraumes fast abgeschlossen.

Die Einsatzmöglichkeiten dieses vielseitigen Gerätes wurden untersucht und zusammengestellt und auf zusätzlich mögliches bzw. zweckmäßiges Zubehör hingewiesen. Außerdem wurde eine Kurzbeschreibung des Systems erstellt.

2. Leichtes Manipulator-Fahrzeug "MF3"^{+))}

Nach der Vergabe eines Auftrages an eine Fachfirma über die Detail-Konstruktion des Fahrgestelles und Auslegung der zugehörigen elektrischen Steuerung wurde mit der Erstellung der Fertigungsunterlagen begonnen.

Für den leichten elektrischen Master-Slave-Manipulator "EMSM II" wurde ein Konstruktions-Entwurf erstellt und als Standard-Arbeitsgerät für das MF3 vorgeschlagen. Das neue Gerät arbeitet nach dem gleichen Prinzip wie das Muster "EMSM I", d.h. der Slave- und der Master-Arm werden mit bilateral wirkenden vermaschten Regelkreisen über Verstärker durch Elektromotore angetrieben, wobei lediglich Steuerbefehle von der Bedienungs- zur Arbeitsseite und zurück übertragen werden. In umfangreichen Versuchen mit nach drei verschiedenen Prinzipien gebauten Manipulatoren (Geschwindigkeitssteuerung, Lageregelung und

^{+))} Siehe auch 1. Halbjahresbericht 1972 des PNS

Kraftreflexion) hat sich gezeigt, daß für kompliziertere Arbeiten, die Verwendung von Hand-Werkzeugen oder die Bewältigung eines größeren Pensums in angemessener Zeit eine zweiarmige mit Kraftreflexion ausgestattete Manipulations-Einheit erforderlich ist.

Der Manipulator "EMSM I" wurde ausgeliefert und befindet sich in der Erprobung. Das Geräte ist jedoch von seiner Konzeption her für den Einsatz in Heißen Zellen sowie auf mittleren und schweren Fahrzeugen bestimmt.

Von der Fahrzeug-Version MF3-E, ausgerüstet mit zwei elektrischen Master-Slave-Manipulatoren "EMSM II" wurde eine ausführlichere auf die Anwendung zugeschnittene Beschreibung verfaßt, die auch die Bedienung und Steuerung sowie die Angabe aller wesentlichen Daten einschließt. Ferner werden Werkzeuge für die Manipulatoren, Zubehör für das Fahrzeug, mögliche Varianten des Gerätes sowie mit Master-Slave-Manipulatoren bei Versuchen ausgeführte Arbeiten behandelt. Schließlich werden die Einsatzmöglichkeiten des Fahrzeuges eingehend dargelegt, so daß der künftige Verwender zusammen mit den unter PNS 4430 erwähnten Randbedingungen für die Möglichkeiten und Grenzen des Systems umfassend informiert wird.

3. Incore-Manipulator

Es wurde das Konzept für eine Version vorgelegt, die hinsichtlich der Abmessungen für eine Verwendung im Reaktor FR2 geeignet ist. Das Gerät hat auch bei den Betreibern des Kernkraftwerkes Niederaichbach für einige Fälle reges Interesse gefunden.

Der geänderte Plan sah einen Manipulator vor, der durch entsprechende Ergänzungen auch in Reaktoren von verschiedenen Kernkraftwerken einsetzbar sein sollte. Wegen des geringen zur Verfügung stehenden lichten Durchmessers kann ein Gerät für den FR2 zwangsläufig nur eine geringe Tragfähigkeit, max. ca. 5 kg, besitzen. Für Kernkraftwerke ist jedoch eine erheblich größere Belastbarkeit, etwa 40 bis 50 kg, anzustreben, so daß die FR2-Version für solche Einsätze nur einen begrenzten Gebrauchswert besitzen würde.

Bei den letzten Besichtigungen von Kernkraftwerken ergaben sich außerdem neue Aspekte. Zur Zeit werden die Anforderungen und Randbedingungen für einen Manipulator geklärt, der in möglichst vielen Kernkraftwerken eingesetzt werden kann.

4. Fernbedienbares Schweißgerät

Geplant ist ein Gerät zum Schweißen von Rohren. Zunächst wurde der Stand der Technik auf diesem Gebiet ermittelt. Die angebotenen automatisch arbeitenden Schweißgeräte - gelegentlich auch als fernbedient bezeichnet - sind in erster Linie zur Herstellung von Schweißnähten hoher konstanter Güte bei Fertigung und Montage bestimmt. Sie sind jedoch, was die Handhabung anbelangt, hinsichtlich ihrer Eigenschaften noch weit von einem rein fernbedienbaren Schweißgerät für den Einsatz in hohen Strahlenfeldern, d.h. unter ausschließlicher Verwendung von Manipulator-Fahrzeugen, entfernt. Diese Geräte können jedoch für eine Entwicklung als Basis dienen.

Als hauptsächliche Schwierigkeiten haben sich folgende Punkte herauskristallisiert:

- Die erforderliche sehr präzise Vorbereitung der zu verschweißenden Rohrenden (unter Werkstatt-Bedingungen ist dies relativ leicht möglich),
- die Variationen von Werkstoffen, Wanddicken und Nennweiten,
- die Zu- und Abfuhr des Formiergases an der Schweißnahtwurzel.

Wegen des Schwierigkeitsgrades werden zunächst zwei Methoden verfolgt, und zwar:

Die rein fernbediente Arbeitsweise und die gemischt manuell/fernbediente, wobei die letztere als Zwischenstufe dient, mit der erste praktische Erfahrungen für die weitere Entwicklung gesammelt werden sollen.

5. Allgemeines

Im internen PNS-Arbeitsbericht "Fernbedienungsgeräte für Kerntechnische Hilfszüge" wurde ein Überblick über die Möglichkeiten der Fernbedienungstechnik heute und in naher Zukunft im Hinblick auf ihre Anwendung bei einem Kerntechnischen Hilfszug gegeben.

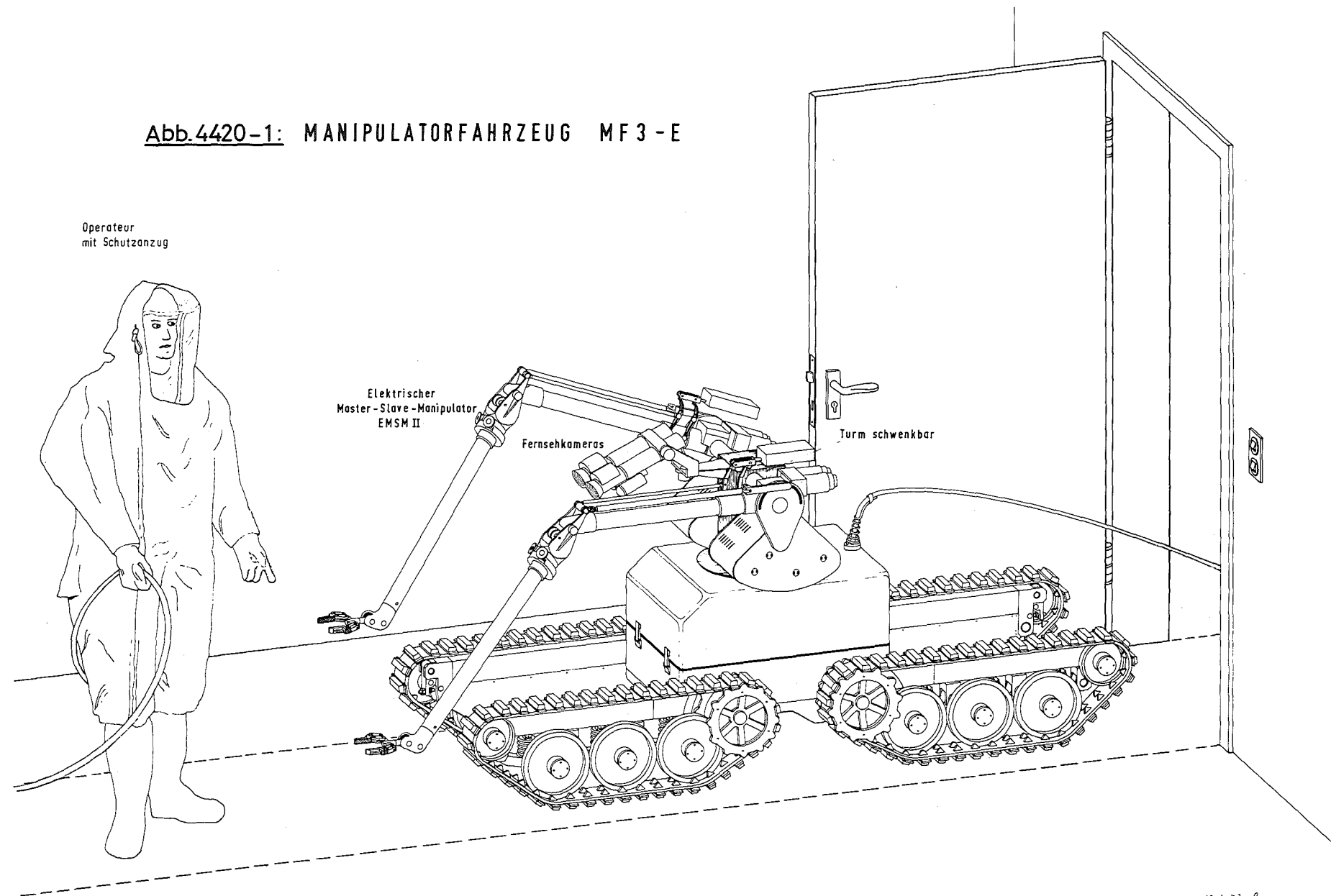
Im Mittelpunkt dieses Berichtes stehen leichte, mittlere und schwere Fahrzeuge, die auf ihnen einsetzbaren Manipulatoren sowie Beobachtungsgeräte. Ergänzend werden stichwortartig Hilfsfahrzeuge, sonstige Arbeitssysteme und weitere Ausrüstungen für Fahrzeuge wie Sensoren, solche zum Arbeiten und Messen sowie zur Dokumentation erwähnt. Abschließend wird die Verwendung und der Einsatz von Fahrzeugen behandelt.

4423 Inspektions- und Meßtechnik zur Schadenserfassung
(L. Bösch, W. Köhler, M. Selig, RBT)

Das mittlere Manipulator-Fahrzeug "MF2" besitzt außer den ohnehin erforderlichen Fernsehkameras fest installiert zwei Stereo-Mikrofone zur Geräuschübertragung und je einen Gamma-Dosisleistungsmesser, Temperaturfühler für die Umgebungsluft sowie Probensammelbehälter. Ferner ist ein abnehmbarer Luftstaubsammler vorhanden und zusätzlich können ein oder zwei Kleinbild-Kameras (für Stereo-Bilder) oder statt einer Kleinbild- eine Schmalfilm-Kamera mitgeführt werden. Mit dem MF2 wird in Kürze ein in gewissem Umfang auch zur Schadenserfassung ausgerüstetes Fahrzeug für die Verwendung im Freien und in Hallen zur Verfügung stehen.

Das geplante leichte Manipulator-Fahrzeug "MF3" wird ebenfalls bereits über Fernsehkameras und zwei Stereo-Mikrofone verfügen. Es wurde vorgeschlagen, das Fahrzeug, solange kein gesondertes Fahrgestell für Schadenserfassung zur Verfügung steht, zusätzlich wahlweise mit einem Meßgerät, z.B. Gamma-Dosisleistungsmesser oder Luftstaubsammler, einer abnehmbaren Fernsehkamera oder einer Kleinbildkamera auszurüsten. Auf diese Weise könnte das MF3 zunächst die Aufgaben eines einfachen mobilen Schadenserfassungssystems für den Einsatz in Gebäuden mit übernehmen.

Abb.4420-1: MANIPULATORFAHRZEUG MF3-E



Operateur
mit Schutzanzug

Elektrischer
Master-Slave-Manipulator
EMSM II

Fernsehkameras

Turm schwenkbar

4430 Vorsorgliche bauliche und verfahrenstechnische Maßnahmen
zur Erleichterung der Schadensbeseitigung
(W. Köhler, W. Bahm, RBT)

Die Befragungsaktion wurde durch den Besuch weiterer Kernkraftwerke fortgeführt.

Es wurden Möglichkeiten untersucht, die Strahlenbelastung des Reparatur-, Wartungs- und Inspektionspersonals durch bauliche und verfahrenstechnische Maßnahmen sowie den Einsatz ferngesteuerter Arbeitsgeräte zu vermindern. Dabei wird die vom Kühlmittel ausgehende radioaktive Strahlung zunächst als gegeben betrachtet, d.h. Möglichkeiten der Verringerung seiner Aktivität etwa durch entsprechende Wasserchemie etc. werden ausgeklammert, da sie Gegenstand anderer Projektbeiträge sind.

Für die folgenden Betrachtungen ist es nützlich, die aufgenommene Strahlendosis aufzuspalten in den Dosisfaktor und den Zeitfaktor und Möglichkeiten ihrer Reduzierung im einzelnen zu untersuchen. Dazu werden im folgenden die wichtigsten Ergebnisse beispielhaft dargestellt.

Eine Verminderung der Ortsdosis könnte erreicht werden durch:

- bessere Abschirmung bzw. räumliche Trennung von Armaturen und Komponenten mit starker Strahlung und relativ hoher Ausfallwahrscheinlichkeit,
- Vermeidung von toten Ecken in Rohrleitungen, damit sich keine radioaktiven Ablagerungen ansammeln können,
- durchdachte strangweise Entwässerung der Primärleitungen.

Eine Verkürzung der Reparaturzeit könnte erzielt werden durch:

- Verbesserung der Zugänglichkeit; dies gilt vor allem für die Armaturenräume in Druckwasserreaktoren, wo eine Fortbewegung oft nur auf dem Bauch kriechend möglich ist und außerdem Gelenkwellen

demontiert werden müssen, um etwa an ein defektes Ventil heranzukommen (Ortsdosis ca. 100 bis 600 mrem/h),

- genügend Raum, daß mindestens zwei Mann gleichzeitig an einem Ort arbeiten können,
- Verwendung schnell lösbarer Verbindungselemente und entsprechender Hilfsvorrichtungen (auch für fernbedientes Arbeiten); entsprechende konstruktive Vorschläge wurden erarbeitet, bzw. der Literatur entnommen, betreffend:
Flansche (3 Prinzipien), Schrauben und Muttern, Klammerverbindungen, Antriebseinheiten, Tragelemente an Komponenten sowie Hilfen zum Fügen, Positionieren und Ausrichten von Bauteilen,
- vorsorglicher Einbau von Montageösen zur Aufnahme von Hilfsvorrichtungen (Hebezeuge etc.),
- ausreichende Dokumentation über den Ist-Zustand der Anlage in Form von Modellen, Photoaufnahmen und Isometrieplänen, wie sie teilweise auch in der konventionellen Technik üblich sind, damit Reparaturarbeiten besser vorbereitet werden können.

Der Einsatz ferngesteuerter Arbeitsgeräte bietet eine weitere Möglichkeit, die Strahlenbelastung des Personals herabzusetzen. Die bereits dazu im vorangegangenen PNS-Halbjahresbericht angeschnittene Frage der Zugänglichkeit wurde durch die Besichtigung einiger kerntechnischer Anlagen eingehend untersucht und folgendes festgestellt:

Es gibt in bestehenden Anlagen zahlreiche Möglichkeiten, das Manipulatorfahrzeug "MF3", in speziellen Fällen auch "MF2", zur Ausführung zumindest von Teilaufgaben bei Wartungs- und Reparaturarbeiten einzusetzen. In anderen Fällen wiederum wird der Zugang zu Armaturen und Komponenten für Manipulatorfahrzeuge versperrt durch:

- zu enge und zu steile Treppen und zu kleine Treppenabsätze,
- zu enge Eingangstüren und Zugänge,
- nachträglich eingebaute Stahlabstützungen, die den Zufahrtsweg praktisch blockieren,

- zu dichte Anordnung der Anlagenteile.

Dabei hätte es oftmals nur geringe bzw. gar keine Mehrkosten verursacht, von der baulichen Seite her durch entsprechende Raumaufteilung den Einsatz solcher Fahrzeuge zu berücksichtigen. Es wurden deshalb die Randbedingungen für die Verwendung des leichten Manipulatorfahrzeuges "MF3-E" untersucht und zusammengestellt, um Hersteller und Betreiber zukünftiger Anlagen über den Platzbedarf des Fahrzeuges sowie über die Arbeitsbereiche der Manipulatoren zu informieren. Daneben könnten durch weiträumigere Anordnung zukünftiger Anlagen weitere Einsatzmöglichkeiten für ferngesteuerte Arbeitsgeräte geschaffen werden. Andererseits würde die dazu notwendige Vergrößerung des Gesamtraumes erhebliche Mehrkosten mit sich bringen, so daß man die wirtschaftlichen und vor allem die personaltechnischen Vorteile hinsichtlich Dosisreserve gegenüber diesen zusätzlichen Kosten abwägen muß.

Neben der Frage der Zugänglichkeit muß noch geklärt werden, inwiefern Manipulatoren die Anforderungen einer exakten Ausführung von Reparatur und Wartungsarbeiten erfüllen können. Die Anlagen wurden so gebaut, daß sie von Menschenhand gewartet bzw. repariert werden können, fernbedientes Arbeiten wurde, abgesehen von einigen speziellen Fällen, nicht in Erwägung gezogen. Man muß vor allem daran denken, daß z.B. jede Schraube, die fernbedient gelöst werden soll, sichtbar sein muß, während ein Monteur auch gefühlsmäßig ohne direkte Sicht Schrauben lockern bzw. festziehen kann. Um diese Fragen zu untersuchen, wurden ausgedehnte Versuche durchgeführt und die Ergebnisse in Form von Empfehlungen für die Ausbildung von Armaturen und Komponenten zur leichten Betätigung durch Manipulatoren gegeben, und zwar neben den bereits erwähnten schnell lösbaren Verbindungselementen im einzelnen für: Hebel, Kurbeln, Handräder, Drehgriffe an Hähnen und Schaltern, Flügelmuttern, Rändelschrauben, Drucktasten bei Schaltern, Elektro- und Mediensteckkupplungen, Überwurfmuttern und Inbusschrauben.

Eine Übersicht aller bisherigen Vorschläge bezüglich baulicher und verfahrenstechnischer Maßnahmen zur Erleichterung der Schadensbeseitigung wurde zusammengestellt.

4440 Strahlenschutz- und Notfallschutzplanung
(L.A. König, W. Neumann, ASS)

Durch eine überlegte Planung der Sicherheitsvorrichtungen bei kerntechnischen Anlagen und sorgfältige Kontrollen bei der Fertigung, beim Bau und während des Betriebes ist die Kerntechnik eine der sichersten Techniken im Vergleich zu anderen. Würde man davon ausgehen, daß ein größerer Schaden als der GAU auszuschließen ist, würde sich eine Notfallschutzplanung für kerntechnische Anlagen auf die Ergreifung von Sofortmaßnahmen zur Beseitigung der aufgetretenen Schäden innerhalb des Betriebes beschränken. Die Kontamination in der Umgebung des Kraftwerkes könnte durch eine kontrollierte Abgabe der Radioaktivität aus dem unzerstörten Containment unter den Werten gehalten werden, die von der Behörde als zulässig anerkannt sind. Gefährdungen infolge Naturkatastrophen und Sabotage sowie ein gleichzeitiges Versagen unabhängig voneinander ausgeführter Sicherheitsvorrichtungen können jedoch nie ganz ausgeschlossen werden, so daß größere Unfälle als der GAU, sog. hypothetische Unfälle, mit einer extrem geringen Wahrscheinlichkeit angenommen werden müssen. Für diesen Fall ist eine erweiterte Notfallschutzplanung vorgesehen, die in den Katastrophenschutzplänen der Länder ihren Niederschlag gefunden hat.

Die Arbeiten zum Thema Strahlenschutz und Notfallplanung wurden mit einer "Studie über den derzeitigen Stand der nuklearen Notfallschutzplanung in der BRD" begonnen⁺). Diese Studie wurde im April 1973 abgeschlossen. Als Grundlage dienten die Ausführungen, die in den Notfallschutzplänen der Betreiber für Unfälle innerhalb des Werksgeländes gemacht wurden. Außerdem wurden die Katastrophenschutzpläne verschiedener Länder berücksichtigt, die zur Anwendung kommen, wenn sich die Unfallfolgen über das Werksgelände in Gebiete ausweiten, die der Öffentlichkeit zugänglich sind. Als Ergänzung wurde der Studie ein allgemeiner Teil vorangestellt, der sich mit der Umgebungsbelastung, mit Strahlenschutzrichtwerten in Unfallsituationen und mit Methoden zum Einschätzen des Unfallausmasses beschäftigt. Im folgenden wird eine Kurzfassung der Studie gegeben.

⁺) W. Neumann:

"Studie über den heutigen Stand der nuklearen Notfallschutzplanung in der BRD"
April 1973, unveröffentlicht

Zum Abschätzen der Umgebungsgefährdung genügt es in den meisten Fällen, die Strahlenbelastung der kritischen Bevölkerungsgruppe durch das kritische Nuklid über den kritischen Belastungspfad zu untersuchen. So muß ^{131}J als das kritische Nuklid und müssen Kinder als die am meisten gefährdete Bevölkerungsgruppe angesehen werden. Als überwiegende Gefahr ergeben sich die Ingestionsdosen der Schilddrüse durch die Aufnahme von kontaminierten Nahrungsmitteln. Durch rechtzeitige Warnung vor dem Genuß solcher Nahrungsmittel kann diese Dosisbelastung jedoch vermieden werden. Das effektive Hauptrisiko stellt in der Regel die Inhalationsdosis dar. Werte über höchstzulässige Aufnahmen verschiedener Nuklide für Unfallsituationen sind in dem sehr umfangreichen Tabellenwerk des British M.R.C. aus dem Jahr 1959 enthalten.

Als Entscheidungshilfe für Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung liegen Empfehlungen der Fachkommission "Strahlenschutz und Sicherheit" der Deutschen Atomkommission vor. Hier werden bestimmten Dosisbereichen entsprechende Notfallschutzmaßnahmen zugeordnet.

Dosisrichtwerte für die Strahlenbelastung von Einsatzpersonal können nur als Empfehlung verstanden werden. Hier sollte unter Berücksichtigung der jeweiligen Folgen für den Helfenden und seine moralische Verpflichtung, Hilfeleistung zu geben, über einen Einsatz entschieden werden. In der ersten Strahlenschutzverordnung vom 15. Oktober 1965 (§ 25 (6)) sind höchstzulässige Dosen für beruflich strahlenexponierte Personen für Unfallsituationen festgelegt.

Das Erkennen der Ursache und der damit verbundenen Folgen eines nuklearen Unfalles unmittelbar nach dem Ereignis wird als besonders schwierig angesehen. Für eine sinnvolle und wirksame Unfallbekämpfung ist aber gerade diese Kenntnis wichtig. Die Abschätzverfahren zur Ausbreitung der Aktivität in die Umgebung einer nuklearen Anlage können keine besseren Ergebnisse liefern, als es die Bestimmung der freigesetzten Aktivität zuläßt. Aus diesem Grund muß es primäres Ziel der Notfallschutzplanung sein, brauchbare Methoden zur Ermittlung der störfallbedingten Freisetzung bereitzustellen. Theoretische Abschätzverfahren zur Aktivitätsfreisetzung werden so lange zu keinen befriedigenden Ergebnissen führen können, wie die Eingangsparameter solcher Rechnungen, z.B. Rückhalte-

faktoren, Abgasfilterzustand, Abbrand der schadhafte Brennelemente oder auch definierte Unfallsituationen kurz nach dem Eintreten eines Unfalles, nicht anzugeben sind. Als Alternative bietet sich die meßtechnische Erfassung der freigesetzten Aktivität im Abluftkamin, in den Abluftleitungen oder in der nächsten Umgebung des Kernkraftwerkes an. Diese Unfallinstrumentierung wirft einige Fragen auf, die in einer weiteren "Studie über den heutigen Stand der Notfallinstrumentierung" behandelt werden (vgl. PNS 4321).

Zur Ermittlung der Ausbreitung der freigesetzten Aktivität sind Rechenmodelle aufgestellt worden, die in Abhängigkeit der augenblicklich herrschenden meteorologischen Bedingungen eine Abschätzung der Aktivitätskonzentration in der Umgebung des Kraftwerkes bei Kenntnis der Freisetzungsraten gestatten. Diese Rechenmodelle lassen jedoch keine langfristige Prognose zu. Es werden deshalb Anstrengungen gemacht, Rechenmodelle zu erstellen, in die statistische Werte langfristiger Wetterbeobachtungen mit einfließen, um so zu langfristigen Prognosen zu kommen. Es bestehen zur Zeit noch erhebliche Schwierigkeiten, Konzentrationswerte, wie sie mit Hilfe von Ausbreitungsversuchen gemessen wurden, durch theoretisch berechnete Werte mit größerer Genauigkeit zu bestätigen.

Aus den genannten Schwierigkeiten ist die unmittelbar nach dem Erkennen eines Unfalles gestartete Umgebungsüberwachung durch Messungen im Gelände zur Zeit die in Notfallschutzplänen vorgesehene übliche Methode, um einen Überblick über die Auswirkungen einer störfallbedingten Aktivitätsfreisetzung zu erhalten. Man geht davon aus, daß solche Meßprogramme so schnell gestartet werden können, daß nach Eingang einer genügend großen Zahl von Meßwerten noch Zeit bleibt, Schutzmaßnahmen für die Bevölkerung zu ergreifen. Es stellt sich jedoch das Problem, daß zunächst nur Messungen der γ -Dosisleistung und ggf. der β -Luftaktivität und der β -Kontamination des Bodens vorliegen. Nuklidspezifische Angaben sind erst nach Stunden durch γ -spektroskopische Auswertungen in mobilen oder stationären Meßlabors möglich.

Ein Vergleich der verschiedenen Schutzmaßnahmen für die Bevölkerung läßt zwei Gruppen erkennen:

1. Schutzmaßnahmen, die zur Senkung der Strahlenbelastung führen, ohne daß das gesellschaftliche und persönliche Leben stark gestört wird. Hierunter fallen: Unterrichtung und Warnung der Bevölkerung, Verbleiben im Haus, Absperren des Gefahrenbereichs und Verabreichung von Jodidtabletten.

2. Schutzmaßnahmen, die das gesellschaftliche und persönliche Leben stark stören. Hierunter fällt als einschneidendste Maßnahme die Evakuierung.

Während die Schutzmaßnahmen der Gruppe 1 auch vorsorglich angeordnet werden können, wird man für die Evakuierung besonders kritisch prüfen müssen, ob sie überhaupt sinnvoll ist.

Bei einem Unfall in einer Kernenergieanlage muß der organisatorische Aufbau des Unfallschutzes und die Einteilung der Mitarbeiter in Einsatztrupps Gewähr leisten, daß automatisch der organisierte Einsatz aller Mitarbeiter zur Ausführung von wirksamen Unfallschutzmaßnahmen erfolgen kann. Breiten sich die Auswirkungen des Unfalles über die Grenzen des Werksgeländes aus, so ist es Pflicht der jeweiligen Landesbehörde, in die Unfallschutzmaßnahmen einzugreifen.

Besonders im letzten Fall kann nur ein klarer organisatorischer Aufbau des Unfallschutzes mit eindeutig festgelegten Kompetenzen ein schnelles und effektives Handeln gewährleisten. Der organisatorische Aufbau des Unfallschutzes, die Bildung der Einsatzleitung und die Beschreibung der Aufgaben der einzelnen Organe des Unfallschutzes nehmen deshalb einen breiten Raum in den Notfall- und Katastrophenschutzplänen ein. Dabei ist ein hoher Grad an Übereinstimmung in den verschiedenen Plänen festzustellen.

Künftige Arbeiten des PNS zum Thema "Strahlenschutz, Notfallschutzplanung, Risikountersuchungen"

(A. Fiege)

Die bisherigen Arbeiten des PNS zum Thema Strahlenschutz und Notfallschutzplanung, die den Ist-Zustand auf diesem Gebiet umreißen, werden mit der

Erstellung der ASS-Studie abgeschlossen, da hier vorwiegend organisatorische Probleme angesprochen werden.

Die Bearbeitung der organisatorischen Probleme und die Optimierung administrativer Maßnahmen sowie der Erlaß von Dosis-Richtwerten für die Einleitung von Schutzmaßnahmen ist die Aufgabe der zuständigen Behörden. Sie werden von den Beratungsgremien des BMFT, z.B. von den ad hoc-Ausschüssen "Notfallschutz-Richtwerte" und "Notfallschutz-Organisation", in denen auch PNS-Mitarbeiter vertreten sind, unterstützt.

Im Rahmen des Themenkreises "Strahlenschutz, Notfallschutzplanung, Risiko-untersuchungen" wird sich das PNS daher künftig auf folgende konkrete Probleme konzentrieren:

- Störfalldiagnose: das ist in erster Linie eine Frage der Störfall-instrumentierung und wird unter PNS 4321 zusammengefaßt.
- Schadensprognose: dieses Problem wird unter 4310 von der ASS bereits bearbeitet. Zusammengefaßt sind hier die Untersuchungen zur Schadstoffausbreitung innerhalb und außerhalb des Containments, auf experimenteller und analytischer Basis. Im Rahmen dieser Arbeiten fällt auch das Prognosemodell bzw. ein Verfahren zur Hochrechnung an.
- Neu aufgenommen werden Arbeiten zur Abschätzung der Risiken durch den Betrieb von Kernkraftwerken und durch den Transport radioaktiver Materialien.

Dieser Punkt soll unter "4530 - Risikobetrachtungen" im Rahmen des PNS-Vorhabens "4500 - Sicherheitstechnische Beurteilung nuklearer Anlagen" vom IASR bearbeitet werden.

Das PNS-Forschungsvorhaben "4440 - Strahlenschutz und Notfallplanung" wird daher nicht mehr als selbständiges Vorhaben weitergeführt.

4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG NUKLEARER ANLAGEN

4510 Informationssystem zur Reaktorsicherheit (RESI)

Am Institut für Reaktorentwicklung (IRE) der GfK werden in einer Systemstudie die Möglichkeiten und der Nutzen eines Informationssystems im Bereich der Reaktorsicherheit und der atomrechtlichen Genehmigungsverfahren untersucht. Das Vorhaben wird in engem Kontakt mit allen in diese Problembereiche einbezogenen Institutionen bearbeitet. Ein wesentlicher Zweck dieses Projektes und auch Anlaß dazu ist das Bestreben, eine Engpaßsituation auch bei mehreren gleichzeitig abzuwickelnden Verfahren auf der Genehmigungsseite möglichst zu vermeiden (s. dazu auch Abb. 4510-1). Neben der Erstellung einer Systemstudie werden die praktischen Verfahren im Rahmen von Prototypentwicklungen geprüft.

Im Rahmen von zwei "Workshops" wurden die Arbeiten zu RESI zwei potentiellen späteren Betriebsorganisationen (IRS, ZAED) im Detail erläutert und vorgeführt. Die zu diesen mehrtägigen Veranstaltungen entsandten Mitarbeiter wurden mit den beiden Prototypversionen RESI-1 und RESI-2

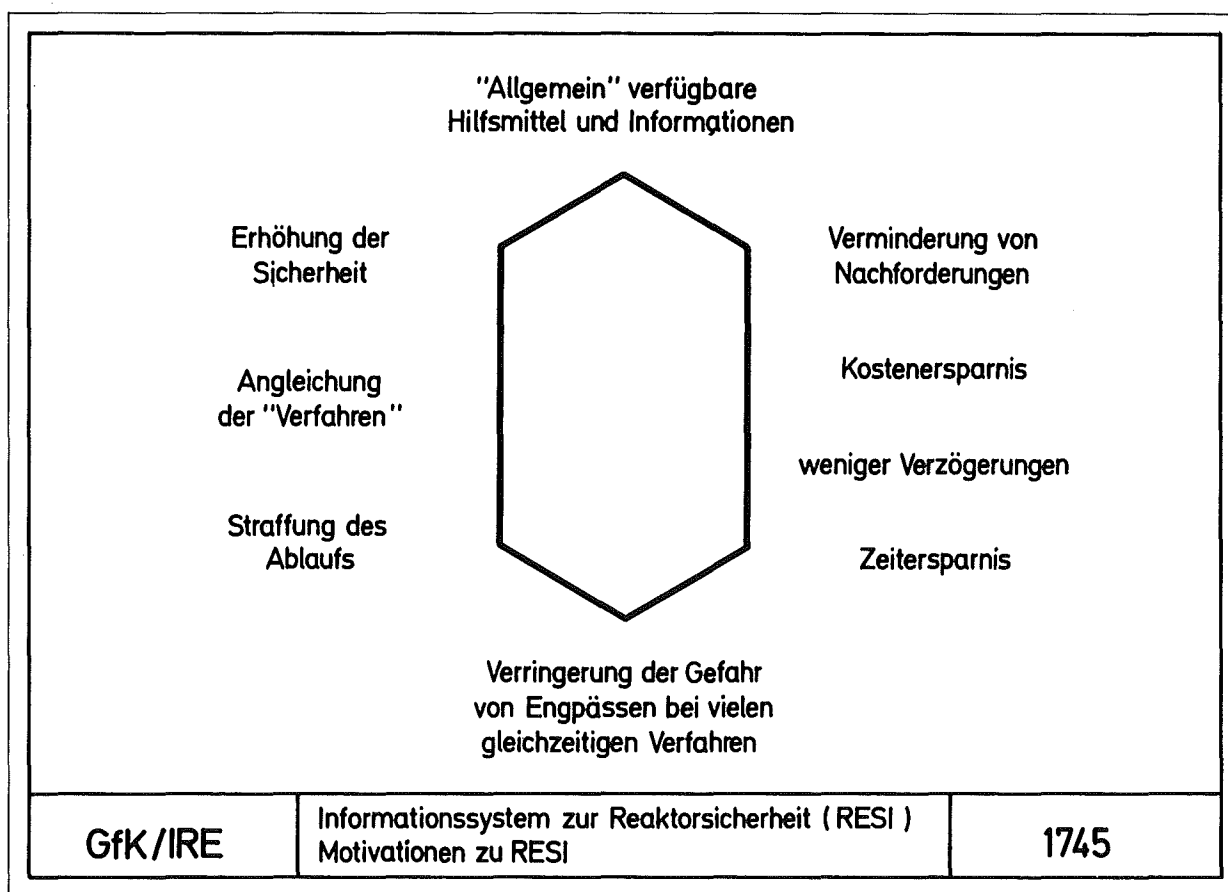


Abb. 4510-1

sowie den speziellen Problemen der Arbeiten wie Thesauruserstellung und Indexierverfahren vertraut gemacht. Gemeinsam mit den IRS-Mitarbeitern wurde ein Beispiel für die Störfalldokumentation für die Verwendung in RESI-2 erarbeitet. Ergebnisse der Workshops sind gutachtliche Stellungnahmen von IRS und ZAED über die Arbeiten zu RESI. Es liegen bereits vor:

- Stellungnahme zur Einführung des Reaktorsicherheitsinformationssystems RESI-2 in die Praxis des atomrechtlichen Genehmigungsverfahrens, IRS, 21. März 1973
- E.G.Schlechtendahl, G.F.Schultheiß, Anmerkungen zur IRS-Stellungnahme vom 21. Mai 1973, Gegenüberstellung, IRE/GfK, 22. Juni 1973

Die ZAED-Stellungnahme wird im Juli 1973 fertiggestellt.

In einer Reihe von Demonstrationen wurde das Prototypsystem RESI-2 interessierten Ländergenehmigungsbehörden vorgestellt. Ein Kolloquium über die Arbeiten und Probleme an RESI mit Bundes- und Länderbehörden sowie Vertretern von Technischen Überwachungsvereinen beschloß die Demonstrationsphase (s.a. 4512). Als Ergebnis des Kolloquiums wurde festgestellt, daß über Umfang und Art der Weiterbearbeitung des Vorhabens "Informationssystem zur Reaktorsicherheit" im Herbst 1973 im Länderausschuß für Kernenergiefragen beraten werden sollte mit dem Ziel einer entsprechenden Empfehlung an die zuständigen Bundesbehörden.

Über das Vorhaben RESI wurde vorgetragen auf dem IAEA-Symposium on Principles and Standards of Reactor Safety [1], eine Veröffentlichung wurde in der Atomwirtschaft gebracht [2].

Über das Vorhaben RESI wurde von anderer Seite berichtet in:

- VDI-Nachrichten, Jahrg. 27, Jan. 1973, No. 2
- Nuclear Engineering, Vol. 18, Jan. 1973, No. 200, p.11
- Atomwirtschaft, April 1973, p.207

Auf Grund der Ergebnisse und Erfahrungen bei unseren bisherigen Bemühungen hat sich die Möglichkeit einer Zusammenarbeit mit TÜV's bei der Einrichtung des Dokumentationswesens im Prüf- und Abnahmebereich von atomrechtlichen Genehmigungen ergeben. Insbesondere seitens des TÜV Baden und des TÜV Rheinland wurden Probleme aus diesem Bereich vorgetragen. Eine weitergehende Beteiligung an der Lösung dieser Aufgaben (z.B. im Rahmen einer Klausurtagung) wird erwogen, sobald die Problemstellung von TÜV-Seite - wie besprochen - schriftlich fixiert ist.

4511 Erstellung einer Systemstudie

(T.Krings, E.G.Schlechtendahl, G.F.Schultheiß, D.Smidt, IRE)

Stand der Arbeiten:

Die Ende 1972 bei 10 Institutionen durchgeführten Detailinterviews wurden ausgewertet und zeigten folgende Hauptergebnisse:

- Der Hauptteil des Informationsflusses (ca. 80 %) betrifft den Pfad Antragsteller - TÜV (Antragsteller; Hersteller + Betreiber; TÜV: Gutachter-, Prüf- und Abnahmetätigkeit). Kennzeichnend ist ein hoher Anteil an Nachforderungen.
- Die Speicherung erfolgt praktisch ausschließlich in Ordnern. Die Anwendung z.B. der Mikroverfilmung wird an einzelnen Stellen bisher nur erwogen.
- Über Aufwand und Kosten waren keine oder nur unklare Angaben zu erhalten.
- Zur Sicherung des Informationsmaterials werden keine besonderen Anstrengungen unternommen. Im Fall einer zentralen Speicherung bei RESI müßten jedoch nach Aussage aller Befragten zusätzliche Auflagen gemacht werden. Zur Zugriffsberechtigung auf das Material liegen eindeutige Aussagen vor.
- Die nicht auf Genehmigungsfälle bezogene übergreifende sicherheitstechnische Bearbeitung wird nur vereinzelt und meist personenbezogen (z.B. KTA-Mitglied, RSK-Unterausschuß-Mitglied usw.) betrieben.
- Die auf Genehmigungsfälle bezogene Bearbeitung wird unterschiedlich (z.B. projektartig, bausystemspezifisch) organisiert. Hinsichtlich der Qualifikation werden überwiegend Reaktortechnikspezialisten für alle Arbeiten eingesetzt. Die Terminplanung liegt maßgeblich in Herstellerhand, alle anderen Institutionen verwenden diese Terminplanung nach Absprache als Leitplan. Außer vereinzelt kleineren Handkarteien werden keine allgemein verfügbaren besonderen Hilfsmittel verwendet.

Weiteres Vorgehen :

Nachdem alle Vorarbeiten weitgehend abgeschlossen und auch dokumentiert sind, wird die Studie selbst voraussichtlich ab September 1973 erstellt, so daß sie gegen Ende des Jahres verfügbar sein wird.

4512 Erstellung eines Prototypsystems

(W.Eglin, F.W.Katz, T.Krings, R.Mangelsdorf, A.Pee,
E.G.Schlechtendahl, K.Schramm, G.F.Schultheiß, D.Smidt, IRE)

Stand der Arbeiten :

Nach Abschluß der Umstellungsarbeiten für den Betrieb von RESI-2 (Golem-Prototypversion) im Rechenzentrum des Bundespresse- und Informationsamtes wurden zunächst eine Reihe von Tests zur Klärung des Informationswiedergewinnungsverhaltens durchgeführt. Dazu war es u.a. erforderlich, die Mitarbeiter mit der Arbeit am Bildschirmgerät der Datensichtstation (Abb. 4510-2) in ausreichender Weise vertraut zu machen.



Abb. 4510-2: Datensichtstation für die Datenfernverarbeitung in RESI-2 über normale Telefonverbindungen

Die Vorbereitung und Durchführung der Workshops sowie der zahlreichen Demonstrationen und des bereits ebenfalls erwähnten Kolloquiums bildeten auch beim Prototypbetrieb einen weiteren Schwerpunkt.

Gegen Ende des Berichtszeitraumes wurde eine Untersuchung des Zeitbedarfs für den Prozeßablauf begonnen, bei welchem sich eine neu erstellte Indexierhilfe für die eingesetzten Mitarbeiter gut bewährte. Die Untersuchung muß noch ausgewertet werden.

Für die geeignete Aufbereitung des in Karlsruhe vorbereiteten Datenmaterials und für einige im Rahmen von GOLEM nicht durchführbare Aufgaben von RESI-2 (z.B. Kopieren von Typenfragen für einen neu anstehenden Genehmigungsfall oder Korrekturen) wurden eine Reihe von PL/1-Programmen für die IBM 360/165-Anlage in Karlsruhe erstellt und dokumentiert.

Zum Zeitpunkt dieses Berichtes sind in RESI-2 rund 1000 Dokumente mit etwa 10 000 Seiten aufgenommen. Daraus wurden 700 sicherheitstechnische Fragen (Typenfragen) abgeleitet, die ebenfalls Bestandteil des Systeminhaltes sind und entweder direkt am Bildschirm oder in verschiedener Gliederung über Schnelldrucker ausgegeben werden können.

Weiteres Vorgehen:

Das Prototypsystem RESI-2 soll mit seinem bisher verfügbaren Inhalt Anfang August eingefroren werden. Bis Ende 1973 steht es noch für Demonstrationen zur Verfügung, danach laufen die Absprachen mit dem Bundespresse- und Informationsamt und die Mietverträge für die Datensichtstation aus. Für die Prototypversionen RESI-1 und RESI-2 werden bis Ende des Jahres ausreichend genaue Dokumentationen erstellt, um eine Wiederaufnahme der Arbeiten auch an anderer Stelle zu ermöglichen.

Eigene Veröffentlichungen:

[1] Schlechtendahl, E.G., Schultheiß, G.F., Smidt, D.,
Information System on Reactor Safety, IAEA-Symposium on
Principles and Standards of Reactor Safety, Jülich,
2/5 Febr. 1973, Paper IAEA-SM-169/9

[2] Smidt, D., Engpaß Genehmigungsverfahren?
Atomwirtschaft - Atomtechnik, XVIII/3, März 1973, pp.116-123

Veröffentlichungen und Bericht zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1973

2. Halbjahresbericht 2/1972 des Projekts Nukleare Sicherheit
KFK 1787 (Mai 1973)

J.G. Wilhelm:

Entwicklung eines Meßgerätes zur kontinuierlichen Luftüberwachung
auf Radiojod, Atomwirtschaft, Jahrgang 18, Nr. 6, S. 297 - 299,
Juni 1973

L.A. König, M. Winter:

Investigation of the Tritium Level in the Environment of the
Karlsruhe Nuclear Research Center, 3. IRPA-Kongreß, Washington,
9. - 14. September 1973

A. Bayer:

Dose and Risk Considerations for the Release of ^{131}I at Special Sites;
IAEA Symposium on Principles and Standards of Reactor Safety, Jülich 1973,
Paper IAEA/SM-169/8

A. Bayer:

Die ortsabhängige spezifische Dosis von J-131
Atomwirtschaft-Atomtechnik 18 (1973) 31-32

H. Sameith:

Untersuchungen zur Ausbreitung von Stoßwellen in relaxierenden
Zweikomponenten-Blasengemischen, KFK 1796, Mai 1973

J.P. Hosemann, H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild:

Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines Leichtwasser-
reaktor(LWR)-Containments (Übersicht und Stand der Kenntnis)
KFK 1800, Juni 1973

K. Nester, W. Hübschmann:

Die Dosisstatistik als Mittel zur Beurteilung der Umweltbelastung
durch Schadstoffemissionen in die Atmosphäre
3. Internationaler Kongreß Reinhaltung der Luft,
8. - 12.10.1973, Düsseldorf

H. Fessler, L.A. König, K. Nester, M. Winter:
Preliminary Experience Gained in Monitoring ⁸⁵Krypton-Immissions in the
Neighborhood of the Karlsruhe Reprocessing Plant
Symposium on Environmental Behaviour of Radionuclides Released in the
Nuclear Industry, Aix-en-Provence, 14.-18. Mai 1973, France

S. Kunze:

Entwicklung eines Reinigers für Dekontaminationszwecke
mit reguliertem Schaumvermögen
KFK 1848, erscheint demnächst

E.G. Schlechtendahl, G.F. Schultheiß, D. Smidt:

Information System on Reactor Safety, IAEA-Symposium on
Principles and Standards of Reactor Safety, Jülich,
2/5 Februar 1973, Paper IAEA-SM-1969/9

D. Smidt:

Engpass Genehmigungsverfahren?
Atomwirtschaft - Atomtechnik, XVIII/3, März 1973, pp. 116-123

Interne Arbeitsberichte, unveröffentlicht

G.W. Köhler:

Fernbedienungsgeräte für Kerntechnische Hilfszüge
April 1973

H. Albrecht, D. Perinic:

Studie und Arbeitsprogramm zum Thema
Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von
Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Schmelzen von LWR-
Brennstabprüflingen
Febr. 1973

W. Neumann:

Studie über den heutigen Stand der nuklearen Notfallschutzplanung
April 1973

S. Dorner:

Wasserstoffbildung im Containment nach einem Coreschmelzen

Juni 1973

S. Dorner:

Vermeidung der Wasserstofffreisetzung nach einem Coreschmelzen

Juni 1973

F. Porz:

Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Jodisotopen durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000