

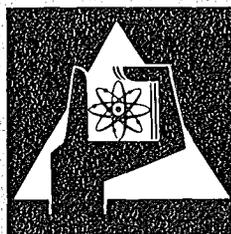
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

April 1974

KFK 1908

Projekt Nukleare Sicherheit

2. 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

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1908

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

2. Halbjahresbericht 1973

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 1908

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

4. Projektbericht / 2. Halbjahr 1973

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.

Der vorliegende 4. Halbjahresbericht 2/1973 beschreibt Arbeiten am Projekt Nukleare Sicherheit, die von Instituten und Abteilungen der GfK durchgeführt wurden.

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

Im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit (PNS) arbeiten die folgenden Institute und Abteilungen der Gesellschaft für Kernforschung zusammen:

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 Strahlenschutz und Sicherheit	ASS
Laboratorium für Isotopentechnik	LIT
Abteilung Reaktorbetrieb und Technik	RBT

Zusammenfassung/Summary	i - viii
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN	1
4110 Entwicklung von Filtern und Abgassystemen	1
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	1
4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen	4
4113/14 Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgasen. Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien	13
4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von aktivierten Korrosionsprodukten in Primärkreisläufen und deren Reinigung	20
4121 Messungen zur Verteilung aktivierter Korrosionsprodukte im Primärkreislauf des Kernkraftwerkes Obrigheim	20
4122 Untersuchungen zum Einfluß der Reaktorchemie auf die Kreislaufkontamination	32
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	39
4131 Messung der Tritiumkontamination der Umwelt	39
4134 Untersuchungen der langfristigen radiologischen Umgebungsbelastung durch eine Anhäufung von nuklearen Anlagen	66
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen	73
4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen	78
4151 Untersuchungen zur thermischen Belastung des Rheins	78
4160 Sicherheitsprobleme bei der Endlagerung	85
4161 Beseitigung tritiumhaltiger Abwässer durch Einpressen in poröse Schichten des tiefen Untergrundes	85

	<u>Seite</u>
4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	86
4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen	86
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbau-systemen	86
4230 Notkühlung von LWR	100
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall	100
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall	106
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllmaterial beim Kühlmittelverlustunfall	106
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall	111
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverlustunfalles Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben	115
4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalles. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2	121
4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung in der Niederdruckphase eines Kühlmittelverlustunfalls	123
4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von definierten Kühlkanalblockagen auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung	127
4240 Coreschmelzen von LWR	129
4241 Experimentelle Untersuchungen zur Abschmelzphase von UO ₂ -Zircaloy-Brennstäben bei versagender Notkühlung	129

4242	Untersuchungen zur Wasserstoff-Bildung und - Rekombination beim LWR-Coreschmelzen	138
4243	Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Frei- setzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	141
4244	Coreschmelzen von LWR (Materialverhalten) Versuche zum Verhalten der Coreschmelzen unter verschiedenen oxidativen Atmosphären	148
4300	AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	153
4310	Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen	153
4311	Nukleare Schadstoffe in der Nachunfall-Atmosphäre eines Leichtwasser-Reaktor (LWR)-Containments	153
4312	Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase	164
4312	FA Statistische Analyse des Ausbreitungsverhaltens von Abluftfahnen nach Störfällen in Norddeutschland	180
4312	FB Analyse der Berechnungen und Messungen zur Aus- breitung radioaktiver Stoffe beim amerikanischen Plowshare-Programms zwecks Prüfung der Übertragbar- keit auf Reaktorschadensfälle	196
4400	EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG VON KONTAMINATIONEN	220
4410	Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	220
4411	Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	220
4420	Technik der Räum- und Demontagearbeiten	235
4422	Ferngesteuerte Arbeitsgeräte	235
4423	Ferngesteuerte mobile Systeme zur Schadenserfassung	236
4430	Vorsorgliche bauliche und verfahrenstechnische Maßnahmen zur Erleichterung der Schadensbeseitigung	237

4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG NUKLEARER ANLAGEN	239
4510 Informationssystem zur Reaktorsicherheit (RESI)	239
4530 Risiko- und Zuverlässigkeitsanalysen nuklearer Anlagen - State of the art-Studie über Methoden und Verfahren der quantitativen Risikobetrachtung -	245
Veröffentlichungen und Berichte im 2. Halbjahr 1973	248

Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht beschreibt die Tätigkeiten des Projekts Nukleare Sicherheit im 2. Halbjahr 1973. Daraus sind besonders hervorzuheben:

Umweltbelastung durch Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungsanlagen

Der Versuchsbetrieb mit dem großen Filterprüfstand kann jetzt aufgenommen werden, so daß nunmehr die Entwicklung und Erprobung von Störfall-Umluftfiltern für Leichtwasserreaktoren aber auch für Hochtemperaturreaktoren verstärkt fortgesetzt wird. Störfall-Umluft- und Abluftfilter für einen HTR-Reaktor wurden spezifiziert.

Um den Einfluß der Thermohydraulik auf das Ablagerungsverhalten von aktivierten Korrosionsprodukten in Primärsystemen von Leichtwasserreaktoren beurteilen zu können, wurden während des letzten Brennelementwechsels im Kernkraftwerk Obrigheim nuklidspezifische Messungen und Dosisleistungsmessungen am dortigen Primärsystem durchgeführt und ausgewertet. Aufgrund der gemessenen nuklidspezifischen Aktivitätsverteilung und der vorliegenden Thermohydraulik im dortigen Primärsystem scheint ein starker Einfluß von hydrodynamischen Parametern zu herrschen.

Das Meßprogramm zur langfristigen Beobachtung des Tritiumgehaltes in der Umwelt wurde auf die Umgebung von Kernkraftwerken ausgedehnt.

Zum Schutz der Umgebung zukünftiger großer Wiederaufarbeitungsanlagen ist die Abtrennung der radioaktiven Spaltedelgase erforderlich. Auch für große Kernkraftwerke ist eine Abtrennungsanlage für Spaltedelgase als Alternative zu den immer größer werdenden Aktivkohle-Verzögerungsstrecken von Interesse. Daher wurde gemeinsam mit Industriefirmen eine Versuchsanlage zur Abscheidung radioaktiver Edelgase projektiert.

Im Rahmen der Untersuchung der langfristigen radiologischen Umgebungsbelastung durch eine Anhäufung von nuklearen Anlagen wurde das mathematische Modell erstellt. Ergebnisse für die wichtigsten Nuklide konnten bereits in der im Auftrag des Baden-Württembergischen Ministeriums für Wirtschaft, Mittelstand und Verkehr erstellten Studie "Energie und Umwelt in Baden-Württemberg" berücksichtigt werden.

Systemverhalten nuklearer Anlagen bei Störfällen

Der Schwerpunkt der Auswertungsarbeiten der Marviken-Experimente lag im Berichtszeitraum bei der Bestimmung der lokalen Massenströme, die für die Interpretation der Ergebnisse von fundamentaler Bedeutung sind. Die weiteren Arbeiten konzentrierten sich auf neue Meßverfahren zur Bestimmung instationärer Zweiphasenmassendurchsätze. Ein solches Meßverfahren wird sowohl für eventuell nachfolgende Marviken-Experimente, ebenso aber auch für die HDR-Blowdown-Experimente, die Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverlustunfällen sowie für die Blowdown-Versuche mit Einfluß der Umwälzschleifen benötigt.

Die Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall wurden verstärkt weitergeführt. Die theoretischen Arbeiten konzentrierten sich auf die Modul-Entwicklung für das Code-System zur quantitativen Beschreibung des Verhaltens eines Einzelstabes beim Kühlmittelverlustunfall. Bei den experimentellen Vorhaben standen die Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren sowie Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall im Vordergrund.

Die Vorversuche zur dynamischen Innendruckmessung der Brennstäbe bei den In-pile-Experimenten im Dampf-Kontaminations-Loop des FR2 sind abgeschlossen. Es zeigte sich, daß die Verzögerung des Meßsignals bei schneller Entspannung (Hüllrohrbersten) bei 5 m Kapillarlänge < 10 ms, also durchaus tolerabel ist.

Die verschiedenen Versuchsaufbauten für die Untersuchungen zum Brennstabhalten und -versagen bei GaU-Bedingungen sind im Aufbau.

Zur Beurteilung der Reaktionen zwischen Brennstoff, Zircaloy und Stahl bei höheren Temperaturen wurden erste Versuchsreihen im Bereich von 1000 bis 2700 °C unter Luft- und Wasserdampf-Atmosphäre bzw. Argon-Atmosphäre durchgeführt. Aufgrund dieser Ergebnisse kann angenommen werden, daß bei versagender Notkühlung eine vollständige Oxidation des Zircaloy aufgrund der noch vorhandenen Wasserdampf-Atmosphäre schon nach sehr kurzer Zeit stattfindet. Jedenfalls kann eine teilweise Oxidation des Stahls nach relativ kurzer Zeit angenommen werden.

Zur experimentellen Untersuchung der Spaltproduktfreisetzung aus einer Coreschmelze und deren Beeinflussung im Sinne einer Reduktion wurde gemeinsam mit der Industrie eine Schmelzanlage für größere Coreschmelzen im kg-Bereich und unter oxidierender Atmosphäre entwickelt. Die Schmelzanlage befindet sich im Bau.

Ausbreitungs- und Reaktionsvorgänge von nuklearen Schadstoffen bei schweren Störfällen, deren Zeitabhängigkeit und meßtechnische Erfassung

Die möglichen Konsequenzen eines hypothetischen Coreschmelzenunfalles wurden, unter Variation der Freisetzungs- und Transportbedingungen im Innern des Sicherheitsbehälters, die in der Umgebung zu erwartenden Strahlendosen abgeschätzt. Danach bedingen Plutonium, Jod, Cer und Strontium den Hauptbeitrag. Die 15 wichtigsten Radionuklide (ausgenommen Jod) liegen in Aerosolform vor.

Die theoretischen und experimentellen Untersuchungen zur Ausbreitung von Gasen zeigen, daß die beobachteten Konzentrationsmaxima höher sind als erwartet und näher am Emissionsort liegen als vorausberechnet. Bei diesen Untersuchungen werden die statistischen Schwankungen der meteorologischen Bedingungen berücksichtigt und die Wahrscheinlichkeit, mit der an einem bestimmten Ort in der Umgebung einer nuklearen Anlage im Störfall eine grenzwertüberschreitende Dosis auftritt, vorausberechnet.

Eindämmung und Beseitigung der Folgen von Störfällen

Im Mittelpunkt der Arbeiten stand die Weiterentwicklung und Anpassung vorhandener Dekontaminationsverfahren an spezielle Aufgaben, wie z.B. nach Störfällen oder für die Stilllegung eines Reaktors. Mit dem Bau eines ferngesteuerten, prototypischen Arbeitsgerätes für den Einsatz innerhalb eines gestörten Kernkraftwerkes wurde begonnen.

Ein besonderes Problem bei der Beseitigung von Kontaminationen stellt das Verhalten von Plutonium im Boden dar. Da zu erwarten ist, daß demnächst in Sicherheitsberichten Aussagen über die damit verbundenen Probleme verlangt werden, wurde ein entsprechendes Untersuchungsprogramm begonnen.

Sicherheitstechnische Beurteilung nuklearer Anlagen

Nach 3 1/2-jähriger Arbeit wurde das Informationssystem zur Reaktorsicherheit (RESI) soweit fertiggestellt, daß eine Erprobungsphase begonnen werden kann. Mit der Bereitstellung des Informationssystems zur Reaktorsicherheit ist eine Möglichkeit gegeben, eine entscheidende Verringerung des erforderlichen Arbeitsaufwandes auf seiten der Genehmigungsbehörden, Gutachter, Hersteller und Betreiber bei der atomrechtlichen Genehmigung nuklearer Anlagen zu erreichen. Dabei werden alle in den einzelnen atomrechtlichen Genehmigungsverfahren anfallenden Informationen erfaßt, geordnet und jederzeit verfügbar gehalten.

Am 11. Dezember 1973 fand im Kernforschungszentrum Karlsruhe das 1. Jahreskolloquium des Projekts Nukleare Sicherheit statt. An der Veranstaltung nahmen zahlreiche Fachleute anderer Forschungsinstitutionen, der Hersteller und Betreiber kerntechnischer Anlagen, der Genehmigungsbehörden sowie Gutachter teil.

Summary

This report outlines the activities of the Nuclear Safety Project in the 2nd half of 1973. The following items should be mentioned especially:

Environmental Impact of Nuclear Power Stations and Reprocessing Plants

Tests on the large filter test bed can now be started. As a consequence, the development and testing of incident and accident recycle air filters for light water reactors and also for high temperature reactors will be continued on an increased scale. Incident recycle and off gas air filters for an HTR reactor were specified.

In order to be able to assess the influence of thermohydraulics on the plate-out behaviour of activated corrosion products in the primary systems of light water reactors, measurements for specific nuclides and dose rate measurements were performed and evaluated on the primary system of the Obrigheim Nuclear Power Station during the latest refueling period. In the light of the activity distribution caused by specific nuclides as measured in this instance and in view of the thermohydraulic conditions existing in that plant there seems to be a strong influence of hydrodynamics factors.

The program of measurements on the long term observation of the tritium content of the environment was extended to include also the environment of further nuclear power stations.

For the protection of the environment of future large reprocessing plants the inert radioactive fission gases must be separated. Also for large nuclear power stations a separation system for inert fission gases is of the interest as an alternative to the increasingly larger active charcoal retention devices. For this purpose, a test system for the separation of radioactive inert gases was designed in cooperation with industry.

Within the study concerning the long term radiological environmental impact due to an agglomeration of nuclear plants the mathematical model was set up. Results for the most important nuclides have already been incorporated in the study entitled "Energie und Umwelt in Baden-Württemberg" (Energy and the Environment in Baden-Württemberg) commissioned by the Baden-Württemberg Government.

Systems Behaviour of Nuclear Facilities under Accident Conditions

In the period under review work on the evaluation of the Marviken experiments was focused chiefly on determining the local mass flow rates which are of basic importance for the interpretation of the results. Additional work was concerned with new methods of measurement for the determination of non-steady state two phase mass flows. Such a method of measurement will be required for further Marviken experiments, for the HDR blowdown-experiments, investigations on the fuel rod failure mechanisms during loss-of-coolant-accidents, and for blow-down experiments studying the influence of the primary cycles.

The investigations of the fuel rod failure mechanisms in the course of loss-of-coolant accidents were continued on a larger scale. Theoretical work was concentrated upon the development of modules for the code system quantitatively describing the behaviour of a single pin during a loss-of-coolant accident. The most important experimental studies were connected with the high temperature oxidation in steam of zircaloy cladding tubes and with the mechanical behaviour of zircaloy cladding tubes during a loss-of-coolant accident.

Preliminary experiments on dynamic measurements of the internal pressure of the fuel pins during the in-pile experiments in the steam-contamination loop in the FR2 have been concluded. It turned out that the delay of the measured signal occurring in a fast relaxation (bursting of a cladding tube) is < 10 msec at 5 m length of the capillary, that is, quite tolerable.

The test rigs to be used for studies of the fuel pin behaviour and failure under MCA conditions are under construction.

Concerning core melting problems an assessment of the reactions occurring between fuel, zircaloy and steel at elevated temperatures preliminary series of tests have been conducted in the range between 1000 and 2700°C in air and water vapor atmospheres and in an argon atmosphere, respectively. From these results it can be assumed that if hypothetically the emergency cooling system fails there will be complete oxidation of the zircaloy within a very short time, provided that steam atmosphere is still existing. In any case, partial oxidation of the steel must be assumed to occur after a relatively short time.

A meltdown facility for larger masses of molten fuel in the kg range and in an oxidizing atmosphere was developed together with industry for experimental studies of the fission products release from a molten core and ways of influencing it by a reduction process. The meltdown unit is under construction.

Distribution and Reaction of Fission Products in Connection with Major Accidents

The possible consequences of a hypothetical core meltdown accident were estimated with respect to the radiation doses to be expected to occur in the environment, the conditions of transport and release in the interior of the safety containment being varied. Accordingly, plutonium, iodine, cerium and strontium give rise to the largest contributions. The fifteen most important nuclides (except for iodine) are present as aerosols.

The theoretical and experimental studies on the propagation of gases show that the maximum concentrations observed are higher than anticipated and are closer to the point of discharge than calculated. In these studies the statistical variations of the meteorological conditions are taken into account and the account and the probability is calculated in advance of a dose occurring at a specific location in the environment of a nuclear facility as a result of an accident which would exceed the maximum permissible limit.

Mitigation and Removing the Consequences of Incidents

This work was concentrated upon the further development and adaptation of existing methods of decontamination to specific tasks occurring, for instance, after incidents or in decommissioning a reactor. The construction of a remotely controlled prototype working unit to be employed within a nuclear power station during incidents has been started.

A major problem encountered in removing contamination is the behaviour of plutonium in the ground. Since it must be anticipated that safety reports in the near future are going to request information about the problems associated with this aspect, a study program to this effect has been launched.

Safety Assessment of Nuclear Facilities

After 3 1/2 years of work the Information System on Reactor Safety (RESI) has been finished so as to allow a trial phase to be initiated. The availability of this information system for reactor safety purposes will greatly help to reduce the expense involved in the licensing procedure under atomic energy legislation of nuclear facilities on the part of the licensing authorities, experts, manufacturers and operators. In this system all the information produced in the various licensing procedures under atomic energy law is collected, classified and kept ready for use.

On December 11, 1973 the 1st Annual Colloquy of the Nuclear Safety Project was organized at the Karlsruhe Nuclear Research Center. The meeting was attended by numerous experts from other research institutes, manufacturers and operators of nuclear facilities, the licensing authorities and experts.

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

4110 Entwicklung von Filtern und Abgassystemen

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

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

Zur schnellen Abscheidung von Spaltjod und radioaktiven Schwebstoffen aus der Atmosphäre von Reaktorsicherheitsbehältern können Störfall-Umluftfilter eingesetzt werden. Diese Filter sollten sowohl nach kleinen Betriebszwischenfällen mit relativ geringer Abktivitätsfreisetzung als auch nach großen Störfällen betrieben werden können. Im letzteren Fall werden an die Filter ungewöhnlich hohe Anforderungen in bezug auf die mechanische und thermische Belastbarkeit gestellt. Außerdem können die Komponenten einer Umluft-Filteranlage nach Störfällen einer hohen Strahlenbelastung ausgesetzt sein.

Filteranlage für gasgekühlte Reaktoren

Die Temperatur in der Atmosphäre des Reaktorschutzgebäudes eines HTR kann unmittelbar nach einem GaU unter konservativen Annahmen 300 - 350 °C erreichen. Infolge des Wärmeüberganges zum Schutzgebäude und seinen Einbauten steht eine derartig hohe Temperatur nur für eine kurze Zeitspanne an; nach 10 - 20 min. werden bereits Temperaturen < 100 °C erreicht. In Hinsicht auf die zu Beginn des Störfalles auftretenden hohen Temperaturen sollte in Störfall-Umluftfiltern Aktivkohle als Jod-Sorptionsmaterial möglichst nicht eingesetzt werden, da eine Entzündung befürchtet werden muß.

Geeigneter erscheinen nicht brennbare anorganische Jod-Sorptionsmaterialien wie die Silberform von Molekularsieben oder silbersalz-imprägnierte Produkte auf der Basis von amorpher Kieselsäure (z. B. das Jod-Sorptionsmaterial VP AC 6120 der Fa. Bayer, Leverkusen).

Wegen des hohen Gewichtsanteiles des Silbers im Molekularsieb (ca. 1/3 des Gesamtgewichtes), der für die Erreichung ausreichender Abscheidegrade Voraussetzung ist (WILHELM, J.G. "Trapping of Fission Product Iodine with Silver Impregnated Molecular Sieves, Actes du Congres Saclay: Diffusion des Produits de Fission, 4. - 6. Nov. 1969, S. 265), dürfte eine Anwendung dieses Materials in Störfall-Umluftfiltern nicht in Frage kommen. Die benötigte Menge an Jod-Sorptionsmaterial liegt je nach Auslegung zwischen ca. 0,4 und 1 t,

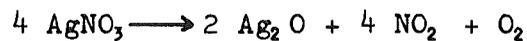
wenn ein Volumenstrom von 10.000 m³/h durch das

Störfall-Umluftfilter vorgesehen ist. Bei Einsatz des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 wird unter Berücksichtigung der angegebenen Grenzen für die Imprägnierung eine Silbermenge zwischen ca. 30 und 70 kg benötigt, ein Wert, der noch tragbar erscheint.

Früher durchgeführte Versuche ließen erwarten, daß AC 6120 für den Einsatz in Störfall-Umluftfiltern geeignet ist (s. KFK 1818, S. 106 und KFK 1365, S. 110 - 115 sowie S. 123 - 125).

Untersuchungen zum Einfluß wechselnder Betriebstemperaturen auf die Abscheideleistung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120

AC 6120 ist mit AgNO_3 imprägniert. Bei hoher Temperatur tritt eine Zersetzung des AgNO_3 nach:



ein, durch die die Abscheideleistung des Materials gegenüber Jod und Jodverbindungen beeinträchtigt werden kann. Die in KFK 1818, S. 106, angeführten Versuche zeigen, daß auch nach längerer Einwirkungszeit bei hoher Temperatur ein hoher Abscheidegrad gegenüber $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ als Prüfmedium erreicht wird.

Untersucht man den im Störfall-Umluftfilter eines HTR nach einem GaU zu erwartenden Temperaturverlauf, so zeigt sich, daß das Jod-Sorptionsmaterial einer relativ kurz anstehenden hohen Temperaturbelastung ausgesetzt sein wird und während der anschließenden Betriebsperiode wesentlich niedrigere Temperaturen vorherrschen. Es wurden daher Abscheidungsversuche durchgeführt, die einen Temperaturabfall während des Betriebes berücksichtigen. Der Abscheidegrad, der mit AC 6120 nach einer Einsatzzeit von 24 h bei hohen Temperaturen gegenüber $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ als Prüfmittel erreicht werden kann, wurde unter folgenden Bedingungen gemessen:

1. Unverändert hohe Temperatur des Luftstromes und der AC 6120-Testbetten, auch während der Beaufschlagung mit Prüfmittel,
2. Abkühlung der Testbetten und des Luftstromes auf Raumtemperatur und anschließende Beaufschlagung mit Prüfmittel.

Die bei diesen Versuchen gemessenen Abscheidegrade sind in Tab.4111/1 wiedergegeben. Vergleichsversuche mit Aktivkohle wurden nicht durchgeführt, da bei $T > 250^{\circ}\text{C}$ heftige Verbrennung einsetzte.

Tab.4111/1: Einfluß verschiedener Vorbehandlungs-Temperaturen auf die Abscheideleistung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120

Sorptionsmaterial: AC 6120, Korngrößenfraktion: 1 - 2 mm, 2 aufeinanderfolgende Testbetten von je 5,0 cm Tiefe.

Vorbehandlung: Durchspülen der Testbetten bei hoher Temperatur mit Laborluft unter Atmosphärendruck, Taupunkt der Laborluft: $< 20^{\circ}\text{C}$, lineare Luftgeschwindigkeit: 25 cm/s, Vorbehandlungsdauer: 24 h zuzüglich ca. 30 Minuten Aufheizzeit.

Beaufschlagung mit Prüfmittel: Zugabe von $\text{CH}_3^{127}\text{J} + \text{CH}_3^{131}\text{J}$ zur als Trägergas benutzten Laborluft unter vorstehend angegebenen Bedingungen, Temperatur siehe Einzelversuche.

Prüfmittel-Beladung des AC 6120: ca. 1,5 mg Methyljodid pro g AC 6120 (berechnet auf 10 cm Bett-Tiefe).

Nachspülzeit (nur Laborluft): ≥ 2 h nach Beladung bei 27°C , ≥ 20 h nach Beladung bei hoher Temperatur.

Vorbehandlungstemperatur ($^{\circ}\text{C}$)	Temperatur während Beaufschlagung und Nachspülzeit ($^{\circ}\text{C}$)	Integrale Abscheidegrade in %	
		Bett-Tiefe in cm	
		5,0	10,0
200	27	97,9	99,999
250	27	97,3	99,998
250	250	98,2	99,997
300	27	81,2	98,7
300	300	-	99,9996
350	27	66,0	84,7
350	350	99,993	99,9998

Die unter 1. angegebenen Bedingungen führten im gesamten Temperaturbereich zu sehr hohen Abscheidegraden. Die trotz der Vorbehandlung hohen Abscheidegrade bei hohen Abscheidungstemperaturen erklären sich durch die bereits im Trägergasstrom und im Kontakt mit dem Jod-Sorptionsmaterial erfolgende Oxidation des Methyljodids, bei der leicht abscheidbares J_2 als Reaktionsprodukt auftritt. Außerdem wird die Geschwindigkeit der Umsetzung des Methyljodids bzw. des elementaren Jodes mit der Imprägnierung des AC 6120 stark erhöht.

Bei den unter 2. angegebenen Versuchen ist ein Absinken der Abscheidegrade infolge der Vorbehandlung festzustellen; der niedrigste Wert betrug 84,7 %. Die Versuche wurden im Vergleich zum Filterbetrieb im Reaktorschutzbehälter eines HTR unter extrem ungünstigen Bedingungen durchgeführt. Dies gilt insbesondere für die Dauer der Einwirkung hoher Temperaturen, die im Versuch jeweils 24 h betrug, während im Reaktorschutzbehälter Temperaturen $> 100^\circ C$ nur für eine Zeitspanne < 20 min anstehen. Um realistische Aussagen machen zu können, wird in z. Z. laufenden Untersuchungen die Abscheideleistung von AC 6120 bei den unter 2. genannten Bedingungen in Abhängigkeit von der Dauer der Vorbehandlung bei hohen Temperaturen untersucht.

PNS 4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Es ist beabsichtigt, die im Auflöser- und Behälterabgas einer großen Wiederaufarbeitungsanlage anfallende Jodmenge, die vorwiegend aus ^{129}J und ^{127}J besteht, unter Einsatz des anorganischen Jod-Sorptionsmaterials Bayer VP AC 6120 (im folgenden abgekürzt als AC 6120 bezeichnet) abzuscheiden. Die Hauptmenge des gasförmigen Jodes im Auflöserabgas besteht aus elementarem Jod. Alkyljodide und andere Jodverbindungen sind in geringeren Mengen, vor allem abhängig von den Verunreinigungen der rückgeführten Säure, zu erwarten. Im Behälterabgas treten höhere Anteile an organischen Jodverbindungen auf, außerdem wurden Tri-n-butylphosphat, seine Zerfallsprodukte und Lösungsmitteldämpfe nachgewiesen. Die nachfolgend aufgeführten Arbeiten wurden zur Aufklärung des Reaktionsverhaltens dieser Stoffe an AC 6120 durchgeführt.

Umsetzung von Alkyljodiden mit dem anorg. Jod-Sorptionsmaterial
AC 6120

Statische Versuche zur Umsetzung von Alkyljodiden mit AC 6120 wurden bereits im 1. Halbjahresbericht 1973 des Projektes Nukleare Sicherheit (KFK 1859) von uns beschrieben.

Um das Verhalten der geradkettigen Alkyljodide am Silbernitrat-impregnierten anorganischem Sorptionsmaterial AC 6120 in dynamischen Versuchen festzustellen, wurden Umsetzungen von geradkettigen Alkyljodiden $C_n H_{2n+1} J$ ($n = 1 - 6$) unter Schutzgasatmosphäre (Argon) in der in Abb. 4112/1 aufgezeigten Testapparatur durchgeführt. Die Umsetzungsprodukte wurden in Kühlfallen aufgefangen und gaschromatographisch untersucht.

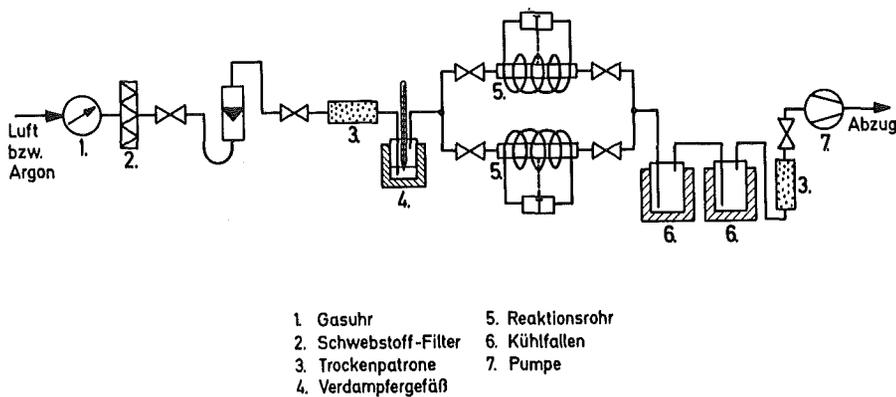
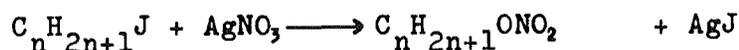


Abb. 4112/1 Testapparatur zur Untersuchung des Verhaltens von AC-6120 gegenüber organischen Substanzen

Als Ergebnis der gaschromatographischen Analyse wurde folgende Hauptreaktion festgestellt:



Als Nebenprodukte dieser Reaktion konnten Alkane nachgewiesen werden, die durch Zersetzung der Alkyljodide an der frisch gebildeten AgJ-Oberfläche durch Radikalreaktion entstanden.

Bei der Reaktion von AC 6120 mit einem Ueberschuß an Alkyljodiden wurden Dämpfe von elementarem Jod im Bereich des Jod-Sorptionsmaterials und abluftseitig davon beobachtet. Folgender Reaktionsmechanismus kann angenommen werden:



Abb. 4112/2 zeigt die Alkyljodide vor der Umsetzung und Abb. 4112/3 die Reaktionsprodukte von Alkyljodiden mit AC 6120. Beide Chromatogramme wurden unter gleichen Betriebsbedingungen aufgenommen. Die geradkettigen Alkyljodide wurden als gaschromatographisch reine Produkte eingesetzt. Die Filterbett-Tiefe betrug 2,5 cm, die Verweilzeit der Alkyljodide wurde auf 0,1 s eingestellt. Die Konzentration der Alkyljodide in der Filterbett-Zuluft betrug $1,6 \times 10^{-5}$ Mol/l.

Ermittlung der Retentionszeiten von WAK-spezifischen organischen Stoffen

Dodecan $\text{[CH}_2\text{]}_{10}\text{CH}_3$ als Lösungsmittel und Tri-n-butylphosphat $\text{[(C}_4\text{H}_9\text{O)}_3\text{PO]}$ als Komplexbildner werden in der WAK als organische Hauptprodukte eingesetzt. Zur Bestimmung ihrer Retentionszeiten in der gaschromatographischen Analyse wurde als Trennsäule Chromosorb G AW-DMCS (80 - 100 mesh) mit einer Beladung von 2,5 Gew.% Apiezon M als stationäre Phase eingesetzt. Außerdem bedingen ihre hohen Siedepunkte die Benutzung eines Temperaturprogrammes von 100 - 160°C.

Verhalten von Tributylphosphat und Dodecan gegenüber AC 6120

Bei längerer Betriebszeit des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 in den Behälterabgasen der WAK (~ 10 d) verfärbt sich das Sorptionsmaterial durch die in den Abgasen vorhandenen organischen Bestandteile grün-grau bis schwarz. Die Verfärbung ist auf eine Reaktion eines Teiles der Imprägnierung des Sorptionsmaterials mit organischen Bestandteilen der Behälterabgase zurückzuführen. Zur Aufklärung dieses Sachverhaltes wurden die Reaktionen zwischen AC 6120 und Dodecan bzw. Tributylphosphat in Luft als Trägergas untersucht. Es wurde die in Abb. 4112/1 wiedergegebene Apparatur benutzt und die Betriebsbedingungen eingestellt, unter denen das Sorptionsmaterial in den Abgasen der WAK erprobt wird.

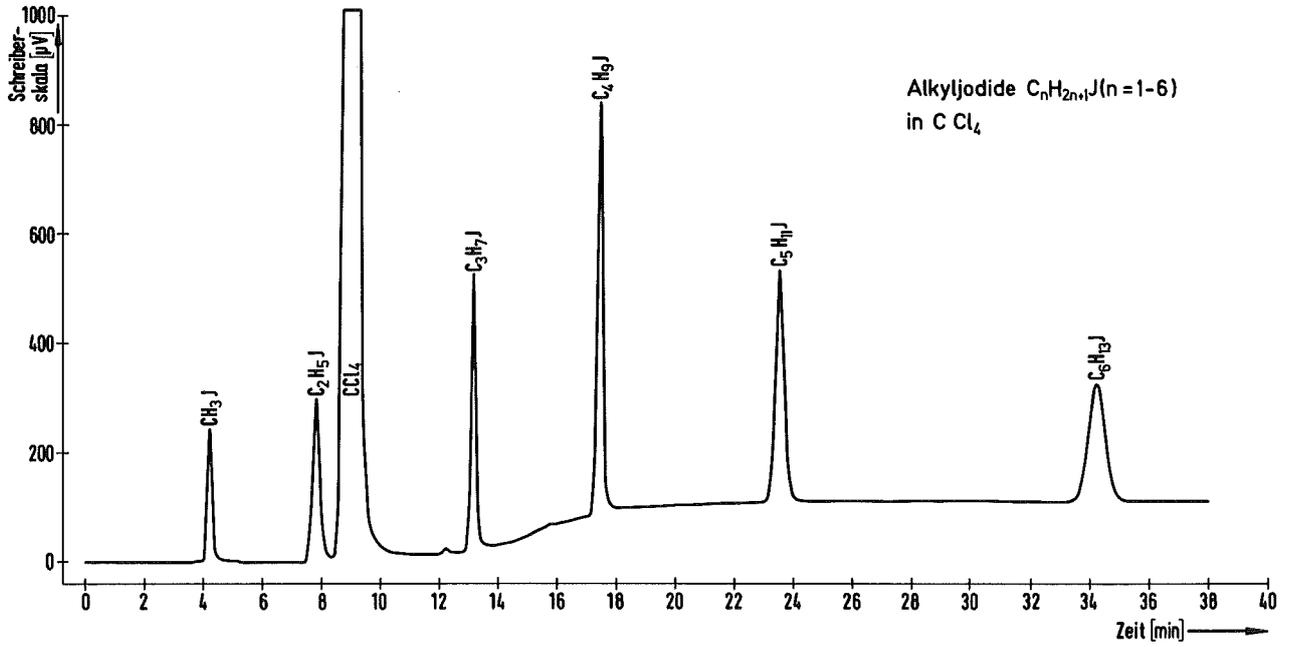


Abb. 4112/2

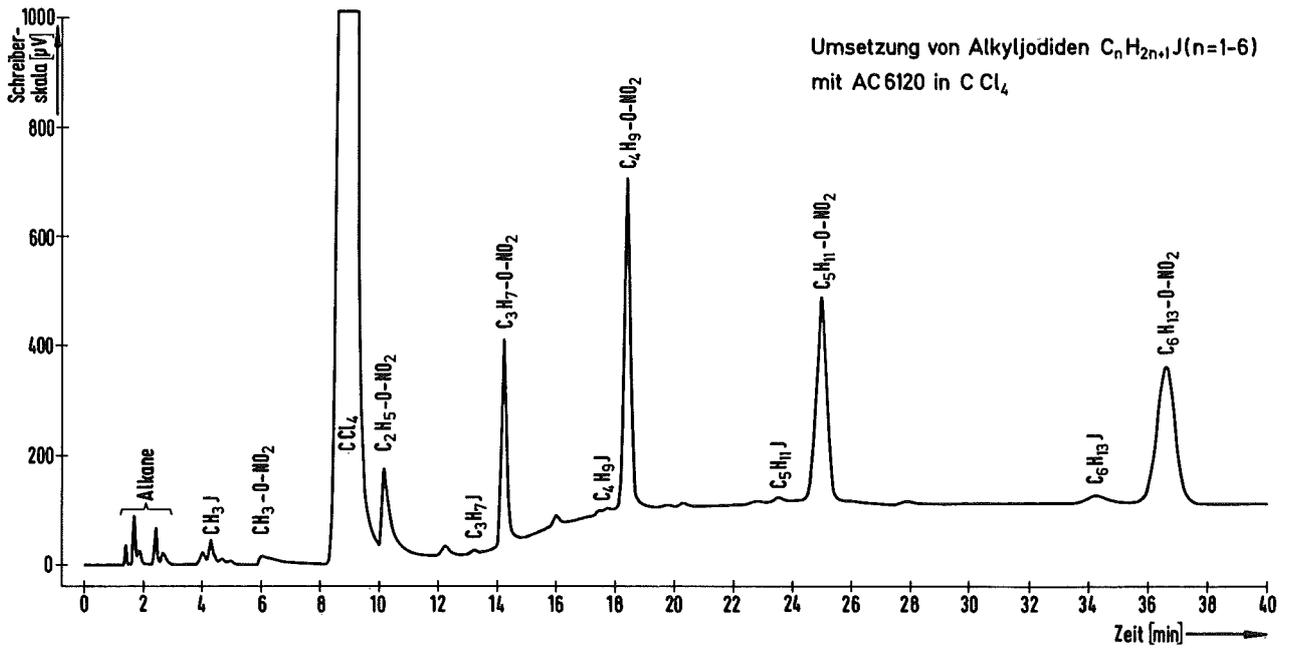


Abb. 4112/3

Versuchsbedingungen:

Reaktionsrohr mit AC 6120: 4 x 2,5 cm Bett-Tiefe

~80 mg Ag/g AC 6120

Reaktionstemperatur : 150°C

Verweilzeit/Bett : 0,1 s

Konzentration : $1,9 \times 10^{-2}$ g Dodecan/l Luft bzw.
 $6,1 \times 10^{-3}$ g Tri-n-Butylphosphat/l Luft

Durchfluß : 441 l/h

Nachströmzeit : 2 h

Zur Identifikation der Reaktionsprodukte wurde die gaschromatographische Analyse durch Vergleich der Retentionszeiten der organischen Reaktionsprodukte herangezogen. Als Trennsäule wurde ebenfalls Apiezon M auf Chromosorb G eingesetzt (Temperaturprogramm: 100 - 160°C).

Während Dodecan sich am Sorptionsmaterial bis 150°C völlig inert verhielt, konnte beim Anströmen mit Tri-n-Butylphosphat eine chemische Reaktion nachgewiesen werden. Es entstand ein Silberphosphat von nicht geklärter Struktur. Als flüchtige Komponente wurde eindeutig Butylnitrat in Konzentration $< 5 \%$ bezogen auf das eingesetzte Tri-n-Butylphosphat gaschromatographisch ermittelt.

Extraktion von Jod-Sorptionsmaterial aus Behälter-Abgasfiltern

Die Extraktion der in den Behälterabgasen der WAK eingesetzten Sorptionsmaterialien führte zu einer Lösung, in der mittels gaschromatographischer Analyse eine Vielzahl an Substanzen nachgewiesen werden konnte. Die Nachweisgrenze der meisten Substanzen lag knapp über der Anzeige-Schwelle des FID von 5×10^{-12} g C/s. Eine Identifikation der Substanzen konnte bisher, mit Ausnahme der Hauptkomponente Dodecan, nicht vorgenommen werden. Es dürfte sich hier um organische Radiolyseprodukte handeln, die später bei erneuter Betriebsaufnahme der WAK angereichert und analysiert werden sollen.

Jodabscheidung aus den Abgasen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK)

Es wurden jeweils zwei Filterbetten, die aus dem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120 bestanden, in den Auflöser- und Behälterabgasen der WAK eingesetzt. Die Betriebsbedingungen an den Jod-Sorptionsbetten und die Zusammensetzung der Abgase schwankten im Verlaufe der Betriebsaufschlagungsdauer infolge unkontrollierter Eingriffe stark.

Ueber einen längeren Zeitraum wurde keine Auflösung durchgeführt. Das Sorptionsmaterial AC 6120 im Auflöserabgas zeigte zum Ende der Einsatzzeit eine dunkelgraue Färbung, die vermutlich durch Zersetzung von AgNO_3 zu Ag_2O und Einwirkung organischer Verunreinigungen des Abgases hervorgerufen wurde. Da das Sorptionsmaterial durch den Beginn der Abschaltphase der WAK längere Zeit einem Abgasstrom ausgesetzt war der kein NO_2 enthielt, wurde die Imprägnierung des Jod-Sorptionsmaterials nicht mehr regeneriert (WILHELM, J.G., DILLMANN, H.G., FURRER, J., GERLACH, K. Filterprogramm, Auszug aus: Jahresbericht der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit 1972, KFK 1818, S. 93 - 120). Nach dem Ausbau der Filterbetten wurde eines von jeweils zwei parallel im Abgasstrom beaufschlagten Filterbetten durch Aktivierungsanalyse auf abgeschiedenes ^{129}J untersucht, während der nach der Einsatzzeit noch erreichbare Abscheidegrad durch Beaufschlagung des zweiten Filterbettes mit einem Gemisch von $\text{CH}_3^{127}\text{J} + \text{CH}_3^{131}\text{J}$ im Laborversuch ermittelt wurde. Die Versuchsbedingungen des Laborversuches (150°C , 0,8 s Verweilzeit bei 20 cm Bett-Tiefe) entsprachen den Sollwerten für den Filterbetrieb in der WAK; das Trägergas für das Methyljodid bestand aus einem Gemisch von Feuchtluft (Taupunkt 30°C) und 2,5 % NO_2 .

In Tab. 4112/1 sind die Ergebnisse der angeführten Untersuchungen wiedergegeben. Für das Filterbett aus dem Auflöserabgas wird zusätzlich der Anteil des Silbers der Imprägnierung angegeben, der den abgeschiedenen $^{129}\text{J} + ^{127}\text{J}$ -Mengen entspricht. Die Abscheidegrade, die während des Einsatzes im Auflöserabgas erreicht wurden, sind, verglichen mit früher durchgeführten Untersuchungen, etwas niedriger. Die Ursache dürfte in den Abweichungen der Betriebsbedingungen von den Sollwerten während der Einsatzzeit zu suchen sein. Bei dem Laborversuch zur Abscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ wurde das Jod-Sorptionsmaterial aus dem Auflöserabgas durch die Beaufschlagung mit NO_2 regeneriert. Die Abscheidegrade liegen daher deutlich über denen, die integral über die Einsatzzeit im WAK-Abgas erreicht wurden.

Ein Vergleich der ^{129}J -Mengen in den Filterbetten aus den Auflöser- und Behälterabgasen ergibt für die untersuchte Betriebszeit ein Verhältnis von ca. 100 : 1. Die Hauptmenge des ^{129}J wurde bereits durch ein Teilbett von 7,5 cm Tiefe abgeschieden. Die anfänglich mit der Bett-Tiefe noch ansteigende Jodbelastung (siehe Teilbetten von 0 - 2,5 und 2,5 - 5,0 cm) erklärt sich durch die Abscheidung von Brom im ersten Teilbett (Verbrauch von Ag^+ durch Umsetzung zu AgBr) und ein häufig beachtetes Absinken des Abscheidegrades des in Anströmrichtung ersten Teilbettes durch erhöhte Schadstoffbelastung.

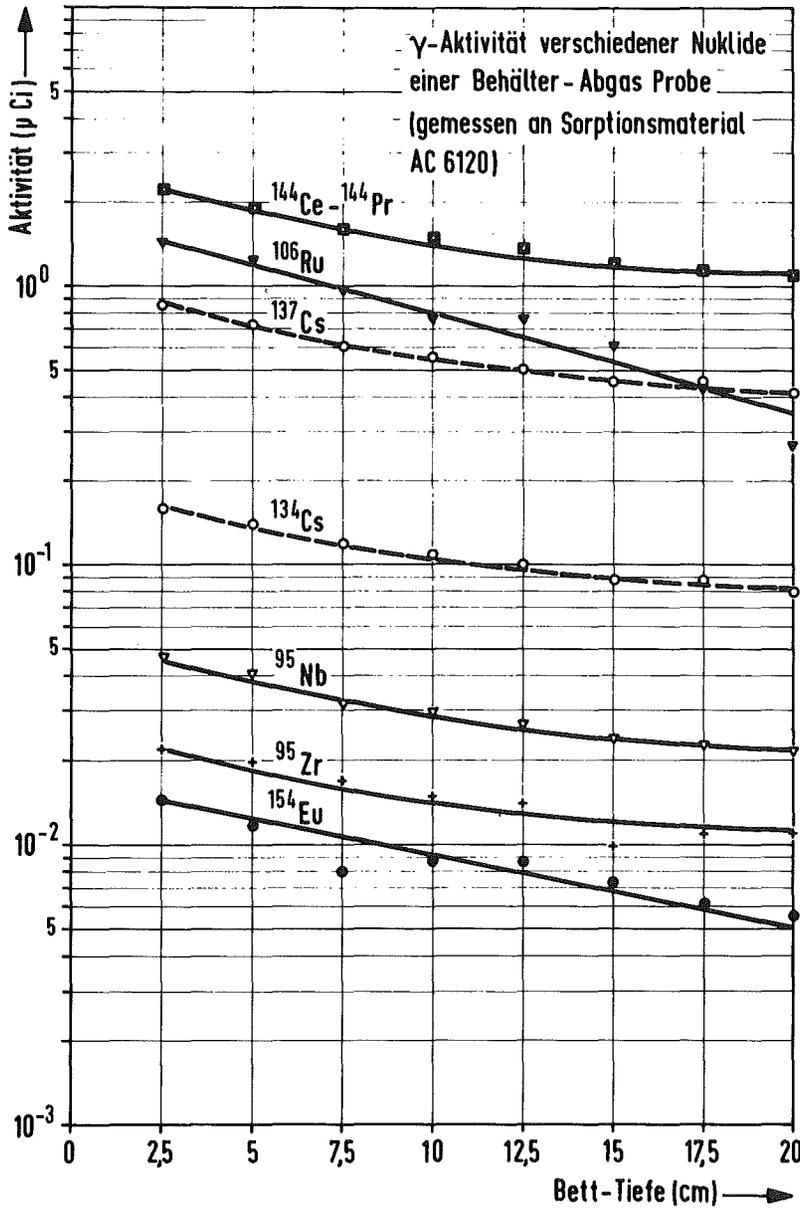


Abb. 4112/4

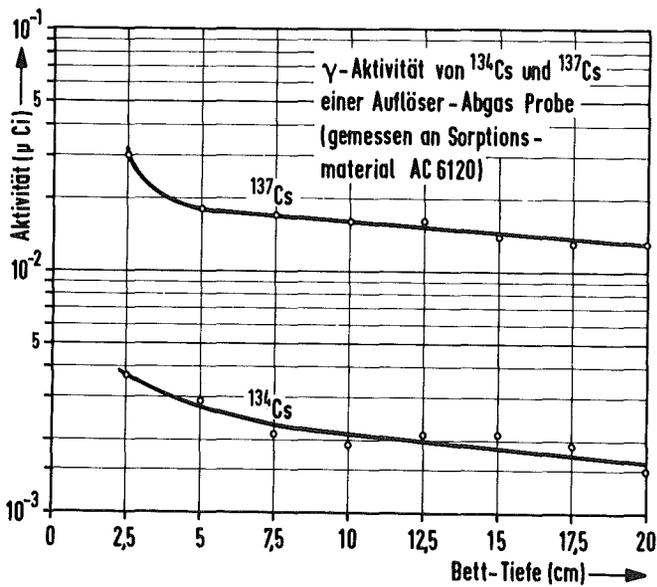


Abb. 4112/5

Es wurde eine Untersuchung der Filterbetten auf Kontamination durch γ -Strahler durchgeführt, deren Abscheidung eine erhöhte Dosisleistung des beladenen Jod-Sorptionsmaterials zur Folge hat. In Abb. 4112/4 und 4112/5 werden die Abscheidungsprofile der in den Filterbetten festgestellten Radioisotope wiedergegeben. Der flache Kurvenverlauf zeigt, daß es sich im allgemeinen um Partikel handelt, die nur zum geringen Teil an dem Jod-Sorptionsmaterial abgelagert werden (hoher Durchlaßgrad). Eine Ausnahme dürfte für das ^{106}Ru gelten. Die im Verhältnis zu den anderen Isotopen zu hohe γ -Aktivität und das steilere Abscheidungsprofil läßt auf einen zusätzlichen Transportmechanismus über die Gasphase schließen. Auf dem Filterbett aus den Auflöserabgasen wurde mit einem Ge(Li)-Detektor nur ^{137}Cs und ^{134}Cs nachgewiesen; auf dem Filterbett aus dem Behälterabgas wurde ^{144}Ce , ^{144}Pr , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{106}Ru , ^{95}Zr , ^{95}Nb und ^{154}Eu festgestellt. Die insgesamt aus dem Behälterabgas abgeschiedene Aktivität lag in der untersuchten Betriebsperiode weit über der aus dem Auflöserabgas.

Extrapoliert man die abgeschiedene γ -Aktivität auf ein Abgasfilter von $400\text{ m}^3/\text{h}$ Durchsatz, so ist mit einer Beladung des Jod-Sorptionsmaterials mit ca. 15 mCi an Isotopen mit relativ großer $T_{1/2}$ zu rechnen. Da dieser Wert von dem Abbrand und Alter der aufgelösten Brennelemente, der Abgasvorreinigung und den speziellen Betriebsparametern einer Wiederaufarbeitungsanlage abhängig ist, können daraus nur sehr bedingt Rückschlüsse auf die am Jodfilter zu erwartende Dosisleistung gezogen werden.

Tab. 4112/1

Abscheideleistung von Jod-Sorptionsbetten aus AC 6120 in den WAK-Abgasen und im Laborversuch

Bett-Tiefe in cm		2,5	5,0	7,5	10,0	12,5	15,0	17,5	20,0
Verweilzeit in s		0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8
Filterbett aus Auflöserabgas	Abgeschiedene ^{129}J -Menge pro Teilbett (mg)	203	235	92	22	12	6,6	2,9	1,5
"	Durch ^{129}J + ^{127}J verbrauchtes Ag^+ pro Teilbett (%)	35	39	15	3,6	1,9	1,1	0,5	0,2
"	integr. Abscheidegrad für ^{129}J in %	35	76	92	96	98	99	>99	-
"	integr. Abscheidegrad für $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ in 2,5 % NO_2 / Luft-Gemisch	51,9	91,9	99,78	99,967	99,978	99,986	99,991	99,995
Filterbett aus Behälterabgas	Abgeschiedene ^{129}J -Menge pro Teilbett (mg)	5,1	1,2	$3,9 \times 10^{-2}$	$5,9 \times 10^{-4}$	$3,1 \times 10^{-4}$	$4,4 \times 10^{-4}$	$3,5 \times 10^{-4}$	$2,5 \times 10^{-4}$
"	integr. Abscheidegrad für ^{129}J in %	81	99,4	99,9	>99,9	>99,9	>99,9	>99,9	-
"	integr. Abscheidegrad für $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ in 2,5 % NO_2 / Luft-Gemisch	71,2	95,8	99,34	99,51	99,64	99,73	99,86	99,946

PNS 4113/ Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen
 PNS 4114 in Reaktorabgasen. Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

Bei der routinemäßigen Laborprüfung der mit KJ-imprägnierten Aktivkohle aus den Kontrollfiltern der Jodfilteranlagen eines Kernkraftwerkes wurde Schadstoff-Adsorption an der eingesetzten Aktivkohle festgestellt. Die Bett-Tiefe der Kontrollfilter betrug, entsprechend der Bett-Tiefe in den Schüttbettfiltern, 50 cm. Die Laborprüfung wurde unter simulierten GaU-Bedingungen durchgeführt. Als Prüfmedium diente radioaktiv markiertes Methyljodid, das mit einem Feuchtluftstrom von 98 - 100 % r. F. beaufschlagt wurde.

Die Kontrollfilter gehörten zu den Jodfiltern der Anlagenabluftreinigung (ca. 2 s Verweilzeit) und Ringspaltabsaugung (ca. 1 s Verweilzeit).

Tab.4113/1: Abscheidegrade von Aktivkohlen aus Kontrollfiltern

Aktivkohle: Typ CG II, stranggepreßt, Stäbchendurchmesser 2,0 mm, 1 % KJ-imprägniert.

Prüfbedingungen:

Trägergas: Feuchtluft, vorgefiltert durch Schwebstoff-Filter der Klasse S, 31,2°C, 98 - 100 % r. F.

Vorströmzeit (nur Trägergas): ≥ 20 h

Beaufschlagung (Prüfmedium + Trägergas): 1 h

Nachströmzeit (nur Trägergas): ≥ 20 h

Prüfmedium: $30 \pm 5 \mu\text{g CH}_3^{127}\text{J}$ pro g Aktivkohle, vermischt mit ca. $2 \mu\text{Ci CH}_3^{131}\text{J}$ pro g Aktivkohle (Beladung berechnet auf 50 cm Bett-Tiefe).

Art der Abluft	Einsatzzeit der Kontrollfilter in Monaten	Abscheidegrad in %	Durchlaßgrad in %
Anlagenraumabluft	0	99,9998	0,0002
"	ca. 25 (Betriebszeit)	72,9	27,1
"	ca. 25 (Betriebszeit)	72,7	27,3
Ringraumabluft	0	99,88	0,12
"	ca. 25 (Standzeit)	91,6	8,4

Aus Tab.4113/1 ist das Absinken der Abscheidegrade im Vergleich mit den noch nicht mit Abluft angeströmten Kohleproben der gleichen Charge zu entnehmen. Um die Ursache der starken Vergiftung der Aktivkohle aus den Kontrollfiltern der Anlagenabluft- und Ring-spaltabluft-Jodfilter festzustellen, wurden die anschließenden analytischen Untersuchungen durchgeführt.

Analyse der Filterschadstoffe

a) Aufarbeitung der Aktivkohle für die gaschromatographische Untersuchung

Für die GC-Untersuchung wurde neben der Filterkohle aus den Kontrollfiltern frische, noch nicht eingesetzte Kohle zum Vergleich herangezogen.

5 g Aktivkohle wurden mit 90 ml p.A. CCl_4 , 24 h in einer Soxhlet-Apparatur extrahiert. Der Extrakt wurde auf 50 ml eingeeengt und gaschromatographisch untersucht.

Zur Ermittlung des Gehaltes an leichtflüchtigen Anteilen der adsorbierten Schadstoffe wurde die 24 h-Extraktion von 5 g Aktivkohle mit 50 ml p.A. Toluol durchgeführt. Um das Abdampfen dieser leichtflüchtigen Anteile zu verhindern, wurde der Extrakt nicht eingeeengt.

b) Auswertung der GC-Analyse

Folgende Arbeitsbedingungen wurden am Gaschromatographen (FID) eingehalten:

Einspritzmenge: 0,4 μl des Extraktes

Säule: 1,8 m; 1/8" Edelstahl

Stationäre Phase: 2,5 Gew.% Apiezon M

Trägermaterial : Chromosorb G AW-DMCS 80 - 100 mesh

Trägergas: 25 ml N_2 /min

Heizgas : 30 ml H_2 /min; 240 ml synth. Luft/min

Temperaturen: FID 200°C

Einlaß 150°C

Temperaturprogramm 60 - 120°C

Unter den oben angeführten Arbeitsbedingungen wurden am Gaschromatographen folgende Chromatogramme aufgenommen:

1. CCl_4 -Extrakt einer Probe der noch nicht im Filterbetrieb eingesetzten Charge der Originalkohle.

Es konnten keine Verunreinigungen nachgewiesen werden.

2. CCl_4 -Extrakt der Aktivkohle aus einem Kontrollfilter des Jodfilters für die Ringraumabsaugung.

Das Chromatogramm zeigte eine Reihe von Komponenten in geringer Konzentration, die ebenfalls in der unter 3. genannten Probe auftraten.

3. CCl_4 -Extrakt der Aktivkohle aus dem Kontrollfilter eines Jodfilters für die Anlagenabluft.

Die Aktivkohle wies eine erhebliche Beladung mit organischen Lösungsmitteln auf. Das Chromatogramm des CCl_4 -Extraktes stimmte mit dem eines handelsüblichen Lackfarbenverdünners (Nitroverdünner) weitgehend überein (Abb. 4113/4114/2).

Die endgültige Identifikation der Einzelkomponenten wurde durch Vergleich der Retentionszeiten der Reinsubstanzen Aethylacetat, Toluol und o-, m-, p-Xylol in CCl_4 abgeschlossen.

Ein Vergleich des Chromatogramms des CCl_4 -Extraktes der Aktivkohle (beaufschlagt mit Anlagenabluft) mit dem des Lackfarbenverdünners zeigt, daß die Komponente Aethylacetat nur noch in Spuren und Toluol in geringen Mengen in der Aktivkohle vorhanden war (Abb. 4113/4114/1). Vermutlich wurden diese Substanzen während des Filterbetriebes desorbiert.

Die quantitative Bestimmung der Lösungsmittel in der Aktivkohle ergab die folgenden Werte, die in der Tab. 4113/2 den Abscheidegraden gegenübergestellt werden.

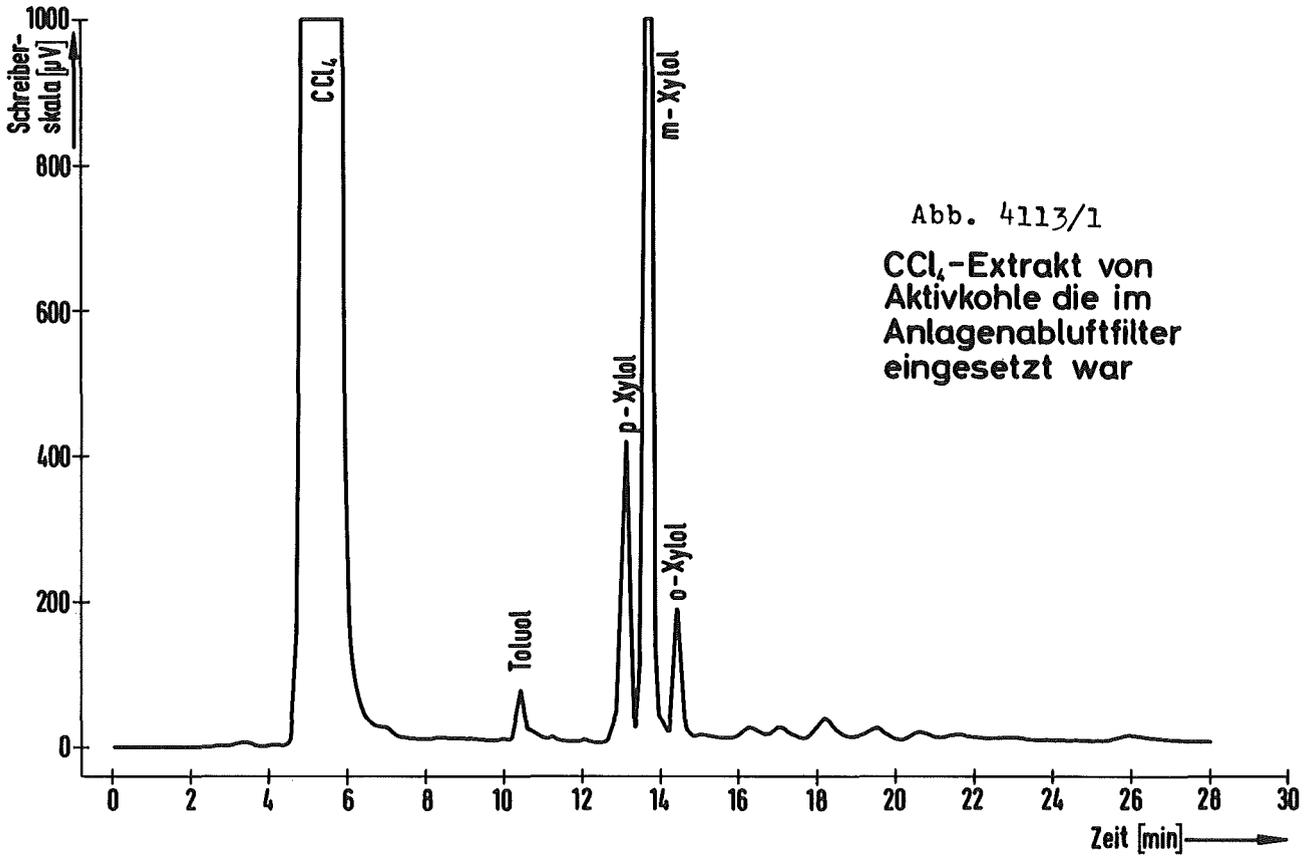


Abb. 4113/1
CCl₄-Extrakt von
Aktivkohle die im
Anlagenabluftfilter
eingesetzt war

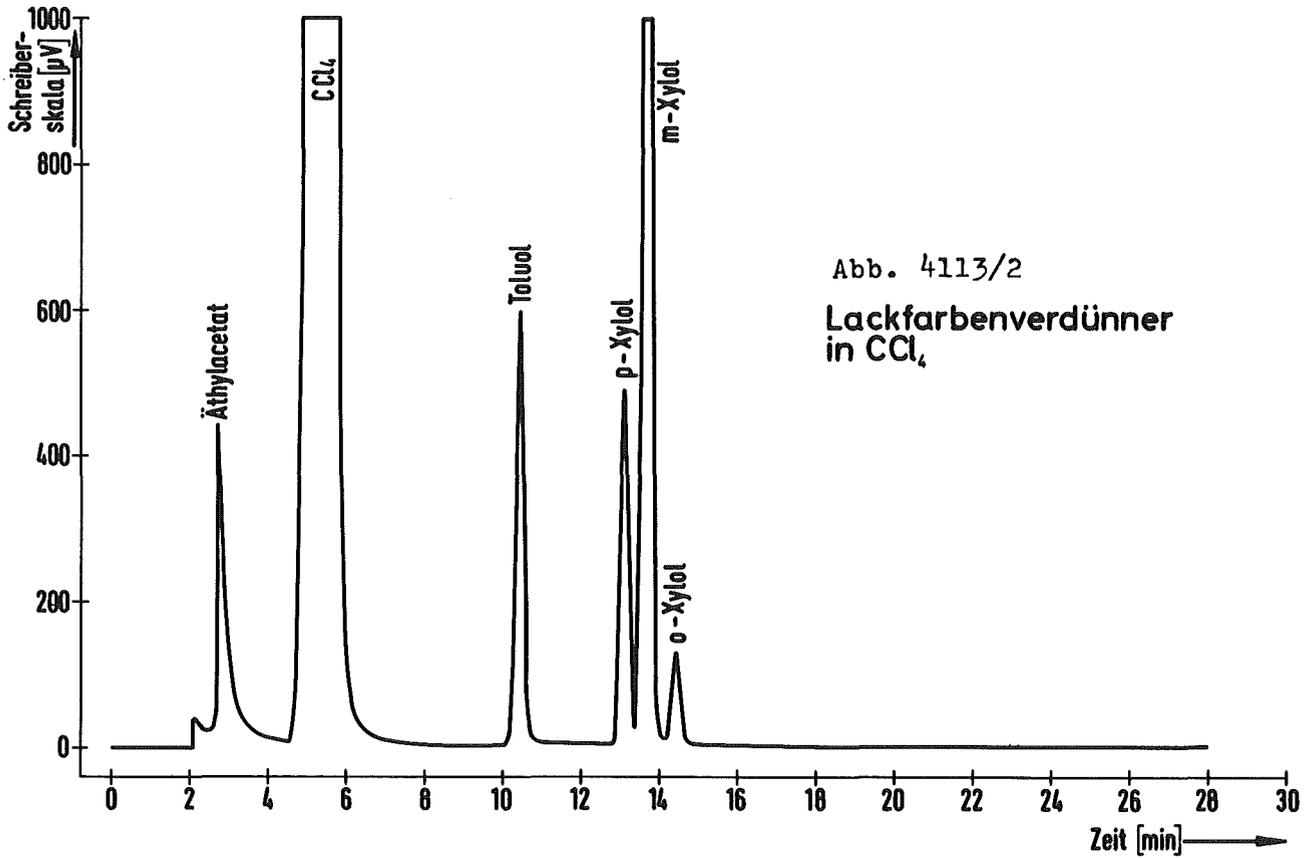


Abb. 4113/2
Lackfarbenverdünner
in CCl₄

Tab. 4113/2: Abscheidegrade von Aktivkohle nach Adsorption von Lösungsmitteln und Alterung

Aktivkohleprobe, entnommen aus:	Abscheidegrad (%) bei 50 cm Bett-Tiefe	Gehalt an Gesamtlösungsmittel in g/kg Aktivkohle
frische Originalcharge	99,996	-
Kontrollfilter, Ringraumabsaugung (ca. 25 Monate Standzeit)	91,6	0,3
Kontrollfilter, Anlagenabluft (ca. 25 Monate Standzeit)	72,8	60,0

Die Auswertung des Chromatogrammes der Toluol-Extraktion brachte von den oben beschriebenen Ergebnissen keine Abweichung.

Aus Tab. 4113/2 ist zu erkennen, daß schon geringe Mengen an Lösungsmitteln, die an der Aktivkohle adsorbiert wurden, den Abscheidegrad von Jodfiltern erheblich verringern können. Um Lösungsmittel von der Aktivkohle fernzuhalten, wird für die Bauphase eines Kernkraftwerkes empfohlen:

- Die Probeläufe der Abluftventilatoren von Jodfilteranlagen vor der Beschickung der Filter mit Aktivkohle durchzuführen.
- Die Beschickung mit Aktivkohle erst möglichst spät nach Beendigung der Anstricharbeiten in Sicherheitsbehälter und Ringraum vorzunehmen.

Nach der Inbetriebnahme des Kernkraftwerkes sollte:

- Zurückhaltung beim Lösungsmittelgebrauch in Räumen geübt werden, die über Jodfilter entlüftet werden.
- Bei der Durchführung von Anstricharbeiten die Abluft, wenn möglich und zulässig, nicht über die Jodfilter geleitet werden.

Bei Untersuchungen von Aktivkohlefilterzellen, die in einer anderen Reaktoranlage in zwei aufeinanderfolgenden Filterbänken (Filterbank I und II) eingesetzt waren, wurde gaschromatographisch die Adsorption von leichtem Heizöl nachgewiesen.

Die Abb. 4113/4114/2 zeigt die Chromatogramme von leichtem Heizöl und den entsprechenden untersuchten Aktivkohleproben. Zum besseren Vergleich wurden die Peaks durchnummeriert.

Untersuchungen zum Abscheidegrad der mit leichtem Heizöl vergifteten Aktivkohle wurden ebenfalls unter simulierten GaU-Bedingungen durchgeführt. Auch hier zeigte sich ein Absinken der Abscheidegrade gegenüber $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ mit Zunahme der Adsorption von leichtem Heizöl. Aus Tab. 4113/3 sind die integralen Abscheidegrade und die Beladung der untersuchten Aktivkohle mit org. Produkten in g/kg Aktivkohle zu entnehmen.

Tab. 4113/3: Abscheidegrade von Aktivkohle nach Adsorption von Lösungsmitteln und Alterung

Aktivkohleprobe, entnommen aus:	Abscheidegrad (%) bei 5 cm Bett-Tiefe, Verweilzeit 0,2 s	Gehalt an leichtem Heizöl in g/kg Aktivkohle
Filterbank I (ca. 19 Monate Betriebszeit)	23,3	76
Filterbank II (ca. 19 Monate Betriebszeit)	47,2	57

Erste im Labor durchgeführte Versuche mit Lösungsmitteln weisen daraufhin, daß es sich bei dem Absinken der Abscheidegrade der imprägnierten Aktivkohle nicht um einen einfachen Beladungseffekt, sondern um einen wesentlich komplexeren Vorgang handeln muß.

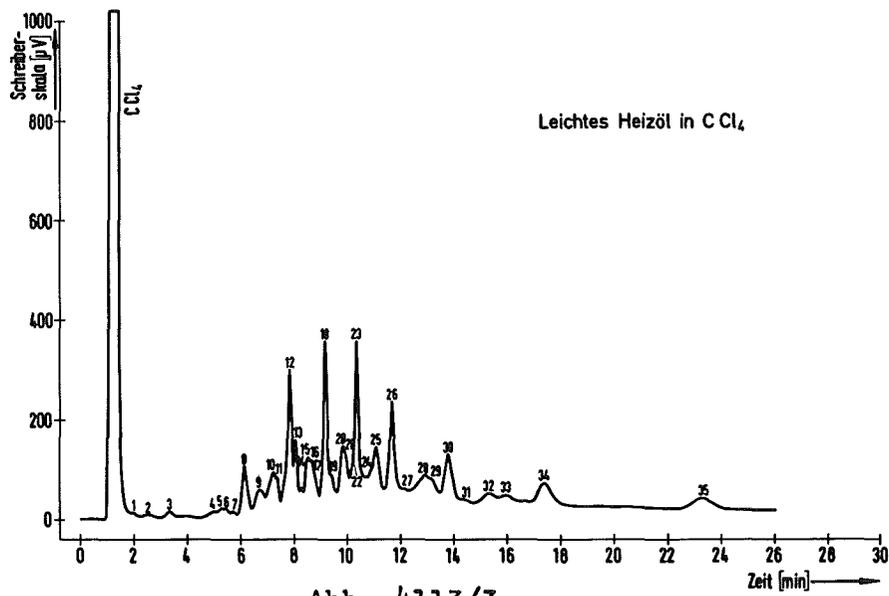
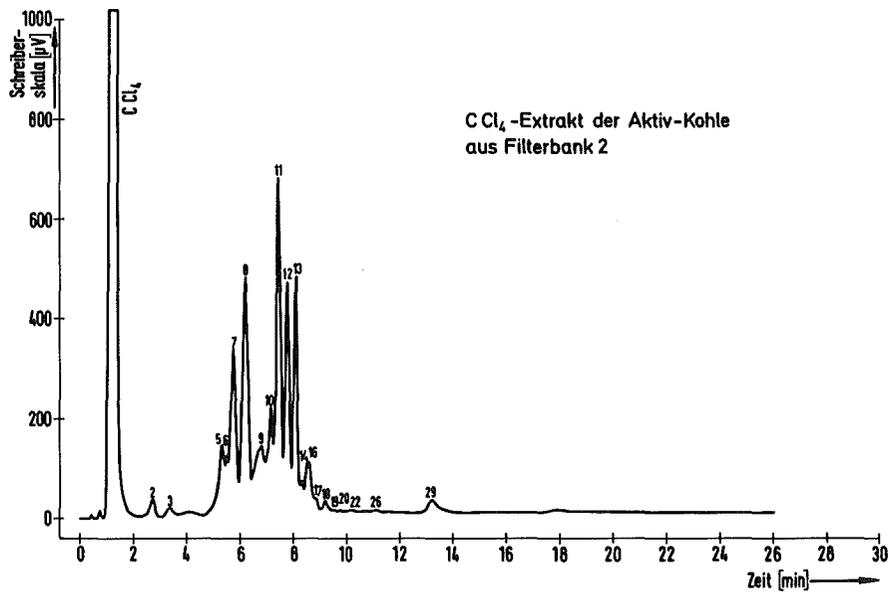
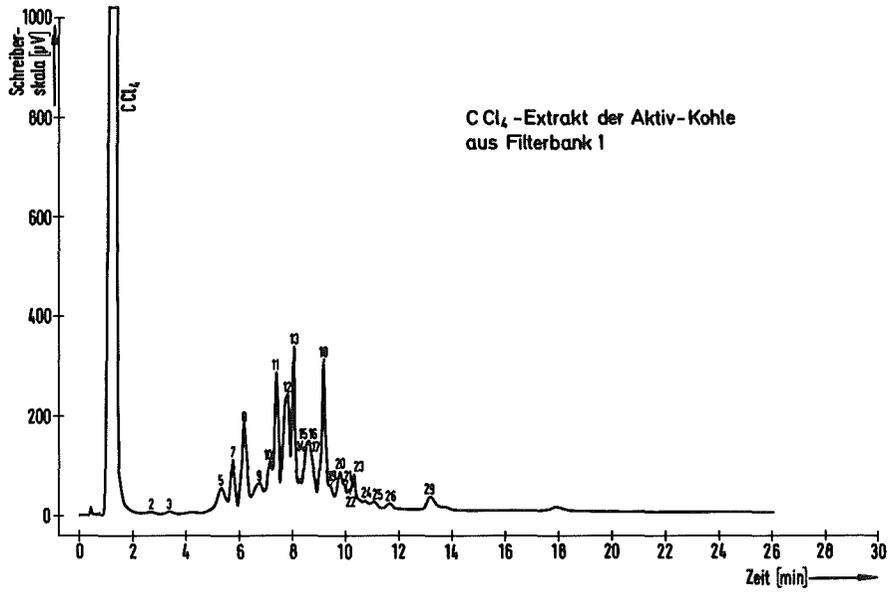


Abb. 4113/3

- 4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen und deren Reinigung
- 4121 Messungen zur Verteilung aktivierter Korrosionsprodukte im Primärkreislauf des Kernkraftwerkes Obrigheim
(H. John, IRB; J. Vehlow, LIT)

1. Ziel der Messungen

An 5 Rohrleitungsabschnitten vom Primärkreislauf des Druckwasserreaktors Obrigheim wurden γ -spektroskopische und γ -Dosisleistungsmessungen durchgeführt. Es sollte dadurch ein Zusammenhang zwischen der radioaktiven Kontamination mit Korrosionsprodukten und den thermohydraulischen Betriebsparametern gefunden werden.

Die Meßergebnisse sollen u.a. eine Grundlage für geplante out-of-pile-Experimente zur Untersuchung von Kontaminationsmechanismen sein. Es wurden daher Teile des Primärkreises ausgesucht, an denen einerseits hinreichend definierte jedoch unterschiedliche thermohydraulische Betriebsbedingungen herrschen und andererseits gleiche Bedingungen in bezug auf die Kühlmittelzusammensetzung und das Wandmaterial herrschten.

Es boten sich hierfür drei Rohrleitungssysteme an und zwar die Umwälzleitung des Primärloops NW 700, die hiervon abzweigende Sprühleitung NW 80, die zum Druckhaltesystem führt, und die zum Reinigungssystem abzweigende Leitung NW 50. Alle 3 Leitungen unterscheiden sich sowohl im Durchmesser, in der Strömungsgeschwindigkeit und der Re-Zahl der Strömung. Sie sind jedoch gleich in bezug auf ihr Wandmaterial in der Zusammensetzung des durchfließenden Kühlmediums und der Temperatur und dem Druck des Kühlmediums. Lediglich zwischen dem ersten und zweiten Abschnitt der Umwälzleitung findet eine Temperaturabsenkung um ca. 30 °C statt.

Abb. 4121-1 und 4121-2 zeigt die beiden Primärkreislaufschleifen des KWO in 2 Ansichten. Man erkennt die 3 Rohrleitungsabschnitte der Hauptkühlmittelleitung zwischen Reaktor und Dampferzeuger, zwischen Dampferzeuger und Umwälzpumpe und zwischen Umwälzpumpe und Reaktor.

Vor dem letzten Rohrabschnitt zweigen die sogenannte Sprühleitung, die eine ständige Kühlmittelmenge zum Druckhaltekeessel führt und die Reinigungsleitung, die zum Reinigungssystem mit Ionentauscher führt, ab. Bis auf die Reinigungsleitung sind alle Rohrsysteme, wie die Abbildungen zeigen, doppelt vorhanden.

Tabelle 4121-1 gibt die wesentlichen Abmessungen und Strömungsdaten der 3 Rohrsysteme wieder.

Tabelle 4121-1

	Rohrweite (mm)	Wandstärke (mm)	Durchsatz m ³ /h	Geschwindigkeit m/s	Re-Zahl
Hauptleitung	700	45	15000	11	$5,9 \cdot 10^7$
Sprühleitung	71,3	8,8	0,4	0,031 ^{+))}	$1,54 \cdot 10^4$ ^{+))}
Reinigungsleitung	49,1	5,6	12	1,7	$6,6 \cdot 10^5$

^{+))} Die Geschwindigkeit in der Sprühleitung war so gering und die Durchsatzmenge auch nur ungenau bestimmbar, daß für diese Leitung keine sicher definierbaren Strömungsverhältnisse angenommen werden können.

2. Experimentelle Durchführung

Es wurden insgesamt 44 γ -Dosisleistungsmessungen und 7 γ -spektroskopische Messungen durchgeführt.

Während die Dosisleistungsmessungen wegen des erheblich geringeren zeitlichen Aufwandes und der besseren Beweglichkeit des Meßgerätes durchgeführt wurden, um möglichst viele Werte von der örtlichen Gesamt- γ -Emission der Rohrwand über Länge und Umfang der Rohre zu bekommen, sollten die γ -spektroskopischen Messungen Aufschluß über die Zusammen-

setzung der aktiven Rohrablagerungen und evtl. örtlicher Unterschiede derselben geben.

In Abb. 4121-1 und 4121-2 sind die Positionen der Messungen eingetragen. Die nicht ganz systematisch erscheinende Verteilung der Meßpunkte ist auf die örtlichen Meßmöglichkeiten zurückzuführen.

2.1 γ -spektroskopische Messungen

Verwendet wurde ein Ge(Li)-Detektor (ca. 30 cm^3) in einem speziellen λ 1-Kryostat. Der Detektor war mit einer Pb-Abschirmung von 5 cm bzw. am Kopf 6 cm Dicke umgeben, in der sich eine Kollimatoröffnung mit einem Durchmesser von 1 cm befand.

Das System befand sich mit Vorverstärker, Hochspannungsversorgung und Verstärker in einem kleinen Metallgestell. Ein 50 m langes Impuls kabel verband den Verstärker mit einem 4000 Kanal-Analysator.

An jeder Meßstelle wurde - wenn möglich - je ein Spektrum und ein Untergrundspektrum mit 2000 Kanälen aufgenommen. Die auf Magnetband gespeicherten Spektren wurden später im LIT mit dem Programm ISINAA am TR 86-Rechner ausgewertet.

Abb. 4121-3 zeigt ein typisches γ -Spektrum. Die Hauptlinien gehören zu Co-60 und Co-58. Daneben findet sich in einigen Fällen Fe-59, Mn-54 und Cr-51.

Betrachtet man den bei den Messungen am Primärloop erfaßten Bereich als ebene Flächenquelle und den an der Reinigungsleitung als Linienquelle, so erhält man mit Hilfe von Eichmessungen, die anschließend im LIT durchgeführt wurden, aus den Peakgehalten der Spektren Werte für die spezifische Flächenaktivität auf den Rohrrinnenwänden. Tabelle 4121-2 zeigt die gefundenen Werte.

Im Primärloop wurden Aktivitäten zwischen ca. 200 und $800 \mu\text{Ci cm}^{-2}$ für Co-60 und um $100 \mu\text{Ci cm}^{-2}$ für Co-58 errechnet. Das Aktivitätsverhältnis von Co-60 zu Co-58 beträgt ca. 5. In der Reinigungsleitung ist die Flächenaktivität für beide Nuklide etwa um den Faktor 5 - 10 niedriger.

Alle anderen in der Tabelle angegebenen Werte sind grobe Schätzungen, da hier die gefundenen Peakflächen zu klein für eine brauchbare Auswertung waren.

2.2 γ -Dosismessungen

Zur Messung der Ortsdosis wurde ein Dosismeßgeräte Graetz X 50 mit kleiner Universalsonde verwendet, um die zur Erreichung einer Richtwirkung ein 2,5 cm dicker Pb-Mantel gelegt worden war.

Gemessen wurde jeweils durch Aufsetzen der Abschirmöffnung auf der Oberfläche der Wärmedämmung der einzelnen Rohre. So erhält man für alle Messungen an einem Rohrsystem dieselbe Meßgeometrie.

Mit Hilfe einer im LIT aufgenommenen Eichkurve wurden die gemessenen Zählraten in Dosisleistungswerte umgerechnet. Tabelle 4121-2 zeigt die gefundenen Werte, die in Abb. 4121-4 über dem Meßort aufgetragen sind.

Man findet am Primärloop im Mittel eine Zählrate von 5000 ips und damit eine Dosisleistung von ca. 200 mrh^{-1} . Die mittlere Zählrate an Sprühleitung und Reinigungsleitung beträgt 6500 ips, was einer Dosisleistung von knapp 400 mrh^{-1} entspricht.

Für jede Rohrgeometrie ist der γ -Fluß am Meßort proportional der spezifischen Flächenaktivität im Rohrinne. Die vom GM-Zählrohr der Universalsonde registrierten Zählraten sind zwar nicht mehr proportional dem γ -Fluß, doch korrespondieren die an einem Rohrsystem gemessenen Zählraten mit der Menge der Korrosionsablagerungen im Inneren dieses Systems und sind somit untereinander vergleichbar.

Eine Eichung der Zählordnung auf Flächenaktivitäten scheitert an den Höhen der zu handhabenden Aktivitäten.

Es wurde versucht, für jede Rohrgeometrie durch Eichmessungen einer Umrechnungsfaktor von den außen gemessenen Zählraten auf Zählraten zu ermitteln, die eine ebene Flächenquelle mit gleicher spezifischer Aktivität, die die Rohrinne wand aufweist, in 1 cm Abstand erzeugt.

Die so erhaltenen Werte können natürlich nur *größenordnungsmäßig* den Unterschied der Ablagerungen in den einzelnen Rohren angeben.

Für die Primärloop-Geometrie wurde ein Faktor von etwa 30 zwischen außen und innen erhaltenen Zählraten gefunden, für die Sprühleitung betrug er ca. 2,5, für die Reinigungsleitung ca. 2.

Multipliziert man die oben angegebenen mittleren Zählraten mit den erhaltenen Faktoren, so ergibt sich als Zählrate im Inneren des Primärloops 150 000 ips, in der Sprühleitung 16 000 ips und in der Reinigungsleitung 13 000 ips.

Man sieht also auch aus den Dosismessungen, daß im Primärloop erheblich mehr Material abgelagert wird als in den Hilfsleitungen. Außerdem erkennt man in jedem einzelnen Rohrstrang einen Abfall der Ablagerungsdichte mit wachsender Rohrlänge. Es soll im folgenden versucht werden, diese Tendenzen zu deuten.

Auswertung

Die in der Tabelle aufgeführten Dosisleistungswerte, die sich auf die Außenseite der jeweiligen Rohrleitung beziehen, wurden entsprechend ihrer Meßposition über der gestreckten Länge der Rohrleitungsabschnitte aufgetragen.

Die Längskoordinate der Hauptkühlmittelleitung verläuft im Sinne der Kühlmittelströmung von links nach rechts und bei den beiden anderen Leitungen (Sprühleitung, Reinigungsleitung) von ihrer Abzweigung aus von rechts nach links. Dieses wurde aus zeichnerischen Gründen gemacht.

Wegen der relativ stark streuenden Meßwerte wurde der Verlauf der Dosisleistung für jeden Rohrabschnitt durch eine Gerade angenähert. Wie Abb. 4121-4 zeigt, ergibt sich dabei eine eindeutige Tendenz:

Die Kontamination eines Rohrabschnittes hat am Rohreintritt ihren höchsten Wert und nimmt mit zunehmender Länge in Strömungsrichtung ab.

Dieser Effekt kann nicht durch eine Verarmung des Kühlmittels an aktiven Ablagerungsstoffen mit zunehmender Rohrlänge erklärt werden, da nach jeder Unterbrechung die Kontamination im KWO im folgenden Rohrabschnitt (nach Dampferzeuger, Pumpe, Abzweigung) etwa in gleicher Höhe wieder beginnt.

Dieses Phänomen läßt sich als Rohreinlaufeffekt deuten, wobei für die Ablagerung : $M_A = f(d/L)$ gibt.

Als Einlaufstrecke ist bekanntlich die Rohrlänge zu betrachten, in der sich aus der ins Rohr eintretenden noch nicht ausgebildeten Strömung (Kolbenströmung) ein stabiles Strömungsprofil ausgebildet hat. Bei turbulenter Rohrströmung beträgt die Einlauflänge etwa $40 d$, d.h. in unserem Fall, daß die Messungen größtenteils im Bereich der Einlaufstrecken gemacht wurden.

Die Kontaminationsunterschiede zwischen Haupt- und Reinigungsleitung können durch die Beziehung $\frac{Re}{d}$ beschrieben werden.

Welche Effekte hier eine Rolle spielen, ließ sich aus diesen Messungen nicht zufriedenstellend beweisen.

Tab. 4121-1: Ergebnisse der γ -spektroskopischen Messungen

Nr.	Ort	R [cm]	d_{Fe} [cm]	A_{Co-60}	A_{Co-58}	A_{Fe-59}	A_{Mn-54}	A_{Cr-51}	$\frac{A_{Co-60}}{A_{Co-58}}$
G1	PL	211	4,5	220	70		5		3
G2	RL	103	0,6	70	17				4
G3	RL	103	0,6	55	10			0,1	5
G4	RL	103	0,6	60	6	1			10
G5	PL	41	4,5	840	130	10			6
G7	PL	30	4,5	750	140				5

Alle Aktivitäten in $\mu\text{Ci cm}^{-2}$

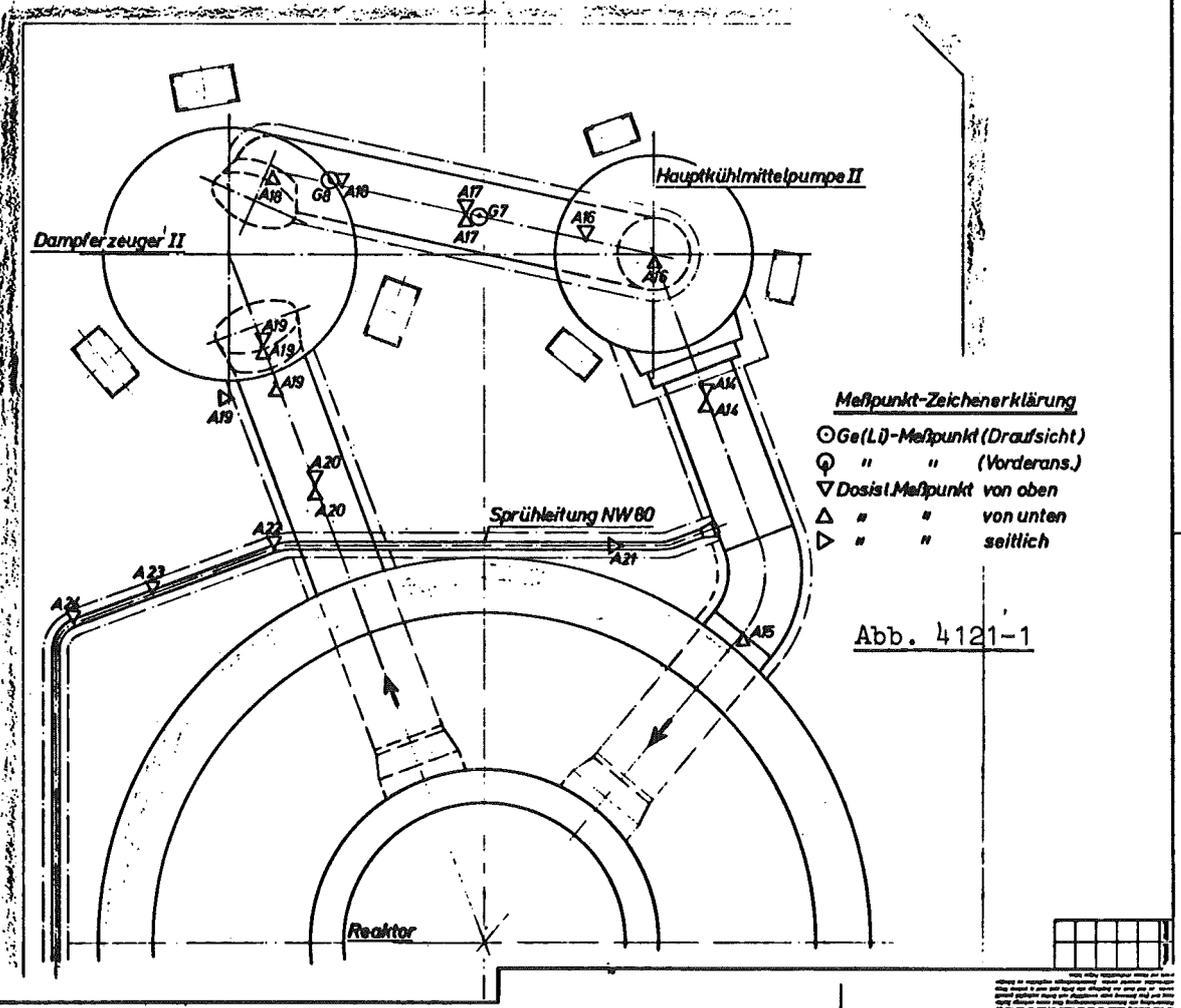
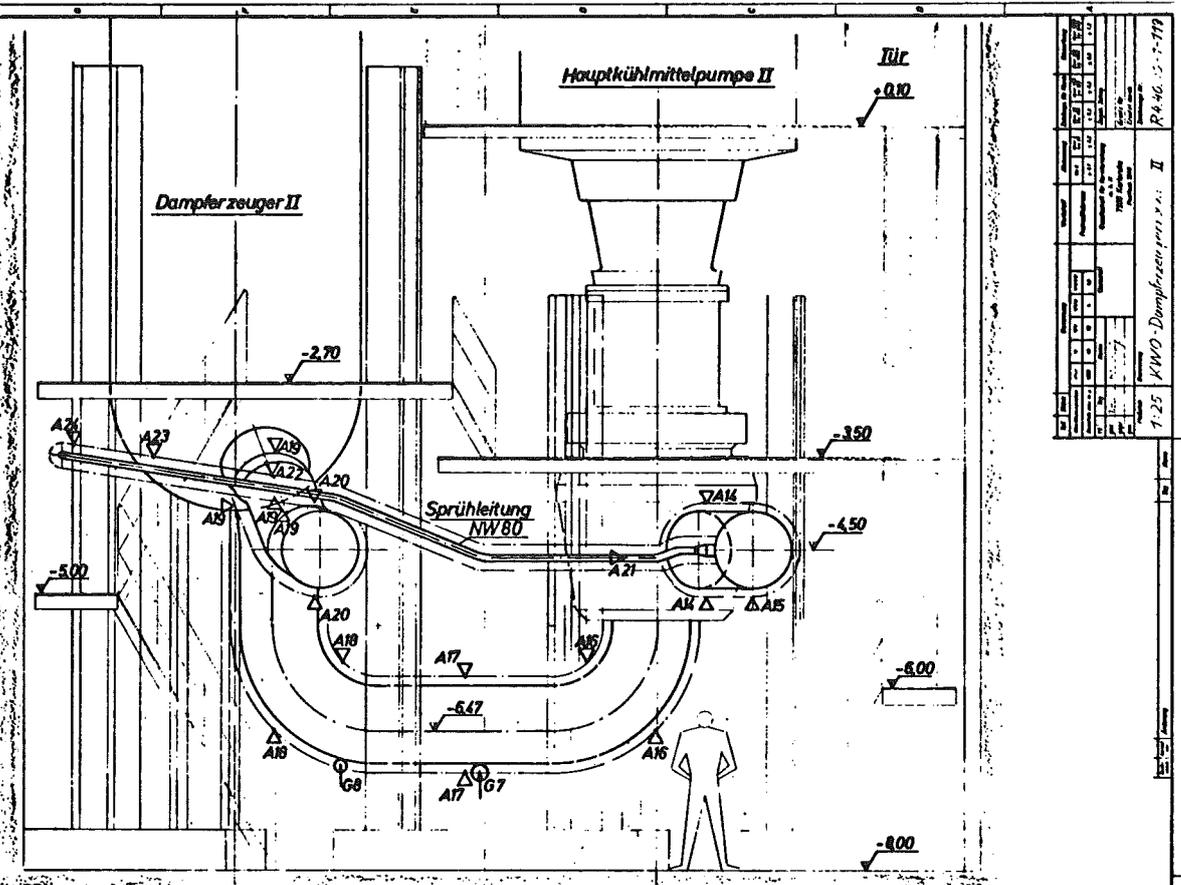
PL = Primär-Loop

RL = Reinigungsleitung

Tab. 4121-3: Ergebnisse der Dosismessungen

Ort	Nr.	Z [ips]	D [mrh ⁻¹]	Ort	Nr.	Z [ips]	D [mrh ⁻¹]	
Primärloop	A4 o	6000	310	Sprühleitung	A1 o	8500	760	
	u	6000	310		u	8500	760	
	A5 o	5200	230		A2 o	7000	440	
	u	6000	310		u	6500	370	
	A6 s	5000	210		A3 o	7000	440	
	A10o	4500	170		u	5500	260	
	u	4500	170		A21s	4500	170	
	A11o	5000	630		A22o	6000	310	
	u	8000	210		A23o	6000	310	
	A12o	4000	140		A24o	5500	260	
	u	3300	110		Reinigungs- leitung	A7 o	9500	1200
	A14o	6000	310			u	7500	530
	u	6500	380			A8 o	6500	380
	A15u	5500	260			u	6500	380
	A16o	4000	140			A9 o	6000	310
	u	4500	170			u	5500	260
	A17o	5000	210			A13o	6000	310
	u	5000	210			u	4500	170
	A18o	4500	170					
	u	6000	310					
A19s	4500	170						
u	4500	170						
A19 o	1000	60						
u	2000	100						
A20o	4500	170						
u	7000	440						

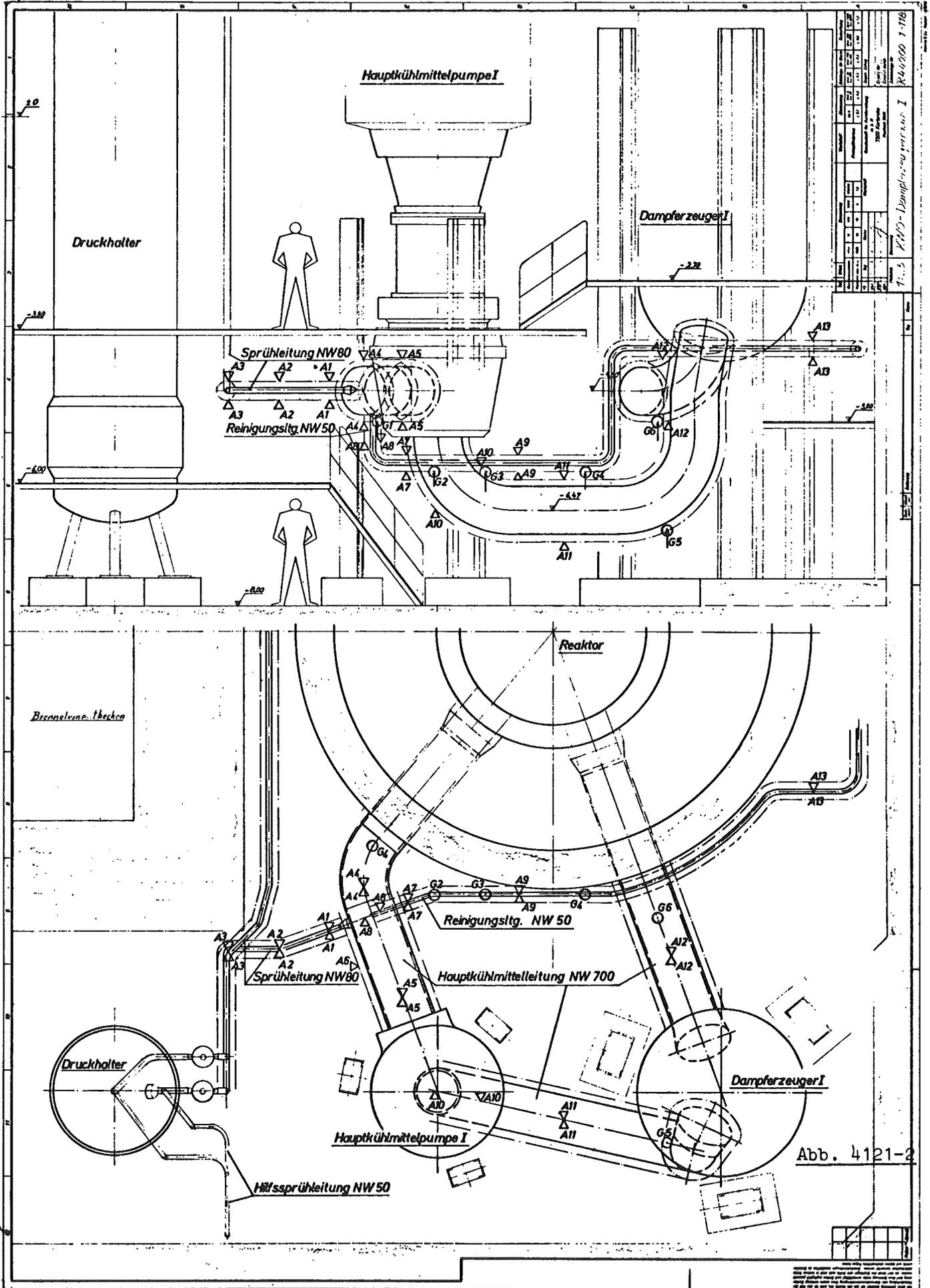
o oben
u unten
s seitlich



Meßpunkt-Zeichenerklärung
 ○ Ge(Li)-Meßpunkt (Draufsicht)
 ⊕ " " (Vorderans.)
 ▽ Dosis-Meßpunkt von oben
 △ " " von unten
 ▴ " " seitlich

Abb. 4121-1

Alle Rechte vorbehalten. Nachdruck, Vervielfältigung und Verbreitung, auch auszugsweise, ist ohne schriftliche Genehmigung der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorbau (GAR) AG. Die in diesem Dokument enthaltenen Zeichnungen sind urheberrechtlich geschützt durch die GAR AG. Die GAR AG ist ein Unternehmen der Siemens AG.



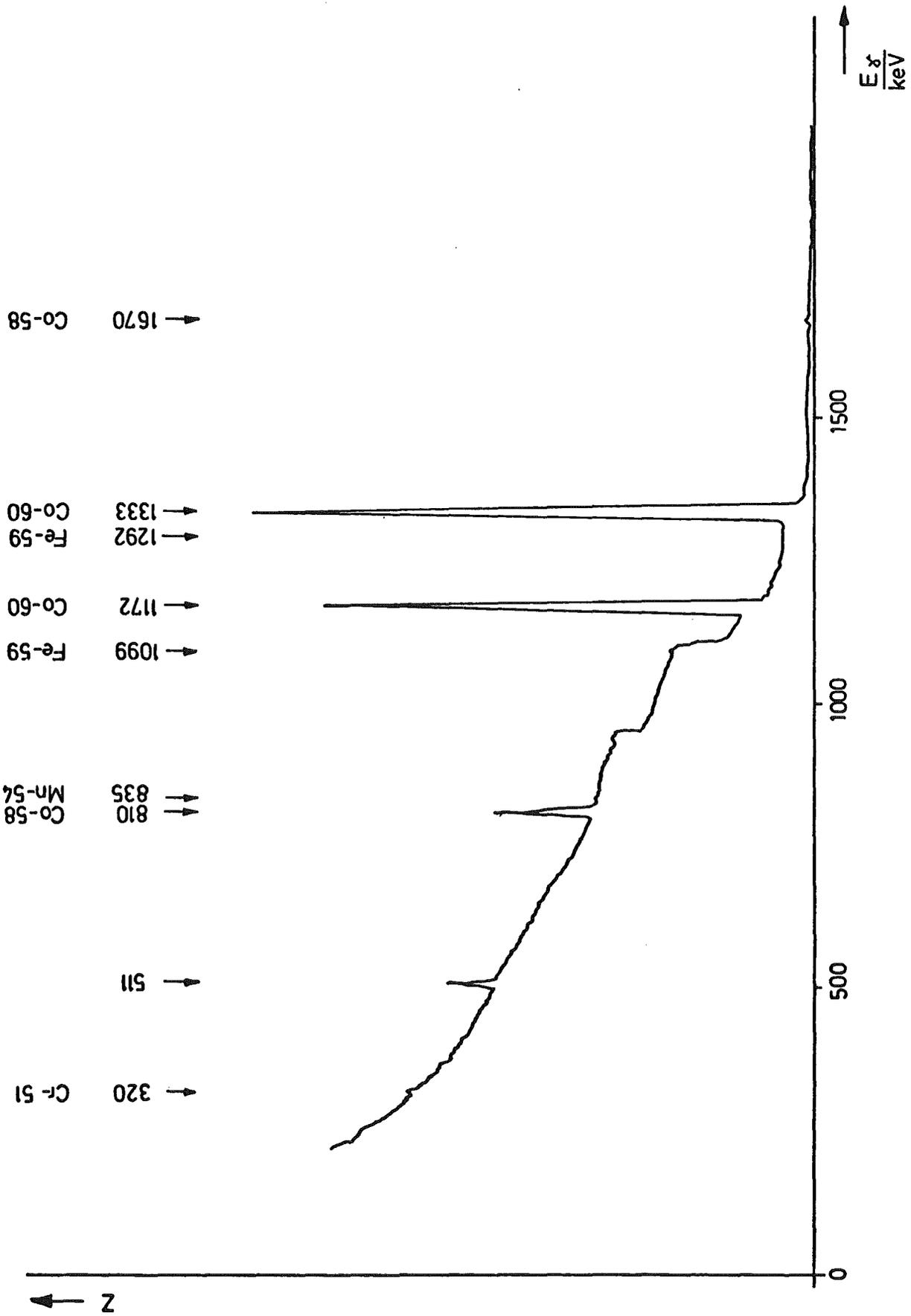


Abb. 4121=3: γ - Spektrum

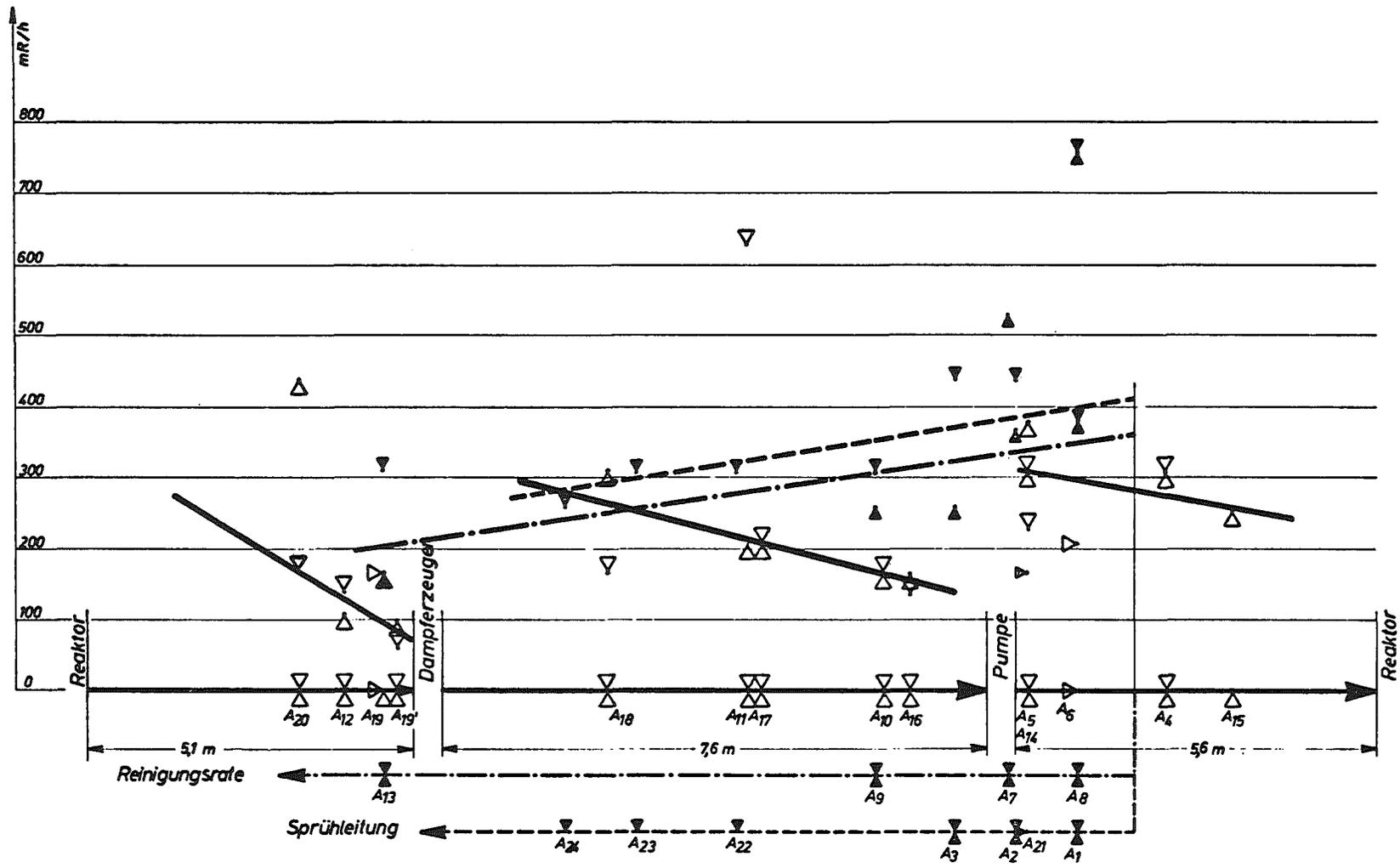


Abb. 4121-4: Dosisleistung am Primärkreislauf KWO

4122 Untersuchungen zum Einfluß der Reaktorchemie auf die Kreislaufkontamination

Verringerung der Primärkreiskontamination durch Schutzschichtenbildung

(R. Köster, ADB)

Der Aktivitätsaufbau im Primärkreis von Druckwasserreaktoren durch aktivierte Korrosionsprodukte und der daraus resultierenden hohen Bestrahlungsdosisleistungen an den Systemwänden läßt sich nach heutigen Erkenntnissen wie folgt beschreiben:

1. Bildung von Korrosionsprodukten im gesamten Primärkreis mit kleiner, aber konstanter Rate pro Zeit- und Oberflächeneinheit. (Zu berücksichtigen ist, daß bei Inbetriebnahme die Korrosionsproduktbildungsgeschwindigkeit besonders groß ist.)
Wegen der vorliegenden Oberflächenverhältnisse und der Korrosionsraten der Materialien erfolgt die Bildung der Korrosionsprodukte überwiegend außerhalb des Core-Bereichs.
2. Transport der Korrosionsprodukte durch das Kühlmittel in das Reaktorkore.
3. Abscheidung im Core-Bereich und Neutronenaktivierung der Korrosionsprodukte.
4. Transport der aktivierten Nuklide und Abscheidung außerhalb des Cores.

Die Nuklide, die in hohem Maße die Systemkontamination bestimmen, sind (insbesondere) Co-60 und Co-58.

Co-60 wird durch n, γ -Reaktion aus Co 59, einer Verunreinigung der austenitischen Cr-Ni-Stähle und Ni-Basislegierungen, gebildet.

Co-58 entsteht durch n, p-Reaktion aus Ni-58, das zu 68 % im natürlichen Nickel vorkommt.

Die zur Verringerung des Aktivitätsniveaus in Betracht zu ziehenden Maßnahmen müssen einer Reihe von Randbedingungen genügen. Dies sind im einzelnen:

Weitgehend vorgegebene Materialauswahl
weitgehend vorgegebene Wasserchemie
vorgegebene Druck- und Temperaturverhältnisse

Daraus folgt, daß primär Maßnahmen an der Phasengrenze zwischen Werkstoff (d.h. austenitischen Cr-Ni-Stählen und Ni-Basislegierungen) und Medium, d.h. Primärwasser, zu diskutieren sind.

Es wurde daher die Verringerung des Aktivitätsniveaus durch Verkleinerung der Metallabgaberate der Primärkreismaterialien durch definierte Erzeugung von Oxidschutzschichten vor Inbetriebnahme des Primärkreises, d.h. des Reaktors, untersucht.

Die Erzeugung von Schutzschichten sollte insbesondere zu einer Herabsetzung der hohen Anfangsflächenkorrosionsrate führen, die für die nachfolgend ablaufenden Aktivierungsreaktionen äußerst ungünstig ist.

In einer Literaturstudie wurden Angaben über den Aufbau und die Entstehungsweise von Oxidschichten auf Fe-Basislegierungen im Druckwasser bei hohen Temperaturen ($\approx 320^{\circ}\text{C}$) zusammengestellt. Daraus wurden dann die Anforderungen und die notwendigen Eigenschaften von Oxidschutzschichten abgeleitet.

Unter DWR-Bedingungen entsteht auf Stählen als thermodynamisch stabiles Oxid Magnetit, Fe_3O_4 , ein inverser Spinell.

Die Fe^{II} , Fe^{III} -Ionen sind dabei partiell durch Ionen der Legierungselemente substituiert. Die Oxide weisen meist einen 2-Schichtenaufbau mit morphologischer Orientierung der Oxidkristalle zu den Kristalliten der Stahlmatrix auf. Die zeigt schematisch Abb. 4122-1.

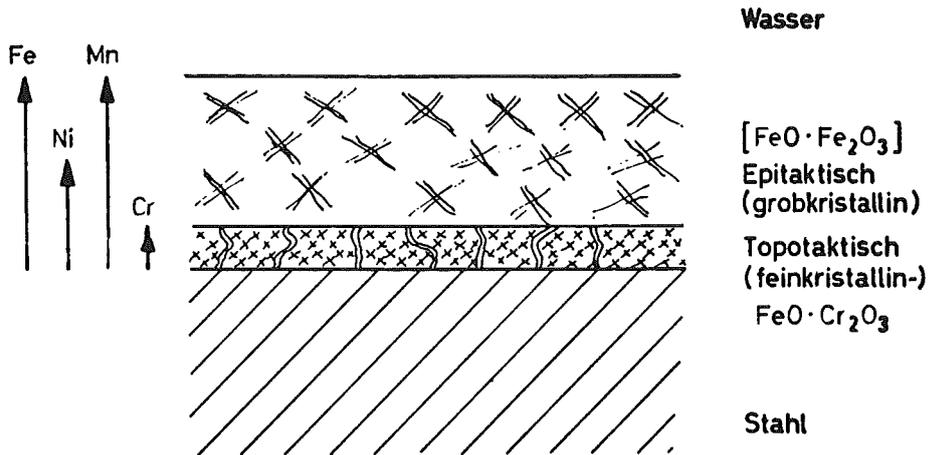


Abb. 4122-1:

Für die dem Stahl zugewandten Schichten herrscht in der Literatur die Meinung vor, daß es sich um Chromitspinell FeCr_2O_4 , handelt.

Die primäre Reaktion des Stahls mit Wasser ist die Bildung hydratisierter Fe^{II} -Ionen. Wesentlich ist ferner, daß die Bildung von Fe_3O_4 über $\text{Fe}(\text{OH})_2$ erfolgt, daß sich in der Flüssigkeitsgrenzschicht am Stahl befindet.

Die Entstehung von Fe_3O_4 über die Lösungsphase (Grenzschichtphase) eröffnet die Chance der Steuerung des Oxidwachstums durch wasserchemische und physikalische Parameter.

Die Erhöhung der Oxidkeimbildungsgeschwindigkeit gegenüber der Keimwachstumsgeschwindigkeit durch wasserchemische Parameter - beispielsweise durch niedrigen pH-Wert - führt zu besonders feinkristallinen Schichten mit relativ großer Fehlverordnung im Gitter. Kristallhabitus und Homogenität der Oxidschichten wiederum sind entscheidende Faktoren für die Schutzwirkung.

In Tab. 4122-1 wird eine Darstellung der Parameter, die die Oxidschutzschichtbildung in Wasser beeinflussen, gegeben. Die Tabelle enthält ferner (in Klammern) die für ein Versuchsprogramm in erster Näherung angenommenen Variationsbreiten der einzelnen Parameter.

Tabelle 4122-1:

Erzeugung von Oxidschutzschichten mit Wasserdampf

1. Ausgangszustand:	1.1 Verschiedene Oberflächenzustände der Materialien 1.1.1 Unterschiedliche Verformung 1.1.1.1 Gewalzte Oberflächen 2 Sandgestrahlte Oberflächen 3 Geschliffene Oberflächen 4 Gedrehte Oberflächen 5 Geglüht, elektropolierte Oberflächen 1.1.2 Unterschiedliche Beizverfahren
2. Chemische Parameter:	H ₂ -Konzentration (≈ 0,2 - 10 mg/kg) O ₂ -Konzentration (< 0,05 mg/kg - 0,5 mg/kg) N ₂ H ₄ -Konzentrationen (0 - 50 mg/kg)
3. Physikalische Parameter:	Temperatur: (150 - 350 °C) Druck: (≈ 50 atm, abhängig von der Temperatur) Strömungsgeschwindigkeit: (10 ⁵ - 10 ⁹ Re) Zeit: (5 - 30 Tage)

Erzeugung von Oxidschutzschichten mit Wasser-flüssig

1. Ausgangszustand:	1.1 Verschiedene Oberflächenzustände der Materialien 1.1.1 Unterschiedliche Verformung 1.1.1.1 Gewalzte Oberflächen 2 Sandgestrahlte Oberflächen 3 Geschliffene Oberflächen 4 Gedrehte Oberflächen 5 Geglüht, elektropolierte Oberflächen 1.1.2 Unterschiedliche Beizverfahren
2. Chemische Parameter	H ₂ -Konzentration (≈ 0,2 - 10 mg/kg) O ₂ -Konzentration (< 0,05 mg/kg - 0,5 mg/kg) pH _{bei T_{Zi}} (≈ 7 - 11) N H ₂ -Konzentration (≈ 0 - 50 mg/kg)

Zusätze: Fe ²⁺ -Ionen-Konzentration	(0 - 0,5 mg Fe ²⁺ /kg)
Cr ³⁺ -Ionen-Konzentration	(0 - 0,5 mg Cr ³⁺ /kg)
3. Physikalische Parameter	
Temperatur	(150 - 300 °C)
Strömungsgeschwindigkeit	(Re = 10 ⁴ - 10 ⁸)
Zeit	(10 - 30 Tage)

Für die Erzeugung der Oxidschutzschichten im Labormaßstab wird ein Hochdruck-Hochtemperaturkreislauf vorgeschlagen, dessen schematischen Aufbau die Abb. 4122-2 zeigt. Die wesentlichen Daten des Kreislaufes sind in Tabelle 4122-2 zusammengefaßt.

Tabelle 4122-2:

Volumen Kreislauf	~20 l
Förderleistung der Umwälzpumpe	~ 1 m ³ /h bei NW 12
max. Betriebstemperatur	360 °C
max. Betriebsdruck	160 at
Hauptkonstruktionsmaterial	1.4571
Förderleistung der Dosierpumpe	~10 l/h

Die Apparatur erlaubt die Messung und Regelung der wasserchemischen und physikalischen Parameter und läßt realistische Strömungsgeschwindigkeiten mit Reynoldszahlen bis $\approx 10^9$ zu. Die für die Reproduzierbarkeit der Experimente nötige Konstante der Versuchsparameter kann im Kreislauf realisiert werden.

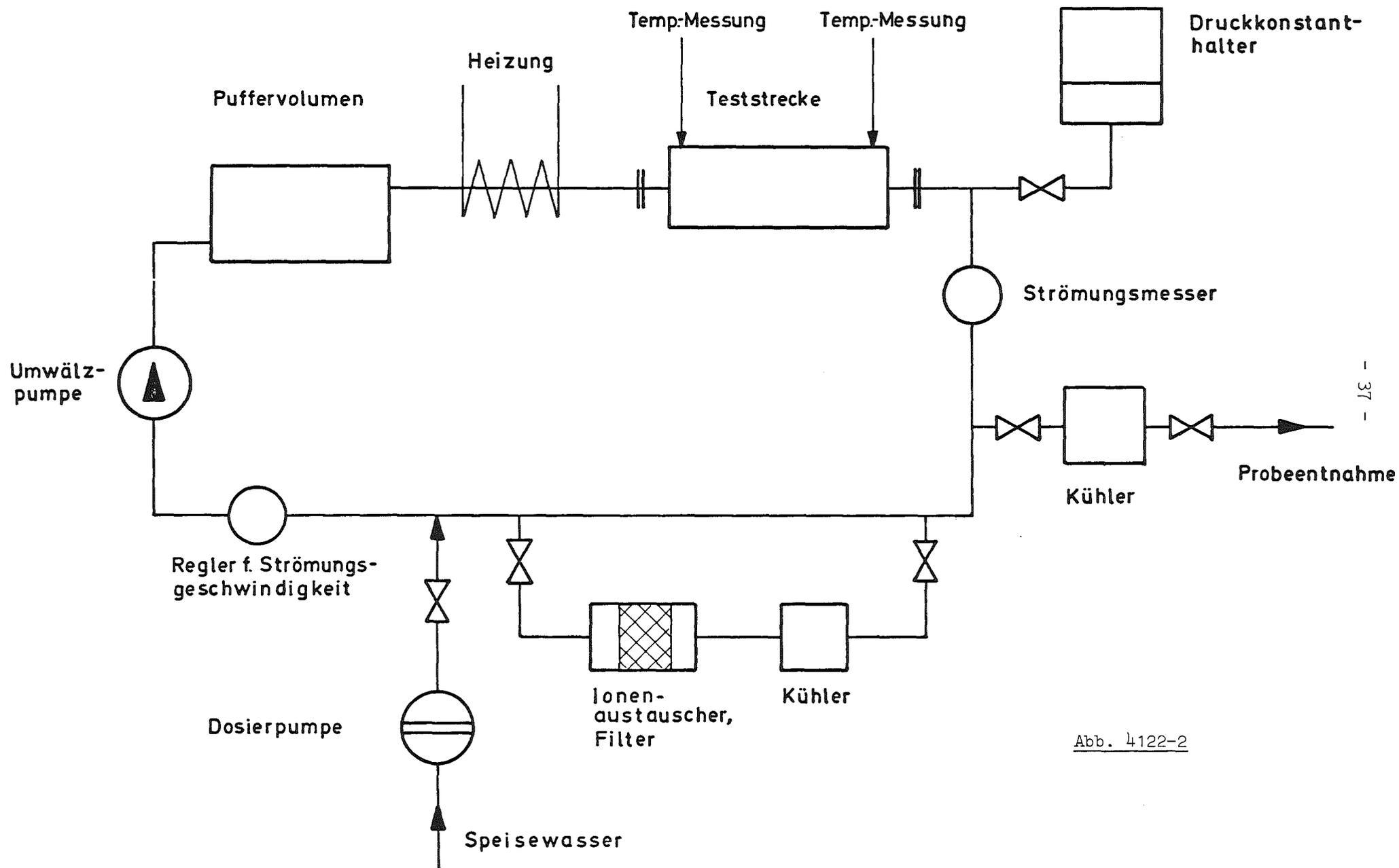


Abb. 4122-2

Die innere Kreislaufoberfläche wird als Voraussetzung für ein variables Versuchsprogramm so ausgelegt, daß die Gesamtoberfläche der Probekörper groß gegen die Gesamtoberfläche des Kreislaufes ist (Oberflächenverhältnisse von $\approx 90 : 10$).

Die gebildeten Oxidschichten sollen in ⁿmorphologischer und chemischer Hinsicht mit modernen Methoden der Oberflächenanalytik wie Rasterelektronenmikroskopie, Röntgenstrukturanalyse, Mikrosonde, Auger-Spektroskopie untersucht werden, dies bedeutet die Bestimmung der mikroskopischen Eigenschaften der Oxidschichten.

Der Zusammenhang zwischen den mikroskopischen Eigenschaften und den makroskopischen wie Metallabgaberate und Haftfestigkeit - soll durch Langzeitkorrosionstests der Materialien mit Oxidschutzschichten im oben skizzierten Versuchskreis hergestellt werden. Die Langzeittests ermöglichen dann auch die endgültige Selektionen der optimalen wasserchemischen und physikalischen Parameter für die Schutzschicht-Erzeugung.

Ferner wurden erste Überlegungen angestellt, wie der Einfluß der Oxidschichtqualität auf die Einbaurate von Radionukliden untersucht werden kann.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

4131 Messung der Tritiumkontamination der Umwelt
(L.A. König, M. Winter, H. Schüler, ASS)

1. Die Ursachen der Tritiumkontamination der Umwelt

Die heutige Tritiumkontamination der Umwelt ist zum überwiegenden Teil künstlich erzeugt. Ein geringer Teil ist natürlichen Ursprungs (vgl. z. B. [1 - 3]).

1.1 Der Beitrag der natürlichen Tritiumerzeugung

Der Hauptanteil des natürlich entstandenen Tritiums wird in der oberen Atmosphäre bei Kernreaktionen mit Stickstoff und Sauerstoff erzeugt. Die wichtigsten tritiumerzeugenden Reaktionen sind Spaltungen durch Protonen mit Energien oberhalb 100 keV sowie die Reaktionen $^{14}\text{N}(n, t)$, ^{12}C und $^{16}\text{O}(n, t)$ ^{14}N mit Sekundärneutronen aus der kosmischen Strahlung [4]. Die Angaben über die Tritiumproduktion in der Atmosphäre schwanken in einem weiten Bereich, nämlich von 0,09 bis 2,0 Tritiumatome pro cm^2 und Sekunde. Diese Schwankung entspricht Gleichgewichtswerten des Weltinventars von 12 bis 275 MCi [5].

Eine weitere Quelle für die Erzeugung von Tritium sind die spontane Spaltung von Uran und über (α, n) - Reaktionen ausgelöste Spaltungen von Uran und Thorium sowie Kernreaktionen. Dieser Beitrag zur Tritiumproduktion ist jedoch vernachlässigbar klein [6].

Der Vollständigkeit halber sei der Einfang von aus der Sonne ausströmendem Tritium in der Erdatmosphäre als weitere Quelle für natürliches Tritium erwähnt. Er wird zu 0,4 Tritiumatomen pro cm^2 sec. angegeben [7, 8].

1.2 Die Tritiumkontamination der Umwelt durch Kernwaffenversuche

Eine Sprengkraft äquivalent 1 kt TNT entspricht einer freigesetzten Energie von 0,13 Mwa. Dem entspricht also bei einer Spaltbombe eine Tritiumproduktion und -freisetzung von 0,68 Ci pro kt TNT. Bei der Explosion von thermonuklearen Bomben werden ca. 7 MCi Tritium/Mt TNT-Äquivalent freigesetzt. Zu der primären Freisetzung bei der eigentlichen Kernwaffenexplosion kommt noch die sekundäre Tritiumproduktion bei Kernreaktionen mit Sauerstoff, Stickstoff und Bombenmaterialien sowie auch evtl. verschiedene Materialien im Erdboden. Für thermonukleare Explosionen findet man hierfür Schätzwerte bis zu 50 MCi/Mt TNT äquivalent. Die Tritiumfreisetzung bei der Explosion thermonuklearer Bomben ist also ungleich höher als bei der Explosion von Spaltbomben. Die gesamte Freisetzung bei den vorausgegangenen Kernwaffenversuchen wurde auf $1,7 \cdot 10^9$ Ci Tritium geschätzt (vgl. z. B. [57]).

1.3 Der Beitrag der Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen

Tritium entsteht in Reaktoren durch Kernspaltung und eine Reihe von Kernreaktionen. Die Tritiumausbeute hängt vom Neutronenspektrum sowie den im Reaktor vorhandenen Materialien ab. In Tab. 4131-1 ist die Tritiumproduktion in verschiedenen Reaktortypen zusammengestellt. Die angegebenen Zahlen können dabei nur als Anhaltspunkte dienen, da der Zusammenhang zwischen Produktionsraten und der Spaltung von freigesetzter Energie in Wirklichkeit erheblich komplizierter ist (vgl. z. B. [37]).

Tritium wird aus Reaktoren durch Kühlmittleckagen freigesetzt. Dabei gelangt das Tritium teils in das Abwasser, teils in die Abluft. Die Freisetzungsraten hängen erheblich vom Reaktortyp ab. In Wiederaufarbeitungsanlagen werden die Brennelementhüllen zerstört, so daß das in den Brennelementen vorhandene, durch Spaltung entstandene Tritium freigesetzt wird und teils in Abwasser, teils in die Abluft gelangt.

Reaktortyp / Vorgang	Produktionsrate in Ci/MWa
Kernspaltung	ca. 5,2
Schwerwasserreaktoren	650 - 1100
Leichtwasserreaktoren	6,0 - 9,9
Na-gekühlter schneller Brüter	5,5 - 17,3

Tab. 4131-1: Tritiumproduktion in Reaktoren

Es wird geschätzt, daß gegen das Jahr 2000 das in Kernreaktoren vorhandene Tritium die Größenordnung des Weltinventars von Kernwaffenversuchen erreicht (vgl. z. B. [57]). Abb. 4131-1 gibt eine Vorabschätzung der Entwicklung des Tritiuminventars.

1.4 Die Kontamination der Umwelt durch Leuchtfarben und Beta-Lichtquellen

Erhebliche Mengen Tritium sind in Leuchtfarben enthalten. Darüberhinaus wird Tritium in Lichtquellen mit gasförmigem Tritium (Gaseous Tritium Light Sources) verwendet. Eine solche Lichtquelle besteht aus einem geschlossenen Glasgefäß, das innen mit einem Leuchtstoff ausgekleidet und mit Tritiumgas gefüllt ist. 1967 schätzte die USAEC, daß in der Welt $2 \cdot 10^5$ Ci/a in solchen Tritiumlichtquellen verwendet wurden [97]. Eine erhebliche Ausdehnung dieser Anwendung ist zu erwarten. Es entsteht daher ein Problem der Abfallbeseitigung. Wird die Anwendung nicht kontrolliert, kann auch die Abfallbeseitigung nicht kontrolliert werden, d. h. es ist zu erwarten, daß schließlich nach Erschöpfung der Leuchtkraft alles in tritiumhaltigen Lichtquellen noch vorhandene Tritium freigesetzt wird. Die Nuclear Energy Agency hat Radiation Protection Standards for Gaseous Light Devices herausgegeben, die diese Entwicklung steuern sollen [107].

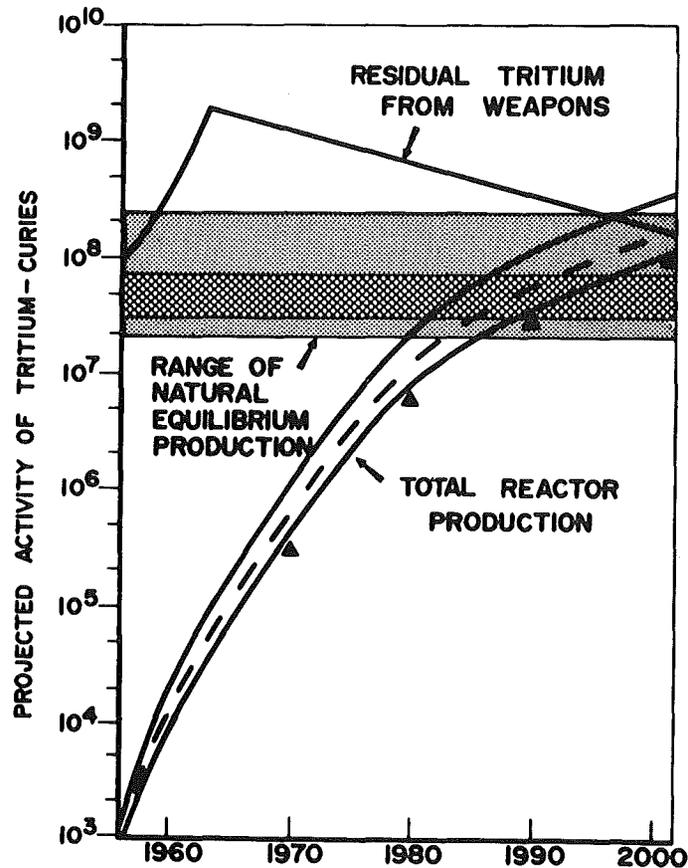


Abb. 4.131-1a: Vergleich der Tritiumaktivität von

- a) natürlicher Produktion breiter Bereiche =
Schwankungsbereich aller Schätzungen; enger Bereich =
Bereich der Schätzungen von höchster Wahrscheinlichkeit
- b) Tritiuminventar aus Kernwaffenversuchen unter der
Voraussetzung, daß keine weiteren Kernwaffenversuche
mehr durchgeführt werden
- c) Tritiuminventar in Kernreaktoren [57] (verschiedene
Schätzungen)

1.5 Der Beitrag der Kernfusion

Bei langfristigen Vorhersagen über die Tritiumkontamination muß auch die Kernfusion berücksichtigt werden. Eine leicht nachzuvollziehende

Abschätzung wird in der Literaturstelle [11] gegeben. Bei einer installierten Kraftwerksleistung von 10^6 MW - dies ist die Größenordnung des jetzigen Weltbedarfs an Strom - erhält man einen Tritiumbedarf von $4 \cdot 10^{11}$ Ci/a.

Während die Tritiumproduktion eines Schwerwasserreaktors 10^3 Ci/MWa beträgt, benötigt der Fusionsreaktor $4 \cdot 10^5$ Ci/MWa. Dies bedeutet, daß dem Tritiumproblem bei den Fusionsreaktoren erhebliche Beachtung gewidmet werden muß.

1.6 Die Verbreitung des Tritiums in der Umwelt

Tritium wird in der Umwelt mit dem zirkulierenden Wasser vermischt, dessen Gesamtvolumen auf $2,74 \cdot 10^{16}$ m³ geschätzt wird. Die Verdünnung von Tritium, das in die Umwelt freigesetzt worden ist, ist - entsprechend dem Wasserkreislauf - ein sehr komplizierter Vorgang. Abb. 4131-2 gibt hierüber einen Überblick [5]. Im einzelnen sind die Verdunstung aus Oberflächengewässern, aus dem Boden, der Ablauf des Wassers zum Meer, Verdünnung mit Grundwasser, Meeresströmung usw. zu berücksichtigen. Auch die Zivilisation beeinflußt den Wasserkreislauf in einer nicht vernachlässigbaren Weise. Die Vorgänge lassen sich durch einfache Ausbreitungsmodelle nicht hinreichend genau beschreiben, so daß eine meßtechnische Überwachung unbedingt erforderlich ist, um den Überblick über die Tritiumkontamination in der Umgebung vom Emittenten zu behalten. Tab. 4131-2 enthält eine grobe Wasserbilanz für die Bundesrepublik Deutschland und die Welt [3]. Die Werte sind in m/a (m³ pro m² Bodenfläche und Jahr) angegeben.

2. Das Tritiummeßprogramm

Von der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit wird im Rahmen des Projekts Nukleare Sicherheit und in Zusammenarbeit mit der IAEA in Wien in der engeren und weiteren Umgebung des Kernforschungszentrums

Karlsruhe ein umfassendes Tritiumüberwachungsprogramm durchgeführt, um den Tritiumgehalt in Grund-, Trink- und Oberflächenwasser sowie in Niederschlägen zu ermitteln.

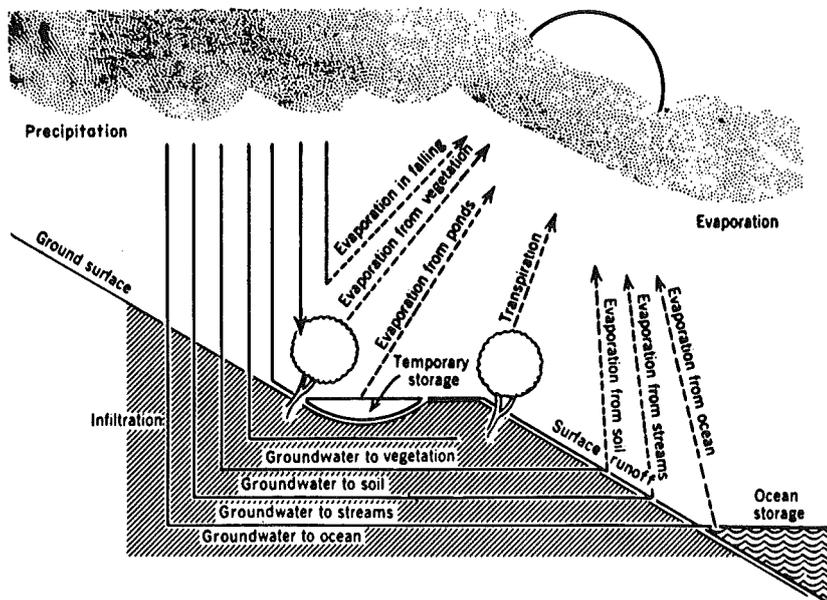


Abb. 413 1-2: Der Wasserkreislauf [1] (Aus L. D. Baver, Soil Physics, John Wiley u. Sons, Inc., New York, 1956)

		BRD	Welt
Niederschlag über Festland		0,80	0,66
Ablauf	Oberflächenwasser	0,30	0,25
	Grundwasser	0,09	
Verdunstung	Oberflächengewässer	0,01	0,41
	Boden- und Oberflächen	0,11	
	Pflanzen	0,29	

Tab. 413 1-2: Mittlere Wasserbilanz in m/a

2.1 Zur Notwendigkeit eines Tritiummeßprogramms

Der infolge des Wasserkreislaufes globale Charakter der Tritiumkontamination der Umwelt und die voraussehbare weltweit ansteigende Tritiumproduktion in der Zukunft sind allein Rechtfertigung genug, dem Nuklid Tritium besondere Aufmerksamkeit zu widmen. Dem Einwand, Tritium sei aufgrund seiner geringen Strahlungsenergie ein absolut harmloses Nuklid, muß man entgegenhalten, daß wegen der wassergebundenen Form, in der Tritium hauptsächlich auftritt, und wegen seiner relativ großen physikalischen Halbwertszeit von rund 12 Jahren, praktisch die gesamte Bevölkerung mit dem Trinkwasser Tritium inkorporiert.

Im Sinne des manrem-Konzeptes ist damit eine nicht vernachlässigbare Strahlenbelastung gegeben.

Außer durch diese allgemeinen Aspekte wurde die Durchführung eines Tritiummeßprogrammes durch die Tritiumableitungen aus den beiden Schwerwasserreaktoren im Kernforschungszentrum, FR 2 ($44 \text{ MW}_{\text{th}}$) und MZFR ($200 \text{ MW}_{\text{th}}$), und aus einer Wiederaufarbeitungsanlage (maximaler Durchsatz 40 t bestrahltes Uran pro Jahr; mittlerer Abbrand $20\,000 \text{ MWd/t}$) nahegelegt. 1972 lagen die Tritiumfreisetzungen aus den beiden Reaktoren in die Luft unter $0,5\%$ des Inventars. Da das Tritiuminventar (z. Z. $6,1 \text{ Ci/l}$ für den FR 2, $3,9 \text{ Ci/l}$ für den MZFR) um 1 Ci/l.a zunimmt, ist ein weiterer Anstieg der Tritiumfreisetzung zu erwarten. Dasselbe gilt für das aus der Wiederaufarbeitungsanlage freigesetzte Tritium, da diese Anlage zukünftig sowohl größere Mengen von Brennstoff als auch Brennstoff mit höherem Abbrand zu verarbeiten haben wird. Die Tritiumfreisetzung im Abwasser hat einen wachsenden Anteil an den gesamten Tritiumfreisetzungen aus dem Kernforschungszentrum und beträgt z. Z. mehr als die Hälfte der Gesamtfreisetzungen. Es ist daher beabsichtigt, tritiumhaltige Abwässer, die frei von sonstigen radioaktiven Stoffen sind, in eine erschöpfte Erdölbohrung einzupumpen, aus der bisher aus einer Tiefe von rund 1000 m ungefähr $20\,000 \text{ m}^3$ eines Öl-Wasser-Gemisches herausgepumpt worden sind.

Sowohl die Tritiumfreisetzungen als auch die beabsichtigte Tieflagerung machen eine sorgfältige Überwachung der Umgebung des Kernforschungszentrums auf Tritium notwendig. Es liegt nahe, diese Überwachung mit der Untersuchung ökologischer Fragen zu verbinden, zumal Tritium mit einem relativ kleinen Aufwand in nahezu allen Umgebungsproben gemessen werden kann. Ein solches Forschungsprogramm setzt die Kenntnis des Tritiumuntergrundes in der Umgebung voraus. Dieser Nullpegel kann aber nur in Proben gemessen werden, die in ausreichendem Abstand vom Kernforschungszentrum genommen wurden.

2.2 Das Probenahmeprogramm

Das Probenahmeprogramm umfaßt den Bereich der Oberrheinischen Tiefebene zwischen Mannheim und Kehl. Abb. 3 zeigt den Lageplan der Probenahmestellen. Abb. 3 enthält ferner eine Tabelle mit Angaben über die Zahl der Probenahmestellen, die Probenahmehäufigkeit und die Zahl der jährlich untersuchten Proben. 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 [12, 13].

Im Rahmen dieses Programms werden jährlich knapp 2000 Wasserproben auf Tritium ausgemessen.

Unabhängig davon finden gezielte Probenahmen im Zusammenhang mit der Überwachung der Abwasserableitungen aus dem Kernforschungszentrum statt. Neben der Überwachung des Tritiumgehalts in den Endpufferbecken der Kläranlage (jährlich 800 bis 1000 Proben) werden regelmäßig an 6 Stellen des Vorflutersystems Oberflächenwasserproben genommen (ca. 230 Proben pro Jahr). Weitere Wasserproben stammen aus der Umgebung der Kernkraft-

werke Niederaichbach, Gundremmingen, Philippsburg und Neckarwestheim. Die Messung dieser Proben erfolgt im Auftrag der Kraftwerksbetreiber (insgesamt ca. 300 Proben pro Jahr).

Insgesamt wird also jährlich - mit Ausnahme der Endbeckenüberwachung - die Tritiumkonzentration in rund 2500 Wasserproben bestimmt.

2.3 Meß- und Auswerteverfahren

Die Bestimmung der Tritiumkonzentration der Wasserproben erfolgt mit Hilfe der Flüssigkeitszintillationsmeßtechnik. Nur diese Meßtechnik erlaubt ohne vorangehende Anreicherung des Tritiums die Messung ganzer Probserien mit vertretbarem Aufwand und mit hinreichender Empfindlichkeit.

Zur Durchführung des Meßprogramms stehen zwei Flüssigkeitszintillationspektrometer der Fa. Packard Instr. mit ausgesuchten Photomultipliern zur Verfügung. Die bei diesen Geräten 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 Chemo- und Photolumineszenzeffekten dient auch ein anschließendes 2-stündiges Tempern der Proben bei ca. 70°C. Nach Abkühlung der Proben auf die Meßtemperatur von 11°C im Flüssigszintillationsspektrometer werden die Proben 50 min. lang gemessen.

Bei einer für reine Tritiummessungen optimalen Meßkanaleinstellung, einem Nulleffekt von 4 ipm und Zählwirkungsgraden von, je nach Quenckgrad, 14 bis 16 %, lassen sich Nachweisgrenzen für die Tritiumkonzentration von 0,2 bis 0,25 pCi/ml erzielen.

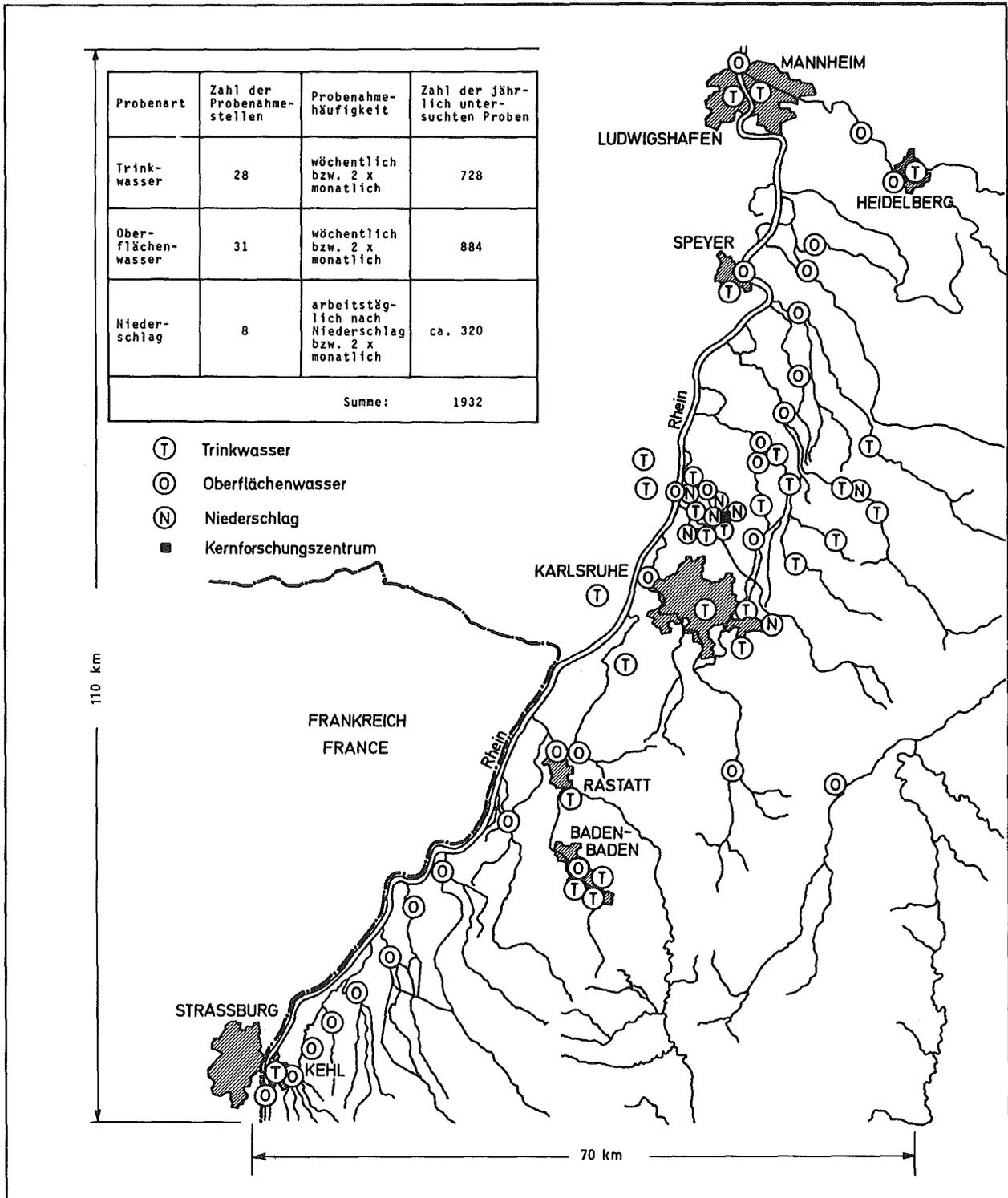


Abb. 4131-3: Probenahmeprogramm und Lageplan der Probenahmestellen in der Oberrheinischen Tiefebene zwischen Mannheim und Kehl

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

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

Hierin bedeuten R_M und R_O 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.

Die Einzelmeßwerte für Grund-, Trink- und Oberflächenwasserproben werden arithmetisch gemittelt und für jede Probenahmestelle zu Monatsmittelwerten der Tritiumkonzentration zusammengefaßt. Bei Niederschlägen werden die Einzelmeßwerte zur Bildung des Monatsmittelwertes mit der Niederschlagsmenge gewichtet. Außerdem wird die monatlich mit dem Niederschlag der Flächeneinheit des Bodens zugeführte Tritiumaktivität ermittelt. Zur Gewinnung von Anschaulichkeit der Meßergebnisse werden die Monatsmittelwerte für jede Probenahmestelle in Jahresdiagrammen graphisch dargestellt. Für Fehlerrechnung und Auswertung steht ein Kleinrechner zur Verfügung. Die graphischen Darstellungen (siehe Abb. 4 bis 9) werden von einer programmgesteuerten Teletype-Schreibmaschine erstellt.

Die in den graphischen Darstellungen der Monatsmittelwerte "schraffierten" Bereiche repräsentieren außer dem Meßfehler jene Unschärfe, die sich bei der Mittelwertbildung aus der Behandlung von Meßwerten unterhalb der Nachweisgrenze ergibt. Für Meßwerte unterhalb der Nachweisgrenze kann alternativ 0 oder der Betrag der Nachweisgrenze selbst bei der Mittelwertbildung eingesetzt werden. Die sich hieraus zusätzlich zu den Meßfehlern ergebende Aussageunschärfe ist in den schraffierten Bereichen enthalten.

3. Meßergebnisse

3.1 Die Tritiumemissionen des Kernforschungszentrums Karlsruhe

Die Kenntnis der Tritiumfreisetzungen des Kernforschungszentrums ist für eine Beurteilung von Meßergebnissen von Proben, die aus der unmittel-

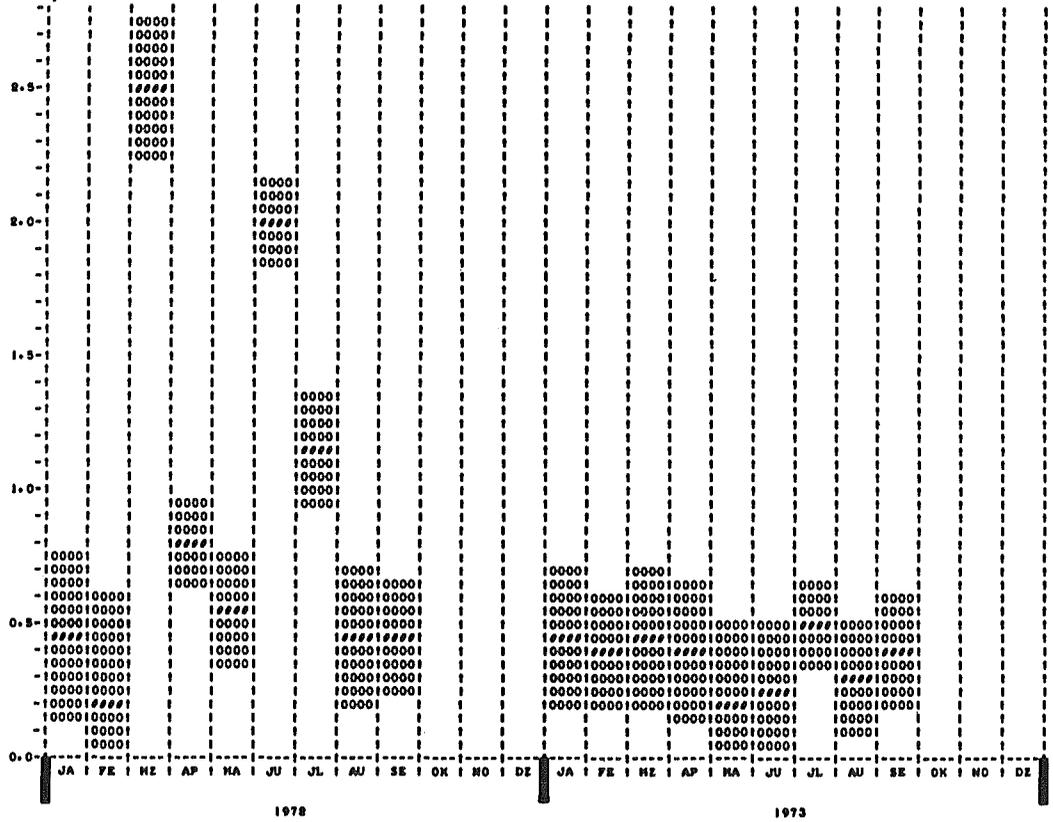
baren Umgebung des Zentrums stammen, unerlässlich. Die jährlichen Tritiumfreisetzungen mit der Abluft und dem Abwasser wurden für die letzten Jahre in Tab. 4131-3 zusammengestellt.

Die Überwachung des Oberflächenwassers im Vorflutersystem erfolgt lediglich durch regelmäßige Stichproben, da durch die Endbeckenkontrolle die Abwasserableitungen genau bekannt sind. Bei solchen Stichproben wurden im Altrhein bei Leopoldshafen kurz unterhalb der Abwassereinleitung Tritiumkonzentrationsspitzenwerte bis zu $1,5 \cdot 10^4$ pCi/ml gefunden. Selbst dieser Einzelwert liegt noch um den Faktor 2 unter der maximal zulässigen Konzentration für Tritium in Anlage II der 1. SSVO. Im Abwasser führenden Rheinkanal ergaben sich ca. 12 km flußabwärts nur noch Höchstwerte im Bereich von ca. 20 pCi/ml.

	Tritiumableitungen in Ci bis 30.9. 1973			
	1970	1971	1972	1973
Abluft	2100	2654	1874	1078
Abwasser	602	735	2126	1400
Gesamt-ableitungen	2702	3389	4100	2478

Tab. 4131-3: Tritiumableitungen mit Abwasser und Abluft aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe seit 1970

pCi/m¹



nCi/m²

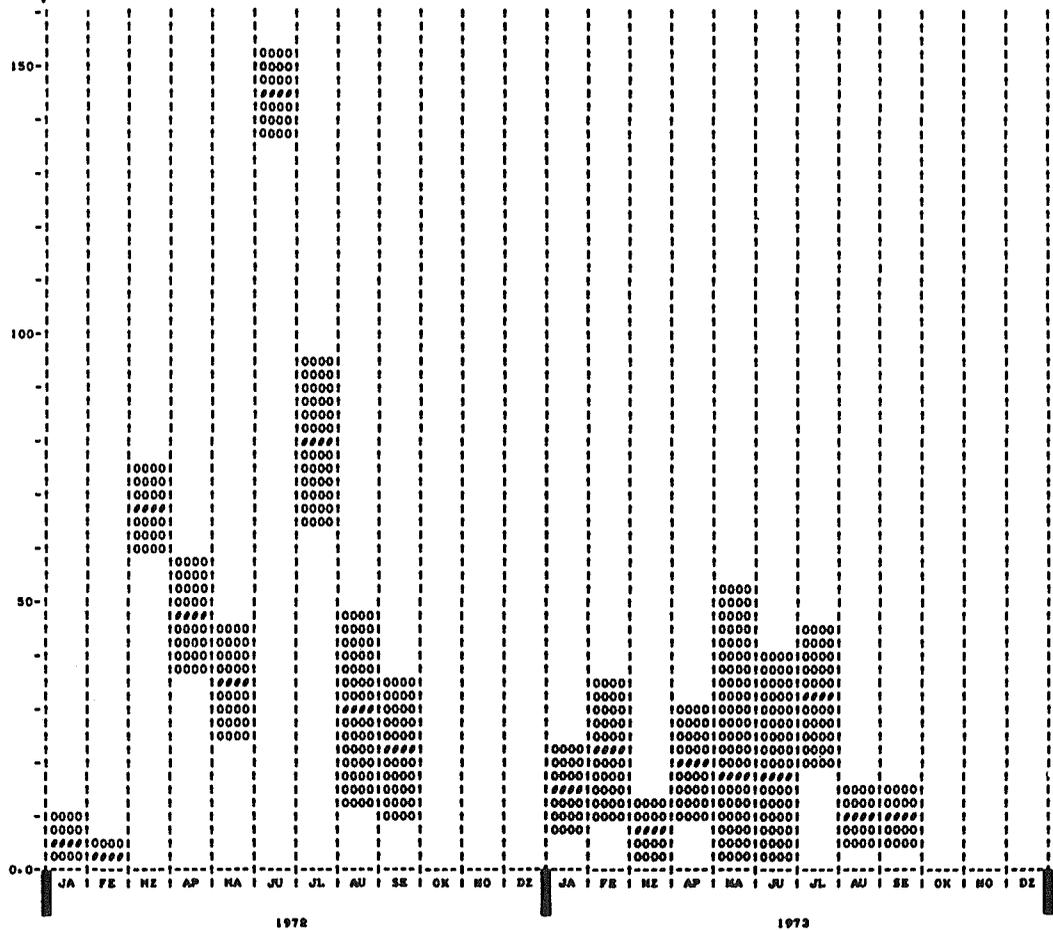
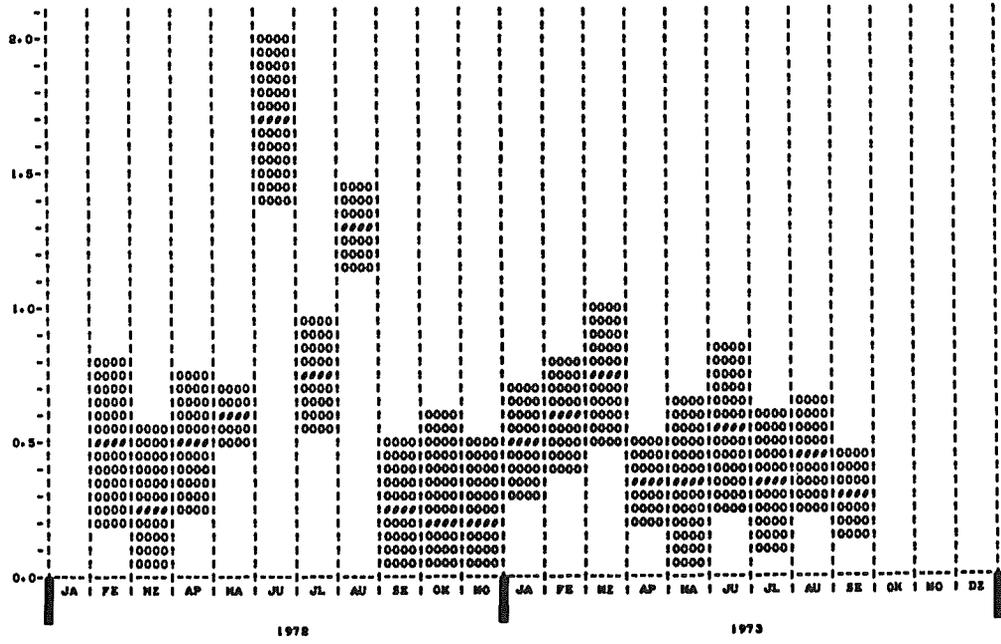


Abb. 4131-4:

TRITIUM IM NIEDERSCHLAG (KONZENTRATION UND FLÄCHENBELASTUNG), BRUCHSAL

pCi/ml



nCi/m²

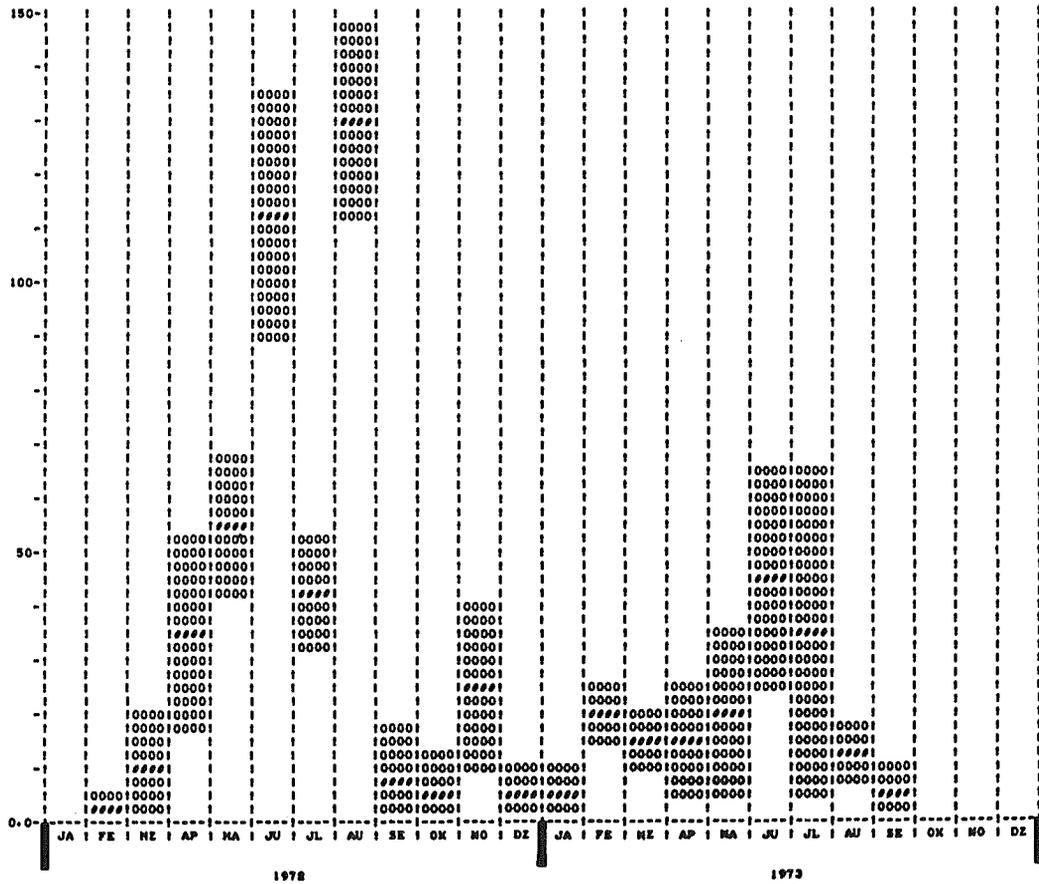


Abb. 4131-5: TRITIUM IM NIEDERSCHLAG (KONZENTRATION UND FLÄCHENBELASTUNG), AUGUSTENBERG

nCi/m²

pCi/ml

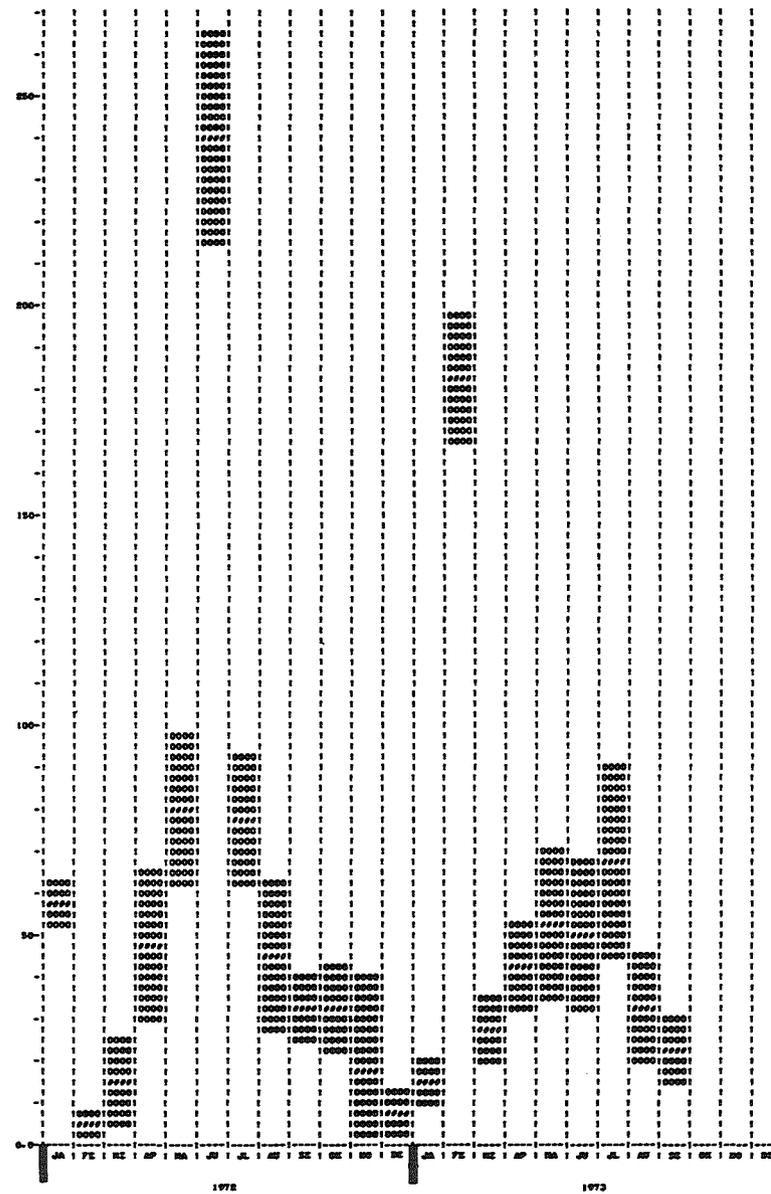
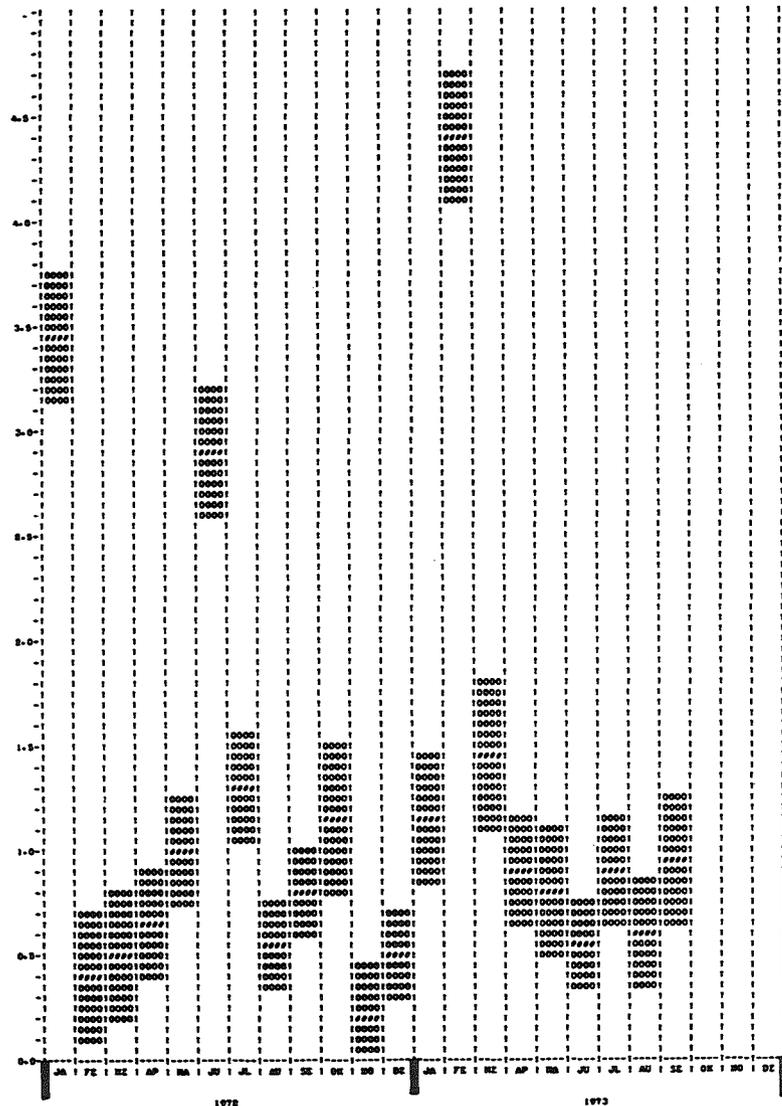


Abb. 4131-6:

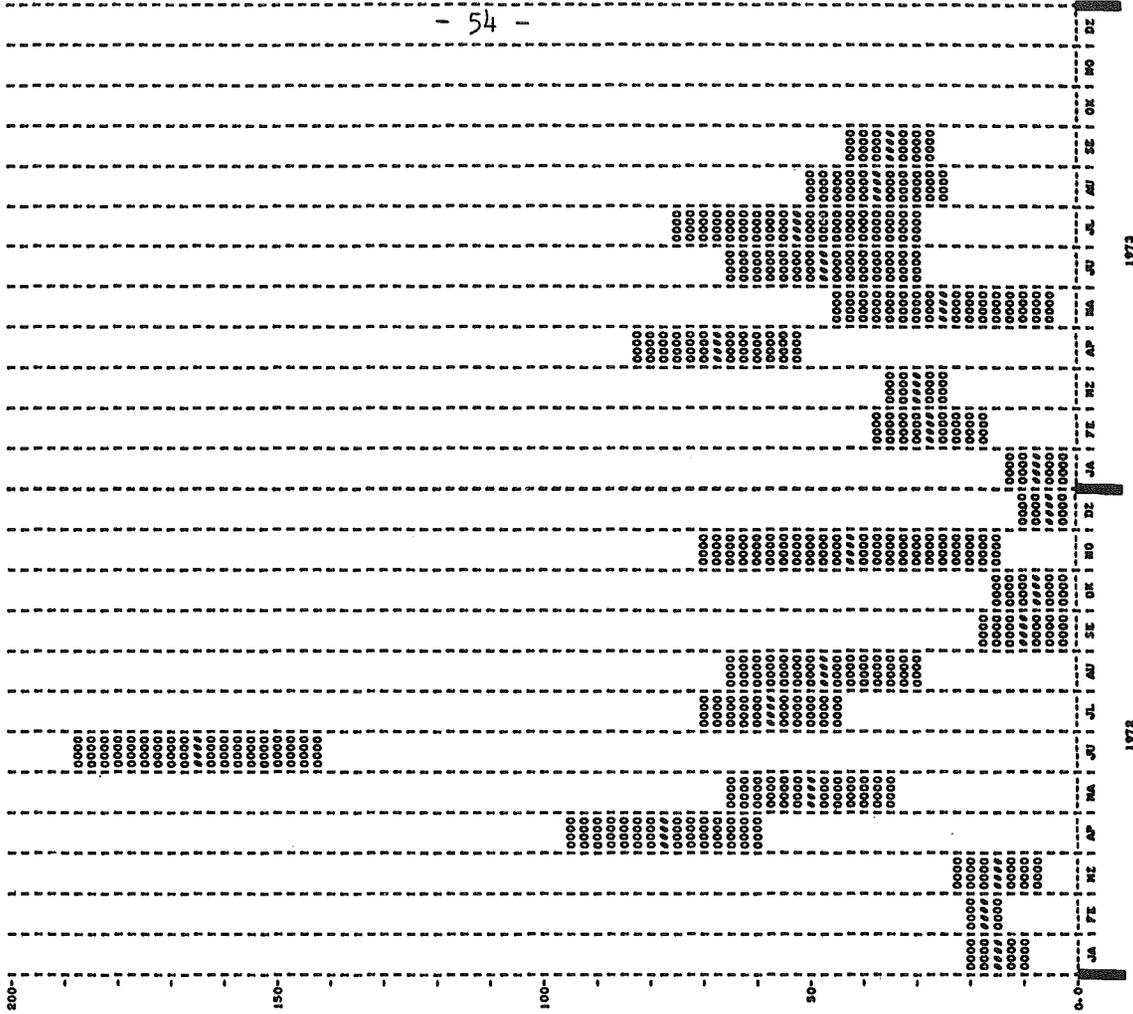
TRITIUM IM NIEDERSCHLAG, (KONZENTRATION UND FLÄCHENBELASTUNG),

MESSHUTTE NORD-OST

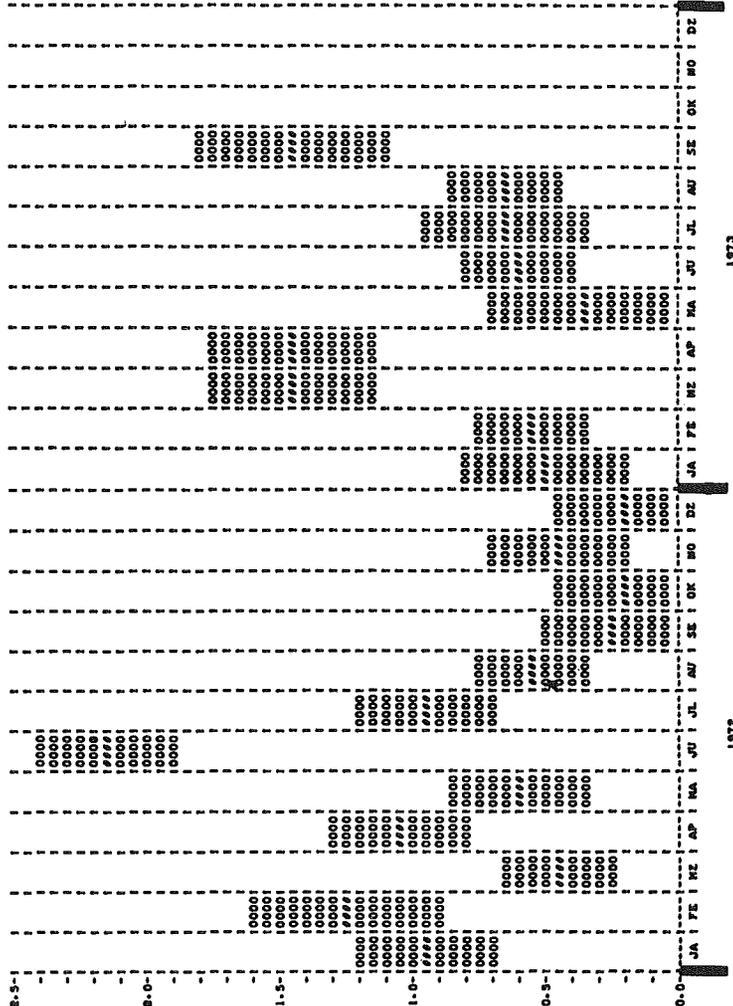
Abb. 413 1-7: TRITIUM IM NIEDERSCHLAG
(KONZENTRATION UND FLÄCHENBELASTUNG),

MESSHOTTE WEST

nCi/m²



pCi/ml



3.2 Bestimmung des Tritiumgehalts in Niederschlägen

Die Abbildungen 4131-4 bis 4131-7 zeigen die an 4 verschiedenen Niederschlagssammelstellen ermittelten monatlichen Tritiumwerte für 1972 und 1973. Jede Abbildung enthält 2 Diagramme: den zeitlichen Verlauf der Tritiumkonzentration des Niederschlags und den zeitlichen Verlauf der Tritiumflächenbelastung. Abb. 4131-4 und Abb. 4131-5 zeigen die Meßergebnisse für Bruchsal und den Augustenberg bei Grötzingen. Diese beiden Niederschlagssammelstellen sind rund 11 km vom Kernforschungszentrum entfernt. Es kann deshalb angenommen werden, daß die hier gefundenen Tritiumwerte nicht oder kaum von den Tritiumemissionen des Kernforschungszentrums beeinflusst sind.

Der zeitliche Verlauf der Flächenbelastung läßt für beide Sammelstellen und für beide Jahre Maxima in der Jahresmitte erkennen. Die Ursachen für diese Maxima liegen sowohl in der erhöhten Niederschlagstätigkeit während der Sommermonate als auch in einem verstärkten Transport von Tritium aus der Stratosphäre in die dem Wettergeschehen unterworfenen Troposphäre. Genauere Erklärungen dieser Transportvorgänge, ihres zeitlichen Verlaufes und ihrer Abhängigkeit von der geographischen Breite sind noch Gegenstand meteorologischer Forschungen.

Der Verlauf der monatlichen Flächenbelastung unterscheidet sich aufgrund der unterschiedlichen monatlichen Niederschlagsmengen z. T. erheblich von dem zugehörigen Verlauf der mittleren Tritiumkonzentration.

Die Abbildungen 4131-6 und 4131-7 zeigen die Meßergebnisse für die Niederschlagssammler auf den beiden Meßhütten des Kernforschungszentrums. Die Standorte der beiden Meßhütten an der Geländegrenze entsprechen grob den beiden statistischen Hauptwindrichtungen⁺. Sowohl die Höhe der hier gemessenen Tritiumkonzentrationen als auch ihr jahreszeitlicher Verlauf spiegeln den Einfluß der Tritiumemissionen des Kernforschungszentrums deutlich wieder. Auch das durch Multiplikation mit den monatlichen Niederschlagsmengen sich ergebende Bild der monatlichen Flächenbelastungen unterscheidet sich durch immissionsbedingte Nebenmaxima noch deutlich von dem Verlauf, der sich für die weit außerhalb des Kernforschungszentrums liegenden Sammelstellen ergibt.

⁺ bezogen auf den FR 2

Standorte der Niederschlags-sammler	1.1. - 30.9.1972			1.1. - 30.9.1973		
	M mm	\bar{a} nCi/l	A_F nCi/m ²	M mm	\bar{a} nCi/l	A_F nCi/m ²
<u>innerhalb KFZ</u>						
Dach Bau 123 ⁺	343	1,70	583	392	0,91	357
Meßhütte West	476	0,95	452	424	0,78	331
Meßhütte NO	475	1,26	599	411	1,20	493
WAK	486	0,98	476	464	0,65	302
<u>außerhalb KFZ</u>						
Augustenberg ⁺⁺ (Grötzingen)	465	0,85	395	406	0,43	175
Bruchsal	429	1,02	438	460	0,33	152
Eggenstein	424	0,87	369	532	0,46	245
WW Tiefgestade (Leopoldshafen)	491	0,72	354	447	0,40	179
Raum Philipps- burg ⁺⁺⁺ (Misch- probe 3 Stellen)	-	-	-	559	0,44	246
Speyer ⁺⁺⁺	-	-	-	331	0,43	142
Niederstotzingen	-	-	-	299	0,51	152
Buchmühle	-	-	-	303	0,41	124
Mittelwerte für Stellen außerhalb des KFZ:		0,87	389		0,43	177

⁺ ohne März 1972, ⁺⁺ ohne Januar 1972, ⁺⁺⁺ ohne Januar 1973

Tab. 4131-4: Vergleich der Niederschlagsmengen M, der mittleren Tritiumkonzentration \bar{a} und der Tritiumflächenbelastung A_F für Sammelstellen innerhalb und außerhalb des KFZK. Angaben für die jeweils ersten 9 Monate 1972 und 1973.

Eine Übersicht über die Niederschlagsmeßergebnisse von insgesamt 12 Sammelstellen (ab 1973 einschließlich der Sammelstellen von den Kernkraftwerken Gundremmingen und Philippsburg) gibt Tab. 4131-4. Die Meßwerte bis Ende September 1973 wurden den Meßwerten des entsprechenden Zeitraums des Vorjahres gegenübergestellt. Die Tabelle enthält die Niederschlagsmengen für jeweils 9 Monate, die über 9 Monate gemittelten Tritiumkonzentrationswerte und die über diesen Zeitraum summierte Flächenbelastung.

Betrachtet man die außerhalb des Zentrums liegenden Sammelstellen als eindeutig von Tritiumemissionen unbeeinflusst (die ausgezeichnete Übereinstimmung der Konzentrationswerte 1973 für Orte in der Umgebung des Zentrums und für den Raum Philippsburg und Gundremmingen kann als Beweis dafür angesehen werden), so ist es gerechtfertigt, über die Meßwerte von diesen Sammelstellen zu mitteln. Dabei ergibt sich für 1972 ein Konzentrationsmittelwert von $0,87 \text{ nCi/l}$ und eine Flächenbelastung von 389 nCi/m^2 . Die entsprechenden Werte für 1973 liegen mit $0,43 \text{ nCi/l}$ und 177 nCi/m^2 um rund 50 % niedriger. Extrapoliert man die bis Ende September 1973 erhaltene Flächenbelastung bis zum Jahresende, so ergibt sich für 1973 eine allgemeine Tritiumflächenbelastung von ca. $0,2 \text{ Ci/km}^2$.

Verglichen mit diesen Werten wurden in beiden Jahren an den 4 Sammelstellen innerhalb des Zentrums wesentlich höhere Tritiumkonzentrationen und Flächenbelastungen gefunden. Trotz des Rückgangs der Flächenbelastung gegenüber 1972 auch an diesen Sammelstellen zeigt sich nach Abzug des aus der Atmosphäre stammenden Tritiumanteils, daß der emissionsbedingte Anteil gegenüber dem Vorjahr leicht zugenommen hat. Eine Zuordnung solcher Meßwerte zu den Tritiumemissionen des Zentrums setzt die Kenntnis der Fälle voraus, in denen bei Niederschlägen nennenswerte Emissionen mit passenden Windrichtungen zusammentreffen. Die Heranziehung relevanter meteorologischer Meßdaten soll in Zukunft solche Zuordnungen erlauben.

3.3 Bestimmung des Tritiumgehalts von Oberflächenwasser

Seit Juli 1972 wird die Tritiumkonzentration von 25 Oberflächengewässern (Rhein und 24 rechtsrheinische Zuflüsse) durch regelmäßige Probenahmen an 31 verschiedenen Stellen überwacht. Mit der Überwachung des Rheins bei Leopoldshafen, der Alb bei Marxzell und der Enz bei Neuenbürg wurde bereits im Januar 1971 begonnen.

Den zeitlichen Verlauf der mittleren monatlichen Tritiumkonzentration des Rheins bei Leopoldshafen, und der Alb bei Marxzell in den Jahren 1971, 1972 und 1973 zeigt Abb. 8. Die mittlere Tritiumkonzentration des Rheins war stets deutlich höher als die der Alb. Diese Aussage gilt auch für alle anderen rechtsrheinischen Zuflüsse. Die Tritiumkonzentration des Rheins zeigt bis 1972 eine fallende Tendenz. Dieser allgemein abnehmenden Tendenz war 1971 und 1972 ein jahreszeitlicher Gang mit Maxima in der Jahresmitte überlagert, der dem jahreszeitlichen Gang des Tritiumgehalts im Niederschlag entsprach. Ein solcher jahreszeitlicher Gang ist 1972 nicht mehr eindeutig erkennbar. Ebensowenig kann 1973 eine weitere Abnahme der Tritiumkonzentration im Rhein festgestellt werden. Bei Speyer und Mannheim sind die Konzentrationsmittelwerte gegenüber dem Vorjahr sogar geringfügig angestiegen.

Die Untersuchung der 24 rechtsrheinischen Zuflüsse des Rheins ergibt ebenfalls kein einheitliches Bild. Im Neckar bei Heidelberg und in allen Rheinzufüssen zwischen Kehl und Rastatt sind die mittleren Tritiumkonzentrationen - verglichen mit 1972 - konstant geblieben oder haben leicht zugenommen. Für alle anderen Probenahmestellen, im Gebiet zwischen Rastatt und Mannheim, ergaben sich geringere Konzentrationen als 1972.

Bemerkenswert ist auch, daß sowohl 1972 wie 1973 die Oberflächengewässer in der südlichen Hälfte des Gebietes Mannheim-Kehl im Mittel deutlich höhere Tritiumkonzentrationen aufweisen als die

Gewässer in der nördlichen Hälfte. Eine befriedigende Erklärung dieser Ergebnisse, die eine gewisse Gesetzmäßigkeit vermuten lassen, wurde noch nicht gefunden. Unterschiedliche Anteile der aus Dörfern und Städten in die Flüsse eingeleiteten Abwässer, die wiederum zu einem relativ hohen Anteil aus tritiumarmem Grundwasser bestehen, scheinen hierbei eine Rolle zu spielen.

Während 1972 die Tritiumkonzentrationen in allen Oberflächengewässern noch unter der Tritiumkonzentration im Niederschlag lagen, trifft dies 1973 nur noch für die kleinen Gewässer zu. Die mittlere Tritiumkonzentration von Rhein und Neckar liegt 1973 mit 0,6 bis 0,7 pCi/ml deutlich über dem Mittelwert von 0,43 pCi/ml für Niederschlag (s. Tab. 4131-4).

Tab. 5 enthält eine Häufigkeitsverteilung der Probenahmestellen mit - innerhalb bestimmter Meßwertintervalle - gleichen Konzentrationsmittelwerten. Trotz der 1972 und 1973 unterschiedlichen Beobachtungszeiträume (mit dem Meßprogramm wurde in vollem Umfang erst im Juli 1972 begonnen) macht die Verteilung deutlich, daß das Häufigkeitsmaximum für Oberflächengewässer unverändert im Intervall von 0,3 - 0,5 pCi/ml liegt. Eine geringe Verschiebung zu kleineren Werten hin deutet sich an.

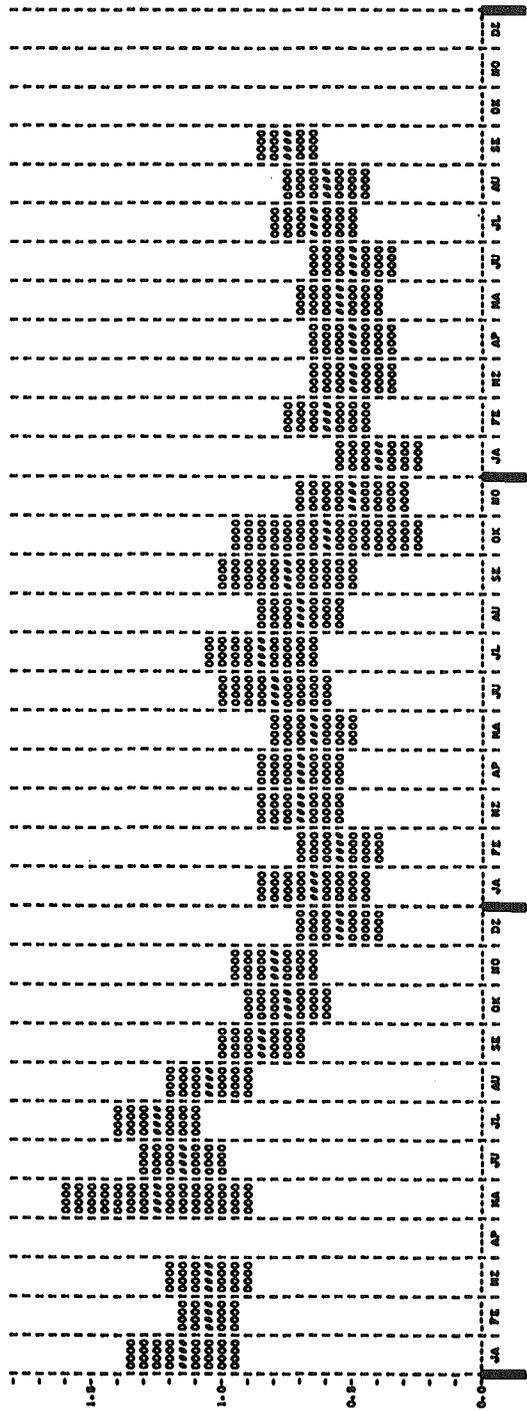
3.4 Bestimmung des Tritiumgehalts von Trinkwasser

Die entsprechende Häufigkeitsverteilung für die 28 Trinkwasserentnahmestellen zeigt ebenfalls Tab. 5. Im Gegensatz zum Oberflächenwasser ist hier ein Rückgang der Konzentrationsmittelwerte gegenüber dem Vorjahr zu erkennen. Mit wenigen Ausnahmen hat die mittlere Tritiumkonzentration gegenüber 1972 um rund 20 % abgenommen. Dieser Rückgang korrespondiert offensichtlich mit dem Rückgang der Tritiumflächenbelastung durch die Niederschläge.

pCi/ml

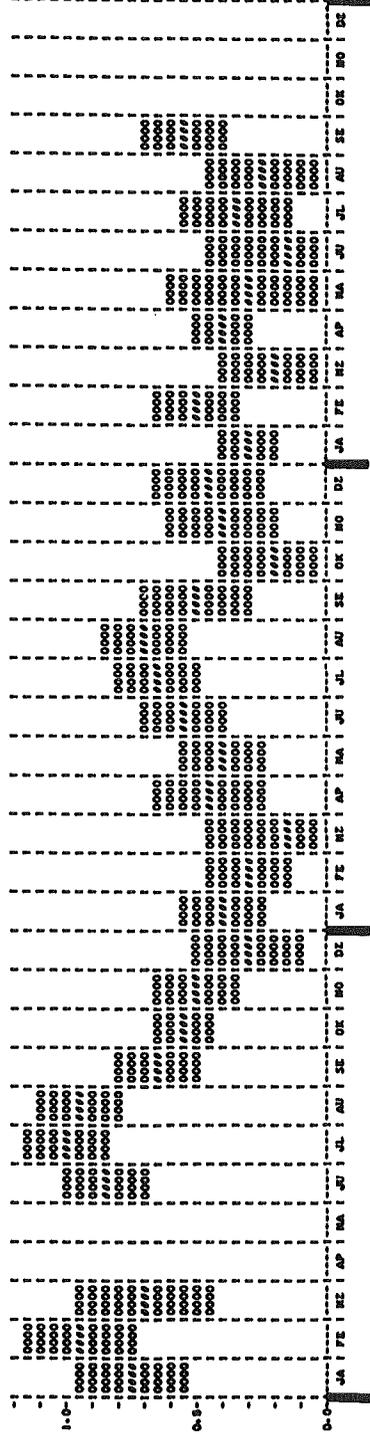
Abb. 4131-8:

TRITIUMKONZENTRATION IM
OBERFLÄCHENWASSER



RHEIN BEI
LEOPOLDSHAFEN

pCi/ml



ALB BEI
MARXZELL

1970

1971

1972

1973

1970

1971

1972

1973

Probenart	Zahl der Probenahmestellen	Beobachtungszeitraum	Zahl der Probenahmestellen mit einem Tritiumkonzentrationsmittelwert in pCi/ml von				
			< 0,3	0,3-0,5	0,5-0,7	0,7-1,0	1,0-1,5
Trinkwasser	28	2. Halbj. 1972	16	7	5	0	0
		Jan.-Sept.1973	18	8	2	0	0
Oberflächenwasser	31	2. Halbj. 1972	8	15	6	1	1
		Jan.-Sept.1973	12	15	4	0	0

Tab. 4131-5: Häufigkeitsverteilungen der Zahl der Probenahmestellen mit - innerhalb bestimmter Meßwertintervalle - gleichen Mittelwerten der Tritiumkonzentration für Trink- und Oberflächenwasser

Abb. 9 zeigt den Verlauf der Monatsmittelwerte der Tritiumkonzentration von Trinkwasser für 1972 und 1973 an zwei verschiedenen Probenahmestellen. Es handelt sich um die beiden Wasserwerke des Kernforschungszentrums mit den Bezeichnungen "Wasserwerk Tiefgestade" und "Wasserwerk Süd". Das Wasserwerk "Tiefgestade" liegt in unmittelbarer Nähe des Rheinufer (Entfernung 350 m), während das Wasserwerk "Süd" innerhalb des Betriebsgeländes des Kernforschungszentrums liegt und damit rund 5 km vom Rhein entfernt ist.

Die Tritiumkonzentration des Trinkwassers aus dem Tiefgestade liegt deutlich höher als im Trinkwasser vom Wasserwerk "Süd". Außerdem lassen die Konzentrationswerte einen ausgeprägten jahreszeitlichen Gang erkennen, der dem Gang der Tritiumkonzentration im Rhein sehr ähnlich ist. Hieraus läßt sich der Schluß ziehen, daß das Trinkwasser aus dem Wasserwerk "Tiefgestade" zu einem erheblichen Teil aus uferfiltriertem Rheinwasser besteht. Demgegenüber zeigt die Tritiumkonzentration

tration des Trinkwassers von Wasserwerk "Süd", bei dem es sich offenbar um "reines" Grundwasser handelt, keine wesentlichen Schwankungen. Während sich 1972 in der Jahresmitte noch ein deutliches Konzentrationsmaximum ergab, das durch die verstärkte Tritiumzufuhr aus den Niederschlägen erklärt werden kann, zeigt der Verlauf 1973 nur noch statistische Schwankungen.

Die Diagramme für alle anderen Trinkwasserprobenahmestellen entsprechen, je nach den Standorten der zugehörigen Wasserwerke, jeweils einem der beiden Diagramme in Abb. 9, die damit zwei typische Beispiele repräsentieren.

Geht man davon aus, daß die Tritiumkonzentration im menschlichen Körper im Mittel der Tritiumkonzentration des Trinkwassers entspricht, so erhält man bei Konzentrationen, wie sie 1973 das Trinkwasser aus dem Wasserwerk "Süd" des Kernforschungszentrums aufweist, einen Schätzwert für die Strahlenbelastung von 0,06 mR/a. Trinkwasser, das vorwiegend Oberflächengewässern entstammt, wäre eine Strahlenbelastung im Bereich von 0,1 mR/a zuzuordnen.

4. Ausdehnung des Meßprogrammes auf Pflanzenproben

Im Rahmen des bisher durchgeführten Meßprogrammes wurden fast ausschließlich Grund-, Trink- und Oberflächenwasser und Niederschläge untersucht. Mit der Ausdehnung des Meßprogrammes auf die Untersuchung des Tritiumgehalts von Pflanzen wurde begonnen.

Zur Gewinnung des in Pflanzen enthaltenen Wassers wurden parallel zwei Verfahren angewendet: 1. Die Vakkumtrockendestillation, bei der das Pflanzenwasser durch Erwärmung der Probe unter Vakuum ausgetrieben und in Kältefallen gesammelt wird und 2. die azeotrope Destillation mit Xylol.

Erste Untersuchungen von Gasproben aus dem Nahbereich des Kernforschungszentrums lieferten Nullpegelwerte im Bereich von 0,6 bis 3 pCi ^3H /ml Pflanzenwasser.

Die von uns durchgeführten Ausbreitungsexperimente mit tritiiertem Wasserdampf als Tracer bieten die Möglichkeit, die Tritiumaufnahme von Pflanzen aus der Luft durch Probenahmen von Pflanzen im Immissionsgebiet vor und nach einem Ausbreitungsexperiment gezielt zu untersuchen.

Während des letzten Ausbreitungsexperimentes wurden auf zwei Bogenstücken im Ausbreitungssektor an jeweils 5 Stellen vor und nach der Immission Grasproben genommen. Die an diesen Stellen im Pflanzenwasser gefundenen Konzentrationserhöhungen zeigten qualitativ die gleiche örtliche Verteilung wie die Tritiumkonzentration der Luft während des Ausbreitungsexperimentes.

Literatur

- [1] D. G. Jacobs: Sources of Tritium and its Behaviour upon Release to the Environment, TID-24 635 (1968; 1971)
- [2] R. Boehnert, H. Bonka: Zu erwartende Tritiumverunreinigung durch Kernreaktoren in der Luft und im Wasser bei homogener Verteilung bis zum Jahr 2000, Jül-763-RG, Mai 1971
- [3] L. A. König: Umweltbelastung durch Tritium, KFK 1560, Februar 1972
- [4] L. A. Currie, W. F. Libby, R. L. Wolfgang: Physical Review, 101, 1557 (1956)
- [5] H. T. Peterson, Jr., J. E. Martin, C. L. Weaver, E. D. Harward: Environmental Tritium Contamination from Increasing Utilization of Nuclear Energy Sources, IAEA-SM-117/78, STI/PUB/226, 35 (1969)

- [6] S. Kaufman, W. F. Libby: *Physical Review*, 93, 1337 (1954)
- [7] J. R. Arnold, B. Feld: private Mitteilung, zitiert in
F. Begemann, W. F. Libby: *Geochimica et Cosmochimica Acta*,
12, 227 (1957)
- [8] E. Flamm, R. E. Lingenfelter, G. J. F. MacDonald, W. F. Libby:
Science, 138, 48 (1962)
- [9] USAEC Report "The Nuclear Industry 1967", Atomic Industrial
Forum, Chicago, 1967
- [10] NEA, OECD: Radiation Protection Standards for Gaseous Tritium
Light Devices, 1973
- [11] D. J. Rose: *Health Physics*, 18, 439 (1970)
- [12] L. A. König, M. Winter: Über die Tritiumkontamination der Umwelt,
Symposium "Die Radioökologie, angewendet auf den Schutz des Men-
schen und seiner Umwelt", Rom, 7. - 10. 9. 1971, EUR 4800
- [13] L. A. König, M. Winter: Investigation of the Tritium Level in
the Environment of the Karlsruhe Nuclear Research Center,
3. IRPA-Kongreß, Washington, September 1973

- 4134 Untersuchungen der langfristigen radiologischen Umgebungsbelastung durch eine Anhäufung von nuklearen Anlagen
(A. Bayer, F. Hilbert, Rosemarie Kalckbrenner, T. N. Krishnamurthi)

Tritium

Es wurden die Tritiumkonzentrationen wie sie in Zukunft im Flußwasser des Oberrheins zu erwarten sind, berechnet. Aus Abb. 4134-1 ist ersichtlich die bis zum Jahr 2000 zu erwartende Tritiumkonzentration, herrührend von der natürlichen Tritiumproduktion und oberirdischen Kernwaffentests (Inventar 1962 : 6000 MCi). Das aus kerntechnischen Anlagen der nördlichen Industriezone (30° - 75° N) freigesetzte Tritium stellt bei homogener Vermischung innerhalb der Hydrosphäre dieses Gürtels bis zum Jahr 2000 nur einen unwesentlichen Beitrag.

Dieser Konzentration, verursacht durch globale Quellen, überlagert sich regional das Tritium aus lokalen Quellen. Unter Zugrundelegung der im Betrieb und im Bau befindlichen kerntechnischen Anlagen und der bekanntgewordenen Bauabsichten für die nächsten Jahre wurden die von den regionalen Quellen zu erwartenden Tritiumkonzentrationen berechnet. Für einige Orte (Basel, Karlsruhe, Mannheim und Mainz) ist der zeitliche Anstieg bis 1985 in Abb. 4134-3 dargestellt.

Das Ergebnis der Überlagerung des globalen Tritiums mit dem im Einzugsbereich des Oberrheins aus kerntechnischen Anlagen freigesetzten Tritium ist aus Abb. 4134-4 ersichtlich. Demnach setzt sich die jetzige Abnahme der Tritiumkonzentration bis etwa 1975/1978 fort, um danach aufgrund der inzwischen in größerer Zahl in Betrieb genommenen kerntechnischen Anlagen wieder anzusteigen. Extrapoliert man den Anstieg der Tritiumfreisetzung im Oberrheingebiet (Abb. 4134-3) linear bis ins Jahr 2000, so ergibt sich bei mittlerer Abflußrate bei Mainz eine Konzentration von ca. $1\mu\text{Ci}/\text{m}^3$. Dies entspricht etwa der Konzentration des Jahres 1972. Bei mittlerer niedriger Abflußrate verdoppelt sich dieser Wert auf $2\mu\text{Ci}/\text{m}^3$ und liegt damit noch unter dem Grenzwert von $3\mu\text{Ci}/\text{m}^3$.

Bei diesen Berechnungen blieben noch unberücksichtigt mögliche Stilllegung von Anlagen innerhalb des betrachteten Zeitraums (z. B. MZFR ca. 10^3 Ci/a), die Erweiterung von Anlagen (Tritiumanfall der WAK bei voller Auslastung ca. 10^4 Ci/a), sowie die geplante Tief Lagerung von Tritium.

Radio-Edelgase

Anhand veröffentlichter Erfahrungswerte von in Betrieb befindlichen kerntechnischen Anlagen wurden die Freisetzungsraten von radioaktiven Edelgasisotopen zusammengestellt. Die erhaltenen Werte werden als Eingangsdaten für vorausschauende Studien zur zukünftigen radiologischen Belastung benötigt.

Wiederaufarbeitungsanlagen stellen die größten Quellen radioaktiver Edelgasisotope dar. Es wurde deshalb eine Abklingzeit-Dekontaminationsfaktor-Parameterstudie durchgeführt für eine 1500 t/a Wiederaufarbeitungsanlage (Abb. 4134-5). Unter der Auflage, daß die Dosisgrenze von 30 mrem/a nicht überschritten wird, wurden für verschiedene vorgegebene Dekontaminationsfaktoren die erforderlichen Mindest-Abklingzeiten berechnet (Abb. 4134-6).

Eine besondere Bedeutung unter den Edelgasisotopen kommt dem Krypton-85 zu, das aufgrund seiner relativ langen Halbwertszeit ($T_{1/2} = 10,8$ a) sich in der Atmosphäre akkumuliert. Unter Zugrundelegung von Energiebedarfsvorhersagen und des prognostizierten Einsatzes der Kerntechnik wurden die bis zum Jahr 2000 global zu erwartenden Kr-85-Konzentrationen und -Dosisraten berechnet. Wie aus Abb. 4134-7 hervorgeht, ist ohne den Einsatz von Edelgasabtrennanlagen im Jahr 2000 eine Dosisrate von ca. 5 mrem/a zu erwarten. Bei Einsatz von Abtrennanlagen liegen die Dosisraten entsprechend niedriger.

Veröffentlichungen

A. Bayer, Rosemarie Kalckbrenner, T. N. Krishnamurthi :

"Die zukünftige Tritium-Belastung des Oberrheins",

Reaktortagung 1974 Berlin

F. Hilbert :

"Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Edelgasisotopen durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000",

Unveröffentlichter Bericht (1974)

G. Grathwohl:

Erzeugung und Freisetzung von Tritium durch Reaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche Belastung bis zum Jahr 2000

Bericht: KFK-Ext. 4/73-36 (1973)

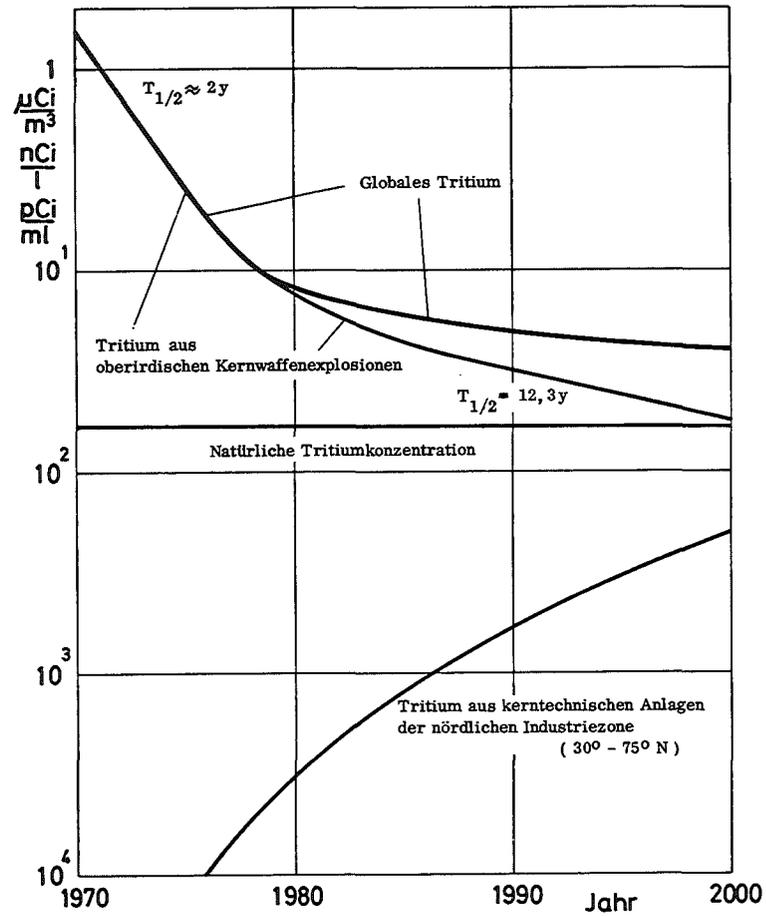


Abb. 4134-1:

Tritium-Konzentrationen durch oberirdische Kernwaffenexplosionen, natürliche Tritiumproduktion und Freisetzung aus Kerntechnischen Anlagen der nördlichen Industriezone (30° - 75° N) bis zum Jahr 2000

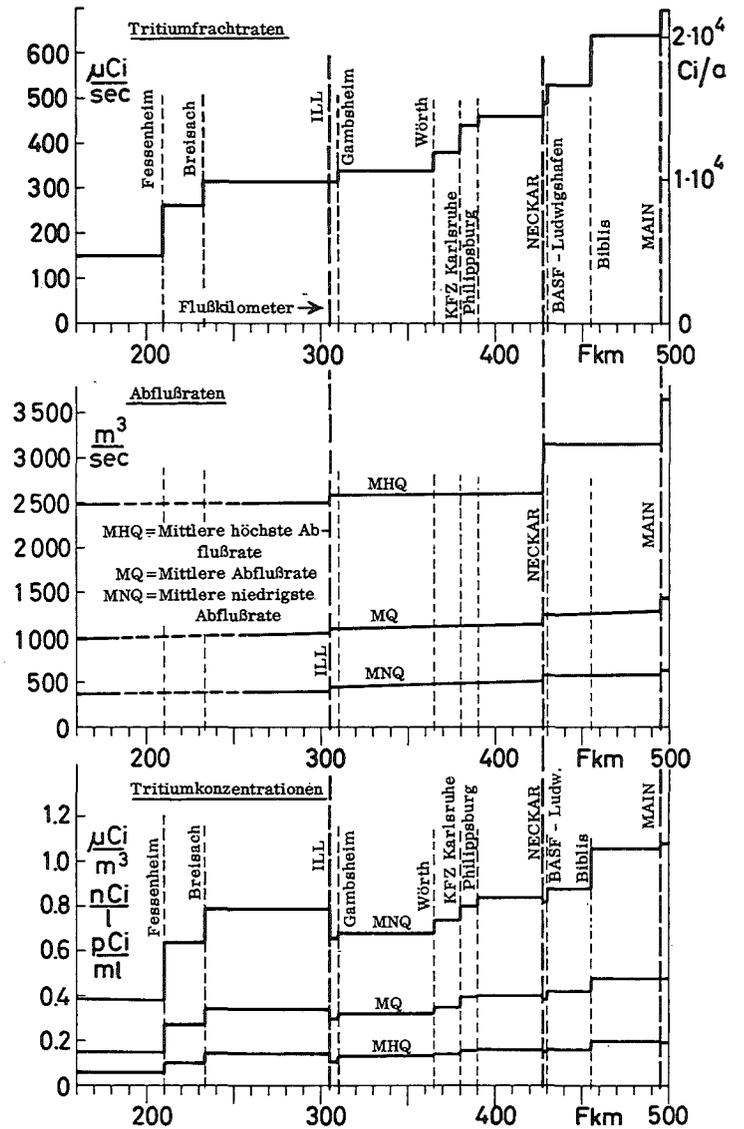


Abb. 4134-2:

Tritiumfrachtraten, Abflußraten und Tritiumkonzentrationen des Oberrheins im Jahr 1985 durch Kerntechnische Anlagen im Einzugsgebiet des Oberrheins

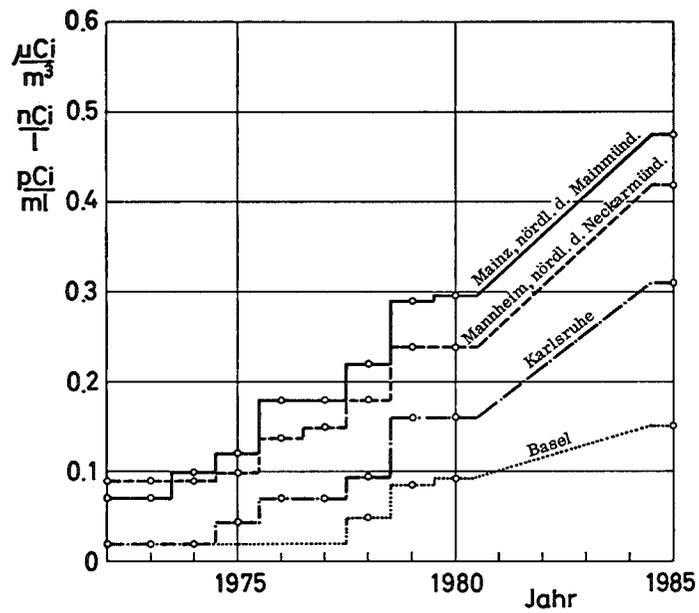


Abb. 4134-3: Zeitliche Zunahme der Tritiumkonzentration bis zum Jahr 1985 durch kerntechnische Anlagen im Einzugsgebiet des Oberrheins bei mittlerer Abflußrate (MQ)

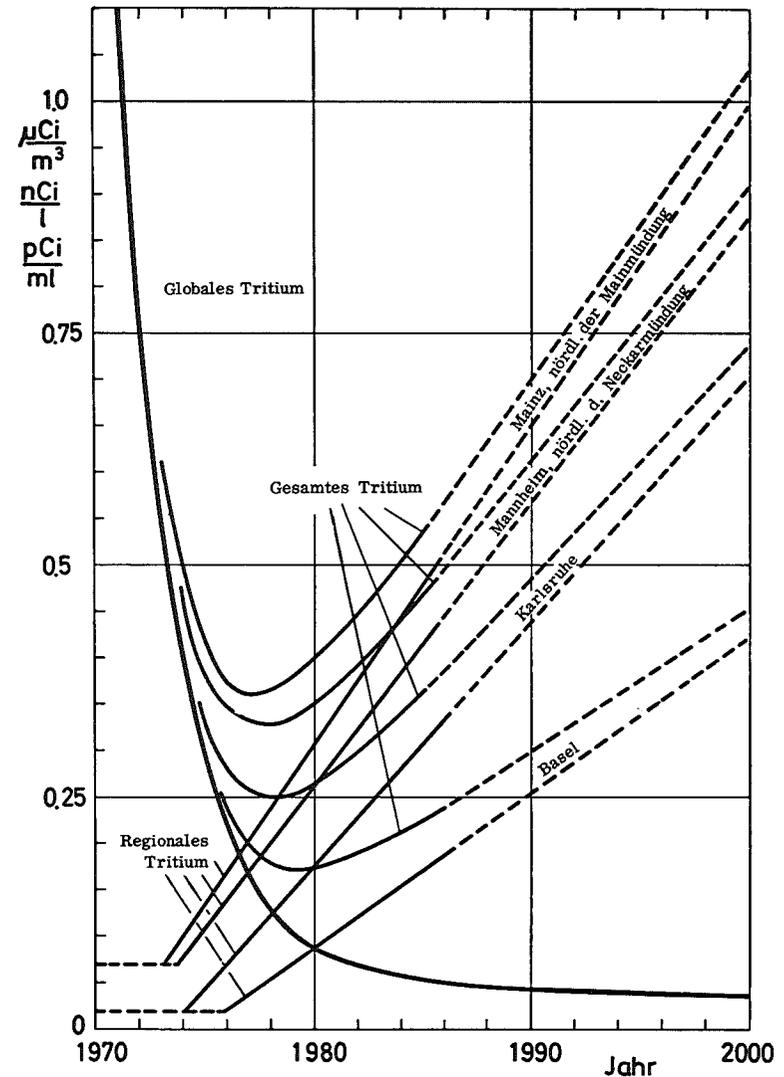


Abb. 4134-4: Die Gesamt-Tritiumkonzentration bis zum Jahr 1985 und bis zum Jahr 2000 (linear extrapoliert) durch globales Tritium (Abb. 1) u. regionales Tritium (Tritium aus kerntechnischen Anlagen im Einzugsgebiet des Oberrheins, Abb. 3) bei mittlerer Abflußrate (MQ)

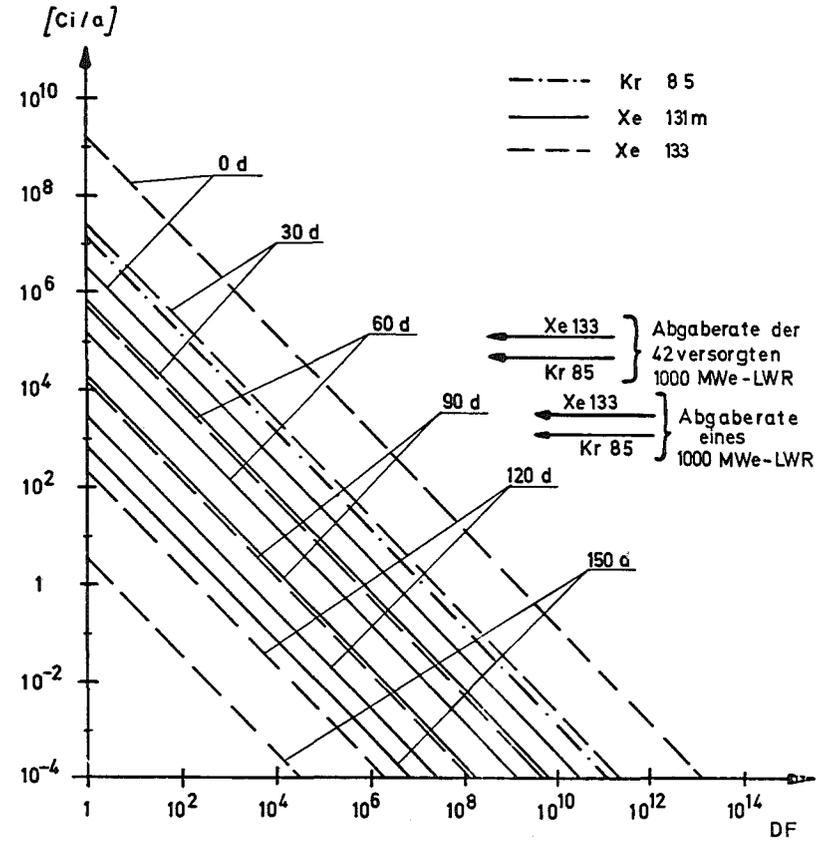


Abb. 4134-5: Edelgasabgaberraten einer 1500 t/a -Wiederaufarbeitungsanlage bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren und Abklingzeiten.

LWR-Brennstoff : Mittlerer Endabbrand : 26 000 MWd/t
 Mittlere spez. Belastung : 25 MWd/t

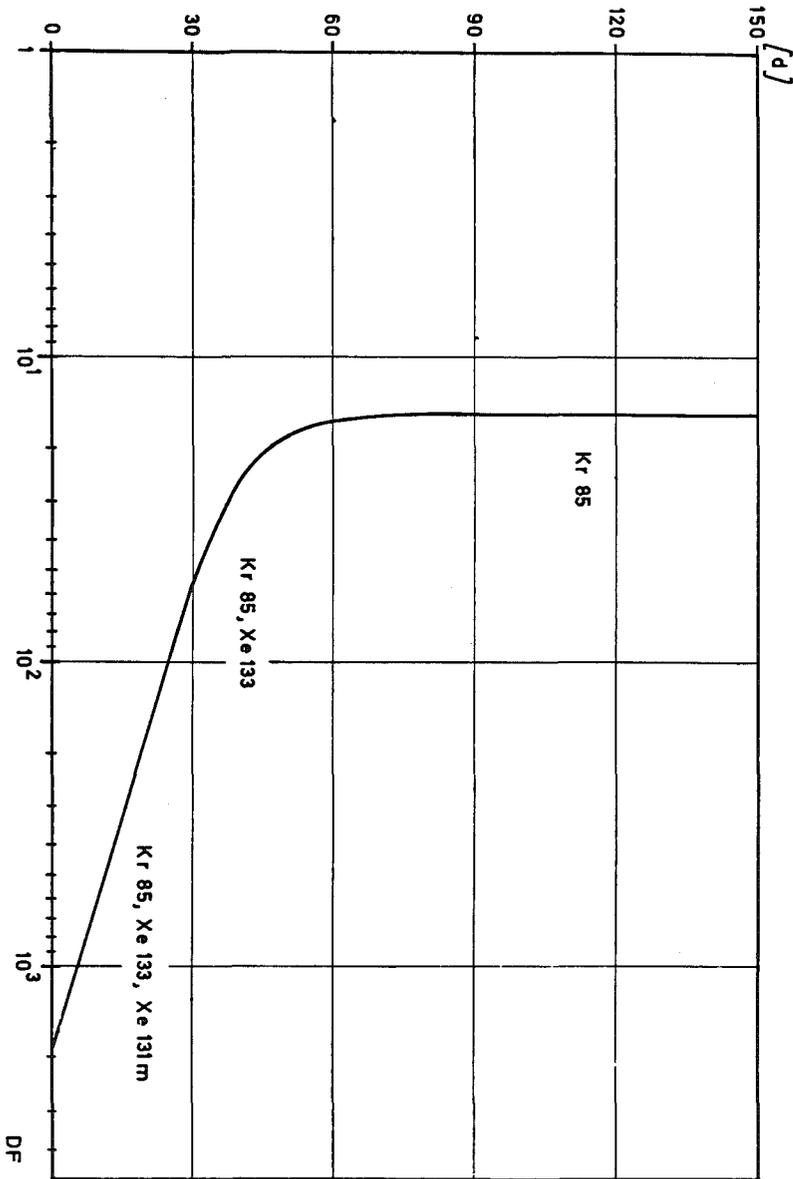


Abb. 4134-6: Erforderliche Abklingzeiten bei der Aufarbeitung von 1500 t/a -Brennstoff bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren.

Abklingkammer : H = 100 m
 Windhichtigkeit · Ausbreitungsfaktor : $p \cdot j = 5 \cdot 10^{-7} \text{ sec/m}^3$

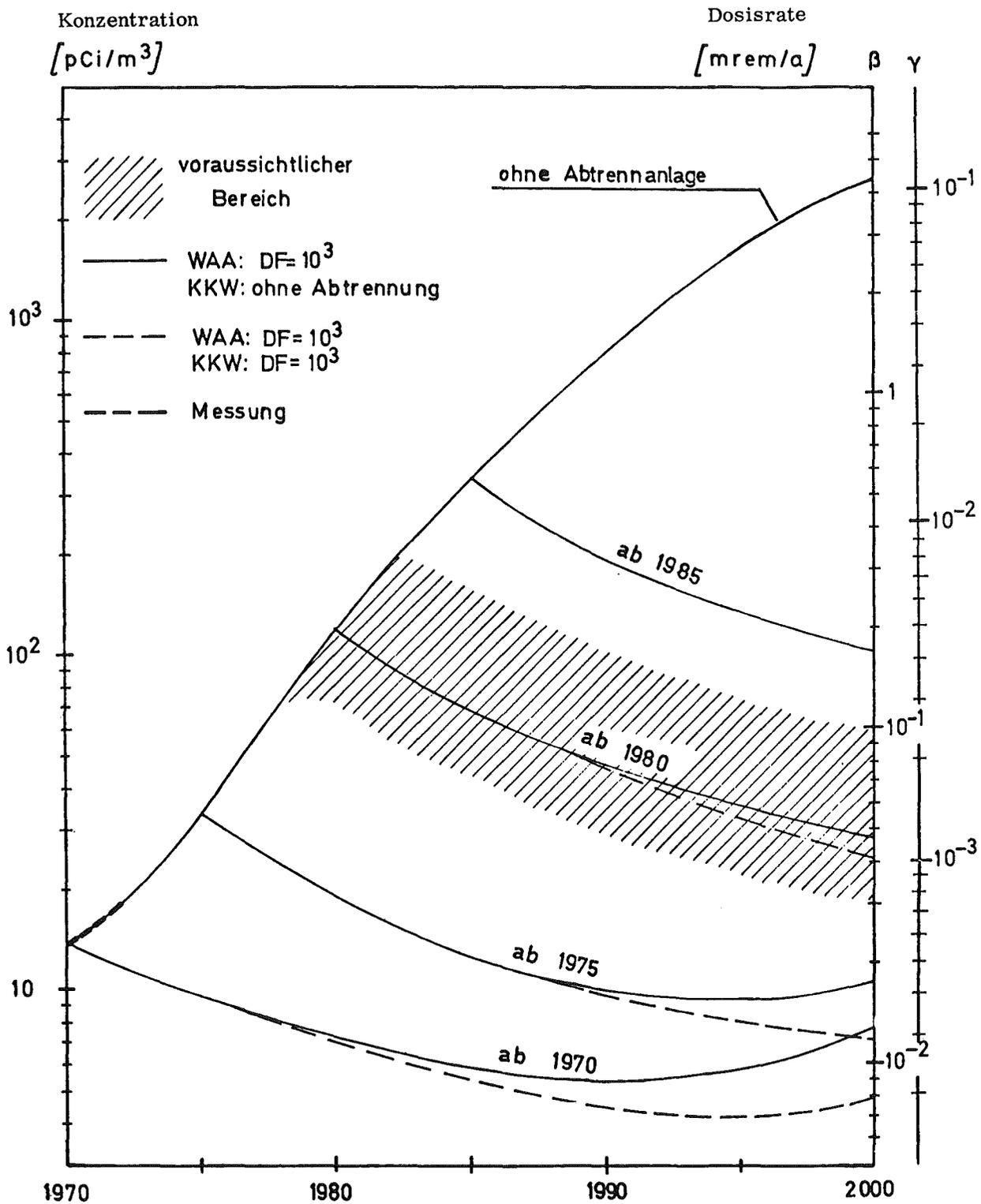


Abb. 4B4-7: Krypton-85 - Konzentrationen und -Dosisraten in der nördlichen Industriezone (30° - 75°) durch Freisetzung aus Kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000 unter Berücksichtigung des Einsatzes von Abtrennanlagen.

KKW = Kernkraftwerke
 WAA = Wiederaufarbeitungsanlagen
 DF = Dekontaminationsfaktor

4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen
(R. v. Ammon, IHCH; C. H. Leichsenring, PNS-PL;
H. Glatthaar, Dr. Lehmer, Linde AG)

Von den bekannten Abtrennverfahren für radioaktive Spaltedelgase aus der Abluft zukünftiger großer Wiederaufarbeitungsanlagen werden zwei Verfahren in Projektstudien gemeinsam mit der Industrie eingehend diskutiert:

1. Die Absorption der Edelgase in Freon (Frigen)
2. Die Edelgasabschneidung durch Tieftemperatur-Rektifikation.

Die gemeinsam mit der Fa. Nukem durchgeführte Studie zum ersten Verfahren, das im 1. Halbjahresbericht 1973 des PNS (KFK 1859) beschrieben wurde, wurde im Berichtszeitraum fertiggestellt.

Das Fließschema des zweiten Verfahrens, das gemeinsam mit der Fa. Linde AG bearbeitet wird, wird im folgenden geschildert (Abb 4140-1).

Bei der Festlegung des Referenz-Abgases wurde davon ausgegangen, daß es aus einer WA-Anlage stammt, in der täglich 5 t LWR-Brennstoff (Abbrand 30000 MWd/t, 150 d Kühlzeit) aufgearbeitet werden. Von dem aus dem Auflöser kommenden Abgasstrom von $170 \text{ m}^3/\text{h}$ sollen $50 \text{ m}^3/\text{h}$ entnommen werden.

Vorreinigung

Nach Durchlaufen eines Rücklaufkondensators zur Abkühlung des Gases und zur Kondensation eines großen Teils des enthaltenen Wasserdampfes gelangt der Gasstrom in einen Verweilbehälter, wo NO zu NO_2 oxidiert wird; sodann tritt das Gas in eine HNO_3 -Waschkolonne ein, in der eine mindestens 50%-ige Rückbildung der Stickoxide zu HNO_3 stattfindet.

Diese wird wieder dem Auflöser zugeleitet.

Nach Verlassen eines Jodfilters besitzt das Gas etwa folgende Zusammensetzung:

N ₂	33,5 Nm ³ /h
O ₂	8,0 "
Ar	0,5 "
NO _x	5,5 "
H ₂ O	2,5 "

CO₂, Co, Kr, Xe, J, sowie alle Luft-Verunreinigungen.

Das Gas wird sodann in einem Wasserringkompressor auf 6 bar verdichtet. Die Stickoxide und der Sauerstoff werden nun unter Zugabe von Wasserstoff katalytisch an einem Edelmetall-Katalysator reduziert. Dieser Schritt ist notwendig, da im nachfolgenden Tieftemperatur-Rektifikationsschritt flüssiger Sauerstoff im β -Strahlenfeld des Kr-85 zu un-tolerierbar hohen Ozonkonzentrationen Anlaß geben würde. Die Anwesenheit von Stickoxiden würde zu Verstopfungen durch Ausfrieren führen.

Zur katalytischen Verbrennung werden 28 Nm³/h Wasserstoff zugespeist. Um eine Flammenverbrennung zu vermeiden, soll die Konzentration an O₂ und NO_x zusammen weniger als 3 Mol - % betragen. Dazu wird ein Gasstrom von 520 Nm³/h hinter dem nachfolgenden Wasserabscheider abgezweigt und mit Hilfe eines Gebläses dem Gasstrom vor dem Gebläse wieder zugeführt.

Tieftemperatur-Teil

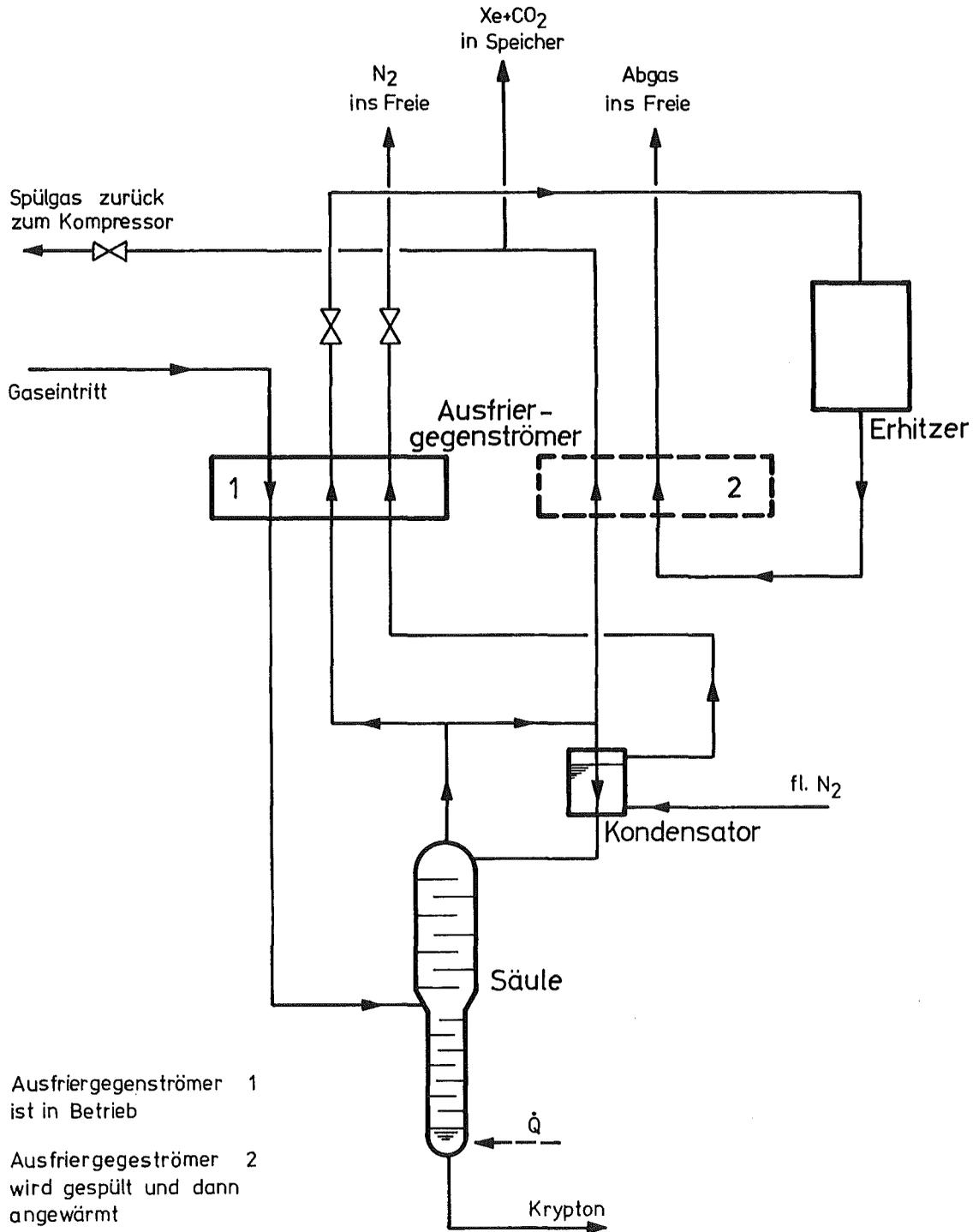
Nach Abscheiden der großen gebildeten Wassermengen, Trocknen des Gasstromes über Silicagel oder Molekilsieben, sowie Feinfilterung der verbliebenen Jodreste, wird Xe zusammen mit CO₂ bei 95°K in einem Ausfriergegenströmer ausgefrozen (Abb 4140-2).

Etwa 0,4 % des eingespeisten Krypton werden dabei adsorptiv an Xenon- und CO_2 -Schnee festgehalten und müssen anschließend durch Spülen mit $1 \text{ Nm}^3/\text{h}$ Stickstoff desorbiert werden. Der Kryptonverlust wird dabei 0,01 % nicht überschreiten.

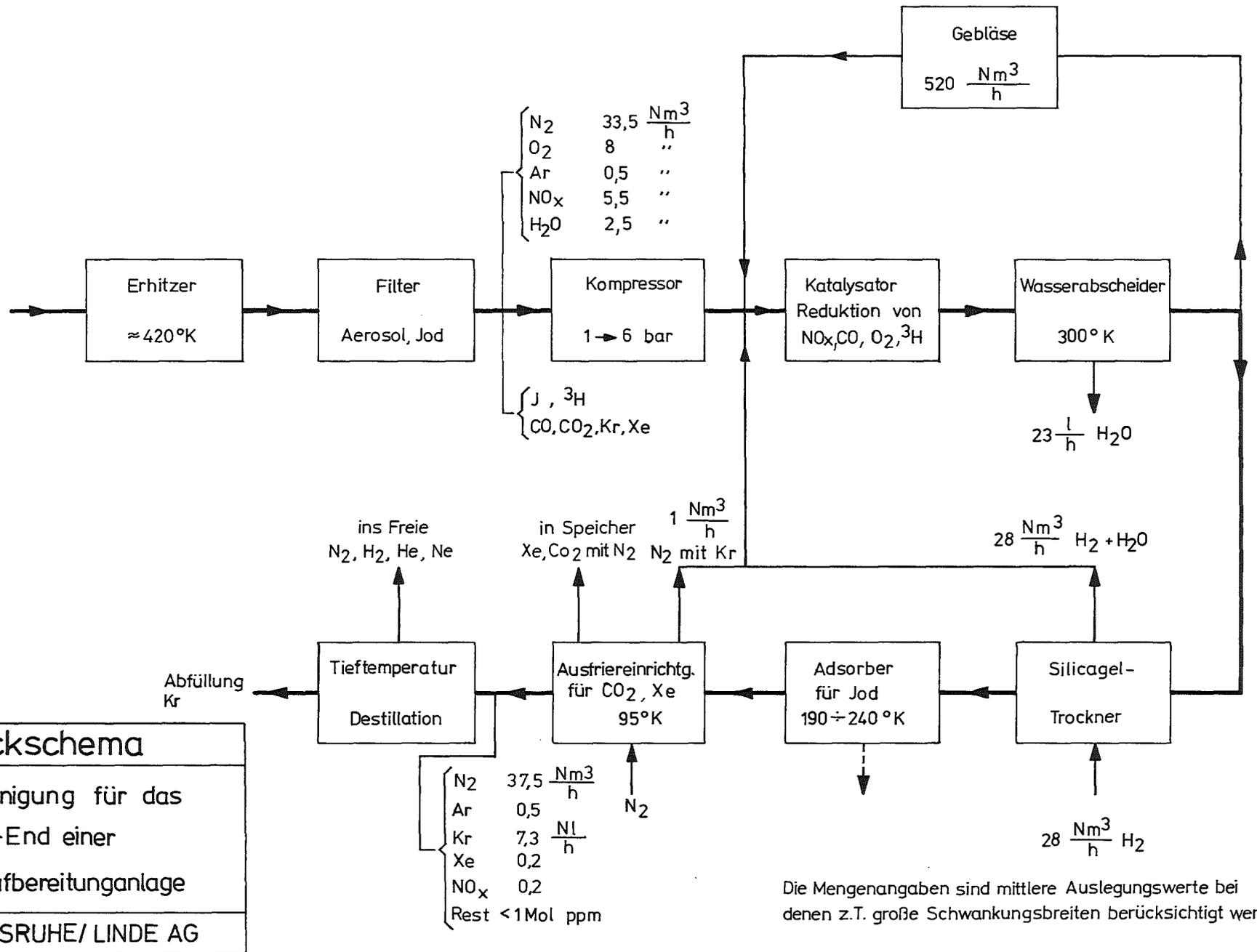
Das Kr-haltige Gasgemisch wird schließlich der Tieftemperatur-Destillationskolonne zugeführt. Das Endprodukt wird als Konzentrat von mehr als 80 Mol-% Krypton-Gehalt zur Abfüllung gelangen. Der Restanteil besteht aus Argon und den im Destillationsgas vorhandenen Spuren an Kohlenwasserstoffen und Stickoxiden.

Das über den Kamin abgegebene Gas besteht aus Stickstoff, Wasserstoff und Argon mit den in der Luft vorhandenen Anteilen an Helium und Neon. Der Kryptongehalt dieses Gases wird kleiner als 0,2 Mol-ppm (anzustreben sind 0,02 Mol-ppm) sein.

In dieser Auslegung des Verfahrens wurde dem Ausfrierschritt von Xe und CO_2 gegenüber der ebenfalls möglichen Destillation in einer zweiten Kolonne aus folgenden Gründen der Vorzug gegeben: Einmal sammeln sich die großen Mengen des radioaktiven Krypton nur in einer Kolonne, und zwar in deren Sumpf an, was Vereinfachungen bezüglich der Sicherheitsvorkehrungen und der Regelung mit sich bringt. Bei Anwesenheit größerer Xenon-Mengen können außerdem Schwierigkeiten wegen möglicher Verstopfungen durch ausfrierendes Xenon, wegen der großen Temperatursprünge zwischen den Böden der Abtriebssäule und wegen des zu wählenden Verfahrensdruckes auftreten.



PRINZIPSCHEMA des Tieftemperaturteils einer Gaszerlegungsanlage für das Abgas aus dem Head-End einer Wiederaufbereitungsanlage LINDE AG / GfK KARLSRUHE



- 4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen
- 4151 Untersuchungen zur thermischen Belastung des Rheins
(G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, IASR)

Zur Messung des latenten Wärmestromes

Wie im vorausgegangenen Halbjahresbericht dargestellt, ist die genaue Erfassung des Flusses der fühlbaren (Konvektion), besonders aber der latenten Wärme (Verdunstung) zwischen der Rheinoberfläche und der Atmosphäre ein meßtechnischer Schwerpunkt dieses Programmes.

Dafür soll neben der konventionellen Gradientenmethode die Turbulenz-Korrelationsmethode verwendet werden, die unmittelbar von den Vorstellungen des Transportmechanismus ausgeht. Sie beinhalten, daß die an der Wasseroberfläche erwärmten bzw. feuchter gewordenen Luftmengen durch statistische Schwankungen der Vertikalkomponente der turbulenten Luftbewegung in höhere Schichten getragen und durch jeweils kältere bzw. trockenere Luftmassen ersetzt werden.

Der Fluß f des Wasserdampfes wird beschrieben durch

$$f = v_w \cdot g, \text{ wobei}$$

v_w = vertikale Komponente der Windgeschwindigkeit
 g = absolute Luftfeuchte

Beide Größen unterliegen wegen der Dynamik der Atmosphäre schnellen Schwankungen. Der über ein Zeitintervall gemittelte Fluß wird damit

$$\bar{f} = \frac{1}{t_2 - t_1} \cdot \int_{t_1}^{t_2} v_w(t) g(t) dt$$

Zerlegt man $g(t) = \bar{g}(t) + g'(t)$ in den Mittelwert und die Abweichung davon, so erhält man

$$\bar{f} = \frac{1}{t_2 - t_1} \left(\int_{t_1}^{t_2} \bar{g} v_w(t) dt + \int_{t_1}^{t_2} g' v_w(t) dt \right)$$

Der erste Term verschwindet, da $\int v_w(t) dt$ für große Zeiten verschwindet.

Also ist nur das Produkt der momentanen Windgeschwindigkeit in vertikaler Richtung mit der momentanen Feuchtabweichung zu bilden und zeitlich zu mitteln. Wegen der endlichen Ansprechzeit der Feuchtefühler ist das Integral durch die Summe zu ersetzen:

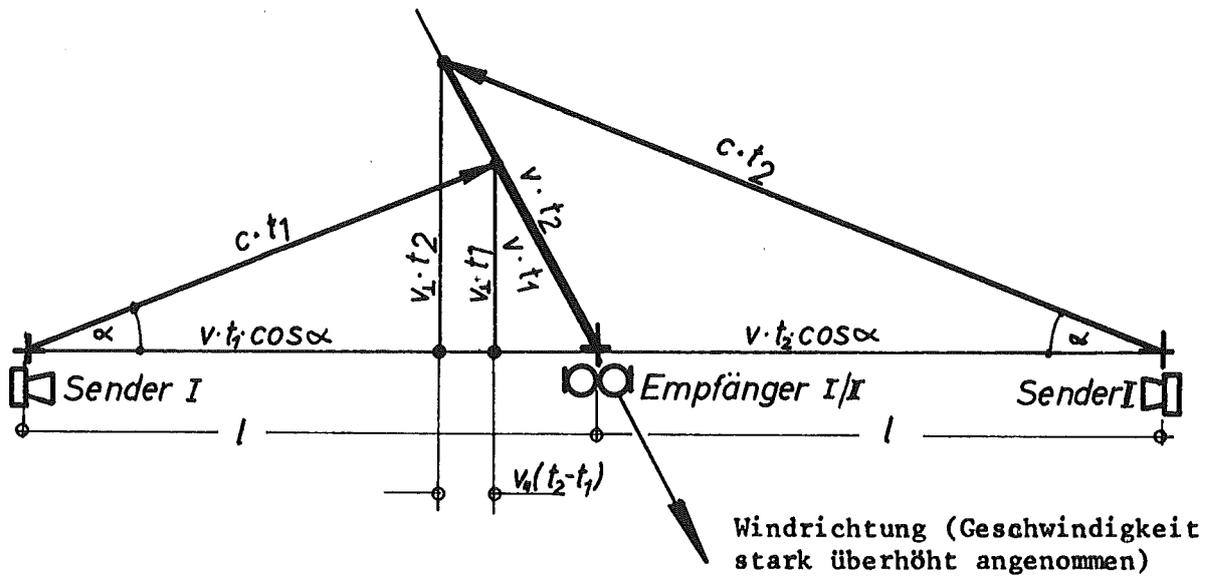
$$\bar{f} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n v_w(t_i) \cdot g'(t_i) \text{ mit } t_i = t_1 + (i-1) \Delta t$$

Die notwendige zeitliche Auflösung der "Momentan"-Werte hängt von deren Änderungsgeschwindigkeit oder, in Betrachtungsweise der Frequenzanteile, vom Verlauf der spektralen Dichten der Meßgrößen ab. Untersuchungen hierzu ergaben, daß etwa von 0,1 Hz aufwärts die spektrale Dichte stets nach einem -5/3-Exponentialgesetz abfällt, weitgehend unabhängig vom sonstigen Verlauf des Spektrums. Über 1 Hz hinausgehende Frequenzanteile verlieren also rasch an Häufigkeit und leisten zum Gesamttransport nur geringe Beiträge. Die Auflösungsgrenze, die gefordert werden muß, um 95% des latenten Wärmeflusses zu erfassen, schwankt je nach Turbulenzzustand zwischen 0,08 und 0,8 Hz. Es ist vorgesehen $\Delta t = 1s$ und $n = 30$ zu wählen.

An die Meßtechnik ergeben sich damit folgende Anforderungen:

- Hohe zeitliche Auflösung der Meßgrößen Temperatur, Luftfeuchte und vertikale Windgeschwindigkeit (mind. 1 Hz); innerhalb dieser Auflösung gleichzeitige Messung bzw. definierte Phasenbeziehungen.
- Entsprechend der vorherrschenden Windgeschwindigkeit (im Mittel 2 m/s) vergleichbare räumliche Auflösung bzw. Ursprungsgleichheit der Daten, d.h. Längen bzw. Abstände der Meßstrecken max. 20 cm.
- Keine Beeinflussung der vorhandenen Turbulenzerscheinung durch den Meßaufbau oder -vorgang.
- Hinreichend hohe Empfindlichkeit und Auflösungsvermögen von Sensoren und Elektronik (niedriger Rausch- und Störpegel), um auch kleine Schwankungen der Größen zu erfassen. Beim Wind : Strenge Entkoppelung der vertikalen von den meist über 3-fach größeren Horizontalkomponenten.

Bei der Wind- und Temperaturmessung werden diese Forderungen recht gut von Ultraschallmanometern-Thermometern erfüllt: Die eigentliche Sonde besteht aus zwei Ultraschall-Sender-Empfängerpaaren mit antiparallelen Laufstrecken von 20 cm Länge und 5 cm Abstand zueinander. Die Abmessungen der Schallköpfe mit Halterungen betragen 1,5 cm \varnothing x 5 cm, das Traggerüst ist auf minimale Beeinflussung der Luftbewegung ausgelegt. 440 mal pro Sekunde wird eine gedämpfte Ultraschallschwingung emittiert und die Laufzeit des dritten Maximums gemessen. Aus der Summe der Laufzeiten auf antiparallelem Weg ergibt sich die Schallgeschwindigkeit des ruhenden Mediums aufgrund folgender Skizze und Herleitung:



Die Laufzeiten betragen also:

$$t_1 = \frac{1}{c \cos \alpha + v_{\parallel}} ; \quad t_2 = \frac{1}{c \cos \alpha - v_{\parallel}}$$

$$t_1 + t_2 = \frac{2l \cdot \cos \alpha}{c^2 \cos^2 \alpha - v_{\parallel}^2} = \frac{2l \cdot \cos \alpha}{c^2 - v^2}$$

$$= \frac{2l \cdot (c^2 - v_{\perp}^2)^{1/2}}{c^2 - v^2} ; \quad v^2 \text{ und } v_{\perp}^2 \text{ dürfen gegen } c^2 \text{ vernachlässigt werden; also gilt:}$$

$$t_1 + t_2 = \frac{2l}{c}$$

- c : Schallgeschwindigkeit
- v : Windgeschwindigkeit
- v_{\perp} : Komponente senkrecht
- v_{\parallel} : Komponente parallel zur Laufstrecke l

Die so ermittelte Schallgeschwindigkeit geht mit der Wurzel der Temperatur, die damit errechenbar wird, allerdings die virtuelle Temperatur T_v , da es sich im allgemeinen um wasserdampfhaltige Luft handelt. T_v ist diejenige Temperatur, die trockene Luft haben müßte, um derselben Gasgleichung zu genügen wie die gemessene. Der Zusammenhang mit der wahren Temperatur T

$$T_v = T (1 + 0,608 s) \quad s = \frac{\text{Wasserdampfdichte}}{\text{Dichte der feuchten Luft}}$$

zeigt, daß eine Feuchtekorrektur durchzuführen ist und bis zu mehreren Grad betragen kann.

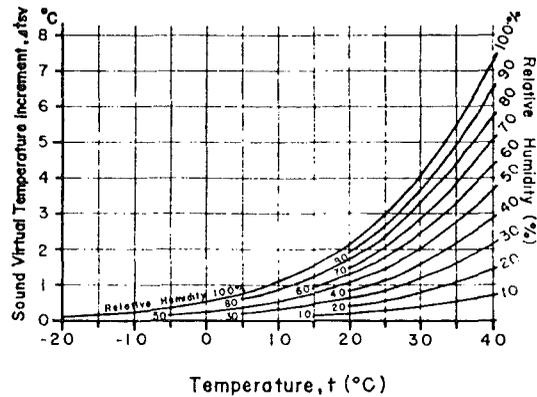


Abb. 4151-1 : Abhängigkeit des Zuwachses der virtuellen Temperatur gegenüber der Lufttemperatur von Lufttemperatur und -feuchte

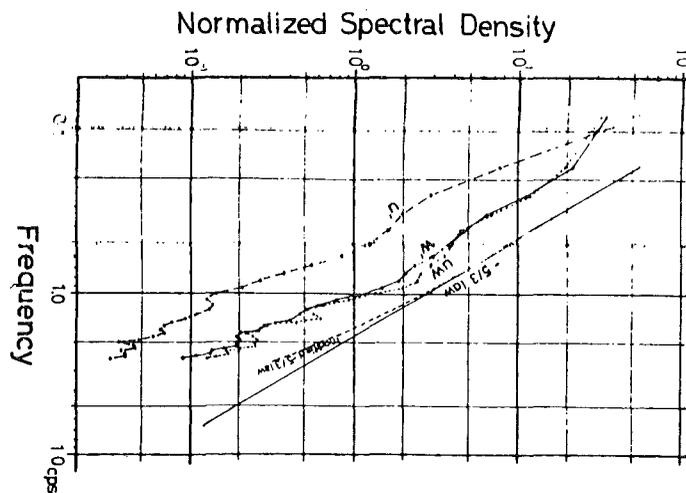


Abb. 4151-2: Normierte spektrale Dichten der horizontalen (u') und vertikalen (w') Windgeschwindigkeit sowie Impulstransport (uw) (gemessen). Dazu die exakte $v^{-5/3}$ -Kurve sowie die in bezug auf die Trägheit des Meßgeräts korrigierte $v^{-5/3}$ -Kurve.

Die Windgeschwindigkeit parallel zur Sensorstrecke folgt aus der Messung der Differenzen der Laufzeiten:

$$t_2 - t_1 = \frac{2 l v_{||}}{c^2 \cos^2 \alpha - v_{||}^2} = \frac{2 l v_{||}}{c^2 - v^2}$$

wieder wird v^2 gegen c^2 vernachlässigt, so daß folgt:

$$v_{||} = \frac{c^2}{2 l} (t_2 - t_1) = \text{const.} \cdot (t_2 - t_1).$$

Während die Fehler bei der Ermittlung der Windgeschwindigkeit durch Konstantsetzen von c und Vernachlässigen von v^2 innerhalb der erreichbaren Fehlergrenze von $\pm 3\%$ bleiben, bedarf die Temperaturmessung einer Korrektur. Diese wird dadurch erleichtert, daß die Feuchtemessung psychrometrisch vorgenommen wird, d.h. es wird die Temperatur eines trockenen und eines ständig befeuchteten Thermistores gemessen, wobei die trockene Messung allenfalls durch Wärmeeinstrahlung verfälscht wird, die sich aber infolge der geringen Ausdehnung der Sonde in engen Grenzen hält. Darüber hinaus bietet der Vergleich des zeitlichen Verlaufs beider Lufttemperaturmessungen die Möglichkeit, die Verzögerung im Ansprechen des mit geringer Trägheit behafteten Thermistors gegenüber der trägheitslosen Anzeige des Schall-Anemometers-Thermometers zu ermitteln. Die gleiche Verzögerung wird dann auch der feuchte Thermistor aufweisen, und um eben diese Zeitspanne sind die Ergebnisse der Windmessung vor der Bildung des Produktes zur Berechnung des latenten Wärmestromes künstlich zu verzögern.

Die schnelle Feuchtemessung soll nach dem Psychrometerprinzip erfolgen d.h. ein Trocken- und ein Feuchtthermometer messen gleichzeitig die Temperatur. Das feuchte Thermometer nimmt eine niedrigere Temperatur an. Es wird gemäß der Sprungschens Formel umso kühler, je trockener die Luft. Das Prinzip ist gut bekannt und wird wegen seiner Einfachheit und Genauigkeit oft in Eichanordnungen ausgenützt.

Zur Herleitung der Sprungschens Formel benötigt man nur zwei einfache Annahmen:

- a) Die Verdunstungsrate an der feuchten Oberfläche ist bei hinreichend schneller Anströmung proportional zu $(E'-e)$ sowie $\frac{1}{p}$, wobei

$$e = \text{Dampfdruck } \underline{[\text{mb}]}$$

$$E' = \text{Sättigungsdampfdruck bei der Fühlertemperatur } \underline{[\text{mb}]}$$

$$p = \text{Luftdruck } \underline{[\text{mb}]}$$

- b) Durch Konvektion wird ein Wärmestrom proportional zu $(t-t')$ dem Fühler zugeführt, wobei

$$t = \text{Lufttemperatur (Grad)}$$

$$t' = \text{Fühlertemperatur (Grad)}$$

Beide Wärmeströme müssen gleich sein.

Unter Berücksichtigung der Proportionalitätsfaktoren ergibt sich damit

$$e = E' - \frac{p \cdot c_p}{\sigma \cdot r} (t-t'),$$

wobei

$$c_p = \text{spezifische Wärme der Luft } \underline{[\text{cal} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{grad}^{-1}]}$$

$$\sigma = \text{Verhältnis der Dichten von Wasserdampf und Luft}$$

$$r = \text{Verdunstungswärme } \underline{[\text{cal} \cdot \text{g}^{-1}]}$$

Für 755 mb wird der Koeffizient 0,493, d.h. man rechnet mit

$$e = E' - 0,493 \cdot \Delta t \cdot \frac{p}{755} \quad \text{Sprungschens Formel}$$

Im vorliegenden Fall wird eine Miniaturausführung des Deutschen Wetterdienstes verwendet, die zu der geforderten zeitlichen Auflösung von ≈ 1 s führt sowie die erforderliche Mindest-Anströmgeschwindigkeit auf ca. 0,2 m/s herabsetzt. Als Thermometer dienen zwei Perlthermistoren von 0,4 mm ϕ (Valvo B 8 320 02/P 1 KS).

Genauigkeitsbetrachtung:

Innerhalb eines Klimaschrankes für Eichzwecke wurde der Zusammenhang Widerstand-Temperatur graphisch aufgenommen. Die Wiederholgenauigkeit lag innerhalb der Genauigkeit des Schrankes ($\pm 0,3^{\circ}\text{C}$). Wegen des hohen Temperaturganges lassen sich jedoch Schwankungen auf $\pm 0,1^{\circ}\text{C}$ auflösen. Dies entspricht etwa 1% rel. Feuchte. Dazu kommt der Fehler durch Wärmestrahlung, das Abschneiden des Frequenzbereichs >1 Hz und die nicht immer optimale Anströmung, die zu einer Verkleinerung der psychrometrischen Differenz führt. Die Schwankungen der absoluten Feuchte werden auf $\pm 5\%$ genau meßbar sein. Die Messung der Windgeschwindigkeit liefert laut Herstellerangaben $\pm 3\%$ Fehler. Der Gesamtfehler wird also $\leq 8\%$ sein. Bei den oben erwähnten Wettersituationen des Wärmelastplans im Sommer und Herbst sind das also $30 \dots 40 \frac{\text{cal}}{\text{cm}^2, \text{d}}$, d.h. man kann erwarten, aus den verschiedenen Verdunstungsformeln die für den Rhein geeignete herauszufinden und die Unsicherheiten der Wärmebelastbarkeit erheblich herabzusetzen.

4160 Sicherheitsprobleme bei der Endlagerung

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

Das Genehmigungsverfahren hat sich verzögert. In der zweiten Jahreshälfte wurde vom Bergamt Baden-Württemberg eine Liste von Änderungs- und Ergänzungswünschen für den wasserrechtlichen Genehmigungsantrag erstellt, die sich aufgrund einer gemeinsamen erste Überprüfung des Antrages mit der oberen und unteren Wasserbehörde ergab.

Der wasserrechtliche Genehmigungsantrag wurde inzwischen gemäß den Änderungswünschen ergänzt und dem Bergamt Baden-Württemberg erneut zugeleitet, das nunmehr das wasserrechtliche Genehmigungs- und Offenlegungsverfahren einleiten wird. Die atom- und wasserrechtliche Genehmigungen sollen gemeinsam mit der Baugenehmigung für die oberirdische Herrichtung der Bohrstelle Lh2 erteilt werden. Unter Voraussetzung einer zügigen Abwicklung der Genehmigungsverfahren ist frühestens für die 2. Hälfte 1974 mit dem Beginn der Versuchsversenkungen zu rechnen.

4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

(K.D.Appelt, G.Bönisch, J.Kadlec, R.A.Müller, P.Philipp,
E.Wolf, IRE)

Im 2. Halbjahr 1973 wurde die Auswertung der Marviken-Experimente weitergeführt. Unser besonderes Interesse galt der Bestimmung der lokalen Massenströme, wobei die mit der GfK-Meßeinrichtung II gemessenen Werte als Ausgangspunkt dienten. Nachdem zum Jahresende auch von der schwedischen Seite die aus Wärme- und Massenbilanzen ermittelten integralen Massenströme vorlagen, konnte ein Vergleich dieser beiden völlig verschiedenen Meßverfahren durchgeführt werden.

Im folgenden wird zunächst auf die Problematik der Massenstrombestimmung in einer Mehrkomponenten-Zweiphasenströmung eingegangen. Für den Massenstrom der i-ten Strömungskomponente gilt:

$$\dot{m}_i = \rho_i \cdot \bar{w}_i \cdot F_i$$

Das heißt, es muß die Dichte ρ_i , die mittlere Strömungsgeschwindigkeit \bar{w}_i und die separierte Teilquerschnittsfläche F_i bekannt sein.

In der Reaktoranlage Marviken lag während des Blowdownvorganges eine Luft-H₂O-Naßdampfströmung vor. Zur Bestimmung der Dichten ρ diente eine Temperatur- und Druckmessung, die Strömungsgeschwindigkeit \bar{w}_D der gasförmigen Komponenten wurde durch ein Radiotracer-Meßverfahren [3] ermittelt und die separierten Querschnittsflächenanteile F_i wurden aus der Gemischzusammensetzung errechnet, die durch eine Probenentnahmeeinrichtung [4] bestimmt werden konnte. Die mittlere Strömungsgeschwindigkeit der flüssigen H₂O-Phase wurde nicht gemessen.

Die untenstehende Abbildung 4211¹-1 (linke Bildseite) zeigt schematisch an einem Strömungskanal die einzelnen Meßgrößen und die Situation beim Entnehmen einer Probe. Auf der rechten Bildseite ist die Probe im Laborzustand dargestellt. Da die Vorgänge bei der Probenentnahme sehr verwickelt sind, wird hierauf etwas näher eingegangen und insbesondere die angenommenen Voraussetzungen und der Gedankengang zur Auswertung erläutert.

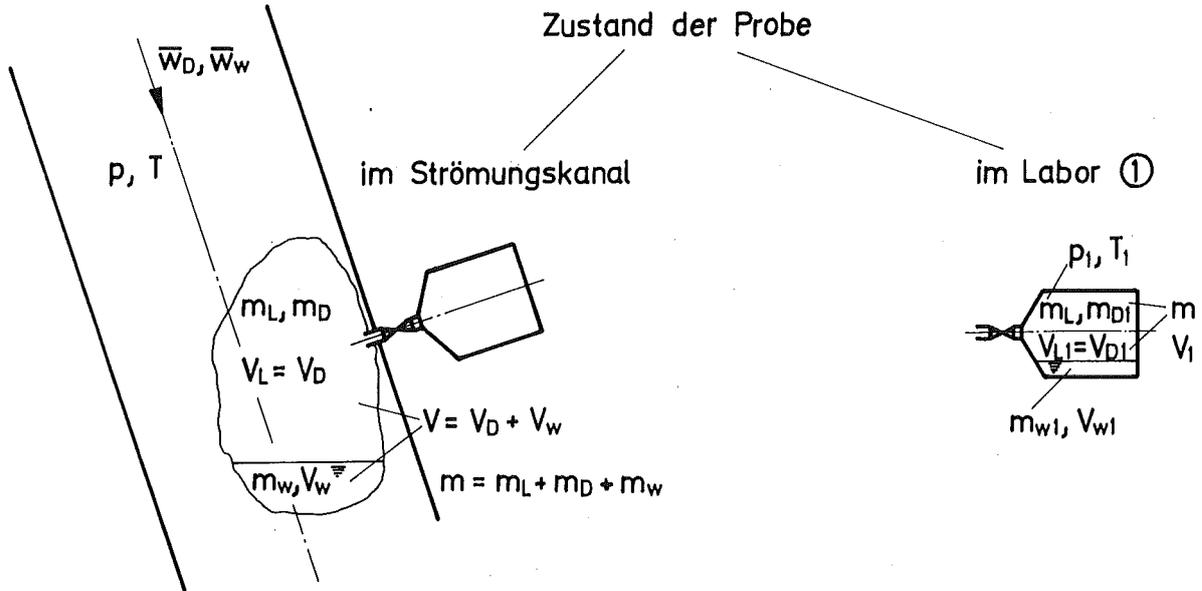


Abb. 4211-1a Probenentnahme-Schema

Ausgehend von den Voraussetzungen

- homogene Gemischverteilung über den Querschnitt
- keine Entmischung beim Entnehmen der Probe
- Luft hat Idealgasverhalten
- thermodynamisches Gleichgewicht des H_2O Zweiphasengemisches
- Luft/Wasserdampf gilt als ideales Gasgemisch mit $p = p_L + p_D$

ergibt sich beim Entnehmen einer Probe folgendes Bild:

Aus dem Strömungskanal wird das Volumen V mit der Masse m entnommen. Da im Kanal Luft und Naßdampf strömen, kann das Volumen V durch Separation in das Teilvolumen V_w , das nur die flüssige H_2O -Menge m_w enthält und in das Teilvolumen $v_D = v_L$, das sowohl die Luftmenge m_L als auch die dampfförmige H_2O -Menge m_D enthält, aufgeteilt werden.

Beim Einströmen in das evakuierte Entnahmegefäß treten Drossel- und Kondensationseffekte auf, die insbesondere den Füllungsgrad beein-

flussen. Während die Drosselung füllungsvermindernd wirkt, verursacht die Kondensation an der kalten Gefäßinnenfläche durch Verzögerung des Druckaufbaues eine Füllungsvergrößerung, so daß meist eine Überladung auftritt. Es ist dadurch z.B. nicht möglich, aus der eingeströmten Gemischmenge m und dem Volumen V_1 der Entnahmeeinheit direkt auf die Dichte des strömenden Mediums zu schließen.

Durch den Kondensationseffekt wird andererseits die ursprünglich bestehende Aufteilung m_D/m_W stark zugunsten des Wasseranteils m_W verschoben und schließlich fallen bei der Probenauswertung die H_2O -Anteile m_D und m_W in einer Tiefkühlfalle nur noch in fester Form als Menge m_{WD} an.

Das Problem besteht nun darin, die H_2O -Menge m_{WD} wieder in die tatsächlich interessierenden ursprünglichen Anteile m_W und m_D (Strömungszustand) aufzuteilen. Die Lösung des Problems gelingt unter Zuhilfenahme der Luftmenge m_L , die ja im Strömungskanal das gleiche Volumen $V_L = V_D$ wie die H_2O -Dampfmenge m_D einnimmt. Da die Luftmenge keine Phasenänderung erleidet, kann sie in der Probe leicht durch eine Druckmessung über die thermodynamische Zustandsgleichung bestimmt werden. Liegt die Luftmenge m_L aber fest, so läßt sich über die gemessenen Zustandsgrößen p und T das äquivalente Volumen $V_L = V_D$ errechnen und daraus wiederum mit dem spezifischen Dampfvolumen $v_D(T)$ die Dampfmenge m_D bestimmen. Die Wassermenge m_W ergibt sich dann einfach aus einer Bilanzbetrachtung.

Ist die Gemischzusammensetzung bekannt, so können unter Verwendung des Dampfvolumenthaltes α die separierten Teilquerschnittsflächen zu

$$\begin{aligned} F_D &= F_L = \alpha \cdot F \\ F_W &= (1-\alpha)F \end{aligned} \quad \text{mit } \alpha = \frac{V_D}{V_D + V_W} = \frac{1}{1 + \frac{V_W}{V_D}}$$

errechnet werden. Mit $\bar{w}_L = \bar{w}_D$ ergeben sich die Massenströme nach folgenden Gleichungen [1]

$$\text{Luft:} \quad \dot{m}_L = \varrho_L(T) \cdot \bar{w}_D \cdot \alpha \cdot F = \left| \varrho_L(T) = \frac{p - p_D(T)}{R_L \cdot T} \right| = \frac{p - p_D(T)}{R_L \cdot T} \cdot \alpha \cdot F \cdot \bar{w}_D \quad (1)$$

$$H_2O\text{-Dampfphase:} \quad \dot{m}_D = \varrho_D(T) \cdot \bar{w}_D \cdot \alpha \cdot F \quad (2)$$

$$H_2O\text{-Flüssigphase:} \quad \dot{m}_W = \varrho_W(T) \cdot \bar{w}_W \cdot (1-\alpha) \cdot F \quad (3)$$

Nach unseren Messungen lag der Dampfvolumengehalt bei $0,988 \leq \alpha \leq 1$, so daß für Luft und Dampf stets $F_D = F$ gesetzt werden konnte.

Die Gleichungen (1) und (2) zeigen eine starke Parameterempfindlichkeit hinsichtlich der Temperatur. Z.B. verursacht bei 128°C ein Temperaturmeßfehler von 1°C (Meßfehler ca. 1%) einen relativen Fehler des Dampfmassenstromes $\Delta \dot{m}_D / \dot{m}_D$ von ca. 3%.

Noch stärker temperaturempfindlich ist der Luftmassenstrom, da hier der Luftpartialdruck p_L aus der Druckdifferenz $p - p_D(T)$ gebildet wird. Beträgt z.B. der Luftpartialdruck $p_L \approx 0,1$ at (dieser Wert wird nach ca. 80 s erreicht) und beträgt der Temperaturmeßfehler 1°C (ca. 1% Meßf.) so folgt daraus ein Fehler des Dampfpartialdruckes p_D von ca. $0,078$ at ($\approx 3\%$) und ein relativer Fehler des Luftmassenstromes $\Delta \dot{m}_L / \dot{m}_L$ von ca. 80%. Dieses Beispiel zeigt besonders deutlich den hohen Genauigkeitsanspruch an die Temperaturmessung, wenn die Fehler in Grenzen bleiben sollen. Selbstverständlich geht auch die Genauigkeit der Druckmessung, wenn auch schwächer als die der Temperaturmessung, in die Rechnung ein. Doch kann die Druckmeßgenauigkeit mit relativ bescheidenem Aufwand noch um eine Größenordnung auf etwa 1 % gesteigert werden, wohingegen die Grenzen der Temperatur-Meßgenauigkeit bei den vorliegenden Verhältnissen (instationäre Zweiphasenströmung, $T \approx 130^\circ\text{C}$) etwa bei 5 % (ca. $0,5^\circ\text{C}$) liegen dürften.

Aus der Gleichung (3) geht hervor, daß der Massenstrom für die flüssige H_2O -Phase ohne Kenntnis der Strömungsgeschwindigkeit \bar{w}_W nicht bestimmt werden kann. Da andererseits jedoch von schwedischer Seite der Wassermassenstrom \dot{m}_W aus der Wärme- und Massenbilanz ermittelt wurde, kann aus Gleichung (2) und (3) der mittlere Schlupf $s = \bar{w}_D / \bar{w}_W$ bestimmt werden. Noch einfacher ist der Schlupf aus den ermittelten spezifischen Dampfgehalten x zu errechnen, wobei interessant ist, daß in einer Zweiphasenströmung bei Vorhandensein eines Schlupfes stets 2 verschiedene x -Werte existieren, je nachdem, ob für die in die Rechnung eingehenden Massenanteile die Massenströme oder ein bestimmtes Volumen des strömenden Mediums zugrunde gelegt werden.

Ausgehend von den Massenströmen (schwed. Meßverfahren) ergibt sich der x_m -Wert ($\Delta t =$ Zeitintervall) zu: $\sqrt[2]{\quad}$

$$x_m = \frac{\dot{m}_D \Delta t}{(\dot{m}_D + \dot{m}_W) \Delta t} = \frac{1}{1 + \frac{\dot{m}_W}{\dot{m}_D}} = \frac{1}{1 + \frac{\rho_W \cdot \bar{w}_W \cdot F_W}{\rho_D \cdot \bar{w}_D \cdot F_D}} = \frac{1}{1 + \frac{\rho_W}{\rho_D} \cdot \frac{1}{s} \cdot \frac{1-\alpha}{\alpha}} \quad (5)$$

und bei Betrachtung eines bestimmten Strömungsvolumens $V = F \cdot \Delta h$ (Δh = Länge in Strömungs-Richtung) ergibt sich

$$x_V = \frac{m_D}{m_D + m_W} = \frac{\rho_D \cdot F_D \cdot \Delta h}{(\rho_D \cdot F_D + \rho_W \cdot F_W) \Delta h} = \frac{1}{1 + \frac{\rho_W}{\rho_D} \cdot \frac{1-\alpha}{\alpha}} \quad (6)$$

Aus den beiden Gleichungen ist ersichtlich, daß für $s > 1 \rightarrow x_m > x_V$ sein muß.

Ausgehend von Gleichung (2) und (3) kann der Schlupf in einfacher Weise nur in Abhängigkeit der Werte x_m und x_V dargestellt werden in der Form:

$$s = \frac{1 - x_V}{x_V} \cdot \frac{x_m}{1 - x_m} \quad (7)$$

Der oben definierte x_V -Wert stellt einen Augenblickswert dar, der bei unserem Entnahmeprinzip nur erhalten werden kann, wenn während der Probenentnahme der kontrollierte Volumenmeßbereich nicht vom strömenden Medium durchsetzt wird. Dies ist bei unserem Meßverfahren aber nicht auszuschließen und es kann angenommen werden, daß die mit unseren Messungen ermittelten x -Werte, die im folgenden ohne Index geschrieben werden, betragsmäßig zwischen den Grenzwerten x_m und x_V liegen. Der anfangs erläuterte Gedankengang zur Probenauswertung verliert dadurch seine Gültigkeit nicht. Es entsteht jedoch eine schwache Rückwirkung auf die Dampfvolumenzahl α , die geringfügig größer wird, und eine Verminderung des Schlupfes gemäß Gl. (7),

Die x -Werte wurden durch folgende Meßgrößen bestimmt:

$$x = \frac{m_D}{m_D + m_W} = \left| \begin{array}{l} m_D = V_D \cdot \rho_D = m_L \cdot \frac{\rho_D}{\rho_L} \\ m_D + m_W = m_{WD} \end{array} \right| = \frac{m_L}{m_{WD}} \cdot \frac{\rho_D(T)}{\rho_L(T)} \quad (8)$$

Diese Gleichung beinhaltet einmal das Verhältnis der gemessenen Massen m_L/m_{WD} und das Verhältnis der Zustandsgrößen ρ_D und ρ_L . Da die Massen als Verhältnis auftreten, ist das Meßergebnis weitgehend unabhängig

von der Größe des Entnahmegefäßes, was durch Referenzmessungen bestätigt wurde. Hinsichtlich der Zustandsgrößen $\varrho_D(T)$ und $\varrho_L(T)$, mit $\varrho_L(T) \sim p - p_D(T)$, ist wie in (1) und (2) eine starke Parameterempfindlichkeit von der Temperatur gegeben.

Die Ergebnisse sind auf den Abbildungen 4211-1 bis 4211-2 und auf Tabelle 4211-1 dargestellt.

Die Abb. 4211-2 zeigt die in die Kondensationskammer eingeflossenen Dampf- und Luftmassenströme und ein zweiter Ordinatenmaßstab gibt die auf die Querschnittsfläche der Kondensationsrohre bezogenen Massenstromdichten an. Nach Blowdownstart steigen die Massenstromdichten sehr rasch auf Werte bis ca. $200 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ an und fallen nach etwa 80 s beim Schließen der großen Bruchstelle sehr steil auf Werte von etwa $38 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ ab. Die Luftmassenstromdichte zeigt zunächst Spitzenwerte von ca. $65 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ und fällt dann stetig auf Werte von ca. $1 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ ab.

Lediglich der Dampfmassenstrom bei Blowdown Nr. 15 hat einen anderen Verlauf, da bei diesem Versuch wegen eines technischen Defektes nur die kleine Bruchstelle geöffnet werden konnte und dadurch nur ca. $1/5$ der vorgesehenen Bruchfläche zur Verfügung stand.

Während den Massenströmen der Blowdown-Versuche Nr. 14, 15 und 16 gemessene Geschwindigkeiten zugrunde liegen, wurden die Massenströme für Blowdown Nr. 12 aus extrapolierten Gasgeschwindigkeiten des Versuches Nr. 14 errechnet. Bei der Extrapolation wurden die wirksamen Druckdifferenzen (Drywell-Wetwell) und Dichteeinflüsse berücksichtigt.

Auf Abb. 4211-3 sind für Blowdown Nr. 14 Dampf- und Luftmassenströme verglichen, die einmal nach dem beschriebenen GfK-Meßverfahren und zum anderen aus Wärme- und Massenbilanzen (schwedische Seite) ermittelt wurden. Wie die Abbildung zeigt, gibt die GfK-Meßmethode im Zeitbereich eine qualitativ bessere Auflösung der Strömungsverhältnisse. Das von schwedischer Seite benutzte Meßverfahren dagegen liefert integral (über größere Zeiträume gesehen) genauere Werte, zumindest soweit es die überspülten Luftmengen betrifft. Diese Aussage basiert auf der Tatsache, daß die in die Kondensationskammer überspülte Luftmenge kleiner oder höchstens gleich der im Drywell befindlichen Luftmenge sein kann, was nach den schwedischen Messungen stets zutrif.

Die Tab. 4211-1 zeigt eine Gegenüberstellung der nach den beiden Meßverfahren ermittelten Dampf- und Luftmassen, die im Zeitraum von 180 s (125 s bei Blowdown Nr. 15) in die Kondensationskammer eingeflossen sind. Während die Dampfmen gen relativ gut übereinstimmen, ergibt sich bei den Luftmen gen eine stärkere Abweichung, die vor allem dadurch bedingt ist, daß der Luftpartialdruck während des Versuchsverlaufs in Bereiche abfällt, wo sich geringe Meßungenauigkeiten bereits sehr stark auswirken.

Versuch Nr.	Dampfmasse [kg]			Luftmasse [kg]		
	GfK-M.	Schw.-M.	Abweichung	GfK-M.	Schw.-M.	Abweichung
12	26890	25790	4,3 %	1410	1743	- 23,6 %
14	30680	27500	11,5 %	2507	1766	41,9 %
15	5198	3580	44,9 %	1905	1478	28,8 %
16	33480	31975	4,75 %	2533	1815	39,5 %

Tabelle: 4211-1

Abschließend muß bemerkt werden, daß sich Meßungenauigkeiten von seiten der Probenentnahme auf die Betragsgröße der errechneten Massenströme nur in geringem Maße auswirken. Entsprechend Gl. (1) und (2) besteht nämlich eine Abhängigkeit lediglich über den in weiten Bereichen vom Massenverhältnis m_D/m_W nur schwach veränderlichen Dampf volumengehalt α .

Auf Abb. 4211-4 sind die spezifischen Dampfgehalte "x" für die Blowdown-Versuche Nr. 11 bis 16 dargestellt. Mit Ausnahme des Versuchs Nr. 15 zeigen die x-Werte bis zum Schließen der großen Bruchstelle eine fallende Tendenz und steigen im weiteren Verlauf wieder etwas an. Das Abfallen der x-Werte kann über die spezifischen Enthalpien, die im Druckgefäß abnehmen und im Drywell infolge der Zunahme des Druckes ansteigen, zum Teil erklärt werden. Das Wiederansteigen der x-Werte hängt offenbar damit zusammen, daß beim Schließen der großen Bruchöffnung eine geringe Druckabsenkung entsteht und die im Drywell eingeschlossene komprimierte Luft sich dann stärker dem Naßdampfstrom zumischt. Was aber letztlich zu der gemessenen geringeren Feuchtigkeit führt, kann bisher nicht beantwortet werden.

Die Abb. 4211-5 zeigt die nach Gl. (7) ermittelten mittleren Schlupfwerte. Sie sind jedoch nur als grobe Anhaltswerte zu betrachten, da

der Einfluß der stark wasserführenden wandnahen Strömungsschicht sicherlich zu einer wesentlichen Vergrößerung des Schlupfes beiträgt und außerdem alle Meßungenauigkeiten und Unsicherheiten von seiten der x - und x_m -Werte in die Rechnung eingehen. Z.B. konnten die von schwedischer Seite angegebenen x_m -Werte (s. Abb. 4211-6) meßtechnisch nur in größeren Zeitschritten ermittelt werden und stellen über diese Zeitbereiche dann konstante Werte dar.

Die mittleren Schlupfwerte haben qualitativ den entgegengesetzten Verlauf wie die x -Werte. Sie beginnen etwa beim Wert 1, steigen rasch auf hohe Werte an und fallen bei etwa 80 s wieder zurück, um dann nochmals leicht anzusteigen. Eine Ausnahme bildet auch hier der Versuch Nr. 15.

Ab Blowdown Versuch Nr. 12 wurden zu Referenzzwecken auch Proben direkt am Strömungskanal entnommen, die zu folgenden Ergebnissen führten:

- Die am Strömungskanal ermittelten x -Werte lagen etwa 6 % höher als die an der Grundeinrichtung ermittelten.
- Die Öffnungszeit der Überströmventile hat auf die Gemischzusammensetzung der Proben nur geringen Einfluß. Öffnungszeiten zwischen 0,7 s und 2,72 s ergaben eine x -Wert-Schwankung von ca. ± 3 %.
- Die Entfernung der Probenabsaugung von der Kanalwand im Abstand zwischen 20 mm und 200 mm haben nur geringen Einfluß auf die Gemischzusammensetzung der Probe. Die x -Wert-Schwankung beträgt ca. ± 6 %.
- Die Probenentnahme im Druckströmverfahren hat sich wegen Verschmutzung der Ventile nicht bewährt.

Die Referenzmessungen und der angeführte Meßvergleich unserer Resultate können als Indiz für die Gültigkeit der anfangs gemachten Voraussetzungen gewertet werden.

Dichtheitstests während der Versuche und ein abschließender Heliumlecktest haben gezeigt, daß die Meßergebnisse durch Undichtigkeiten nur im %-Bereich verfälscht wurden. Weitere Verfälschungen hinsichtlich der Massenströme entstanden durch Nichtberücksichtigung des wirklichen Geschwindigkeitsprofils sowie durch Geschwindigkeitsmeßfehler [3]. Die größten Fehler kamen jedoch durch Ungenauigkeiten der Druck- und Temperaturmessung zustande.

Inzwischen wird an einer Verbesserung dieser Meßmethode gearbeitet und erwogen, evtl. auch neue Meßverfahren zu entwickeln. Parallel dazu soll im Hinblick auf die physikalische Interpretation der in der Anlage Marviken aufgetretenen Schwingungen versucht werden, eine Verknüpfung zwischen den gasdynamischen und den thermohydraulischen Vorgängen herzustellen.

Zitierte Literatur:

- [1] D.Smidt:
Reaktortechnik Band 1 - G.Braun-Verlag, Karlsruhe, 1971
- [2] L.S.Tong:
Boiling Heat Transfer and Two-Phase Flow,
John Wiley u. Sons, Inc., New York, London, Sydney, 1965
- [3] R.Löffel:
Entwicklung und Anwendung eines Geschwindigkeitsmeßverfahrens mit Radiotracern.
Projekt Nukleare Sicherheit, 3.Halbjahresbericht 1/1973,
KFK 1859, Kernforschungszentrum Karlsruhe, August 1973
- [4] K.D.Appelt, G.Bönisch, J.Kadlec, R.A.Müller, E.Wolf:
Dynamische Beanspruchungen durch Druckpulsationen beim Blowdown.
Projekt Nukleare Sicherheit, 3.Halbjahresbericht 1/1973,
KFK 1859, Kernforschungszentrum Karlsruhe, August 1973

Eigene Veröffentlichungen:

- [1] K.D.Appelt, J.Kadlec, E.Wolf:
Vorläufige Resultate der Untersuchungen des lokalen Druckpulsationsfeldes bei Blowdown-Versuchen in der Kondensationskammer des Druckabbausystems des Reaktors Marviken.
Reaktortagung 1973, Karlsruhe, 10.-13.April 1973
- [2] K.D.Appelt, J.Kadlec:
On the Prediction of Response of the Components of the PS-Containment to the Fluctuating Pressure Field in the Pressure Suppression Pool during Blowdown.
2nd International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Berlin, 10-14 Sept.1973
- [3] R.A.Müller:
Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen bei Kühlmittelverlustunfällen.
Jahres-Kolloquium 1973 des Projektes Nukleare Sicherheit,
Kernforschungszentrum Karlsruhe, 11.12.1973

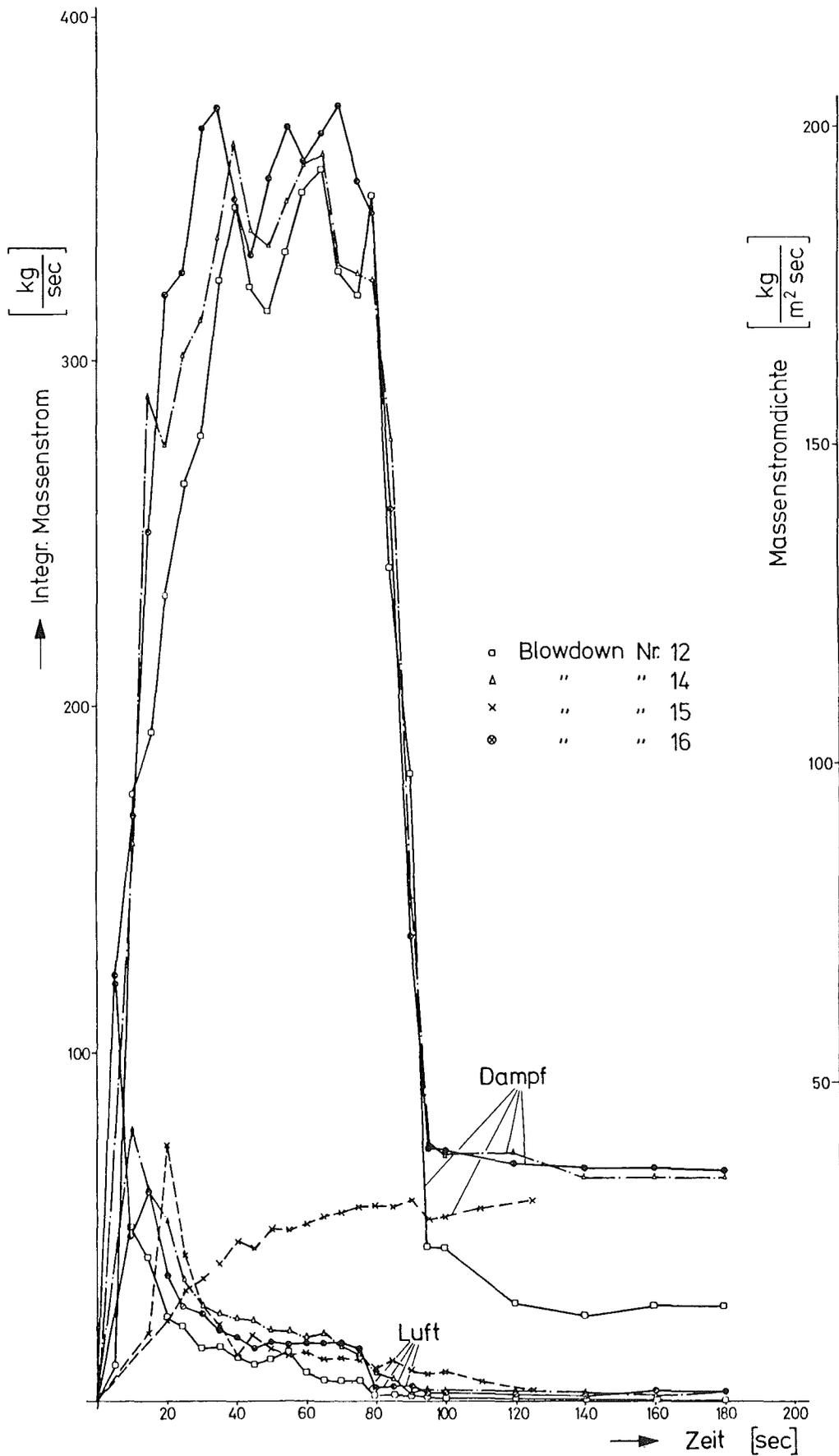


Abb. 4211 - 2 : Integrale Massenströme Luft-Dampf und Massenstromdichten

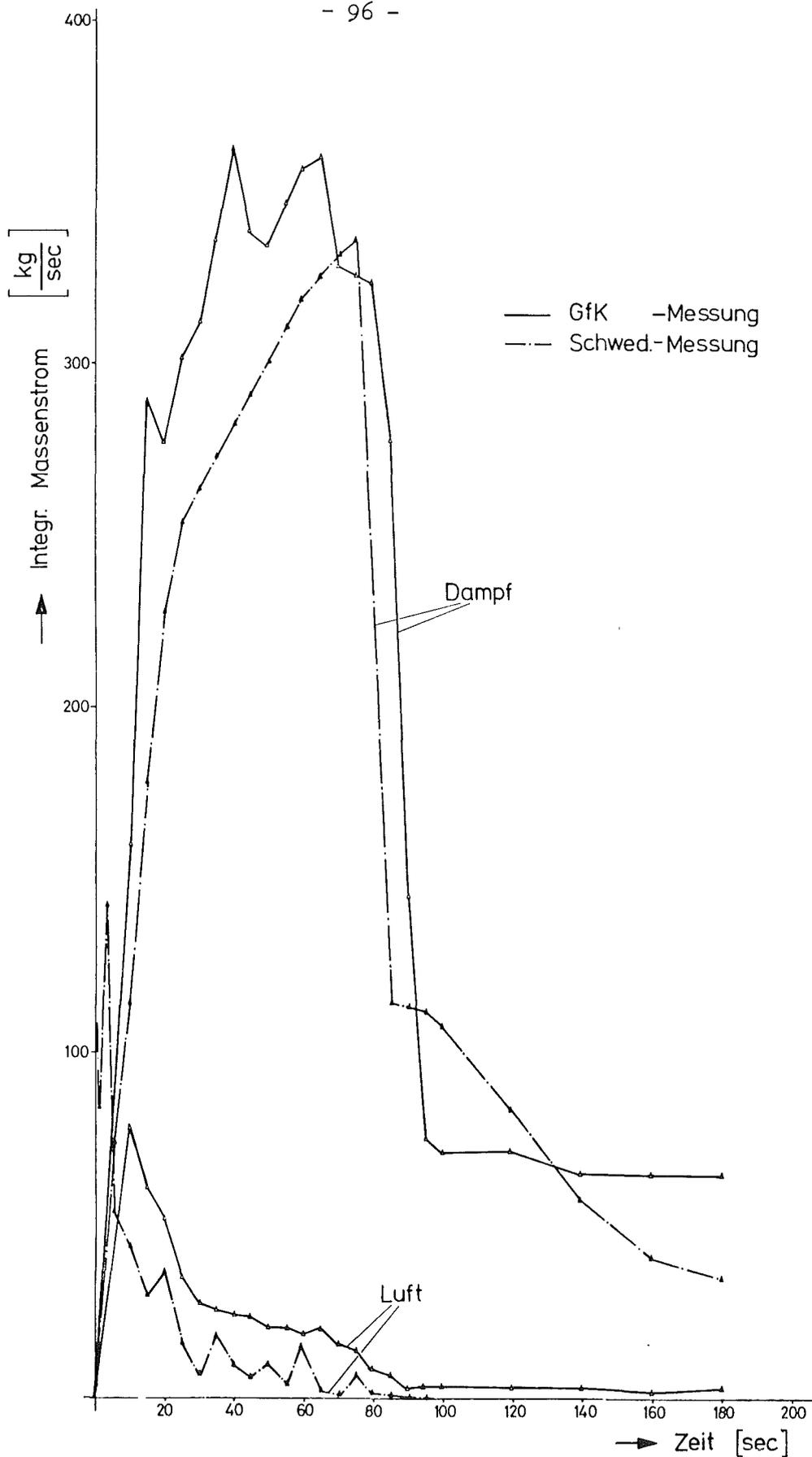


Abb. 4211-3 : Vergleich der integralen Massenströme bei Blowdown Nr. 14 zwischen GfK- und Schwed. Messung

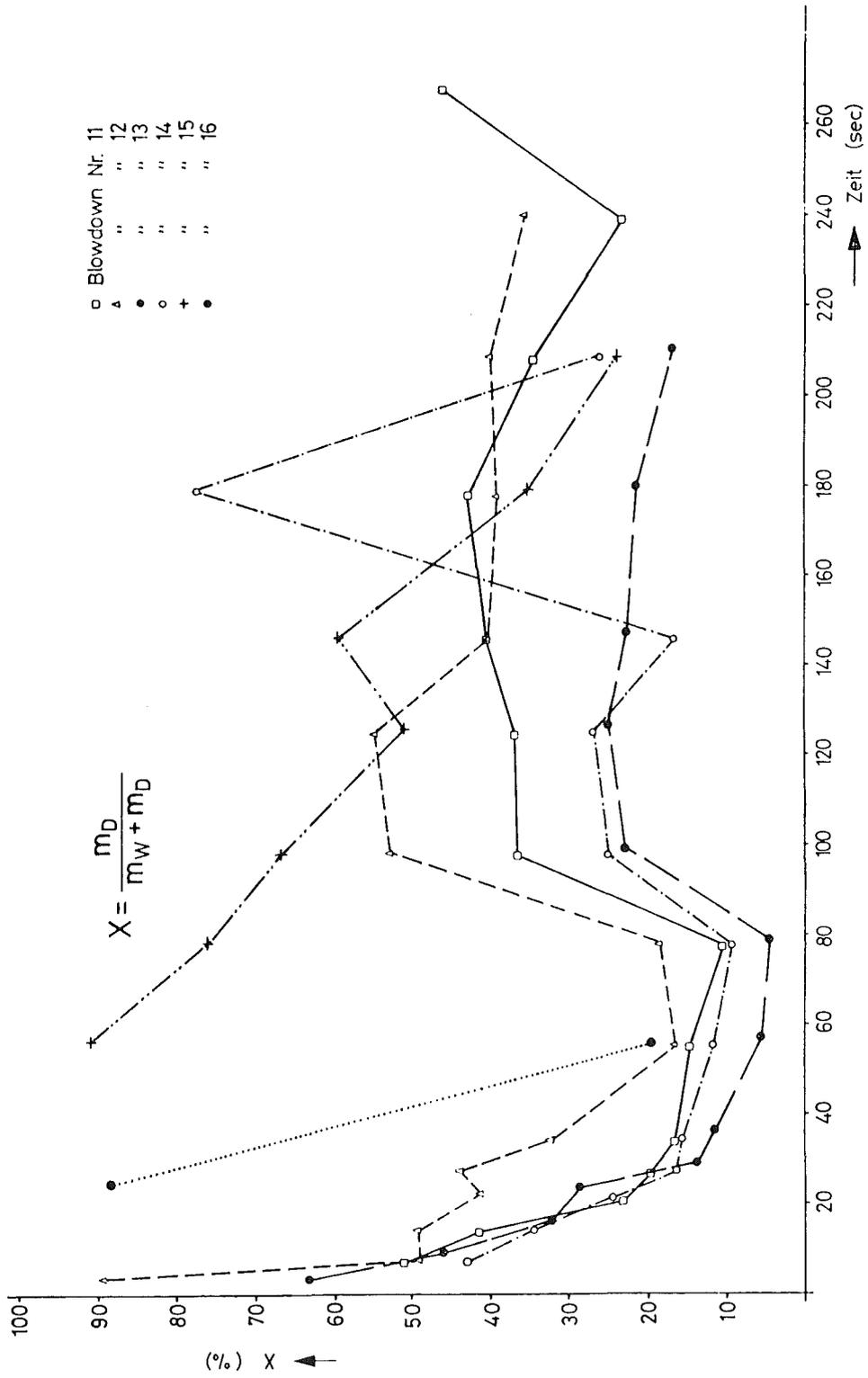


Abb. 4.211-4: Spez. Dampfgehalt X beim Blowdown

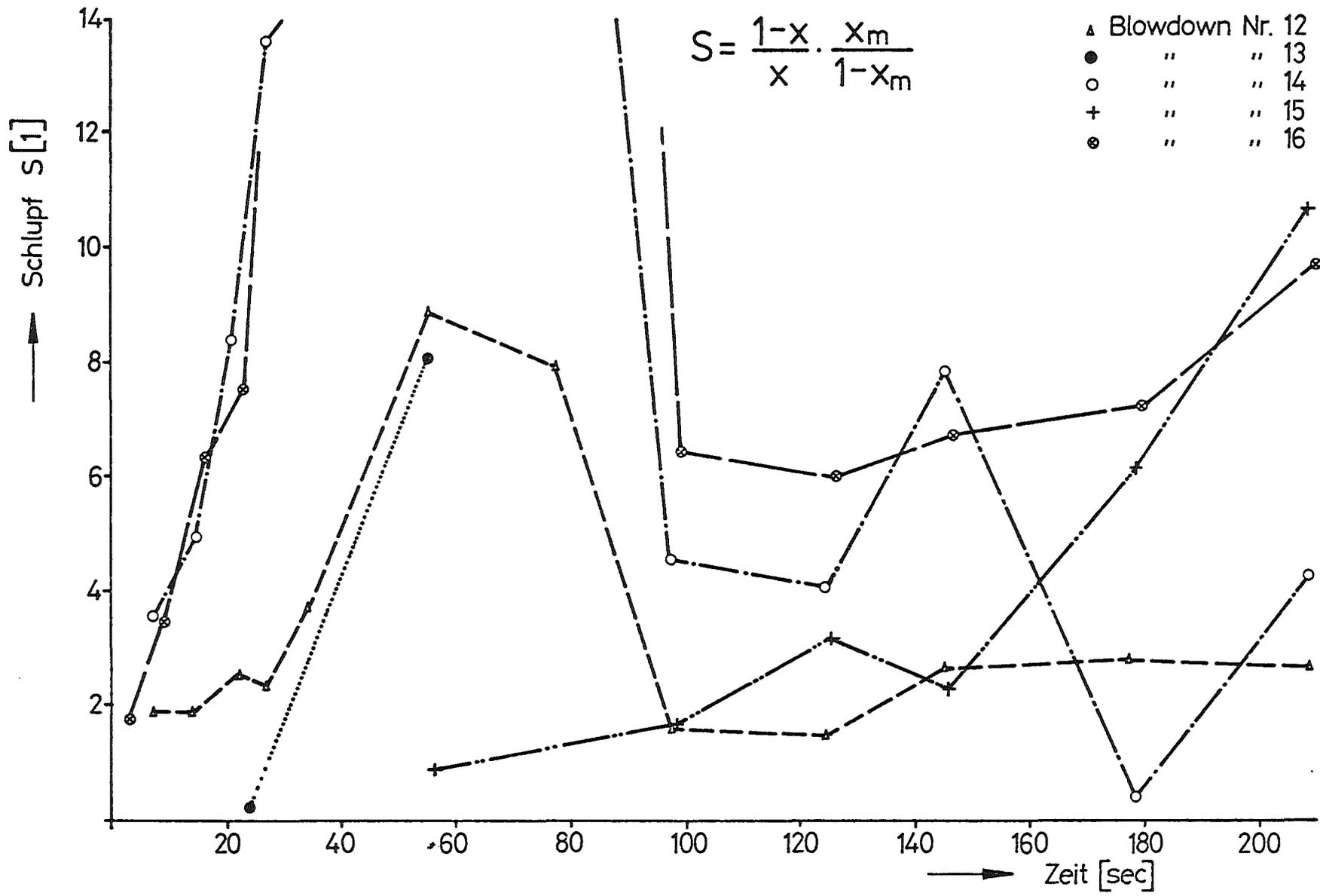


Abb. 4211-5: Schlupfwerte beim Blowdown

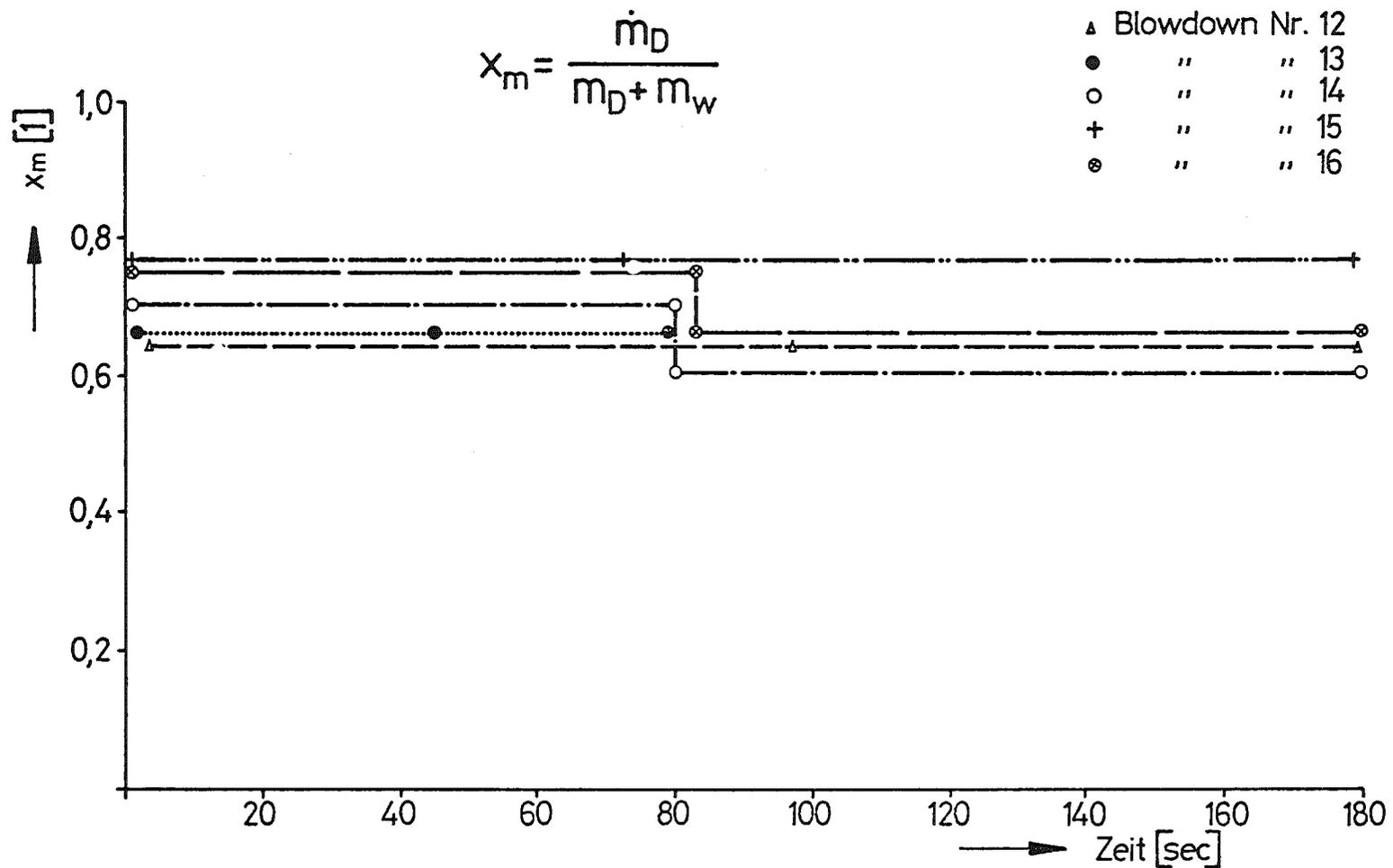


Abb. 4211-6: Spezifischer Dampfgehalt x_m beim Blowdown
(nach schwed. Angaben)

- 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 1972 des PNS (KFK 1787) beschrieben. Schwerpunkte der Arbeiten im Berichtszeitraum lagen bei der Konzipierung und Erstellung von Moduln für das geplante Codesystem zur Beschreibung des LWR-Brennstabverhaltens beim Kühlmittelverlustunfall, bei der Kopplung bereits fertiggestellter Moduln für gemeinsame Testrechnungen, Auslegungsrechnungen für geplante Versuche (PNS 4236 und 4237) und der Nachrechnung bereits an anderer Stelle durchgeführter Versuche mit vorhandenen Programmen. Im einzelnen wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

1. Modulentwicklung

1.1 Wärmetransportmoduln (L. Ehnis, W. Klumpp)

Für das bereits fertiggestellte Unterprogramm für die instationäre, ein-dimensionale Berechnung des Wärmetransports bei sich verformender Brennstabgeometrie (ZET-1D) wurde geprüft, ob bei dem verwendeten CRANK-NICHOLSON-Verfahren nicht eine Berücksichtigung der Koeffizienten zum alten und neuen Zeitschritt notwendig ist. Dazu wurde untersucht, auf welche Weise die nichtlineare Wärmeleitgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} (c(T,r) \cdot T) = \text{div} (\lambda (T,r) \text{ grad } T) + Q(t,r)$$

näherungsweise durch Linearisierung und Anwendung des für lineare Probleme entwickelten CRANK-NICHOLSON-Verfahrens für die Diskretisierung gelöst werden kann. Die numerische Stabilität der gewonnenen Gleichungen wurde untersucht. Eine Stabilitätsanalyse lieferte Hinweise, wie das CRANK-

NICHOLSON-Verfahren auf nichtlineare Probleme anzuwenden ist. Es zeigte sich, daß eine Linearisierung des Produktes von Koeffizient und Temperatur (was darauf hinausläuft, daß bei der numerischen Rechnung die Koeffizienten zum alten und neuen Zeitpunkt berücksichtigt werden müssen) zur Instabilität des Verfahrens führen kann. Die getrennte Linearisierung der Koeffizienten und Temperaturen vermeidet dies, während der hierbei zusätzlich auftretende Linearisierungsfehler durch die Bereitstellung entsprechender Stoffwert-Unterprogramme klein gehalten werden kann. Unter diesen Umständen ist das für ZET-1D verwendete Verfahren das geeignetste.

Für die Berechnung des stationären Ausgangstemperaturfeldes für eine Transientenrechnung mit ZET-1D wurde das Programm STT-2D als SSSYST-Modul bereitgestellt. STT-2D löst die zweidimensionale stationäre Wärmeleitgleichung für Brennstäbe (r,z-Geometrie). Die zugelassenen Geometrie- und Materialanordnungen sind in beiden Programmen identisch. Beide Moduln sind an den Systemkern SSSYST angeschlossen und können auf andere Moduln und auf die Datenbasis zurückgreifen.

1.2 Innendruckmodul (S. Dagbjartsson, A. Schneider, H. Unger)

Für die Berechnung der Beanspruchung der Brennstab-Hüllrohre muß neben der Temperatur der orts- und zeitabhängige Verlauf des Brennstabinnen-drucks unter Berücksichtigung der Strömungsvorgänge bei einem sich aufblähenden Brennstab bekannt sein. Maßgebend für die Berechnung der Hüllrohrverformung ist der Differenzdruck zwischen innerer und äußerer Hüllrohrfläche. Der Außendruck wird von Rechencodes wie z.B. RELAP [1] geliefert. Für die Berechnung des Innendruckes wurde ein neuer Modul konzipiert.

Die Bestimmung der zeitlichen und örtlichen Verteilung des Gasdrucks in einem Brennstab kann in zwei Schritte unterteilt werden. Zunächst muß der als ortsunabhängig angenommene stationäre Druck während des Normalbetriebs im Brennstab berechnet werden. Dabei sind der Anfangs-Innen-druck (im frischen Brennstab) und der Abbrand die entscheidenden Einflußgrößen. Anschließend ist unter der Annahme einer konstanten Spaltgasmenge im Stab die orts- und zeitabhängige Druckverteilung während des Kühlmittelverlustunfalls infolge Temperaturänderungen des Brennstabs und Geometrieänderungen der Hülle (Volumenvergrößerung) zu ermitteln.

Für den Gasdruck auf der Innenseite eines bestrahlten Brennstabes sind die Gasmenge und das zur Verfügung stehende Volumen maßgebend. Die Gasmenge setzt sich dabei zusammen aus dem anfangs eingefüllten Helium und den freigesetzten Spaltgasen. Diesen Gasen stehen als Volumen zur Verfügung: das Spaltgasplenum, gegebenenfalls ein Spalt zwischen Brennstoff und Hülle, ein Teil der Porenvolumina im Brennstoff und u.U. ein zentraler Hohlraum im Brennstoff sowie Spalten zwischen den Pellets einschließlich der Dishingvolumina.

Die Gesamtmenge entstandener Spaltgase wird mit dem Programm RIBD [2] in Abhängigkeit von der thermischen Leistung und der Betriebszeit berechnet. Dabei ist zu berücksichtigen, daß sich entlang der z-Koordinate eines Brennstabes die thermische Leistungsdichte mehr oder weniger stark ändern kann. Aus der Gesamtmenge entstandener Spaltgase sind die freigesetzten Spaltgase unter Berücksichtigung einer von der Temperaturverteilung im Brennstoff abhängigen Freisetzungsrates zu berechnen. Mit plausiblen, vereinfachenden Annahmen für die Freisetzungsrates, für die Berechnung des Gesamtdrucks aus den Partialdrücken der flüchtigen Komponenten und für deren Transport im Stab (Kapillarströmung im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle) wurde ein Gleichungssystem zur Berechnung der zeit- und ortsabhängigen Verteilung des Brennstabinnendruckes aufgestellt. Ein entsprechender SSYST-Modul wird zur Zeit programmiert.

1.3 Steuermoduln (W. Gulden)

Um mit den bereits fertiggestellten Moduln (RELAP als SSYST-Modul, ZET-1D, STT-2D und HRODE1 als eindimensionaler Deformationsmodul für kleine Verformungen) schon Rechnungen unter SSYST-Kontrolle durchführen zu können, war die Entwicklung verschiedener Steuermoduln notwendig. In einer ersten Stufe wurde davon ausgegangen, daß der Hydraulikmodul RELAP vorab und unabhängig von ZET-1D und HRODE1 alle interessierenden transienten Daten und den dazugehörigen Zeitvektor liefert. Ausgehend von diesem Zeitvektor berechnet dann ZET-1D - im Grenzfall für jeden Zeitschritt - das aktuelle Temperaturfeld unter Berücksichtigung der aus RELAP-Ergebnissen für den betreffenden Zeitpunkt bereitzustellenden Randbedingungen. HRODE1 ermittelt die neue Geometrie, die sich aus den Temperatur- und Druckänderungen ergibt. Die neue Geometrie wiederum beeinflußt das Temperaturfeld usw. Diese enge Wechselwirkung zwischen Temperaturänderung und Deformation zieht folgende Forderungen nach sich:

1. Der Übergang von einem Modul zum folgenden (Regieabgabe) muß zu jedem Zeitschritt möglich sein.
2. Die Steuerung der Regieabgabe soll sowohl durch Eingabe (z. B. bei jedem i-ten Zeitschritt) als auch durch den Modul selbst möglich sein. Als Kriterien für eine automatische Regieabgabe kommen physikalische Größen in Betracht, wie z. B. maximal zulässige Temperatur- oder Geometrieänderungen oder Änderungen in der Wärmeübergangszahl α .
3. Wird ein Modul bei einem bestimmten Zeitschritt gestartet, müssen die diesem Zeitschritt zugeordneten Eingabedaten bereitstehen. Das gilt sowohl für einzelne Werte, wie z. B. die aktuelle Zeit, als auch für die diesem Zeitpunkt zugeordneten Datenfelder, wie z. B. Temperaturen, Radian oder Randbedingungen.

Aus diesen Forderungen ergeben sich für die programmtechnische Realisierung folgende Konsequenzen:

1. Aus den von RELAP bereitgestellten zeitabhängigen Datenblöcken müssen für jeden aktuellen Zeitschritt die für ZET-1D oder HRODE₁ benötigten Datenblöcke berechnet werden. Eine Übernahme ohne Aufbereitung ist deshalb nicht möglich, weil Anzahl und Anordnung der Geometriestützpunkte in RELAP nicht mit denen in ZET-1D und HRODE₁ in sinnvoller Übereinstimmung gebracht werden können.
2. Eine automatische Regieabgabe - abhängig von physikalischen Kriterien - ist nur dann möglich, wenn alle Eingabegrößen des nachfolgenden Moduls vom aktuell laufenden modifiziert werden können. Diese Forderung wird durch die Definition eines Steuerblocks realisiert, der Eingabegrößen für beide Moduln (ZET-1D und HRODE₁) enthält und der von jedem Modul am Anfang von der zentralen Datei geholt, während der Rechnung modifiziert und vor Regieabgabe wieder unter der gleichen Blocknummer auf die zentrale Datei geschrieben wird.
3. Die von RELAP kommenden Zeitintervalle des Zeitvektors (Mikro-Zeitschritte) sind so klein, daß es nicht sinnvoll ist (Rechenzeit!), bei jedem Zeitschritt Temperaturfeld und Deformationen neu zu berechnen. Diese Rechnungen sollten nur nach den aus physikalischen Kriterien bestimmten Makro-Zeitschritten erfolgen. Falls von der Rechenzeit her Makro-Zeitschritte nötig werden, die so groß sind, daß einige Tran-

sienten sich innerhalb dieser Makro-Zeitschritte zu stark ändern, dann muß für jeden Makro-Zeitschritt ein Mittelwert bereitgestellt werden ("Kondensation"). Beispiel Wärmeübergangszahl α)

Um eine automatische Regieabgabe eines Moduls abhängig von physikalischen Kriterien realisieren zu können, wurde die Dateneingabe für alle beteiligten Modulen neu organisiert und standardisiert. Bei der vorliegenden Version wird die Regieabgabe vom Wärmeleitmodul gesteuert. ZET-1D berechnet für jeden RELAP-Zeitschritt ein Temperaturfeld und gibt dann die Regie ab, wenn entweder eine maximale Anzahl von Zeitschritten IZMAX (Eingabegröße) abgearbeitet ist oder wenn sich die Temperatur in einem Punkt der Hülle um mehr als $DT^{\circ}C$ (Eingabegröße) verändert hat und deshalb eine neue Dehnungsrechnung sinnvoll erscheint. Es ist geplant, in einer verbesserten Version die Regieabgabe nicht nur von Temperaturveränderungen, sondern auch von Änderungen im Dehnungszustand abhängig zu machen.

2. Anwendungsrechnungen

2.1 Nachrechnung der Behälter-Blowdown-Versuche am Battelle-Institut mit RELAP3 (R. Schützle)

Es wurde versucht, die am Battelle-Institut durchgeführten Blowdown-Versuche an einem Druckbehälter ohne Einbauten [3,4] mit dem RELAP3-Programm nachzurechnen. Zur Anpassung der Blowdown-Rechnung an die Versuchsergebnisse wurden folgende Eingabedaten variiert:

- Darstellung des Versuchsbehälters durch ein oder zwei Kontrollvolumina;
- Kontraktionsziffer für das Durchströmen des Abblasequerschnitts;
- Reibungskoeffizient in der Abblaseleitung;
- Parameter des Dampfseparationsmodells;
- Anfangsdaten von Druck und Dampfqualität (obwohl diese an sich aus den Versuchsbedingungen festgelegt sind).

Als Ergebnis kann festgehalten werden, daß gegenüber der Rechnung mit Nominalwerten durch Variation der Kontraktionsziffer, des Reibungskoeffizienten und der Parameter des Dampfseparationsmodells eine Verbesserung der Übereinstimmung zwischen Rechnung und Versuch erzielt werden

konnte. Aber auch mit der günstigsten Parameterkombination war die Übereinstimmung nicht in allen Punkten befriedigend.

2.2 Auslegungsrechnungen für geplante Versuche

(D. Kirsch, D. Steiner)

Für die Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverlustunfalls (PNS 4236) und für die In-pile-Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalls (PNS 4237) wurden Auslegungsrechnungen mit dem Programm RELAP3 für die geplanten bzw. vorgesehenen Kreisläufe begonnen. Dabei machte die Darstellung des stationären Anfangszustandes gewisse Schwierigkeiten. Inzwischen liegen jedoch erste Ergebnisse für beide Vorhaben vor. Diese Rechnungen werden fortgesetzt, da hier eine Reihe von Parametervariationen durchzuführen ist.

Zitierte Literatur:

- [1] W. H. Rettig et al.:
RELAP-3 A Computer Program for Reactor Blowdown Analysis.
US-AEC-Report IN-1321 (Juni 1970)

- [2] R. O. Gumprecht:
Mathematical Basis of Computer Code RIBD.
Douglas United Nuclear Inc. Richland Wash. Document No. DUN-4136(68)

- [3] B. Rüdiger, M. Zimmermann:
Ergebnisse experimenteller Untersuchungen über die Druckentlastung wassergekühlter Reaktoren. Reaktortagung Bonn 30.3.-2.4.1971

- [4] B. Rüdiger:
Experimental Blowdown Studies of a Reactor Simulator Vessel Containing Simplified Internals. MRR 115, Vol. 1, Dez. 1972

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllmaterial
beim Kühlmittelverlustunfall

(M. Boček, C. Petersen, IMF)

1.1 Röntgenographische und metallographische Untersuchungen von temperaturbedingten Gefügeänderungen von Zircaloy-4 Hüllrohren.

Das im vorangegangenen Halbjahresbericht (KFK 1859) ausführlicher dargestellte Versuchsprogramm zur Untersuchung der Texturänderung wurde weiter fortgesetzt. Die vorliegenden Ergebnisse aus den Texturuntersuchungen zeigen eine deutliche Änderung der Textur.

Die Versuchsbedingungen waren:

- konstante Glühtemperatur von 1100 °C,
- konstante Aufheizgeschwindigkeit von RT auf 1100 °C mit 60 °C/sec,
- Haltezeiten von wenigen Sekunden bis zu einer Stunde,
- schnelle Abkühlung (innerhalb von 10 sec) in Wasser.

Die Texturänderung vollzieht sich bereits bei kleinen Haltezeiten, zwischen wenigen Sekunden und ca. 3 min. (Abbildungen 4235-1, -2, -3). Bei längeren Zeiten ändert sich die Textur nicht mehr (Abbildung 4235-4).

Dies ist für Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall von Bedeutung. Innerhalb der Aufheizphase nach dem Kühlmittelverlust ist mit einer Texturänderung zu rechnen, und damit besteht ein Einfluß auf das Festigkeitsverhalten des Hüllrohres.

Da bei den oben genannten Versuchen die Ofentemperatur auf 1100 °C begrenzt war, sind jetzt folgende Versuche geplant:

- 1) Glühung bei 1260 °C, einer Aufheizgeschwindigkeit von RT auf diese Temperatur mit 60 °C/sec und Haltezeiten bis ca. 100 sec in einem Ultrahochvakuumofen.
- 2) Variation der Aufheizgeschwindigkeit bis 100 °C/sec von RT auf 1260 °C und Haltezeiten im Bereich von Sekunden.

Diese Versuche sollen, sobald die apparativen Möglichkeiten gegeben sind, durchgeführt werden.

1.2 Spannungs-Dehnungsverhalten von Zircaloy-4 bei höheren Temperaturen.

Da bekanntlich das mechanische Verhalten in stark anisotropen Werkstoffen wesentlich durch die Texturbeschaffenheit bestimmt wird, wurden Zugversuche an Hüllrohrsegmenten aus Zircaloy-4 vorgenommen. Diese Rohrsegmente hatten dieselben Abmessungen wie die Texturproben. Das Material lag im selben Zustand vor wie das Probenmaterial für die Ausgangstextur (1. Halbjahresbericht 1973 des PNS, KFK 1859).

Die Zugversuche wurden bei den Temperaturen 650, 708, 754 und 800 °C unter Argonatmosphäre durchgeführt. Die Verformungsgeschwindigkeit betrug $5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Die Proben wurden bis zum Bruch verformt. In Abbildung 4235-5 sind die Spannungs-Dehnungskurven für die untersuchten Temperaturen dargestellt. Aus den Diagrammen ist zu ersehen, daß bei steigender Temperatur Streckgrenze und Dehnung abnehmen. Die Verfestigung nimmt bei 650 °C bis ca. 50% Dehnung ($\hat{=} \frac{\Delta \epsilon}{\epsilon_0} = 0,5$) noch zu. Im Temperaturbereich zwischen 708 und 800 °C verfestigt sich der Werkstoff nicht mehr. Es ist zu erwarten, daß diese Tendenz auch für höhere Temperaturen erhalten bleibt. Bei Simulationsrechnungen kann für Deformationen oberhalb von 700 °C ein verfestigungsloses Verhalten des Werkstoffes angenommen werden.

Eine Gegenüberstellung der in der vorliegenden Untersuchung gemessenen $\sigma_{0,2}$ - Werte und der aus zwei Arbeiten von J. F. White [1] und J. M. Luton und J. J. Jonas [2] entnommenen $\sigma_{0,2}$ -Werte ist in Abbildung 4235-6 gemacht worden, in dem die $\sigma_{0,2}$ -Dehngrenze als Funktion der Temperatur dargestellt ist. Die $\sigma_{0,2}$ -Dehngrenze nimmt mit der Temperatur bis 800 °C stark ab. Im Temperaturbereich zwischen 800 °C und 1200 °C verlangsamt sich die Abnahme der $\sigma_{0,2}$ -Dehngrenzen mit der Temperatur.

Mit dem derzeit zur Verfügung stehenden Ofen konnte nur bis 800 °C gemessen werden, so daß eigene Meßwerte im Temperaturbereich von 800-1200 °C noch ausstehen. Diese Versuche werden durchgeführt, sobald die apparativen Möglichkeiten gegeben sind.

Literaturhinweis

[1] White, J. F.

"Physiochemical Studies of Clad UO_2 under Reactor Accident Conditions"
Paper: GEMP-1012 (Pt. 2) S. 203-252. General Electric Co. Cincinnati,
Ohio, Nuclear Systems Program

[2] Luton, M. J. und J. J. Jonas

"Solute Strengthening at High Temperatures in Zirconium-Tin-Alloys"
Canadian Metallurgical Quarterly Vol. 11 No. 1 (1972) S. 79-90

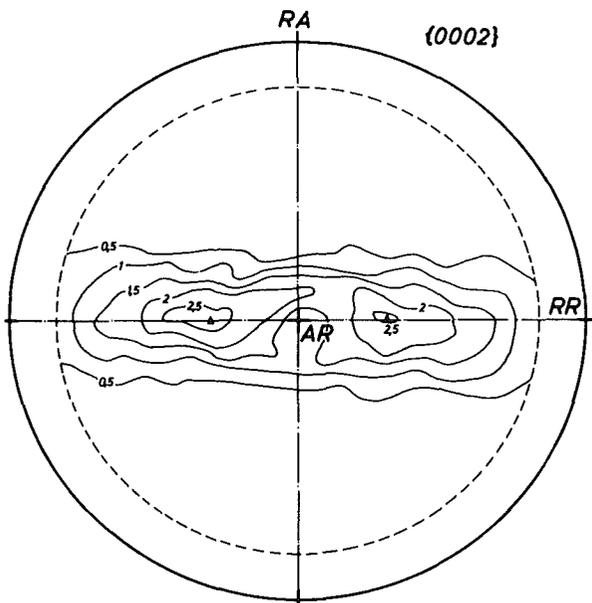


Abb. 4235-1

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

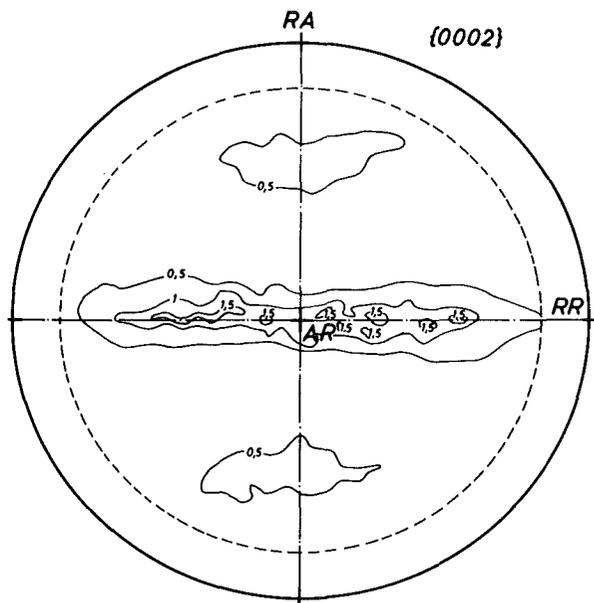


Abb. 4235-2

{0002} - Polfigur, 1100 °C, 10 sec. 10 sec. in Wasser abgeschreckt, Zählrohrbestimmung bezogen auf regellose Orientierung

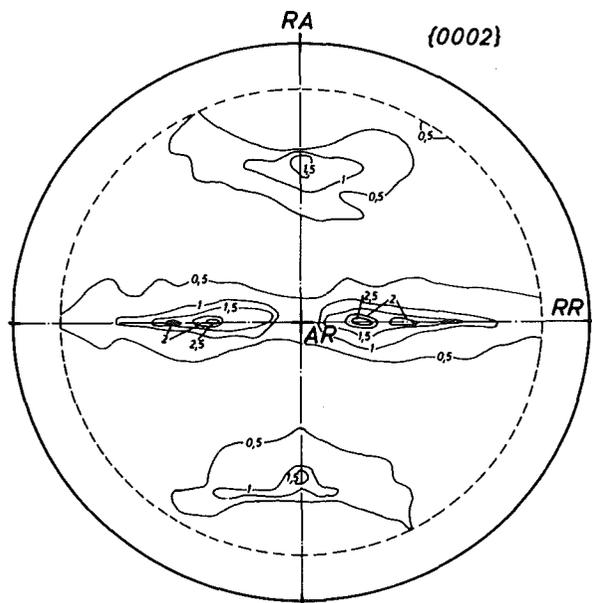


Abb. 4235-3

{0002} - Polfigur, 1100 °C, 3 min., in 10 sec. in Wasser abgeschreckt, Zählrohrbestimmung bezogen auf regellose Orientierung

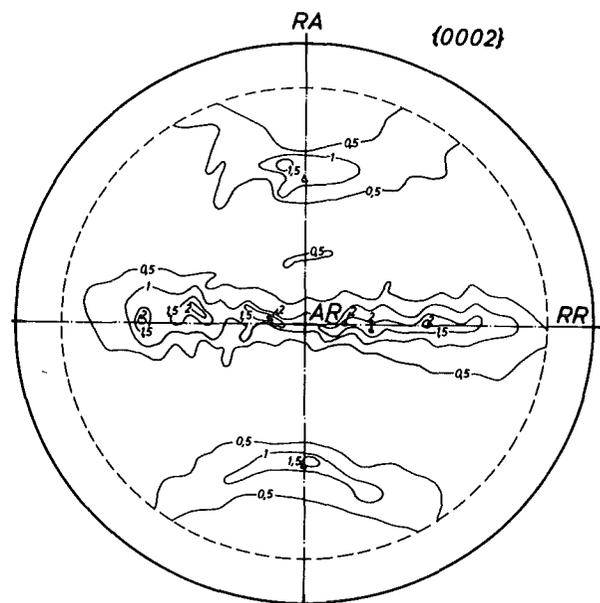


Abb. 4235-4

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

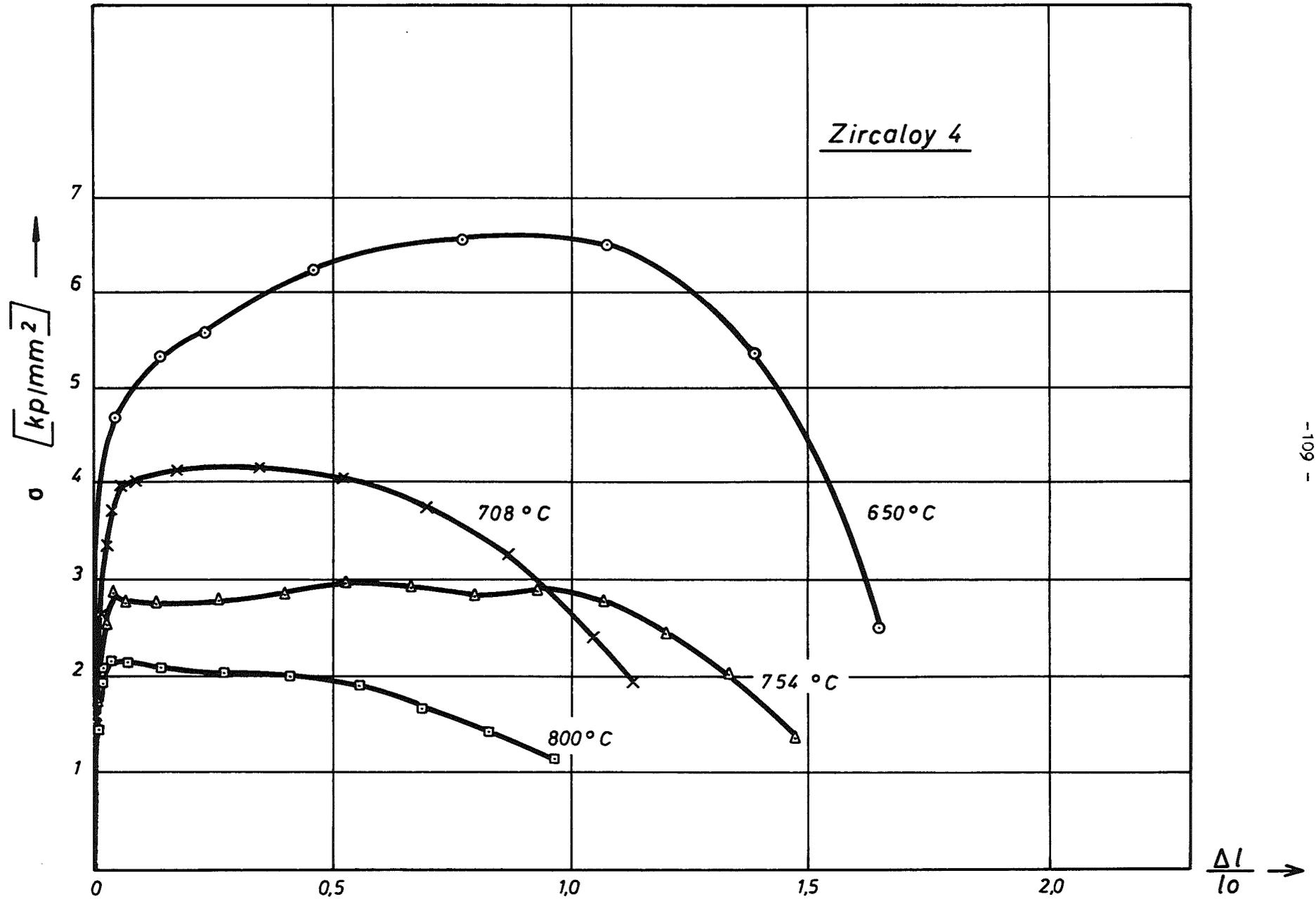


Abb.4235-5 Spannungs-Dehnungskurven von Zircaloy - 4

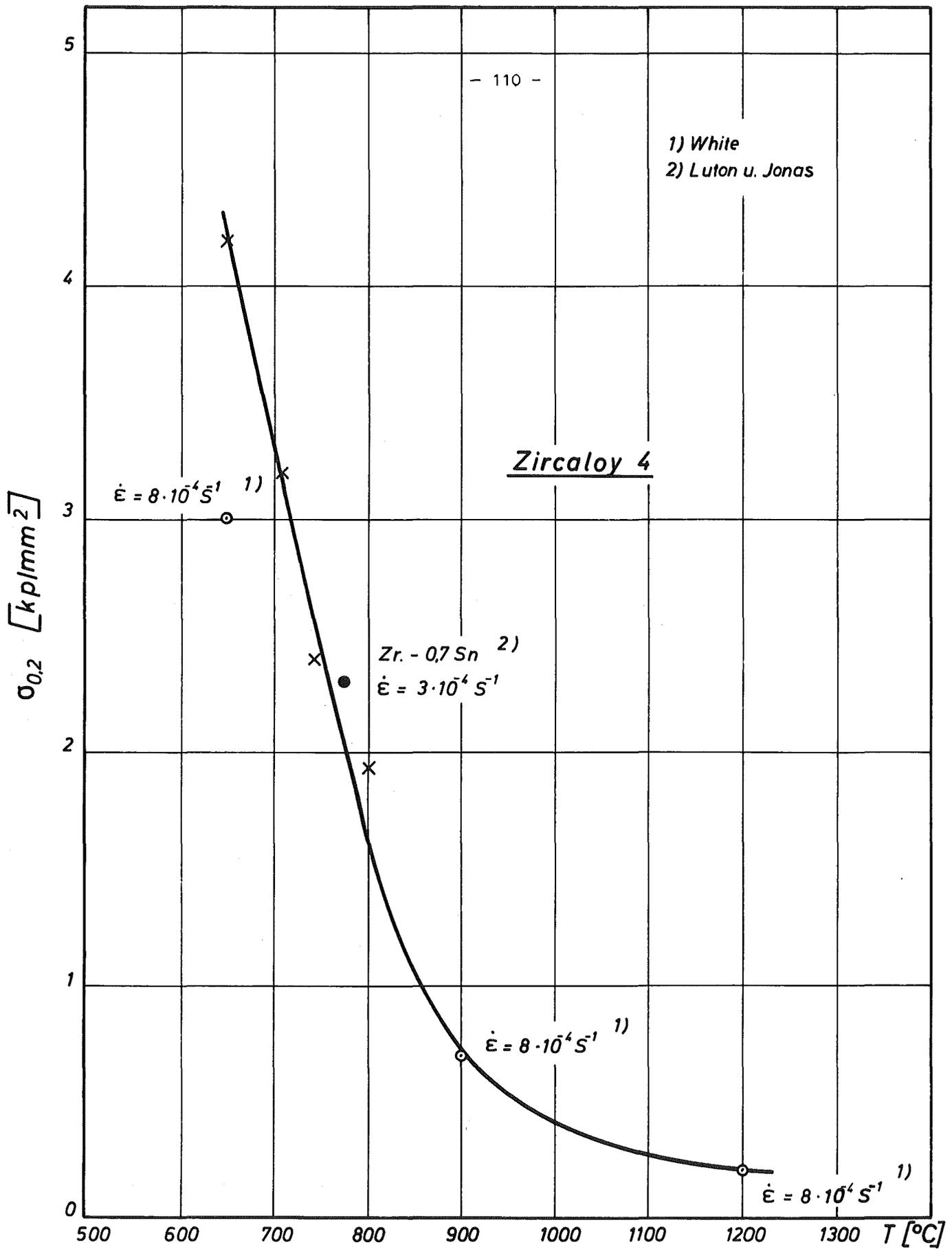


Abb.4235-6 $\sigma_{0,2}$ -Dehngrenze von Zircaloy - 4
im Vergleich mit Literaturwerten

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur - Wasserdampf - Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall.

(S. Leistikow, D. Jennert, H. v. Berg, IMF)

Zur Durchführung transienter Korrosionsreaktionen an Zircaloy-Rohrabschnitten in Dampf (1 at) wurde das im 1. Halbjahresbericht 1973 der PNS (KFK 1859) beschriebene Reaktionsgefäß zuerst weiterbetrieben, später jedoch wegen Dichtungsproblemen der Probeeinspannung (verstärktes Kriechen der Edelstahl-Einspannungsstifte bei Temperaturen $>1000^{\circ}\text{C}$ in wasserstoffreicher Dampf-atmosphäre) durch eine andere Methode ersetzt. In Abb. 4235-7 werden beide Techniken vergleichsweise dargestellt. Die neue Methode, bei der ein auf einem Quarzschlitten in der unbeheizten Zone bereitgestellter Zircaloy-Rohrabschnitt mit berührendem Thermoelement in die beheizte Zone eines dampfdurchspülten Rezipienten gezogen, nach Ablauf beliebiger Zeit wieder entnommen und unterschiedlich schnell abgekühlt werden kann, eröffnete die Möglichkeit, noch steilere Temperatur-Zeit-Verläufe unter Einwirkung des korrosiven Mediums (Abb. 4235-8) anzuwenden. Erste Ergebnisse zeigen nach Durchlaufen der Kurvenzüge 1 oxidative Wandstärkeschädigungen (im rechnerischen Bezug auf ZrO_2) von 9,9 - 29,1 μm , nach den Kurvenverläufen 2 solche von 38,9 - 118,4 μm und nach 3 solche von 66,6 - 160,8 μm .

Die metallographische Untersuchung solcher Proben (Abb. 4235-9) erweist, daß tatsächlich unterhalb der ZrO_2 -Schicht durch Bildung der O_2 -stabilisierten α -Zr-Phase und gewisser O_2 -Löslichkeit in der rückformierten β -Phase eine noch weitergehende Schädigung als durch den rechnerischen Ausweis erbracht eingetreten ist.

Währenddessen wurde auch der Ausbau der Apparatur zur induktiven Beheizung von Zircaloy-Proben in Dampf vorangetrieben, so daß mit der Aufnahme systematischer isothermer und anderer transienter Untersuchungen bei Eintreffen reaktorspezifischen Versuchsmaterials begonnen werden kann.

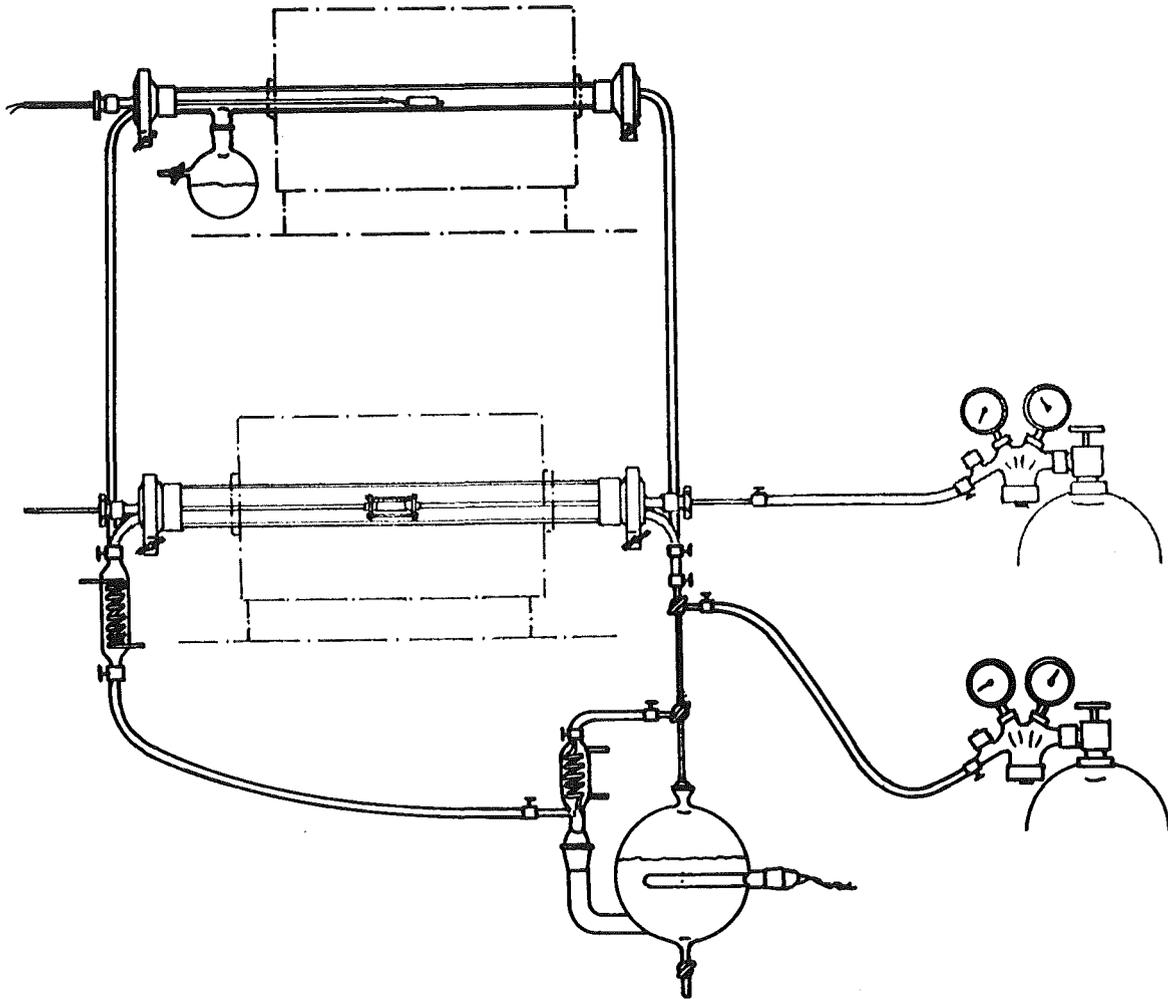


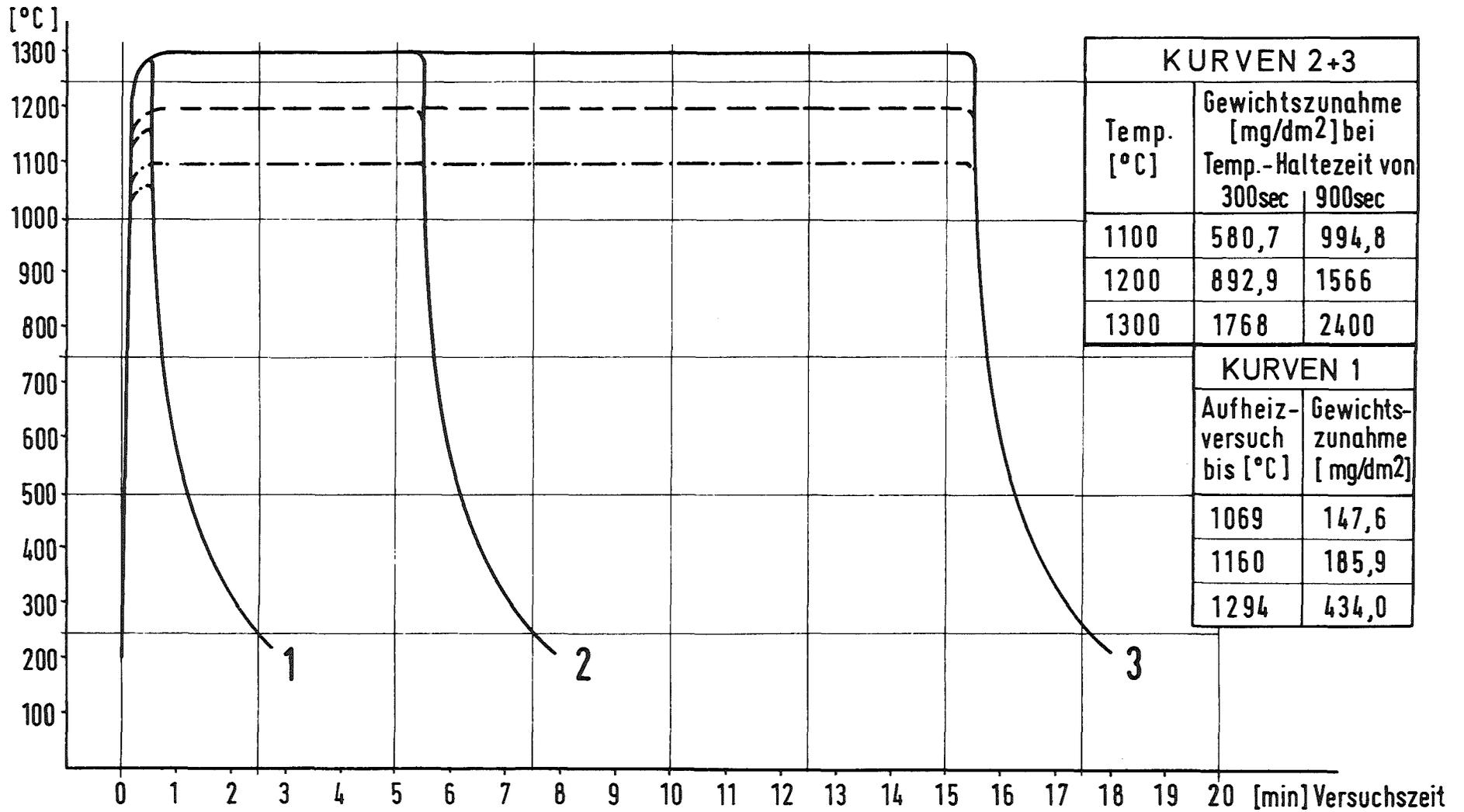
Abb. 4235-7

Apparaturen zur Heißdampf-Korrosion von Zircaloy-Hüllrohren in temperaturkonstanten und -transienten Verläufen:

1. Auf Schlitten im Rezipienten bewegte Probenanordnung.
2. Durch Argonstrom im Probeninneren temperaturregulierte, positionsfeste Probenanordnung.

Abb.4235-8

ZEITLICHE VERLÄUFE UND GEWICHTSZUNAHMEN VON KALTVERFORMTEM ZIRCALOY 4 - ROHRMATERIAL IN HEISSDAMPF (1 at)



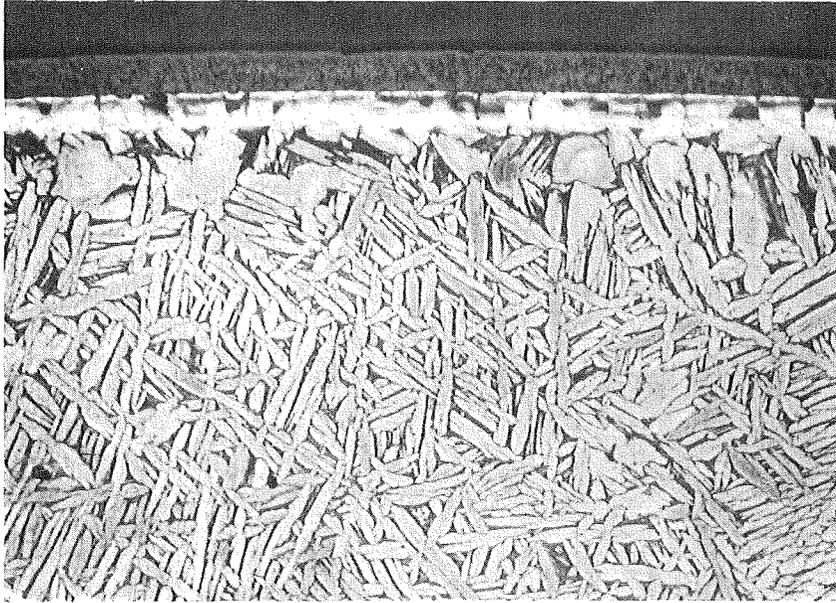


Abb. 4235-9

Äußere Oberfläche eines Zircaloy-4 Hüllrohres nach
temperaturtransienter Heißdampfkorrosion mit Halte-
zeit von 5 Min. bei 1000 °C. 250x

PNS 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, F. Brüderle, RBT)

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

Auch im 2. Halbjahr 1973 stand die Weiterentwicklung des elektrisch beheizten Brennstabsimulators, auf die bereits im 1. PNS-Halbjahresbericht 1973 (KFK 1859) näher eingegangen worden war, im Vordergrund.

Für die detaillierte Betrachtung der thermischen Verhältnisse im Brennstab wurden vergleichende Rechnungen hinsichtlich der Heizleitervarianten durchgeführt. Hierzu wurden zwei den Heizleitervarianten entsprechende Rechenprogrammversionen benutzt, mit denen die instationäre zweidimensionale Wärmeleitgleichung für rotationssymmetrische Brennstäbe numerisch gelöst wird. Das Rechenprogramm berücksichtigt die axiale und radiale thermische Kopplung im gesamten Brennstab und die elektrische Kopplung im Heizer sowie die Wärmeausdehnung der verschiedenen Materialien und die Temperaturabhängigkeit der Stoffdaten. Das Rechenprogramm ist insbesondere dazu geeignet, die Auswirkung von örtlichen Geometrieunterschieden zwischen den einzelnen axialen Zonen des Brennstabes auf die Temperaturverteilung zu untersuchen.

Derartige Ungleichförmigkeiten der Stabgeometrie treten infolge von fertigungsbedingten Toleranzen immer auf. Die den Vergleichsrechnungen zugrunde gelegten Geometriefehler wurden anhand der von Herstellerseite genannten Toleranzangaben für die verschiedenen Stabkomponenten so realistisch wie möglich angesetzt; einige Zahlenwerte können den Abbildungen 4236-1 und -2 entnommen werden.

Vor allem ist jedoch aus den Abb. 4236-1 und -2 die Überlegenheit des Graphitheizers über den Wolframheizer unter den hier relevanten Bedingungen abzulesen. Die zugrunde gelegten Störungen entsprechen sich weitgehend, so daß die Vergleichbarkeit der dargestellten Ergebnisse gewährleistet ist. Das Verhalten der beiden Heizleitertypen war in allen betrachteten Fällen analog.

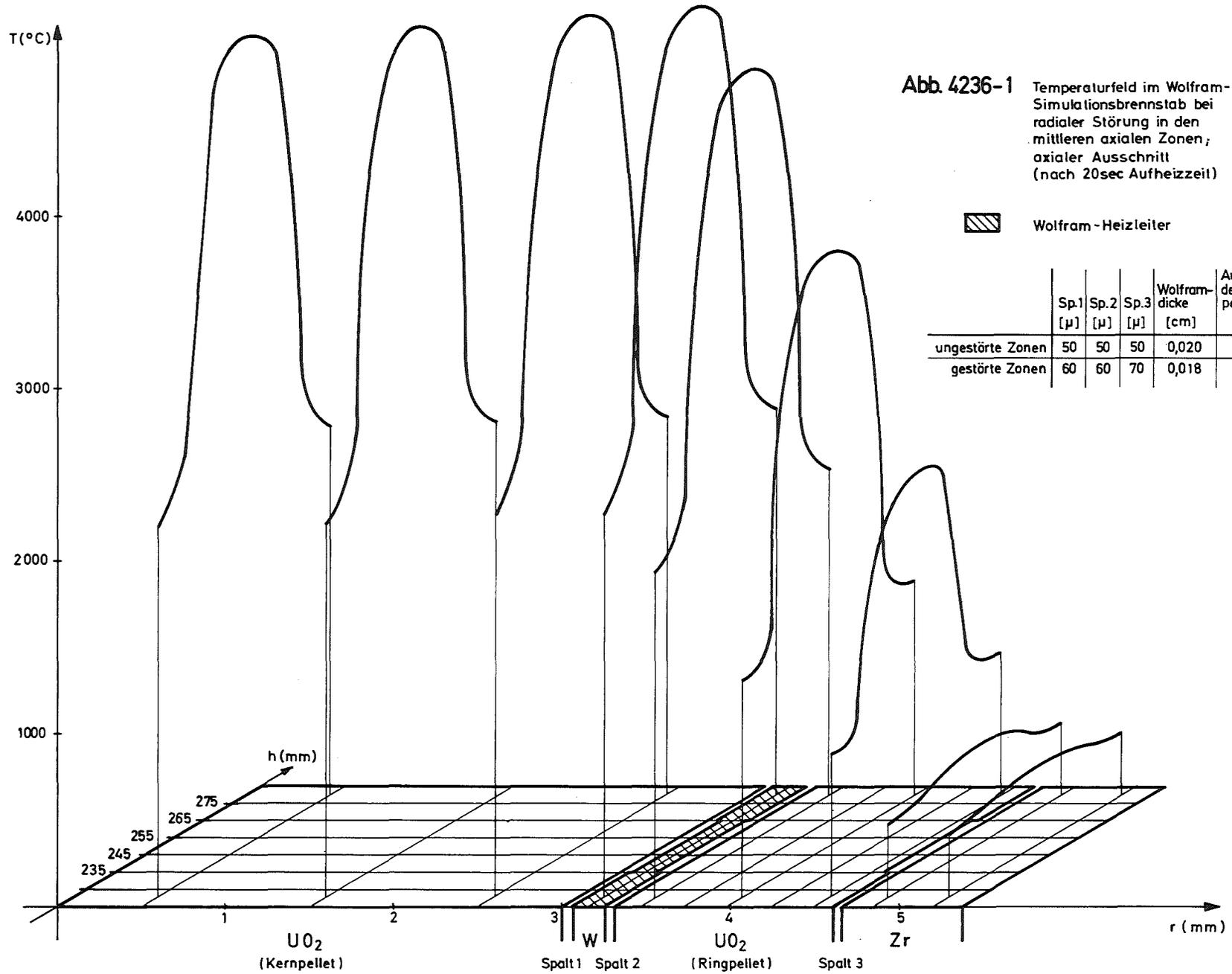
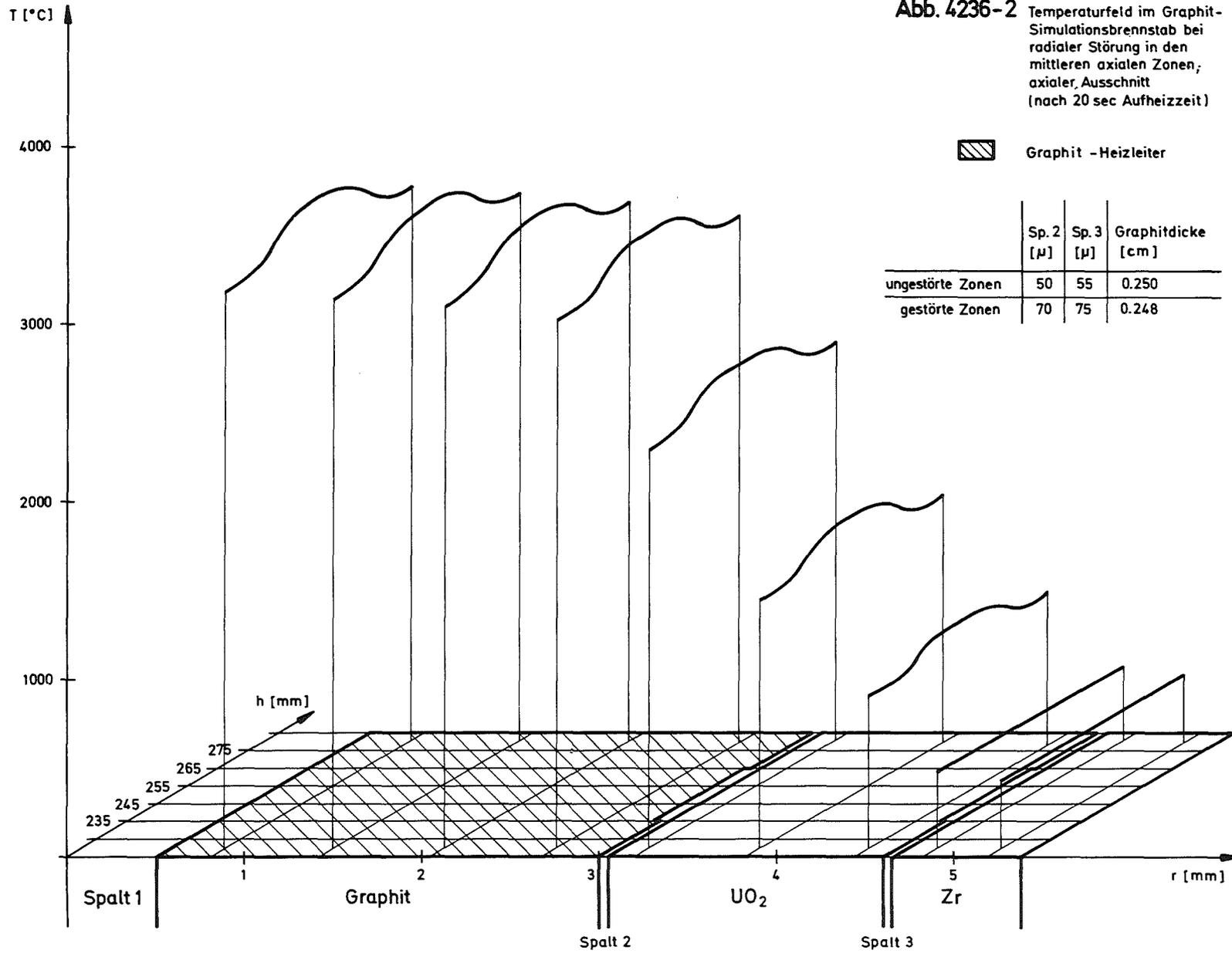


Abb. 4236-2 Temperaturfeld im Graphit-Simulationsbrennstab bei radialer Störung in den mittleren axialen Zonen; axialer Ausschnitt (nach 20 sec Aufheizzeit)



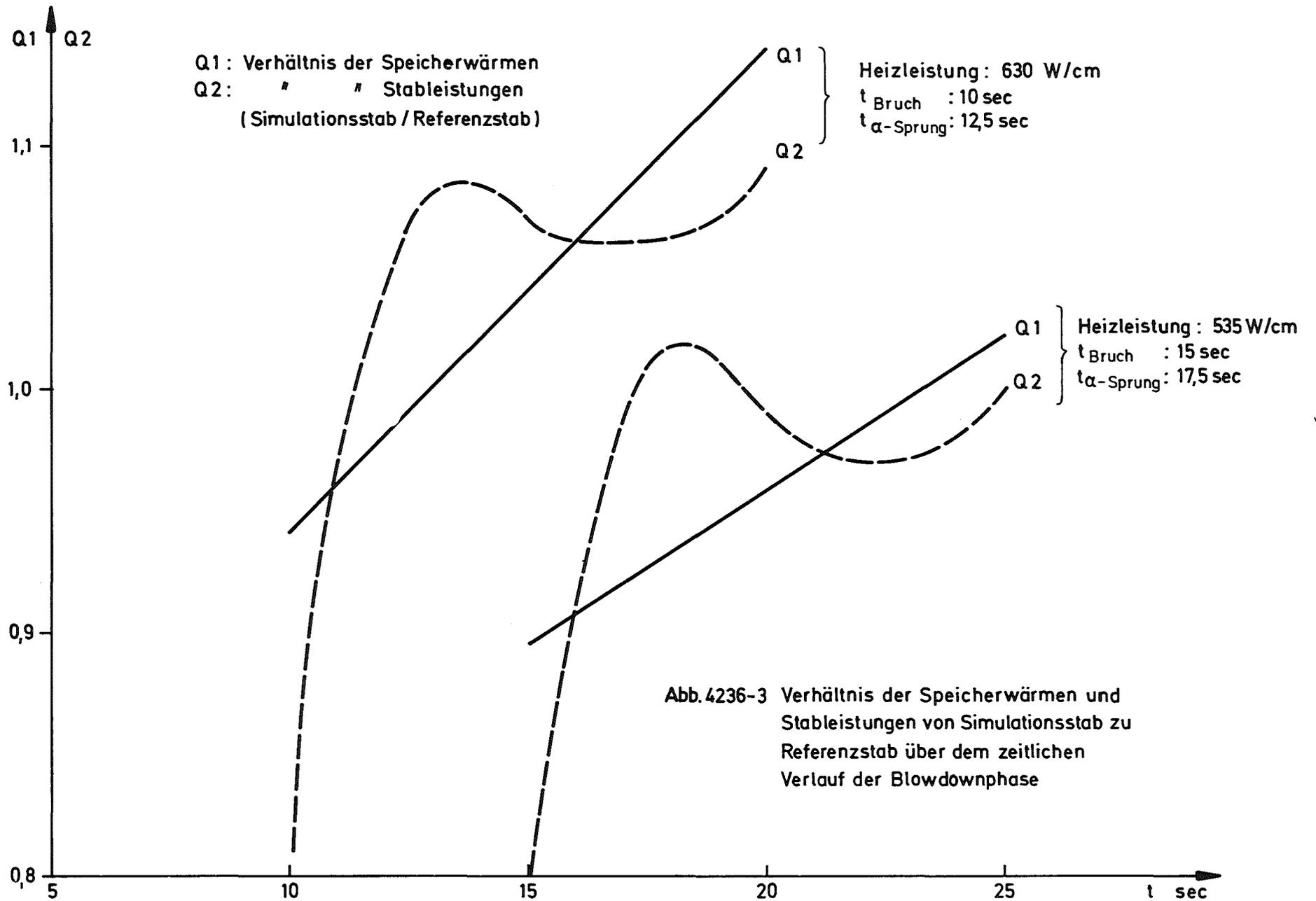
Die Hauptgründe für das schlechte Abschneiden des Wolframheizers liegen vor allem in der stärkeren Temperaturabhängigkeit des spezifischen elektrischen Widerstandes des Wolfram im Vergleich zum Graphit und in der (wegen der Stromzuführungen) notwendigen kleineren Wandstärke des Wolframheizers. Die in den Abbildungen 4236-1 und -2 dargestellten Kurven sagen aus, daß unter den angegebenen Aufheizbedingungen mit realistisch angenommenen Geometriestörungen der Wolframheizer längst zerstört sein muß, während der vergleichbare Brennstab mit Graphitheizer lediglich kleine örtliche Übertemperaturen aufweist.

In Abb. 4236-3 sind für zwei verschiedene Heizleistungen die zeitlichen Verläufe der relativen Stabileistungen und Speicherwärmern des Graphitstabes dargestellt. Bezogen sind die Stabileistung und die Speicherwärme auf die korrespondierenden zeitabhängigen Werte eines Reaktorbrandstabs mit 630 W/cm stationärer Stabileistung, der mit derselben Nachwärmekurve und unter Annahme derselben äußeren Randbedingungen (Absenkung der äußeren Wärmeübergangszahl 2,5 s nach Blowdown-Beginn auf 1/100) gerechnet wurde. Es ist zu erkennen, daß im interessanten Zeitbereich des Blowdown die Simulation der Stabileistung und der Speicherwärme mit Fehlern der Größenordnung fünf Prozent möglich ist. Diese Restfehler können durch eine Optimierung des Fahrprogramms für die Heizleistung sicherlich noch verringert werden.

Aufgrund der beschriebenen Rechenergebnisse über den Spalteinfluß an einem Brennstabaufbau, einmal mit Ring- und Vollpellets und einem zwischenliegenden rohrförmigen Wolframheizer, zum anderen mit Ringpellets und einem zentralen Graphitheizstab, hat sich die bislang als Backup-Lösung betrachtete Graphitheizstabversion des Simulationsstabes eindeutig favorisiert.

Es wurden daher Vorversuche mit einem stabförmigen Graphitheizstab von 6 mm \varnothing durchgeführt, der unter He-Gas-Atmosphäre bei einer Strombelastung von 15A/mm² einer Stabileistung bis zu 630 W/cm unterzogen wurde. Dabei wurden Oberflächentemperaturen bis zu ca. 2800 °C erreicht.

Ziel dieser Vorversuche war die Untersuchung des mechanisch/thermischen Verhaltens des Heizstabes, die Erprobung der vorgesehenen Kontaktstellenausführung Stromzuführung / Heizstab und Gewinnung eines ersten Überblickes über die Verträglichkeit von UO₂-Brennstoff mit



Graphit bei den erwarteten Oberflächentemperaturen am Heizstab.

Die beiden ersten Probleme können als gelöst angesehen werden. Die Verträglichkeitsuntersuchungen, die zur Zeit noch laufen, zeigten ab etwa 2400 °C eine merkliche Reduktionsreaktion zwischen UO_2 und Graphit, die eine zwischengeschaltete, höherschmelzende Sperrschicht aus z. B. Niob- oder Tantalcarbide notwendig macht. Erste Versuche in dieser Richtung sind erfolgversprechend verlaufen.

Die Bestellung der UO_2 -Ringpellets (9,2/6,1 mm \varnothing , 10 mm lang) konnte bis zur Bestellreife geführt werden, nachdem durch Musterfertigung bei zwei Lieferfirmen die Fabrikationserfahrung gesichert war.

Anhand eines ersten Entwurfs des Schemas der Versuchsanordnung wurden die Anforderungen an die Apparatur von seiten des Experimentes näher definiert und die Grundlagen für die Anfragespezifikation der einzelnen Komponenten erarbeitet. Mit der Aufstellung dieser Spezifikation wurde begonnen.

Die Arbeiten zur Instrumentierung des Brennstabes und der Versuchsanordnung befinden sich noch im Stadium des Sichtens der Möglichkeiten. Hinsichtlich der instationären Messung des Zweiphasen-Massenstromes in der Versuchseinrichtung zeichnet sich das "True Mass Flow Meter" als entwicklungsfähiges Meßverfahren ab.

PNS 4237: Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalls. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2
(E. Karb, L. Sepold, G. Harbauer, H. Lukitsch, K. Baumgärtner, RBT)

Ziel der geplanten In-pile-Versuche ist die Untersuchung des Einflusses der nuklearen Parameter auf die Mechanismen des Brennstabversagens und damit die Prüfung, ob die Vorgänge beim Brennstabversagen in Out-of-pile-Versuchen mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren genügend genau nachgebildet werden können.

Hierzu werden Einzelstäbe, die von 0 bis 35 GWd/t vorbestrahlt wurden, im DK-Loop durch Kühlungsunterbrechung Temperaturtransienten unterzogen, die für die 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalls (LOCA) typisch sind.

Der Schwerpunkt der Arbeiten im Berichtszeitraum lag auf der Ermittlung der notwendigen Daten für die Auslegung und Spezifikation der Testbrennstäbe:

Als Leistungs- und Anreicherungsprofil für den Teststab wurde ein Zweistufenkonzept gewählt mit verringerter Anreicherung im oberen Stabdrittel. Auf der Basis von Berechnungen des Hülltemperaturverlaufs deutscher Druckwasserreaktoren bei einem LOCA wurden Anreicherungen und Stabileistungen für die zwei Teststabzonen sowie die thermodynamischen Verhältnisse bei der Vorbestrahlung berechnet. Nach neueren Berechnungen der Reaktorhersteller ist eine Änderung dieses Referenztemperaturverlaufs zu erwarten, so daß die danach ermittelten Daten für den Teststab überprüft werden müssen.

Erste Abschätzungen der thermo- und hydrodynamischen Verhältnisse beim In-pile-Versuch sind abgeschlossen. Die ausführlichen Berechnungen, die die Brennstabauslegung und die eventuellen Modifikationen des DK-Loops bestimmen, wurden begonnen. Einen wesentlichen Anteil dieser analytischen Arbeiten, die Bestimmung der Strömungsverhältnisse im Loop während des Entspannungsvorgangs, mit dem die Temperaturtransiente ausgelöst wird, führt das IKE-Stuttgart unter Verwendung von RELAP-3 durch. Dabei ergaben sich starke Verzögerungen, so daß mit den Anschlußrechnungen noch nicht begonnen werden konnte.

Eine erste Serie von Stationär- und Abblaseversuchen zur Ermittlung der charakteristischen Daten des DK-Loops wurde planmäßig durchgeführt. Die Ergebnisse lieferten ausreichende Eingabedaten für abschätzende Berechnungen. Ausführliche Versuche können erst 1974 erfolgen, da das Loop im Berichtszeitraum noch durch ein anderes Programm (PSB) belegt war.

Die Messung des Innendruckes der Brennstäbe während der Transiente muß über eine Kapillare erfolgen, da wegen der großen Strahlenbelastung der Druckaufnehmer nicht unmittelbar am Brennstab angebracht werden kann. Hierzu wurde eine Reihe von Vorversuchen durchgeführt, die zeigte, daß die Verzögerung des Meßsignals bei schneller Entspannung (Hüllrohrbersten) bei 5 m Kapillarlänge kleiner als 10 ms, also durchaus tolerabel ist.

Der Konstruktionsentwurf für die Einbauten des Reaktoreinsatzes und für den Prüflingsendstopfen wurde abgeschlossen. Prototyp-Endstopfen befinden sich in der Fertigung, so daß Versuche zur Ankoppelung des Druckmeßsystems, die bei vorbestrahlten Stäben in der heißen Zelle erfolgen muß, demnächst anlaufen können.

4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung in der Niederdruckphase eines Kühlmittelverlustunfalls.

(K. Wiehr, H. J. Neitzel, He. Schmidt, IRB)

Die allgemeine Zielsetzung dieses Vorhabens ist im 1. PNS-Halbjahresbericht 1973 (KFK 1859) dargestellt.

Der Schwerpunkt der Arbeiten im Berichtszeitraum lag auf der Entwicklung eines geeigneten elektrisch beheizten Brennstabsimulators.

Der im ersten Halbjahresbericht 1973 vorgeschlagene und aus Abb. 4238-1 zu erkennende Aufbau des Simulators wurde mit Hilfe des im vorangegangenen Bericht ebenfalls beschriebenen Wärmeleitreechenprogramms bezüglich der Simulationsqualität überprüft. Die Rechnungen führten zu recht positiven Ergebnissen, wie aus Abb. 4238-2 zu erkennen ist. Die Abb. zeigt Rechenergebnisse für die Hüllrohrtemperaturtransienten des Brennstabes und des Brennstabsimulators in der Wiederaufheizphase, wobei zur Überprüfung der Simulation stark instationärer Vorgänge in der adiabaten Wiederaufheizphase 2 starke Kühlungssprünge angenommen wurden. (gleiche α -Sprünge für Brennstab und Simulator)

Es ergeben sich nur ganz geringe Abweichungen in den Hüllrohrtemperaturverläufen.

Als Startbedingungen für die Wiederaufheizphase wurden bei den bisherigen Rechnungen stationäre Anfangsbedingungen angenommen. Um die gewünschte Speicherwärme zu Beginn der Wiederaufheizphase im Brennstabsimulator zu erhalten, wird die vom Heizleiter erzeugte Wärme durch strömenden Wasserdampf abgeführt. Um zu überprüfen, ob das gewählte Konzept brauchbar und mit den im IRB vorhandenen Versorgungsanlagen durchführbar ist, wurden mit Hilfe der vom IRE entwickelten Fortranprogramme PRAWDA und MAPLIP Kühlkreislaufrechnungen durchgeführt. Die erforderlichen Rechnungen sind abgeschlossen und befinden sich in der Auswertungsphase. In weiteren Vorversuchen konnte nachgewiesen werden, daß bei Verwendung von rohrförmigen Heizleitern Hüllrohrtemperaturen des Brennstabsimulators von ca. 1000 °C bei 35 W/cm Stableistung erreicht werden.

Um sämtliche Herstellungsschwierigkeiten für einen Brennstabsimulator von 3,9 m beheizter Länge mit axialem Leistungsprofil kennenzulernen, befindet sich ein stark verkürzter zweifach geteilter Brennstabsimulator in der Fertigung.

Mit den Projektierungsarbeiten zur Erweiterung und zum Umbau des Prüfstandes wurde begonnen.

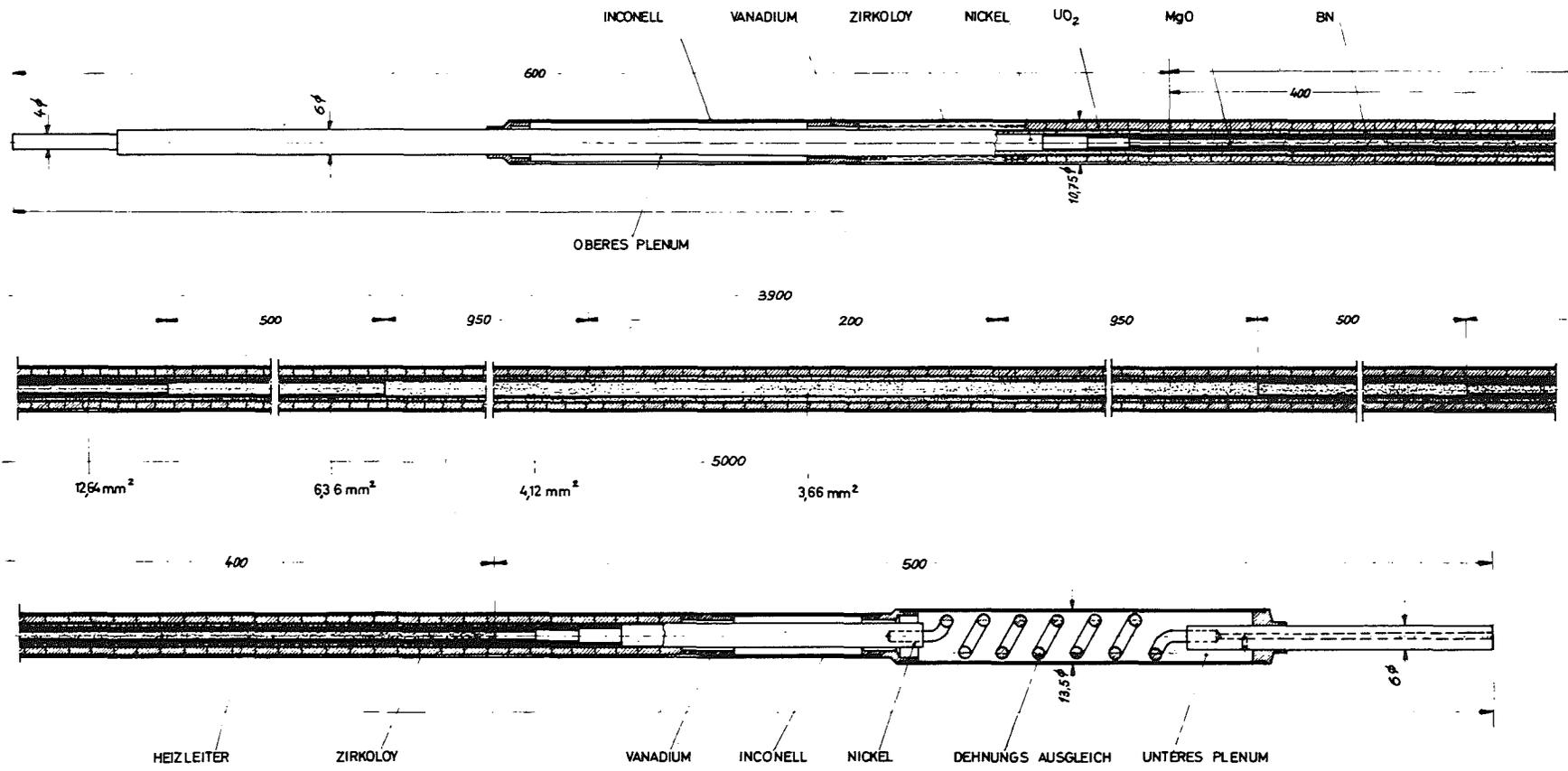


Abb. 4238-1

Art. Nr.	Bezeichnung	Material	Abmessung	Abmessung in mm	Abmessung in mm
1	HEIZLEITER	INCONELL	13,5	10,75	10,75
2	ZIRKOLOY	ZIRKOLOY	13,5	10,75	10,75
3	VANADIUM	VANADIUM	13,5	10,75	10,75
4	INCONELL	INCONELL	13,5	10,75	10,75
5	NICKEL	NICKEL	13,5	10,75	10,75
6	DEHNUNGS AUSGLEICH	NICKEL	13,5	10,75	10,75
7	UNTERES PLENUM	NICKEL	13,5	10,75	10,75
8	UO ₂	UO ₂	13,5	10,75	10,75
9	MgO	MgO	13,5	10,75	10,75
10	BN	BN	13,5	10,75	10,75

2:1 BE-SIMULATOR

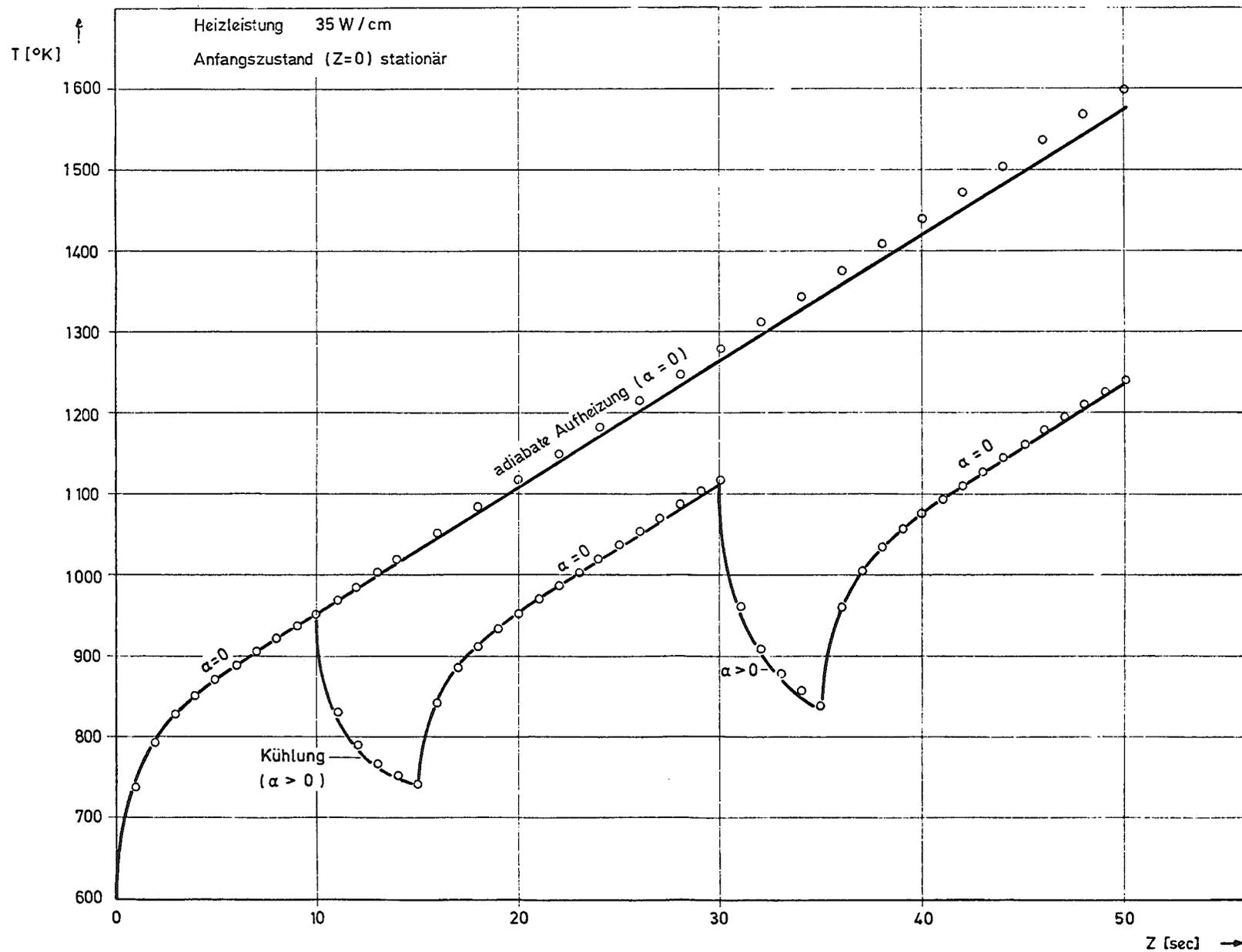


Abb.4238-2 Hüllrohr - Temperatur - Transienten für die Wiederaufheizphase
Vergleich zwischen Brennstab (ausgezogene Linien) und Simulator (o-punkte)

Für die thermischen Vergleichsrechnungen ist die Kenntnis der Abhängigkeit der geometrischen Spalte im Brennstabsimulator von der Temperatur notwendig. Dazu wurde für mehrere Heizstäbe von 6 mm \emptyset das Wachstum des Stabdurchmessers in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen und rechnerisch überprüft.

4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von definierten
Kühlkanalblockagen auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung
(G. Hofmann, IRB)

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.

Im Mittelpunkt der Überlegungen stand die durch interne und externe Besprechungen bestätigte Festlegung von Versuchsbedingungen, die eine eindeutige Interpretation der Versuchsergebnisse im Sinne der Aufgabenstellung erlauben. In diesem Zusammenhang sind als Versuchsrandbedingungen die Art der Flutwassereinspeisung in die Teststrecke und die Gleichmäßigkeit der künstlich eingebrachten Blockage wichtig.

Man kann beim Fluten zwei Einflüsse einer Blockage auf die zweiphasige Kühlmittelströmung unterscheiden:

- a) Die Blockage ist ein zusätzlicher Strömungswiderstand und vermindert den Durchsatz im versperrten Kanal.
- b) Die Blockage ist ein Hindernis in der Strömung und kann das Tropfenspektrum verändern.

Beide Einflüsse auf die Strömung sind zugleich Einflüsse auf ihre Kühleigenschaft, d. h. sie verändern die Kühlung über

- a) die Strömungsgeschwindigkeit
- b) den Kühlmechanismus.

Es wurde beschlossen, das Hauptgewicht auf Versuche mit gleichförmiger Blockage in allen Kühlkanälen und mit fest vorgegebenem, später auch mit zeitabhängig vorgegebenem Durchsatz zu legen, um auf diese Weise die Einflüsse von örtlichem Durchsatz und geändertem Kühlmechanismus auf die Kühlwirkung hinter dem Hindernis zu entflechten und das Ergebnis auf einen bekannten örtlichen Durchsatz beziehen zu können.

Der Entwurf des Versuchskreislaufes wurde im Berichtszeitraum fortgeführt und abgeschlossen; mit der Konstruktion und der Beschaffung einzelner Komponenten wurde begonnen.

Die Möglichkeiten zur Beschaffung geeigneter Heizstäbe für die Experimente wurden geprüft. Zur Ermittlung der maximalen Betriebstemperatur des vorgesehenen elektrischen Heizleiters mit wendelförmigem und axial gestuftem Stromleiter wurde eine Versuchsanordnung aufgebaut und ein Versuch durchgeführt, der z. Z. ausgewertet wird.

Nach einer Prüfung der Verwendbarkeit wurde das Wärmeleitprogramm RELAX für Vergleichsrechnungen zum thermischen Verhalten von Brennstäben und Heizstäben während der Aufheiz- und Fluttransiente eingerichtet und mit den Rechnungen begonnen.

4240 Coreschmelzen von LWR

- 4241 Experimentelle Untersuchungen zur Abschmelzphase von UO_2 -Zircaloy-Brennstäben bei versagender Notkühlung (A. Alexas, W. Schikarski, IASR/RPU; S. Hagen, A. Mack, H. Malauschek, RBT)

Im Rahmen des Arbeitsprogramms, das in seinen Grundzügen im [1] 1. Halbjahresbericht 1973 vorgestellt wurde, führten erste theoretische und experimentelle Arbeiten zu konkreten Aussagen hinsichtlich der Weiterführung des Vorhabens. Im einzelnen wurde an folgenden Punkten gearbeitet:

- Radiale Auslegung des Referenzbrennstabes.
- Auswahl des Heizermaterials. Verträglichkeit mit dem Brennstoff.
- Simulation des radialen Temperaturprofils des nuklearen Brennstabes im Referenzstab. Simulationsgrenzen.
- Aufheizgeschwindigkeit während der Versuche.
- Entwurf des Versuchsstandes.

1. Die radiale und axiale Auslegung des Referenzstabes

Bei der Auslegung des Stabes ist man davon ausgegangen, daß dessen äußere Abmessungen denen eines DWR-Brennstabes entsprechend sollen. Ebenso DWR-spezifisch sollten Pellets und Hülle sein.

Die Beheizung des Stabes erfolgt indirekt durch einen in der Mitte des Stabes sitzenden elektrischen Heizer. Somit hängt die weitere radiale Auslegung des Brennstabes eng mit der des Heizers und diese wiederum mit den thermischen Anforderungen bzw. mit den zu simulierenden Temperaturprofilen zusammen (vgl. Abs. 3). Die axiale Auslegung wird noch festgelegt. Der Versuchsstand jedoch wird so ausgelegt, daß mit Brennstäben von einer Gesamtlänge bis zu 1 m Versuche durchgeführt werden können.

2. Wahl des Heizermaterials. Verträglichkeit mit dem Brennstoff

Bei der Wahl des Heizermaterials wurden drei Schwerpunkte berücksichtigt:

- Er sollte bei hohen Temperaturen (über dem Schmelzpunkt von UO_2 $\sim 2850^\circ C$) beständig und betriebsfähig bleiben.

- Es darf bei diesen hohen Temperaturen nicht zur Wechselwirkung mit dem UO_2 kommen, die eine Zerstörung des Systems zur Folge haben.
- Der spezifische elektrische Widerstand des Materials muß bei diesen Temperaturen weit unter dem des UO_2 liegen, damit ein Kurzschluß zwischen Heizer und Hülle weitgehend vermieden wird.

Unter diesen Randbedingungen kam eigentlich nur ein Heizer aus Wolfram oder Graphit in Frage. Es wurde Wolfram gewählt, nicht zuletzt, weil erste Versuche zeigten, daß es sich mit dem UO_2 besser verträgt.

Bei diesen Versuchen wurden UO_2 -Ringpellets, deren Zentralbohrung ca. 3,2 mm im Durchmesser betrug, verwendet. Ein Wolframstab wurde durch deren Mitte durchgezogen und direkt elektrisch so weit hochgeheizt, bis das anliegende UO_2 schmolz. Die anschließende Betrachtung zeigte, daß dabei der Wolframstab trotz der langen Verweilzeit (~ 1 h) bei diesen hohen Temperaturen im wesentlichen unbeschädigt blieb (Abb. 4241-1).

3. Simulation des radialen Temperaturprofils des nuklearen Brennstabes im Referenzstab. Simulationsgrenzen.

Die Heizung des Brennstabsimulators muß derart ausgelegt sein, daß die an seiner Oberfläche erreichte Temperatur zum Schmelzen der Hülle und möglichst auch zum Anschmelzen des UO_2 ausreicht. Die Heizleistung muß dabei merklich größer als die im Originalstab nuklear erzeugte Nachwärme sein, da der Brennstab im Reaktor von Stäben praktisch gleicher Temperatur umgeben ist, während der für sich allein stehende Brennstabsimulator bei hohen Temperaturen einen wesentlichen Anteil seiner zugeführten Leistung durch Wärmestrahlung verliert. Vermindern könnte man diese Wärmeverluste durch Bündelversuche oder die Verwendung von eventuell zusätzlich geheizten Strahlenschirmen.

Die Schmelztemperatur des Zirkons liegt bei 1850°C . Ehe diese Temperatur aber erreicht wird, ist die Oxidation durch die Metall-Wasserdampfreaktion schon so groß, daß ein wesentlicher Teil der Hülle sich in Zirkonoxid verwandelt hat. Nach Untersuchungen im Argonne National

Laboratory [2] umgibt das Zirkonoxid den Stab als feste Hülle, so daß ein Herablaufen der noch eventuell vorhandenen inneren Schicht aus nichtoxidiertem Zircaloy verhindert wird. Zum Abschmelzen dieser Hülle wäre es also wünschenswert, den Brennstabsimulator so auszulegen, daß die Außentemperatur bis zur Schmelztemperatur des Zirkonoxids (ca. 2680°C) erhöht werden kann. Auf der anderen Seite wird durch Eutektikabildung die Schmelztemperatur des reinen UO_2 von 2850°C merklich gesenkt, so daß auch schon bei dieser Temperatur mit einem Anschmelzen des UO_2 zu rechnen ist.

Zur Beantwortung der Frage, ob die in der Hülle gewünschten Temperaturen erreichbar sind, ohne daß dabei der Heizer zu schmelzen beginnt, ist es notwendig, den radialen Temperaturverlauf im Brennstabsimulator zu berechnen. Hierzu wurde ein im IRE entwickeltes Programm [3] benutzt. Nach der Relaxationsmethode kann mit ihm der mit der Zeit im Gesamtniveau ansteigende Temperaturverlauf berechnet werden. Wegen der beim Abschmelzen sehr viel höheren Temperaturen im Vergleich zur Problemstellung der Blow-down-Phase, für die das Programm geschrieben wurde, wurde das Programm so umgeändert, daß auch der Einfluß der Strahlung auf die Wärmeverluste berücksichtigt wird.

In einer Parameterstudie wurde der radiale Temperaturverlauf bei verschiedenen Durchmessern des Heizstabes und unterschiedlicher Heizleistung sowie variierenden Emissionskoeffizienten gerechnet. Die Rechnungen ergaben, daß bei gleicher Zentraltemperatur die erreichbare Außentemperatur umso größer ist, je größer der Radius des Heizstabes ist.

Der Durchmesser des Heizers kann aber nicht beliebig erweitert werden, da man das UO_2 -Zircaloy-System untersuchen will. Unter Berücksichtigung der DWR-Stabdimensionen ergab die Rechnung einen optimalen Heizerradius von 3 mm. Somit ergaben sich die radialen Abmessungen des Referenzbrennstabes zu:

Radius des Wolfram-Heizers	3 mm
Innenradius der UO_2 -Ringpellets	3,05 mm

Außenradius der UO_2 -Ringpellets	4,6 mm
Innenradius der Zircaloy-Hülle	4,65 mm
Außenradius der Zircaloy-Hülle	5,37 mm

Der radiale Temperaturverlauf wird bei den herrschenden hohen Temperaturen stark durch den Strahlungsverlust beeinflusst. Somit geht der Emissionskoeffizient der Hülle mit als Parameter in die Rechnung ein. Dieser hängt stark von der Oberflächenbeschaffenheit des Zircaloy ab und so findet man in der Literatur für den Emissionskoeffizienten des Zircaloy ein Wertespektrum von 0,4 - 0,8.

Bei gleicher Zentraltemperatur ist die erreichbare Hüllentemperatur umso größer, je kleiner der Emissionskoeffizient ist.

Mit dem allgemein angenommenen Mittelwert für den Emissionskoeffizienten von $\epsilon = 0,62$ ist eine Hüllentemperatur von $2000^\circ C$ erreichbar, ohne daß der Heizstab zu schmelzen beginnt. Mit $\epsilon = 0,8$ als konservative Annahme dagegen ist nur eine Randtemperatur von $1770^\circ C$ erreichbar (Abb. 4241-2).

Bei diesen Rechnungen ist nur die Wärmeleistung des Heizers berücksichtigt. Vernachlässigt wurde die exotherme Zirkon-Wasserdampf-Reaktion. Da die Reaktionsrate nicht nur stark von der Temperatur, sondern auch von dem zeitlichen Temperaturverlauf abhängt, konnte der genaue Einfluß auf die Temperaturverteilung nicht berechnet werden.

Der genaue zeitabhängige Einfluß der Zirkon-Wasserstoffreaktion wird durch entsprechende Änderung des Rechenprogramms untersucht werden.

Durch die zentrale Heizung ist also in der Hülle die Schmelztemperatur des Zirkons, aber nicht die Schmelztemperatur des Zirkonoxids zu erreichen.

Jedoch kann man die Temperatur in der Hülle relativ zum Heizer anheben, durch die Verwendung von Strahlenschirmen, die eventuell zusätzlich beheizt werden. In der Abb. 4241-3 ist der Temperaturverlauf bei verschiedenen Temperaturen des Strahlenschirms bei

der gleichen Heizleistung des Versuchsstabes wiedergegeben.

Man kann also bei nahezu gleichen radialen Temperaturgradienten das Gesamtprofil im Heizstab durch die Temperatur des Strahlenschirms heben und senken. Die Abb. 4241-4 zeigt, wie bei konstanter Temperatur des Strahlenschirms durch Veränderung der Heizleistung der radiale Temperaturgradient variiert werden kann.

Bei Verwendung von Strahlenschirmen ist es also nicht nur möglich, die Hüllentemperatur zu heben, sondern man kann damit auch gleichzeitig eine Variation des radialen Temperaturgradienten durchführen.

4. Aufheizgeschwindigkeit des Brennstoffes

Als eine typische Aufheizgeschwindigkeit wurde bisher der Wert von ca. 3 Grad/s angesehen. Eine Auswertung von in [4] errechneten axialen und radialen Temperaturprofilen, Abb. 4241-5, zeigt jedoch, daß die Aufheizgeschwindigkeit eine Funktion des Ortes und der Zeit ist. Während in der Zone 4 kurz nach Beginn des Unfalls Werte von bis zu 20 Grad/s erreicht werden, sinken diese Werte später auf Werte unter 1 Grad/s. Dagegen bleibt die Aufheizgeschwindigkeit in der äußersten Zone über die gesamte Unfallzeit konstant, beträgt jedoch nur ca. 2 Grad/s. Demnach wird man bei den Versuchen auch die Möglichkeit wahrnehmen, Versuche mit variabler Aufheizgeschwindigkeit durchzuführen, um damit die Unfallfolgen an örtlich verschiedenen Teilen des Cores zu untersuchen.

Eigene Veröffentlichungen:

[1] A. Alexas, W. Schikarski:
Beitrag zum 1. Halbjahresbericht 1973 des PNS,
KFK 1859, November 1973, S. 131-132

Zitierte Literatur:

[2] J.C. Hesson:

ANL-7609, Januar 1970

[3] IRE 3-Notiz Nr. 204/73

[4] H. Körber, K.L. Barth, H. Unger:

Einfluß von Wärmeleitfähigkeit und Emissionsgrad
beim hypothetischen Kernschmelzunfall

Bericht Nr. K-3, IKE, Stuttgart, April 1973

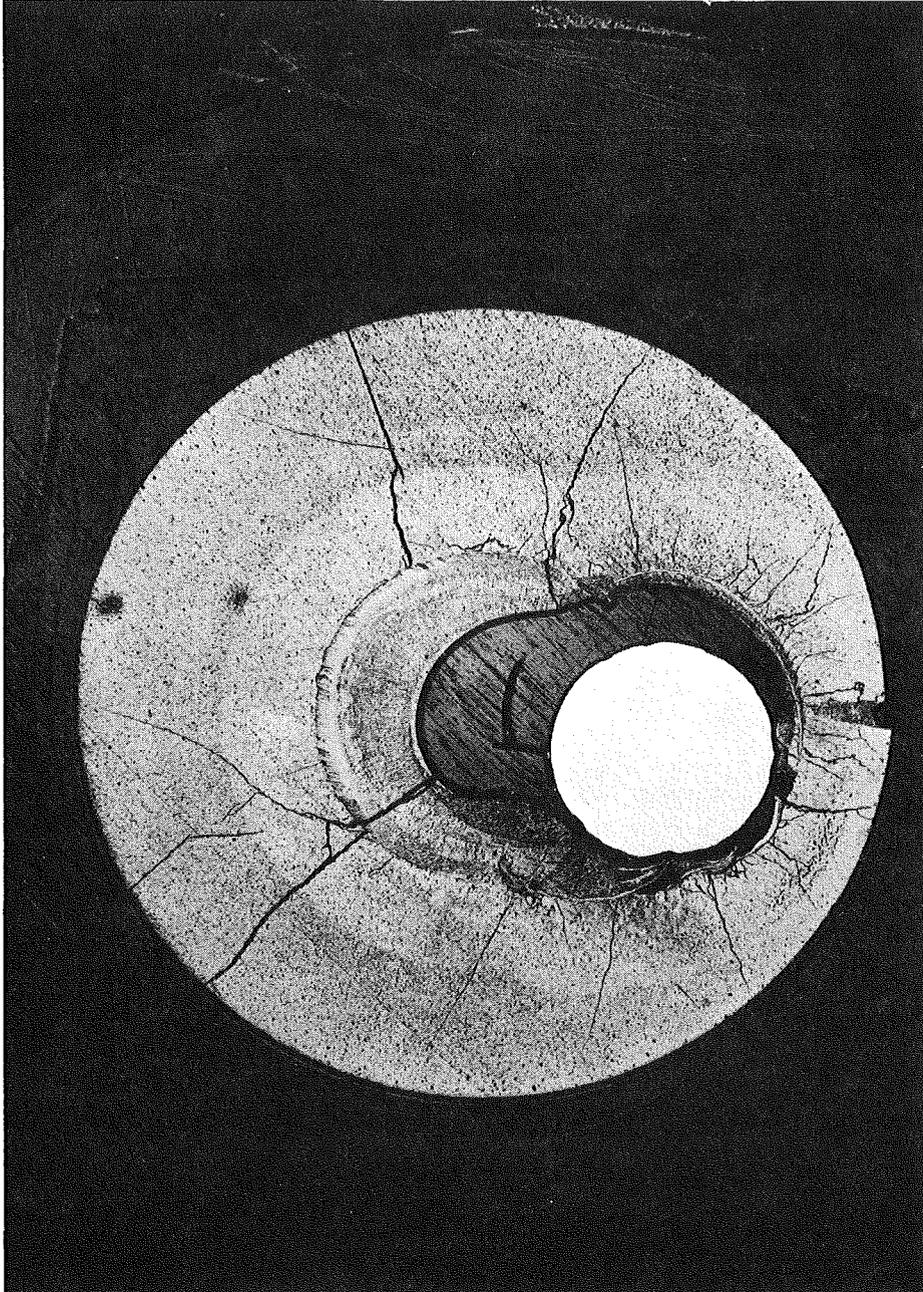
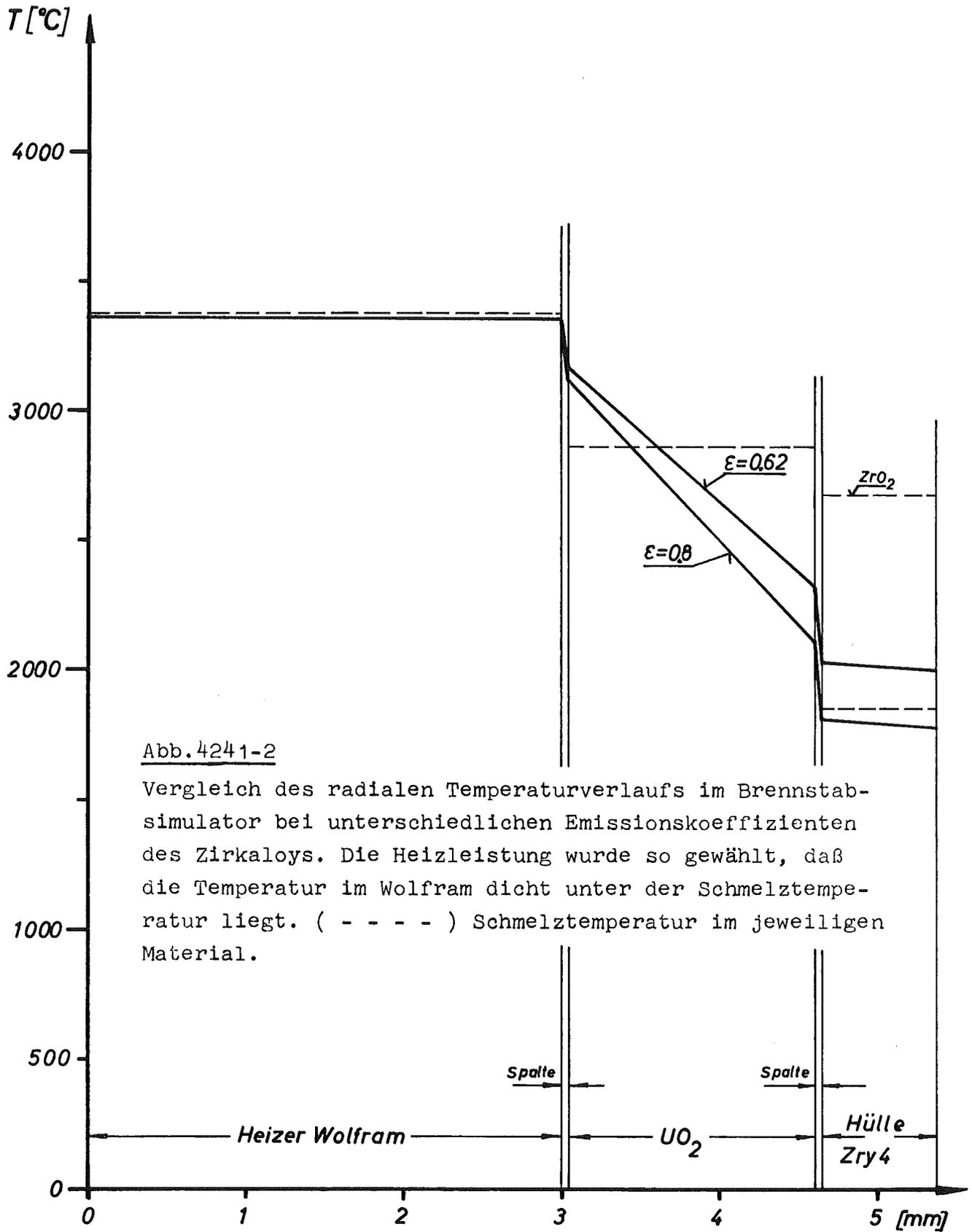
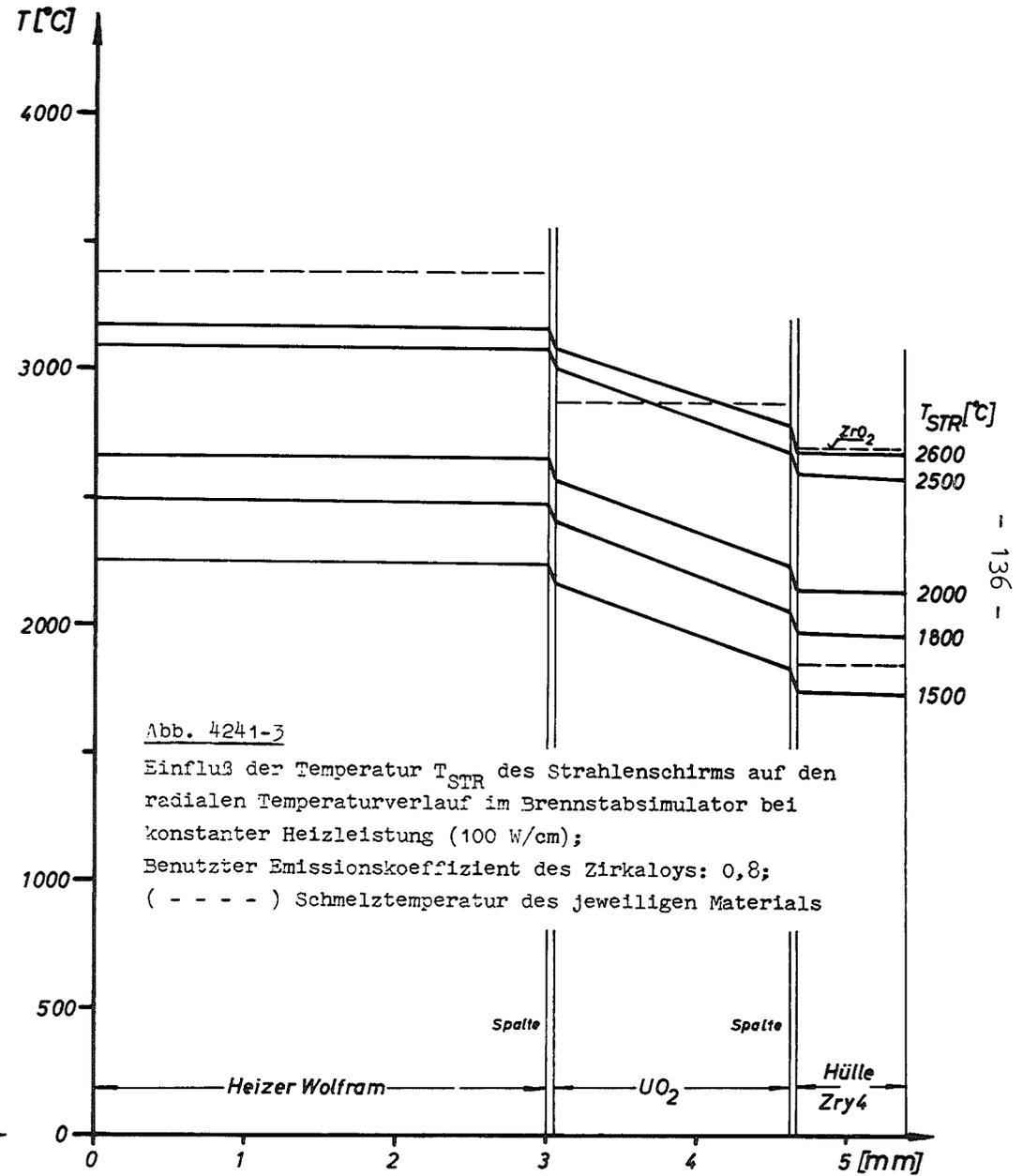
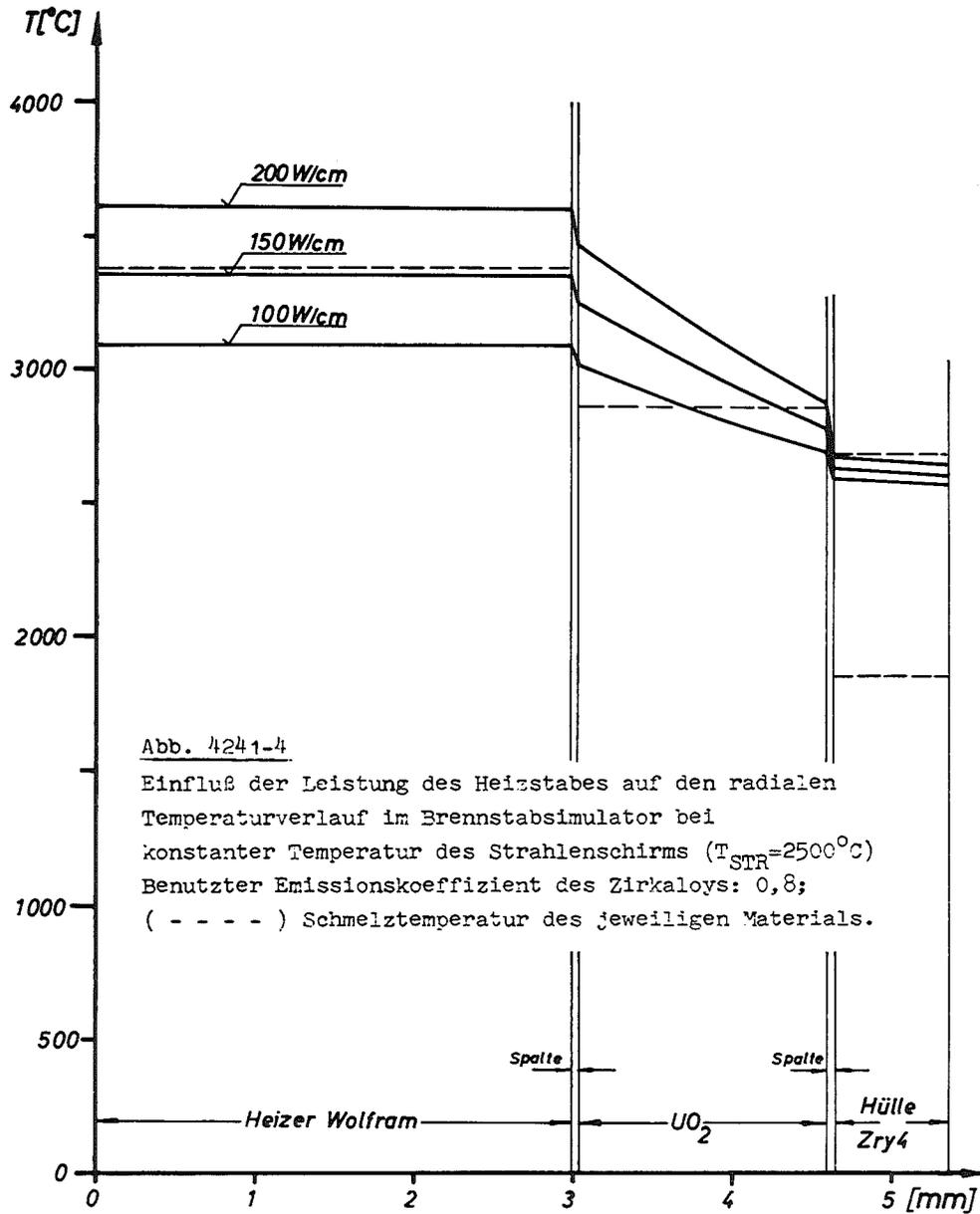


Abb. 4241-1 : Querschliff des Systems
Wolframstab-UO₂-Ring-
pellet nach dem Aufheizen





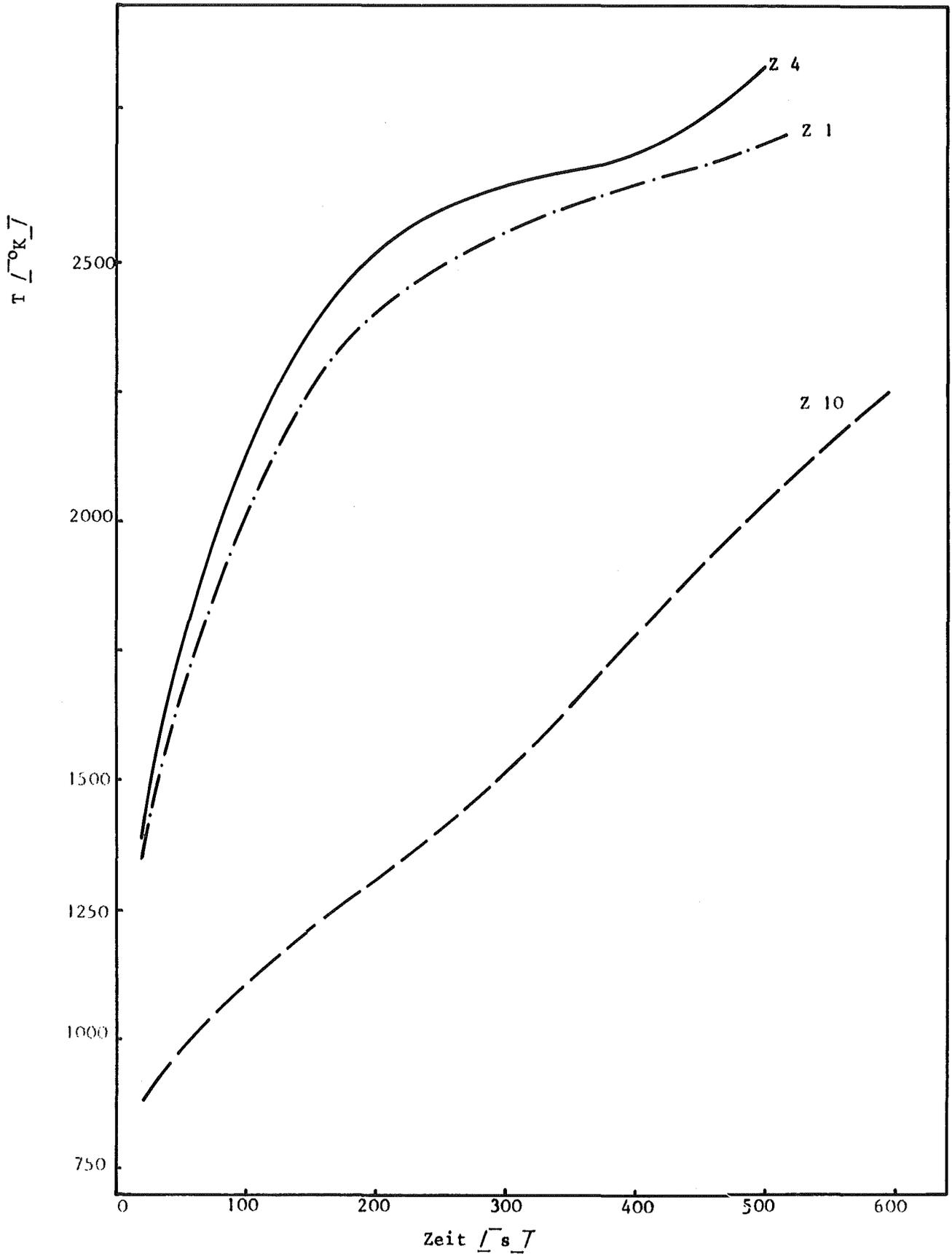


Abb. 4241-5 : Zeitlicher Verlauf der maximalen Brennstofftemperatur in axialer Richtung in drei radial verschiedenen Zonen (Z 1, Z 4, Z 10) eines LWR nach einem Kühlmittelausfallunfall

4242 Untersuchungen zur Wasserstoff-Bildung und -Rekombination
 beim LWR-Coreschmelzen
 (S. Dorner, G. Schumacher, INR)

Nachdem sich zwei frühere Berichte [1, 2] mit der Wasserstoffbildung und den Möglichkeiten zur Vermeidung der Wasserstofffreisetzung während und nach einem Coreschmelzen-Unfall befaßten, wurde zur vollständigen Erkennung des Problems eine Studie über die Möglichkeiten zur Verhinderung der Bildung von Explosivgemischen durchgeführt [3].

Ausgangspunkte dieser Studie sind :

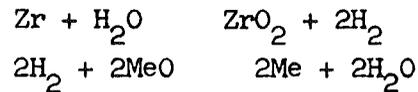
- a) Bei Nichteinsetzen der Notkühlung ist durch die Zirkalloy-Wasserdampf-Reaktion, noch vor dem Coreschmelzen, ein Metallverbrauch von 25 - 50% zu erwarten [4].
- b) Damit verbunden ist eine entsprechende Freisetzung des Wasserstoffs. Der freigesetzte Wasserstoff kann u. U. in einzelnen Primärzellen mit der dort vorhandenen Luft Explosionsgemische bilden.

Über die Zündgrenzen und Zündtemperaturen der Explosionsgemische von Wasserstoff und Luft bzw. Sauerstoff wird in [4] zusammenfassend berichtet. In diesem Statusbericht werden auch die wesentlichen Einflußfaktoren diskutiert.

Zur Verhinderung von Explosivgemische kommen prinzipiell die folgenden Gegenmaßnahmen in Frage :

1. Die Inertisierung der gefährdeten Räume im Containment; d. h. jene Primärzellen, in denen eine Gefahr der Bildung von Explosivgemischen besteht, erhalten eine inerte Gasatmosphäre.
2. Eine schnelle Adsorption bzw. Absorption des Wasserstoffs in Metallen, die Hydride bilden bzw. eine große Löslichkeit für Wasserstoff aufweisen. Diese Methode erscheint nicht realisierbar.
3. Die Entfernung des Wasserstoffs mittels Diffusion durch Metallmembrane. Sie scheidet jedoch an dem zu langsamen Ablauf.

4. Eine gelenkte Rekombination des Wasserstoffs zu Wasser mittels Sauerstoffgas. Das wäre theoretisch denkbar. Die Rekombination müßte jedoch über eine Vorrichtung ablaufen, die ein Auftreten von Knallgasexplosionen mit nahezu absoluter Sicherheit verhindert.
5. Der Einsatz einer festen sauerstoffabgebenden Substanz. Das erscheint aussichtsreicher. Durch den Einsatz einer derartigen Substanz, d. h. eines Oxids, würde man eine Art Kreisprozess durchlaufen :



wobei Me für Metall steht.

Zusammenfassend sei festgestellt, daß die Inertisierung bzw. die Rekombination als die praktikabelsten und aussichtsreichsten Methoden zur Verhinderung der Bildung von Explosionsgemischen erscheinen. Durch die Inertisierung wird nur eine Verdünnung der Wasserstoffkonzentration erreicht, dagegen wird durch die Reaktion des Wasserstoffs mit einem Oxid gleichzeitig der Druck im Containment abgebaut. Dadurch besitzt die Rekombination des Wasserstoffs mittels eines Oxids zu Wasser einen zusätzlichen Vorteil. Die Voraussetzung für den Ablauf dieses Vorganges ist, daß die Freie Bildungsenthalpie des Oxids kleiner ist als die des Wassers, d. h. daß das Oxid durch den Wasserstoff unter den vorliegenden Bedingungen reduziert werden kann. Dazu bieten sich Oxide an, die direkt zu Metall reduziert werden oder höhere Oxide, die sich leicht zu einem niedrigeren Oxid reduzieren lassen. Als geeignet erscheinen die Umwandlungen $\text{CuO} \rightarrow \text{Cu}$, $\text{MnO}_2 \rightarrow \text{Mn}_3\text{O}_4$ und $\text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{FeO}$.

Um einen innigen Kontakt zwischen dem sauerstoffabgebenden Stoff (z. B. CuO) und dem Wasserstoff und um eine sofortige Rekombination zu erreichen, ist es notwendig, den sauerstoffabgebenden Stoff mit einer möglichst großen Oberfläche zu versehen (pulverisiert) und ihn bei entsprechender Reaktionstemperatur zu halten.

Literatur

[1] S. Dorner,
Wasserstoffbildung im Containment nach einem Coreschmelzen-
Unfall
Interner Arbeitsbericht,
unveröffentlicht Juni 1973

[2] S. Dorner,
Vermeidung der Wasserstofffreisetzung nach einem Coreschmelzen-
Unfall
Interner Arbeitsbericht,
unveröffentlicht Juni 1973

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen

(H. Albrecht, C. Keller, R. Schroerschwarz, IRCh; E. Hutter, D. Perinic, B. Stuka, RBT; O. Götzmann, P. Hofmann, IMF)

Die Arbeiten im Berichtszeitraum konzentrierten sich auf die Stufe I des Arbeitsprogrammes (1): Durchführung von Schmelzversuchen mit schwach aktivem Brennstoff. Hierbei ging es vor allem um die Auslegung der Schmelzanlage, der Spaltprodukt-Transport- und Filterstrecke und um die Entwicklung der Temperatur-Meßtechnik. Daneben wurden erste Schmelzversuche an Corium-Proben (UO_2 + Zircaloy + Edelstahl) in ThO_2 -Tiegeln durchgeführt und mit Vorarbeiten für die radiochemischen Messungen begonnen.

1. Anlage für Schmelzversuche mit Corium unter Wasserdampf und Luftatmosphäre

Eine Schmelzanlage für Out-of-pile-Versuche wurde spezifiziert und nach längeren Verhandlungen mit verschiedenen Industriefirmen Anfang Dezember in Auftrag gegeben. Da die Versuche in stark oxidierender Atmosphäre stattfinden sollen, wurde das induktive Hochfrequenz-Heizverfahren gewählt. Das Schmelzgut koppelt dabei selbst an das Induktionsfeld an, wenn die Tiegel - wie vorgesehen - aus Oxidkeramik bestehen.

Der Hf-Generator der Anlage arbeitet mit 350 kHz und liefert eine thermische Leistung von 40 kW. Nach eigenen Berechnungen und praktischen Erfahrungen bei Battelle reicht diese Leistung zum Schmelzen von mindestens 1 kg Corium aus.

Der Ofenkessel ist von einem ölbeheizten Mantel umgeben, um zu verhindern, daß der aus dem angeschlossenen Dampferzeuger ausströmende Wasserdampf an der Ofeninnenwand kondensiert. Zur Vermeidung elektrischer Überschläge zwischen den Spulenwindungen wird auch die Spule mit Hilfe eines Öl-Thermostaten über der Sättigungstemperatur des Dampfes gehalten.

2. Temperatur-Meßtechnik

Durch Vorversuche in einem Inertgas-Widerstandsofen sollen Funktionsfähigkeit und Genauigkeit der Temperaturmessung untersucht werden. Vorgesehen sind eine Pyrometermessung der Schmelzoberfläche nach dem Quotientenverfahren und der Einsatz von W/Re-Thermoelementen. Weil damit zu rechnen ist, daß die Pyrometeranzeige durch selektive Absorption der Ofenatmosphäre verfälscht wird, soll gleichzeitig mit Hilfe eines Spektral-Photometers der Transmissionsgrad gemessen werden.

Die Eigenschaften von metallischen Thermoelementen werden durch die Eigenwärmung des Thermoelement-Materials im Induktionsfeld beeinflußt. Man muß daher versuchen, entsprechende Fehler mit metallischen Abschirmungen und anhand von spezifischen Eichkurven zu kompensieren. Die zum Komplex Temperaturmessung bereits durchgeführten Arbeiten beinhalten:

- Umbau des widerstandbeheizten Ofens für Betriebstemperaturen von maximal 2800°C
- Konstruktion einer Vorrichtung zum Anschluß des Spektral-Photometers
- Beschaffung des Quotientenpyrometers und der Thermoelemente
- Einrichtung einer Eichstrecke für das Pyrometer, mit der auch Fehlereinflüsse des Ofenfensters und der optischen Anordnung erfaßbar sind
- Experimentelle Untersuchung des Ankoppelverhaltens von Thermoelementen im Induktionsfeld
- Beschaffung von Schmelztiegeln für Versuche mit verschiedenen Metallproben, deren Schmelztemperatur zur Eichung des Pyrometers dienen sollen.

3. Schmelzversuche mit Corium-E in ThO₂-Tiegeln

Zum Studium der Verträglichkeit zwischen Tiegelmateriale und Schmelzgut wurden Schmelzversuche mit ca. 3 g Corium-E ^{+) in ThO₂-Tiegeln unter Luftatmosphäre durchgeführt. Die Tiegel waren dabei in einer Stampfmasse aus MgO-Granulat eingebettet, das in einem äußeren Tiegel aus Al₂O₃ gehalten wurde.}

^{+) Corium-E enthält 35 Gew.% UO₂, 10 Gew.% Zircaloy und 55 Gew.% Stahl}

Während des langsamen induktiven Aufheizvorganges erfolgte ein starkes schwammartiges Herausquellen von Oxidationsprodukten (vgl. Abb. 4243-1 und -2). Die herausgequollene Masse überdeckte den Tiegelinhalt derart, daß das Aufschmelzen im Tiegelinnern nicht beobachtet werden konnte. Dadurch war es auch nicht möglich, die Zentraltemperatur pyrometrisch zu erfassen.

Die Auswertung der Schliffbilder zeigte, daß die Tiegel bei allen Versuchen zerstört wurden. Die Hauptursache dürfte in den Wärmespannungen aufgrund der extrem kleinen Wärmeleitfähigkeit des ThO_2 zu suchen sein. Bereits beim Hochheizen der Proben oxidierte das Zircaloy zu ZrO_2 . Es wurde in Form keramischer Einschlüsse in der Stahlschmelze gefunden, die daneben hauptsächlich aus Fe und Ni bestand. Die Cr-Anteile waren ausdiffundiert und zu Cr_2O_3 oxidiert. Bei zwei Versuchen schmolz auch das UO_2 .

4. Spaltprodukt-Transport- und Filterstrecke

Die freigesetzten Spalt- und Aktivierungsprodukte werden durch ein Rohrsystem im Wasserdampf- bzw. Luftstrom zu einer Reihe von Filtern transportiert, an denen sie bis auf die Edelgase quantitativ abgeschieden werden sollen.

Das Rohrsystem beginnt mit einem Al_2O_3 -Rohr zur Aufnahme der Spaltprodukte direkt über dem Schmelztiegel. Außerhalb des Ofens wird es durch leicht zu handhabende Flanschverbindungen (Swagelok, Kleinflansch: Edelstahl) fortgeführt. Um hohe Strömungsgeschwindigkeiten und damit möglichst geringe Ablagerungen der Freisetzungserzeugnisse zu erreichen, wird der Innendurchmesser des Al_2O_3 -Rohres von ca. 60 mm im anschließenden Systemteil auf 10 mm reduziert. Die Verwendung von Kugelventilen an den Schaltstellen gewährleistet ebenfalls eine minimale Absetzung.

Wegen der für das Filtermaterial erforderlichen geringen Gasfeuchte ist es nötig, die gesamte Transportstrecke zwischen Tiegel- und Absaugsystem auf einer Temperatur von annähernd 120°C zu halten. Aus diesem Grund wird das System mittels Heizbändern oder einer um das System gebauten Heizkammer erwärmt.

Meßstellen für Druck (ölfreie Manometer), Strömung (Durchflußmesser) und Temperatur (Thermoelemente, Widerstands-Thermometer) sorgen für die Überwachung des Systems.

Zwei bis drei parallele aktive Wege zur jeweiligen Aufnahme der Spaltprodukte während der Aufheiz- und Schmelzphasen und ein inaktiver Beipass zur Einstellung der Strömungsverhältnisse bilden die eigentliche Meßfilterstrecke.

Aufgrund der zu erwartenden recht hohen Aerosolmengen werden als Schwebstofffilter Faserfilter verwendet, die den Membranfiltern wegen ihrer geringen Verstopfungsgefahr vorzuziehen sind. Die hohe Arbeitstemperatur erfordert dabei den Einsatz von Glasfaser- oder Glas-Asbest-Mischfaserfiltern.

Bei der maximal vorgesehenen Durchflußmenge von 500 l Dampf pro Stunde und einer für einen Abscheidegrad $\geq 99,99\%$ günstigen Anströmgeschwindigkeit des Dampfes von 2,5 cm/s muß der Filterdurchmesser ungefähr 8 - 9 cm betragen. Gasförmig verbleibende Spaltprodukte sollen an Aktivkohle adsorbiert werden, um eine Kontamination des Absaugsystemes zu verhindern.

Ein aktiver Weg der Filterstrecke besteht aus

- Schwebstoff-Grobfilter (für Teilchen $\geq 0,5 \mu\text{m}$)
- einigen Schwebstoff-Feinfiltern (für Teilchen $\leq 0,3 \mu\text{m}$)
- Aktivkohle-Patrone (für gasförmige Produkte)

Letzterer wird je ein Schwebstofffilter vor- und nachgeschaltet, um den Eintritt von Kohlenstaub in das Rohrsystem zu vermeiden. Die Filter werden, durch Dichtringe aus Teflon oder Viton "A" getrennt und mit Stützgittern aus Edelstahl stabilisiert, gemeinsam in einer Patrone untergebracht oder aber in getrennten Flanschen aufeinandergeschraubt.

5. Gammaskopische Analyse der Spalt- und Aktivierungsprodukte

Man hat davon auszugehen, daß in den vorbestrahlten Corium-Proben etwa 100 - 150 radioaktive Nuklide mit Halbwertszeiten $> 1 \text{ h}$ und sehr unterschiedlichen Aktivitäten vorliegen. Der β -Zerfall dieser Nuklide ist in der Regel von mehreren γ -Zerfällen begleitet. Infolgedessen ergeben sich Spektren, die nicht nur eine sehr große Zahl einzelner γ -Linien, sondern vielfach auch Überlagerungen von 2, 3 oder mehr Linien aufweisen.

Die Auswertung solcher Linienmultipletts ist in nicht zu komplizierten Fällen zwar möglich, jedoch nur mit Hilfe aufwendiger Computer-Programme und bei Kenntnis der genauen Zerfallsenergien und -Intensitäten.

Es wurden nun Überlegungen angestellt, wie sich der für die Auswertung nötige Aufwand möglichst gering halten läßt. Dabei ergaben sich folgende Lösungen:

- a) Man beschränkt sich auf die Erfassung von jeweils nur einem oder zwei gut nachweisbaren Isotopen eines Elementes und berechnet die Freisetzung der übrigen Isotope aus dem Inventar. (Damit wird lediglich das gleiche chemische und physikalische Verhalten der Isotope eines Elementes vorausgesetzt).
- b) Man verwendet einen Detektor mit möglichst hoher Energieauflösung und hohem Peak/Compton-Verhältnis, wodurch sich die Breite der γ -Linien und zugleich die relative Höhe des Untergrundes verringern läßt.
- c) Man wählt die Bestrahlungsbedingungen und Wartezeiten bis zum Schmelzen so, daß zum Zeitpunkt der Messung die Aktivität der bei der Auswertung störenden Nuklide möglichst gering ist.
So ist es z.B. für den Nachweis von Nukliden mit kurzen Halbwertszeiten günstig, wenn man die Proben nur kurz bestrahlt (ca. 1 10 h) und danach die Schmelzversuche und ersten Messungen möglichst schnell durchführt. Die Spektren werden dann keine intensiven γ -Linien von Nukliden mit langer Halbwertszeit aufweisen. Umgekehrt sind nach längeren Bestrahlungs- und Wartezeiten nur noch γ -Linien von längerlebigen Nukliden zu erwarten.
- d) Bei Verwendung von sog. Fissium-Proben mit simulierten, schwach aktiven Spaltprodukt-Zusätzen läßt sich die Zahl der γ -Linien besonders niedrig halten. Außerdem ermöglicht diese Methode den Nachweis von Elementen, deren Nuklide in einem kompletten Spaltprodukt-Spektrum wegen zu geringer Aktivität oder wegen des Zusammenfalls ihrer γ -Linien mit anderen nicht analysierbar sind.

Bei der Herstellung der Fissium-Proben werden kleine Mengen einzelner Spaltprodukt-Elemente in elementarer oder oxidischer Form im Reaktor bzw. Zyklotron aktiviert und nach der Vermischung mit UO_2 -Pulver bei etwa $1700^\circ C$ gesintert. Leichter flüchtige Elemente wie J, Cs, Se, Te scheiden dabei als Zusätze aus, weil diese beim Sintern aus dem Brennstoff entweichen.

Die Hauptvorteile der Methode liegen darin, daß

- Art, Menge und Aktivität der Zusätze unabhängig voneinander wählbar sind,
- die γ -Analyse wesentlich erleichtert wird,
- auch hohe Abbrände durch größere Anteile der inaktiven Zusätze simuliert werden können, ohne daß die Schmelzversuche in einer Heißen Zelle stattfinden müssen.

Aufgrund der angeführten Überlegungen wurde ein Ge(Li)-Detektorsystem angeschafft, das eine Energie-Auflösung von 1,95 keV und ein Peak/Compton-Verhältnis von 42 : 1 aufweist (beide Angaben gelten für die 1,33 MeV-Linie des Co-60).

Bei ersten Messungen mit diesem System an einer 0,1 mg-U₃O₈-Probe, die 18 h im FR2 vorbestrahlt wurde, ließen sich über 40 Spaltnuklide qualitativ nachweisen. Zur quantitativen Auswertung der erhaltenen Spektren muß noch ein zunächst für die Aktivierungsanalyse entwickeltes Rechenprogramm an die Erfordernisse der Spaltproduktanalyse angepaßt werden.

Literatur:

- (1) 2. Halbjahresbericht 1972 des PNS, KFK 1787, S. 58-65

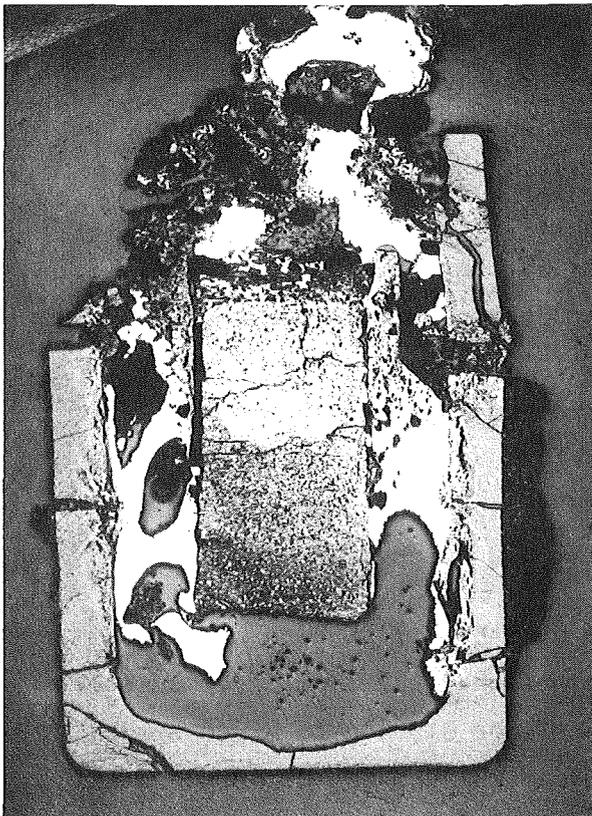


Abb. 4243-1:

Längsschnitt durch den ThO₂-Tiegel und das Schmelzgut;
Mitte: UO₂-Pellet mit metallischen Einlagerungen; oben und seitlich: metallische Phase mit Einschlüssen von ZrO₂; unterhalb des Pellets: Kunstharz (nachträglich eingebracht)

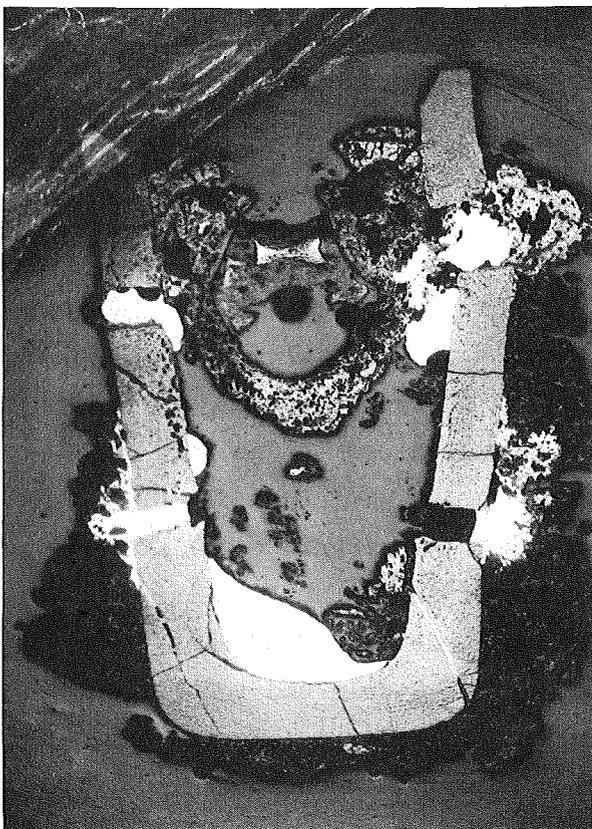


Abb. 4243-2:

Längsschnitt durch Tiegel und Schmelzgut nach einem anderen Versuch; das UO₂-Pellet wurde aufgelöst, die metallische Schmelze befindet sich am Tiegelboden und in den Bruchspalten des Tiegels;
oben: hauptsächlich oxidische Produkte (ZrO₂, evtl. UO₂)

4244 Coreschmelzen von LWR (Materialverhalten)
Versuche zum Verhalten der Coreschmelzen unter
verschiedenen oxidativen Atmosphären
(O. Götzmann, P. Hofmann, IMF)

Diese Versuche stehen im Zusammenhang mit der Erfassung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen. Dazu ist es notwendig, daß man weiß, in welchem Zustand die Coreschmelze bei verschiedenen Temperaturen und in Anwesenheit von Wasserdampf sich befindet. Die bisherigen Versuche sind mit einer Materialzusammenstellung entsprechend Corium A und Corium E im Temperaturbereich zwischen 1000 und 2700°C durchgeführt worden.

Die Glühungen bei 1000°C erstreckten sich über 7 Stunden und wurden unter Argon, an Luft und in statischer wie auch in dynamischer Wasserdampfatmosphäre durchgeführt. Bei der Glühung in Argon wurde das Zirkaloy zum Teil aufoxidiert. Der Stahl und das UO_2 sind intakt geblieben. Bei der Glühung an Luft wurde das Zirkaloy vollständig und der Stahl teilweise oxidiert. Auch das UO_2 scheint weiter aufoxidiert worden zu sein. In statischer Wasserdampfatmosphäre entsprach die Oxidation der Probe in etwa der an Luft, d. h. das Zirkaloy wurde vollständig und der Stahl teilweise aufoxidiert. Nur das UO_2 -Pellet scheint sich etwas weniger verändert zu haben. Bei der Glühung unter strömendem Wasserdampf war die Oxidation des Coriums am stärksten. Das UO_2 -Pellet ist aufgequollen und zum Teil zerfallen.

Die Glühungen bei 1500°C wurden an Luft und in Argon über 4 bzw. 5 Stunden durchgeführt. Bei den Glühungen in Argon wurde das Zirkaloy vollständig oxidiert. Der Stahl ist geschmolzen und in das ZrO_2 und in geringem Ausmaß auch in das UO_2 eingedrungen. Zwischen dem UO_2 und dem ZrO_2 scheint, wie die Mikrosondenanalyse ergab, eine Interdiffusion stattgefunden zu haben. Bei den Glühungen an Luft ist alles Coriummaterial vollständig oxidiert worden; es fand eine Vermischung des ZrO_2 , der Oxidationsprodukte des Stahls und von Teilen des UO_2 statt (Abb. 1). Auch hier war eine Interdiffusion zwischen dem UO_2 und dem ZrO_2 durch die Mikrosondenanalyse zu erkennen.

Die Glühungen bei höheren Temperaturen wurden nur in Argon durchgeführt. Die Glühung bei 1800°C erstreckte sich über 1 Stunde. Das Zirkaloy wurde hierbei ebenfalls vollständig oxidiert; der Stahl ist geschmolzen und drang in das ZrO_2 ein (Abb. 2). Eine Interdiffusion zwischen UO_2 und ZrO_2 hat hier ebenfalls stattgefunden, wie aus den Mikrosondenbildern der Abb. 3 zu entnehmen ist. Ähnlich verliefen die Glühungen bei 2000°C über 5 min. (Abb. 4) und bei 2700°C über 7 min. (Abb. 5), d. h., daß bei diesen hohen Temperaturen schon nach sehr kurzer Zeit auch in Argon das Zirkaloy vollständig oxidiert wird, der Stahl das Gebilde Zirkonoxid durchdringt und teilweise auch in das UO_2 eindiffundiert.

Bei den Versuchen über 800°C sind ThO_2 -Tiegel verwendet worden. Obwohl es sich dabei immer um eine schnelle Aufheizung dieser Tiegel gehandelt hat, sind sie bei diesen Versuchen intakt geblieben.

Weitere Versuche unter Wasserdampf-atmosphäre bis 1600°C , die jedoch noch nicht vollständig ausgewertet sind, haben gezeigt, daß bei Temperaturen zwischen 1400 und 1600°C das Zirkaloy und der Stahl schon nach relativ kurzer Zeit vollständig oxidiert werden. Bei 1600°C z. B. ist das Zirkaloy schon nach 2 min. vollständig oxidiert.

Aufgrund dieser Ergebnisse kann man annehmen, daß bei einem Niederschmelzen des Cores in Wasserdampf-atmosphäre eine vollständige Oxidation des Zirkaloy schon nach sehr kurzer Zeit stattfindet. Ebenfalls kann eine teilweise Oxidation des Stahls nach relativ kurzer Zeit angenommen werden.

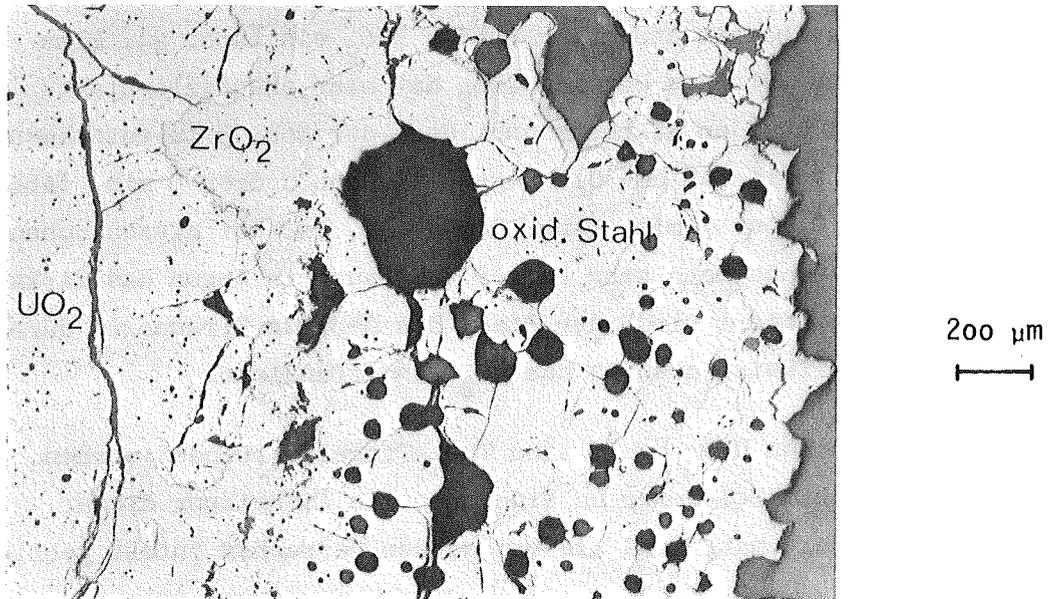


Abb. 4244-1: Corium E; 1500°C/4 h (Luft)

Zry-4 und Stahl vollständig oxidiert; Bildung mehrerer Phasen; Reaktionen des ZrO_2 mit dem UO_2

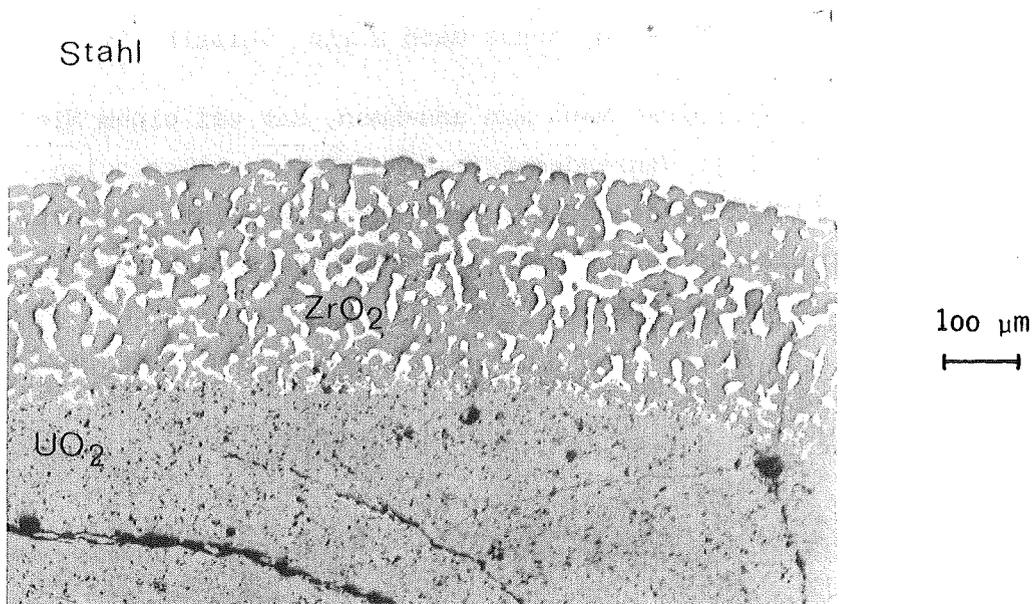
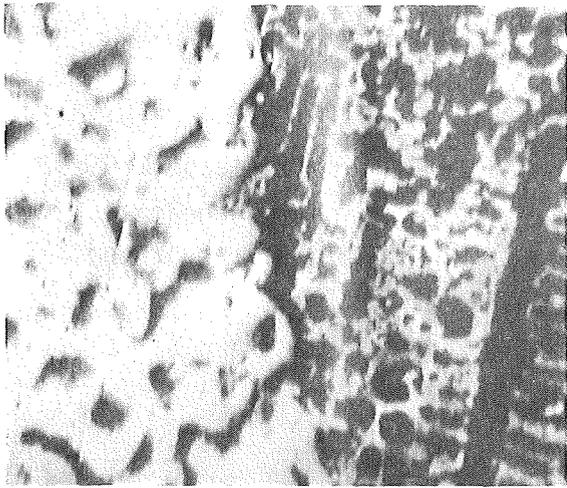
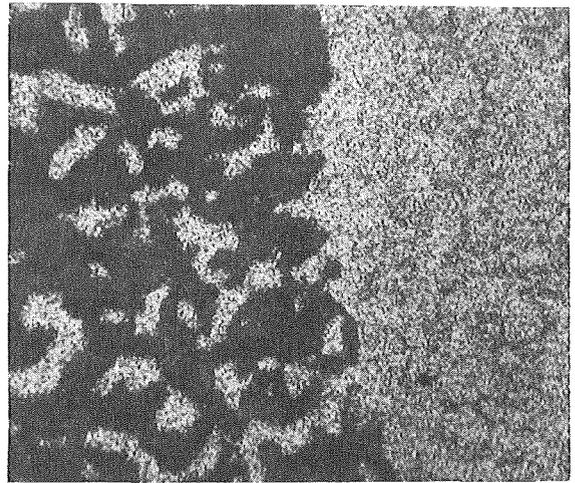


Abb. 4244-2: Corium E; 1800°C/1 h (Argon)

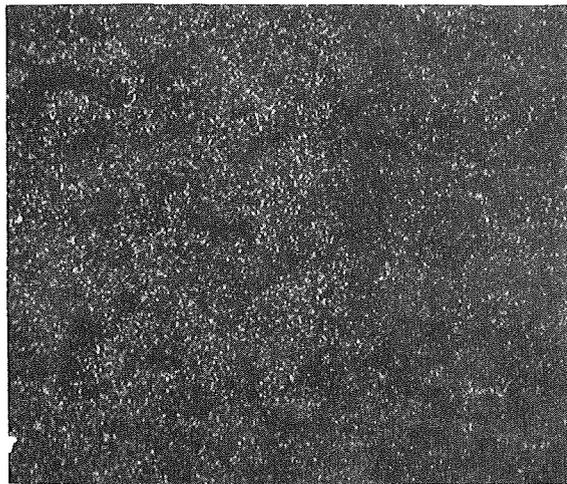
Zry-4 vollständig oxidiert; der flüssige Stahl dringt in das ZrO_2 und z.T. in das UO_2 ein; Reaktionen zwischen dem ZrO_2 und UO_2



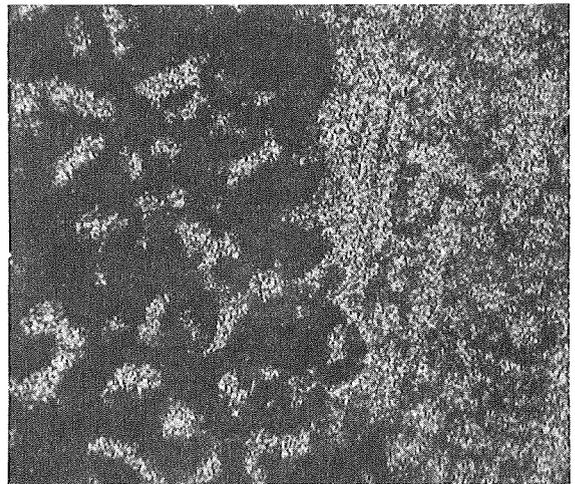
Elektronenrückstreubild; 40 μm



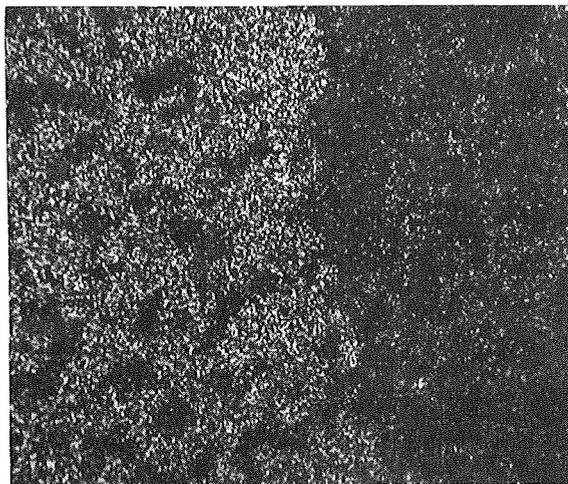
Fe-Röntgenstrahlung



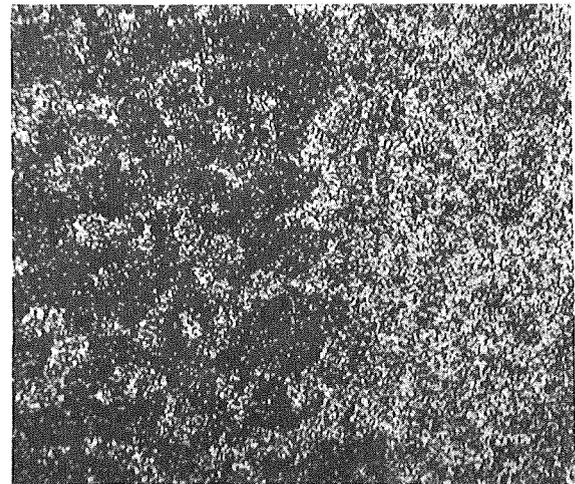
U-Röntgenstrahlung



Cr-Röntgenstrahlung



Zr-Röntgenstrahlung



Ni-Röntgenstrahlung

Abb. 4244-3: Mikrosondenaufnahmen der Probe Corium E; 1800 $^{\circ}\text{C}$ /1 h (Argon);
Stahl im ZrO_2 , Lösung von UO_2 im ZrO_2

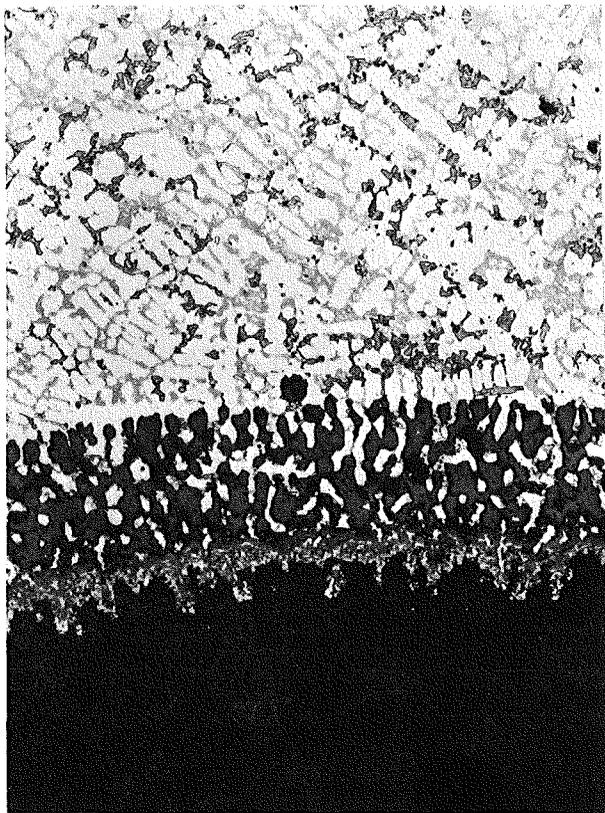


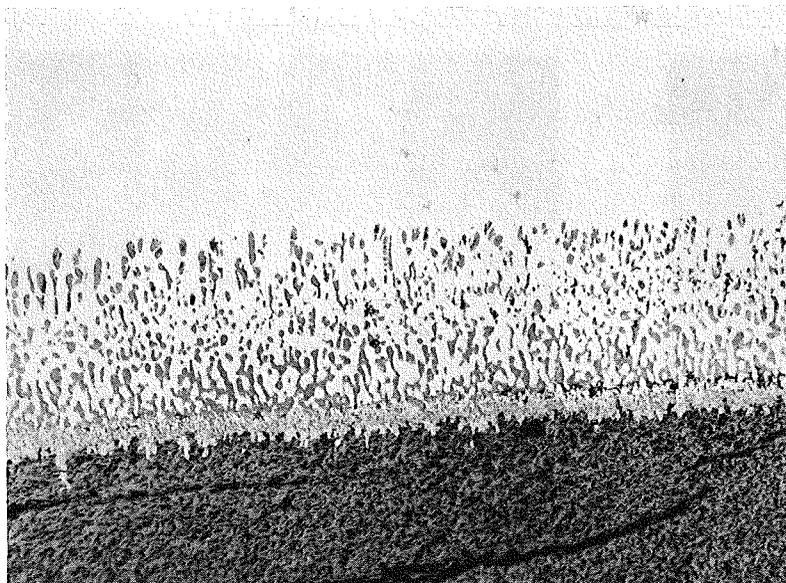
Abb. 4244-4: Corium E geglüht bei 2000°C über 5 min ionengeätzt (unter Argon)

Stahl mit Oxiden

ZrO₂-Stahl

20 μm

UO₂



Stahl

ZrO₂-Stahl

UO₂

Abb. 4244-5: Corium E bei 2700°C, 7 min geglüht, ungeätzt (unter Argon)

200 μm

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN
 BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktionsvor-
 gänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen

4311 Nukleare Schadstoffe in der Nachunfall-Atmosphäre eines Leicht-
 wasser-Reaktor (LWR)-Containments
 (J.P. Hosemann)

Im Arbeitszeitraum, über den hier berichtet werden soll, standen 2 Fragen im Vordergrund, deren Beantwortung als besonders wichtig erscheint:

1. Welches sind die radioaktiven Schadstoffe, mit denen man rechnen muß, wenn es im LWR zu einem Kühlmittelverlustunfall mit anschließendem Niederschmelzen des Cores kommt?
2. Wie groß ist der Einfluß von aerosolphysikalischen Abscheideprozessen innerhalb des Sicherheitsbehälters auf die Aktivitätsfreisetzung in die Atmosphäre?

Obwohl nur wenig über die chemische Zusammensetzung der freigesetzten Schadstoffe bekannt ist, konnte die erste Frage zufriedenstellend beantwortet werden. Das Ergebnis der Untersuchungen und Berechnungen ist die Identifizierung und die Klassifizierung von 370 Nukliden nach deren radiotoxischer Bedeutung.

Ausführlich wurde darüber auf einer IAEA-Tagung in Wien /1/ und beim PNS-Jahreskolloquium 1973 /2/ berichtet.

Die Tatsache, daß mit Ausnahme von Jod-131 die gefährlichsten Schadstoffe als Aerosol in Partikelform auftreten, unterstreicht noch die 2. Frage, nämlich die Frage nach den Partikelabscheideprozessen in der typischen Dampf-atmosphäre eines LWR-Containments nach einem schweren hypothetischen Störfall.

Die Aufklärung der vielen Einzelprozesse, die Durchführung spezieller Experimente und schließlich die Entwicklung einer Modelltheorie wird sicher

noch einige Zeit in Anspruch nehmen. Die Art und Weise, wie dabei vorgegangen werden soll, sowie erste Ergebnisse von Parameterstudien wurden bereits in /3/ und /4/ mitgeteilt.

Die Notwendigkeit einer umfassenden Klärung der einzelnen Abbauprozesse und die Notwendigkeit einer Modelltheorie kann nicht deutlich genug hervor-gehoben werden.

Beim Partikelabbau im LWR-Containment handelt es sich um einen positiven Effekt, der die schädlichen Auswirkungen eines Störfalles stark vermindern kann. Vom Standpunkt der Reaktorsicherheit aus können worst-case-Überlegungen hier viel zu pessimistisch sein. Gerade in der Dampf-Atmosphäre im LWR-Containment können auch künstliche Sprühsysteme durch Erzeugung einer Wasserdampf-übersättigung, verstärkte Kondensation und wash-out sowie rain-out von Gasen und Partikeln die Abscheidung noch erheblich beschleunigen, so daß man mit einer Verminderung der Aktivitätsfreisetzung in die Umgebung des Reaktors um den Faktor 1000 oder noch weit mehr rechnen kann.

Einen schweren hypothetischen Störfall kann man in sich zeitlich überlagernde Phasen einteilen:

Im Zusammenhang mit dem "blow-down" kommt es zu einem Kühlmittelverlust und schließlich bei Versagen der Notkühlung zum Niederschmelzen des LWR-Cores. Aus der Schmelze entweichen zunächst Spaltgase, die zusammen mit der Luft und dem Wasserdampf den gasförmigen Anteil der Atmosphäre im Containment bilden. Aus der Schmelze verdampfen weitere Produkte, die sich im dampfförmigen Zustand turbulent vermischen, dann aber rasch rekondensieren und damit die verschiedensten Aerosole mit festen Partikeln bilden.

Die in das Containment freigesetzte Aktivität wird durch Mechanismen verringert, die man in drei Gruppen einteilen kann:

1. radioaktiver Zerfall
2. Abnahme durch Filterkreisläufe und Containmentleckagen
3. Aerosolphysikalische Abbauprozesse, sowie Kondensation und die Wirkung von Sprühsystemen (dabei wird kein Unterschied zwischen Druck- und Siedewasser-Reaktoren gemacht).

Eine weitere Phase kann gekennzeichnet werden durch die Aktivitätsfreisetzung in die Atmosphäre außerhalb des Containments und durch die anschließende atmosphärische Ausbreitung der Schadstoffe.

Die gewichtigste Folge eines großen hypothetischen Störfalles ist schließlich die radiotoxische Schädigung der Bevölkerung.

Die geschilderten Ereignisse können als zeitinvariantes Kausalsystem der Aktivität dargestellt werden (Abb. 4311-1).

Ein solches System besteht aus einer Quelle, einem Übertragungsglied und aus einer Senke. Über die Senke - damit ist hier hauptsächlich die Inkorporation durch Inhalation gemeint - ist im Prinzip schon viel bekannt. Hier besteht das Problem zur Zeit noch in der Bereitstellung von Daten und von biologischen Faktoren.

Die Übertragung, nämlich die atmosphärische Ausbreitung, enthält noch sehr viel mehr ungelöste Fragen. Besonders unsicher muß man sich jedoch fühlen, wenn man Aussagen über die Aktivitätsquelle bei einem Störfall machen soll.

Selbst wenn man die Vorgänge beim blowdown und beim Coreschmelzen nicht in die Betrachtungen mit einbezieht, scheint es z.Z. noch nicht möglich zu sein, realistische Störfallberechnungen entsprechend dem in Abb. 4311-1 gezeigten System durchzuführen.

Die Freisetzung der gasförmigen Nuklide aus der Coreschmelze sowie die Ausbildung der Kondensationsaerosole ist noch ungeklärt. Allerdings sind vorsichtige worst-case-Abschätzungen möglich. Ebenso verhält es sich mit der Bestimmung von Leckraten, Filterwirkungsgraden und anderen Rückhaltefaktoren über die Aktivitätsfreisetzung aus Containmentlecks und dem Schornstein. Brauchbare Modelle fehlen hingegen besonders für den Abbau von Gasen und Partikeln in der Dampfatmosfera in Leichtwasserreaktor-Containments bei Kühlmittelverlustunfällen.

Experimente im Battelle Pacific Northwest Laboratory oder z.B. in den Oak Ridge National Laboratories haben zwar einen Aufschluß über den Abbau von Spaltjod in den verschiedensten chemischen Formen gegeben, wobei man auch die Wirkung von Sprühanlagen studierte; über den Einfluß der Mechanismen beim Partikelabbau ist jedoch kaum etwas bekannt.

Die Tatsache, daß die vielen Experimente und Untersuchungen überwiegend dem Abscheiden von Jod bzw. Methyljodid galten, /4/, ist darauf zurückzuführen, daß speziell Jod-131 als gefährlichstes Nuklid beim LWR-Störfall angesehen wird.

Daß diese Vorstellung nur bedingt richtig ist und daß man ebensolche Aufmerksamkeit einer Reihe von partikelförmig auftretenden Nukliden schenken muß - insbesondere dem erbrüteten Plutonium - soll im folgenden gezeigt werden:

Voraussetzung für alle quantitativen Aussagen über die Aktivitätsquelle ist die Kenntnis der Anfangsaktivität von

- Brennstoff - erbrütetem Brennstoff - Spaltprodukten - aktivierten Strukturmaterialien - aktiviertem Kühlmittel.

Für ein LWR-Kraftwerk mit einer Leistung von 1000 MWe, einem Wirkungsgrad von 34,5 %, einer mittleren Standzeit von ca. 4 Jahren wurde daher zunächst die Anfangsaktivität von 370 verschiedenen Nukliden mit dem aus dem Programm INVENT weiterentwickelten Rechenprogramm ASP berechnet.

Spätere Betrachtungen haben gezeigt, daß durch Gamma- und Beta-Strahlung aus der vorüberziehenden Wolke aufgenommenen Dosen gegenüber inkorporierten Dosen vernachlässigt werden können. Daher erschien die von einem Menschen inkorporierte Dosis je Nuklid als sinnvollstes Maß für eine Klassifizierung der im Störfall freigesetzten Schadstoffe. Natürlich mußten bezüglich des hypothetischen Störfalls, der Aktivitätsfreisetzung, der atmosphärischen Ausbreitung, der Expositionszeit und der Inkorporationszeit willkürliche, aber möglichst realistische Annahmen getroffen werden. Den mit dem Computerprogramm MUNDO /5/ errechneten Dosen kommt daher keine absolute Bedeutung zu. Die Studien haben jedoch gezeigt, daß eine generelle Klassifizierung der freigesetzten Nuklide nach der inkorporierten Dosis kaum von der Wahl bestimmter Parameter abhängt. Die Klassifizierung bleibt auch dann gleich, wenn man z.B. nur ein teilweise geschmolzenes Core annimmt.

Die inkorporierende Testperson ist 50 Jahre alt, wiegt 70 kg und hat eine weitere Lebenserwartung von nochmals 50 Jahren. (siehe Abb. 4311-2).

Als Gesamtdosis je Nuklid wurde jeweils die Summe der in den Muskeln, in den Knochen, in den Nieren, in der Leber, in der Schilddrüse und im übrigen Körper inkorporierten Einzeldosen angesehen, wobei natürlich alle biologischen Faktoren nach Möglichkeit berücksichtigt wurden. Es wurden auch verschiedene Abstände der exponierten Person vom Reaktor angenommen, z.B. 5 km. Auch die Expositionszeiten wurden variiert von 2 Stunden bis zu einer Woche. Die Ausbreitungsrechnung im Programm MUNDO wird mit einem modifizierten Ansatz nach Sutton durchgeführt. Dabei wird Totalreflektion am flachen, hindernislosen Boden angenommen. Die gewählten Wetterdaten mit einer Windgeschwindigkeit von 5 m/s und einer Winddrehung in Ausbreitungsrichtung von 30° können z.B. für die Verhältnisse am Kernforschungszentrum in Karlsruhe gelten.

Damit ergibt sich ein meteorologischer Ausbreitungsfaktor von $1,5 \cdot 10^{-7} \text{ s/m}^3$. Der Einfachheit halber wurde angenommen, daß die gesamte Aktivität aus dem Schornstein mit 100 m Höhe freigesetzt wird, was für den Zweck einer Klassifizierung sinnvoll, aber nicht realistisch ist. Der Rückhaltewirkungsgrad von Filtern, Mauerwerk und ähnlichem zusammen soll 99,99 % betragen. Bei einem Containmentvolumen von $48\,000 \text{ m}^3$ soll die Freisetzung aus dem Schornstein 3 % des Volumens/Tag betragen.

Wesentlich schwieriger war es, Annahmen über die Quelle der Aktivität zu treffen. Es wurde davon ausgegangen, daß 1 % der Anfangsaktivität in das Containment freigesetzt wird, wenn das entsprechende Nuklid partikelförmig erscheint und 100 %, wenn es gasförmig erscheint. Die Annahmen (siehe Abb. 4311-3) besagen weiterhin, daß die Freisetzungsrates aus der Coreschmelze linear zunimmt, und zwar so, daß die gesamte Freisetzung von Gasen nach 5 sec beendet ist, die Freisetzung von Aerosol dagegen erst nach 1 h.

Die Abnahme der Aktivität im Containment durch Leckagen, Filterwirkung und radioaktiven Zerfall ließ sich leicht berechnen. Die Abbaufunktion für plate-out, rain-out und wash-out mit und ohne künstlichem Sprühsystem mußte dagegen durch zwei z.Z. t_1 gebrochene Exponentialfunktionen angenähert werden. Die in Abb. 4311-3 angegebenen Halbwertszeiten t_{h1} und t_{h2} sowie die Schnittstelle t_1 für jeweils gasförmiges und partikelförmiges Nuklid mit und ohne Sprühsystem wurde aus eigenen und anderen Experimenten, sowie aus Parameterstudien extrapoliert /1/.

Unter Berücksichtigung aller genannten Annahmen ergibt sich somit für das Aktivitätsübertragungssystem die Quellstärke für jedes einzelne der 370

Nuklide, d.h. die aus dem Schornstein freigesetzte Aktivität pro Zeiteinheit. Als Beispiel soll die Freisetzungsrates von J-131 und Pu-241 dienen, Abb. 4311-4.

Auf der Ordinate ist die pro Zeiteinheit freigesetzte Aktivität in Ci/h im logarithmischen Maßstab aufgetragen, auf der Abszisse die Zeit nach Unfallbeginn in Stunden. Die gestrichelten Kurven gelten für den Fall, daß kein Sprühsystem eingeschaltet ist, die ausgezogenen Kurven für den Fall mit Sprühsystem. Die beiden unteren Kurven entsprechen der Quellstärke für Plutonium-241. Sie nimmt eine Stunde lang zu und fällt dann nach reinen Exponentialfunktionen ab. Da J-131 gasförmig auftritt, wird das Maximum bereits nach 5 sec erreicht. Aus der Abbildung wird deutlich, welchen Einfluß der Schadstoffabbau im Inneren des Containments auf die nach außen abgegebene Aktivität beim schweren hypothetischen Störfall besitzt. Man erkennt auch, wie sehr dieser Effekt durch die Verwendung von Sprühanlagen verstärkt werden könnte.

An dieser Stelle muß nochmals ausdrücklich betont werden, daß es sich hier um einen angenommenen hypothetischen Unfall mit vollständigem Niederschmelzen des Cores handelt. Schon beim GAU dürften die Abscheidemechanismen im Containment und die Wirkung von Sprühanlagen erheblich geringer sein, weil diese natürlich sehr stark von der Anfangskonzentration der Partikeln und der Gase abhängen.

Das Ergebnis der Berechnungen mit MUNDO ist die zuvor definierte inkorporierte Dosis für jedes Nuklid. Abb. 4311-5 zeigt die inkorporierte Dosis am Beispiel von Pu-241, J-131 und Ce-144 in Abhängigkeit von der Expositionszeit und vom Abstand vom Unfallort.

Ebenfalls im logarithmischen Maßstab ist auf der Ordinate die Dosis in rem aufgetragen, linear auf der Abszisse dagegen die Expositionszeit in h. Die Kurven gelten jeweils für einen Abstand von 5 km und von 10 km. Ein Sprühsystem wurde in diesem Beispiel nicht angenommen. Dem Verlauf der Kurven entnimmt man, daß eine Klassifizierung der freigesetzten Nuklide nach ihrer radiotoxischen Schädlichkeit sehr wohl möglich ist. Zwar schneiden sich in diesem Beispiel die Kurven von Pu-241 und J-131 bei einer Expositionszeit von etwa 15 Stunden, jedoch unterscheiden sich die inkorporierten Dosen ohnehin nur so wenig voneinander, daß es sinnvoll ist, beide Nuklide als gleich

gefährlich zu betrachten. Weiterhin wird deutlich, daß sich die inkorporierten Dosen schon nach relativ kurzer Zeit nicht mehr nennenswert ändern.

Das eigentliche Ergebnis ist in der Tab. 4311-1 wiedergegeben. Sie zeigt die wichtigsten 12 von 370 im Störfall eines Leichtwasserreaktors freigesetzten Nuklide. In der ersten Spalte ist das Nuklid verzeichnet, in der 2. Spalte die inkorporierte Dosis, berechnet mit MUNDO unter den genannten Voraussetzungen. Die 3. Spalte zeigt den prozentualen Anteil an der von allen Nukliden zusammen verursachten Dosis und die letzte Spalte schließlich zeigt ein mögliches Beispiel für eine Einteilung in Prioritätsklassen.

Auffallend sind unter anderem 3 Dinge:

1. unter den 12 gezeigten Nukliden tritt nur J-131 gasförmig auf, alle anderen als Aerosol.
2. Unter den wichtigsten Nukliden sind die Pu-Isotope vertreten. Ihre Bedeutung wird noch zunehmen, wenn LWR's in Zukunft eine Erstausrüstung mit Pu erhalten.
3. Die Edelgase Krypton und Xenon sind beim hypothetischen Störfall mit vollständigem Niederschmelzen des Cores nicht unter den 12 gefährlichsten der freigesetzten Nuklide zu finden.

Literatur

/1/ J.P. Hosemann, W. Schikarski, H. Wild,

"Radioactive pollutants released in accidents at LWR Power Plants -
A Review and Attempt at Classification"

IAEA/WMO Symposium on the Physical Behaviour of Radioactive Contaminants
in the Atmosphere

Wien, 12.-16. Nov. 1973 (Proc.: IAEA-SM-181/18)

/2/ J.P. Hosemann,

"Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments"
Jahreskolloquium 1973 des Projekts Nukleare Sicherheit, 11.12.1973

/3/ J.P. Hosemann, H. Jordan,
KFK 1859, Nov. 1973, S. 143 - 165

/4/ J.P. Hosemann, H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild,
KFK 1800, Juni 1973

/5/ H. Jordan,
KFK 1710, demnächst

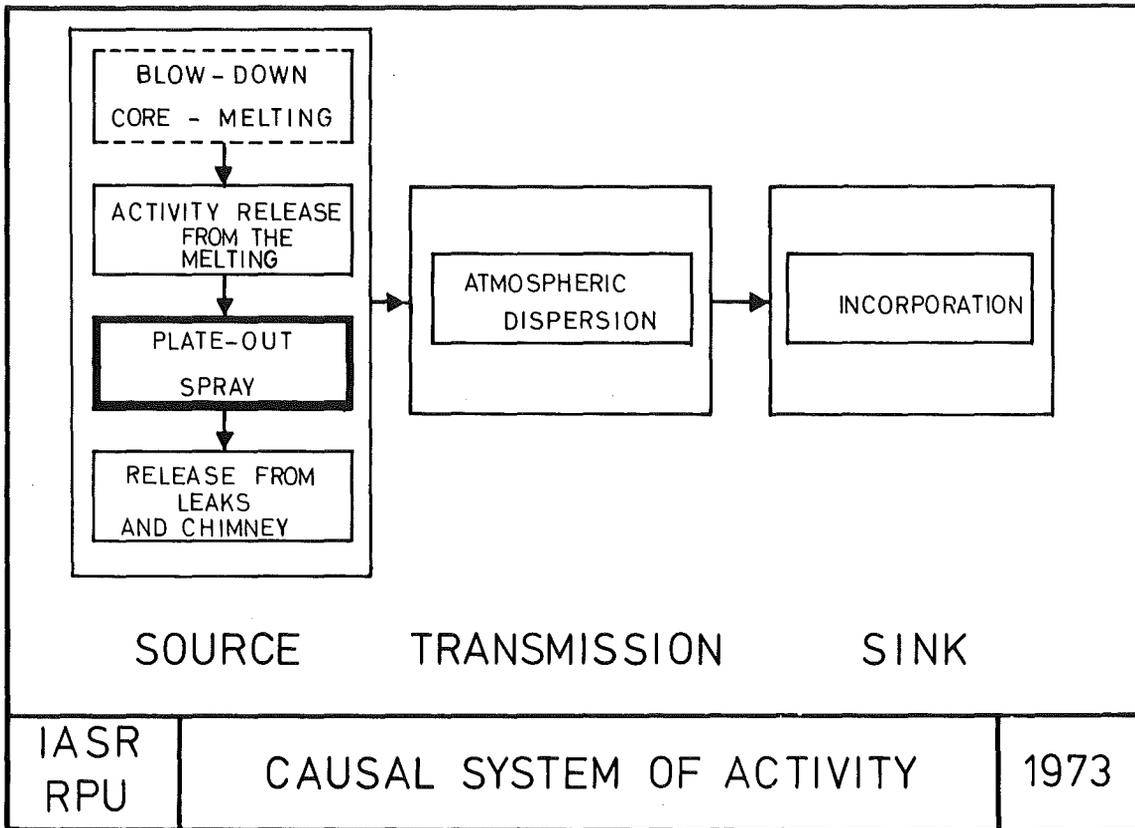


Abb. 4311-1

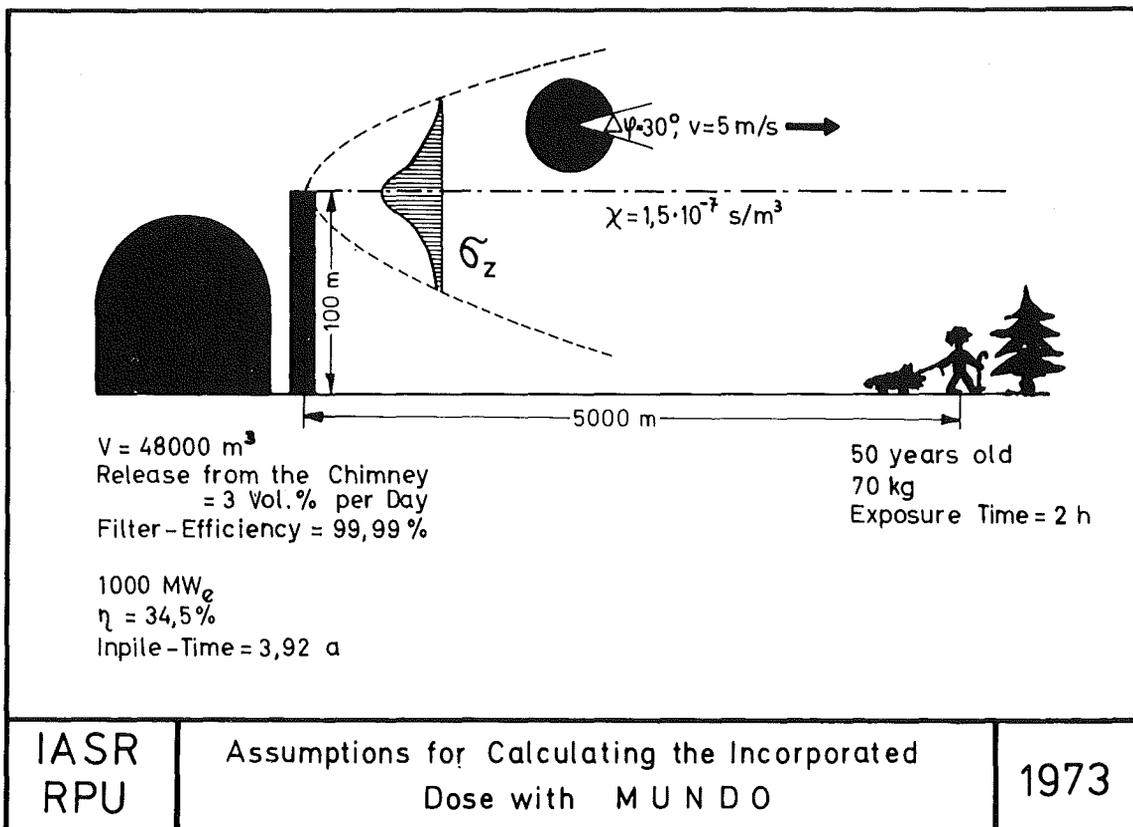


Abb. 4311-2

Time to Completion of Activity Release from the Core

$t_0 = 5 \text{ sec}$ for gaseous nuclides

$t_0 = 1 \text{ hour}$ for particulate nuclides

Half-Lives for Plate-Out and Wash-Out

		NUCLIDE							
		PARTICULATE				GASEOUS			
		SPRAY	ON	SPRAY	OFF	SPRAY	ON	SPRAY	OFF
t_{h1}	$(t \leq t_1)$	10 min		1 h		2 min		21 min	
t_{h2}	$(t > t_1)$	10 h		50 h		2 h		5,2 h	
t_1		5 h		5 h		3 h		3 h	

IASR RPU	Assumptions on the Activity-Source	1973
-------------	------------------------------------	------

Abb. 4311-3

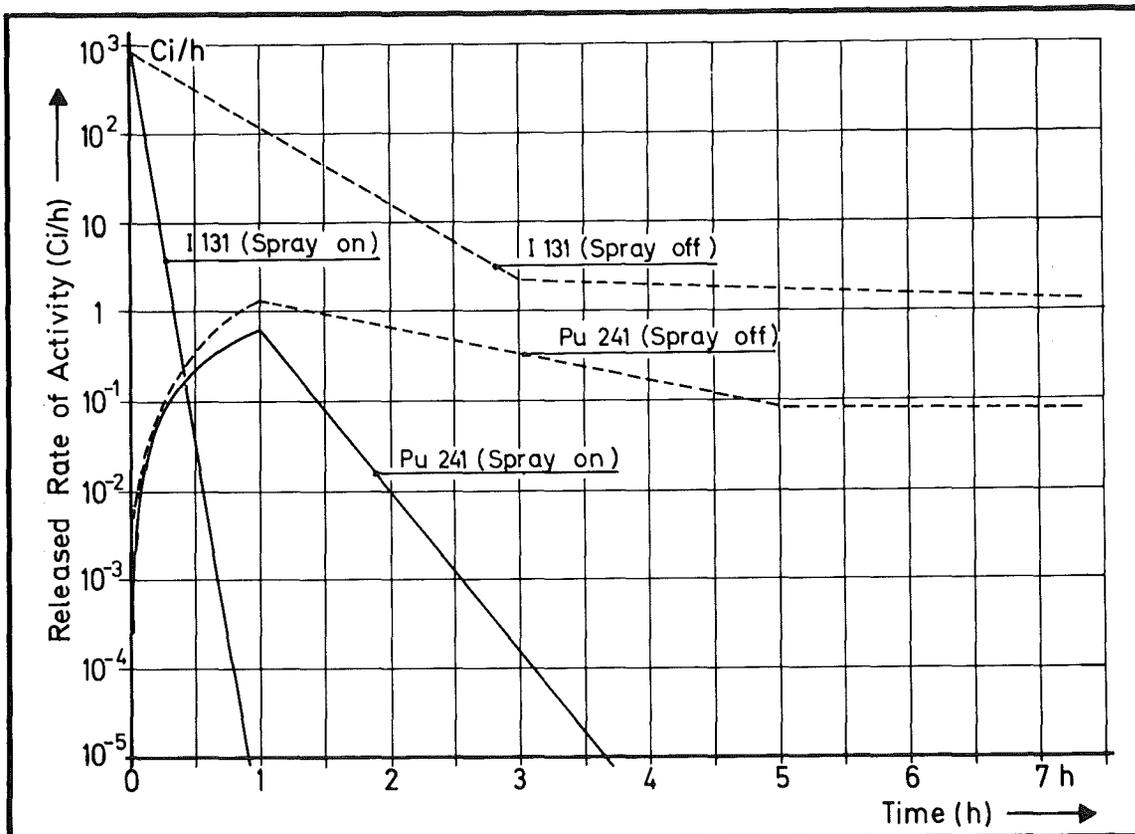
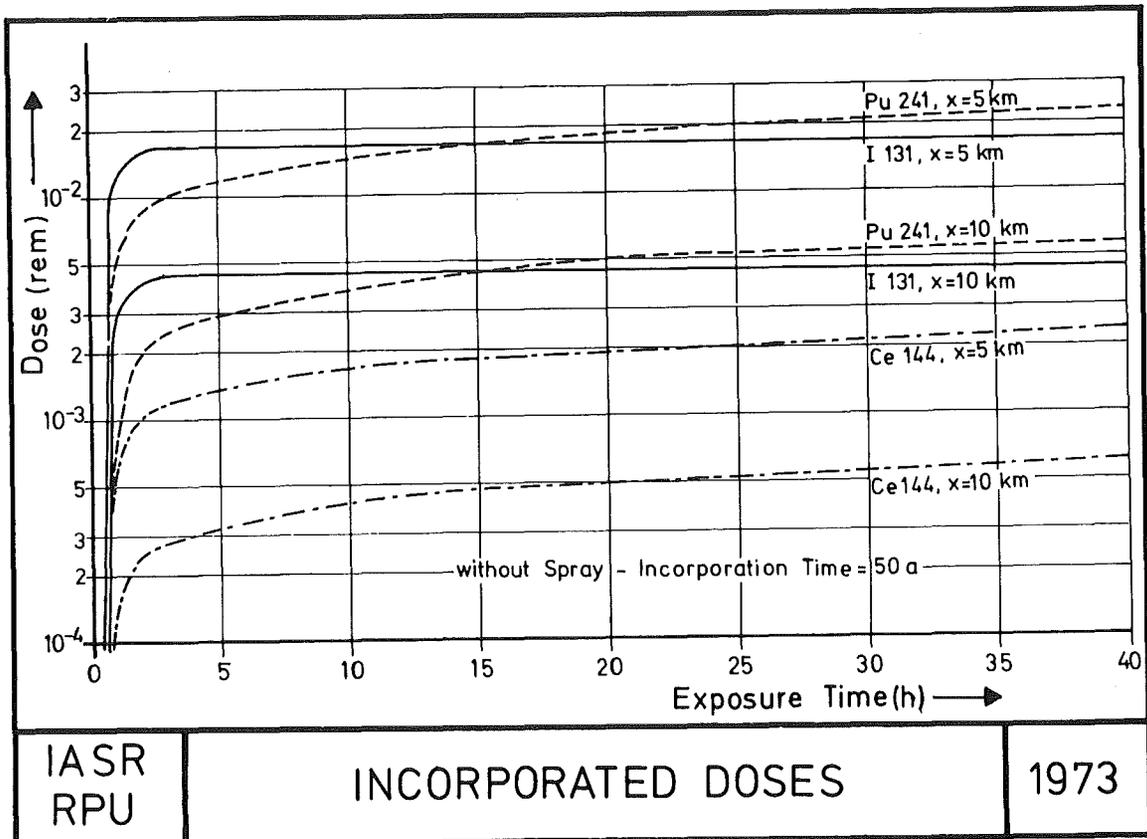


Abb. 4311-4



IASR
RPU

INCORPORATED DOSES

1973

Abb. 4311-5

CLASSIFICATION OF IMPORTANT RADIONUCLIDES IN LWR POWER PLANTS ACCORDING TO INCORPORATED DOSE AND TO PRIORITY CLASSES

NUCLIDE	INCORPORATION DOSE* [mrem]	PERCENTAGE OF TOTAL DOSE	PRIORITY CLASS
PU 241	18	35	I
I 131	17	32	
SR 90	4,8	9	II
PU 240	4,5	9	
PU 239	2,5	5	
CE 144	2,0	4	
SR 89	1,7	3	
Y 91	0,45	1	III
ZR 95	0,093	0,2	IV
CS 137	0,027	0,05	V
RU 106	0,0052	0,01	
CO 60	0,00036	0,0007	VI

*EXPOSITION TIME = 24 H; INCORPORATION TIME = 50 A; DISTANCE = 5 KM; WITHOUT OPERATION OF SPRAY SYSTEM

Tab. 4311-1

- 4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase
 (W. Hübschmann, L.A. König, D. Nagel, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, M. Winter, J. Hiller, D. Schwenke)

Es wird im folgenden ein Überblick über die im Rahmen des PNS von der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit durchgeführten Versuche, über ihre Motivation und Zielsetzung gegeben.

Die im allgemeinen sehr wirksame atmosphärische Ausbreitung ermöglicht es, die heute üblichen Schadstoffmengen ohne unmittelbare Gefahr für den Menschen über hohe Kamine abzuleiten. Dennoch sind - wie sich bei Ausbreitungsversuchen herausgestellt hat -, die entscheidenden Parameter der Ausbreitungsrechnung für den Einzelfall nur sehr ungenau bekannt, so daß es in einem Großteil der Wetterlagen nicht gelingt, die Konzentrationsverteilung im Lee der Quelle einschließlich Ort und Höhe des Maximums mit zufriedenstellender Genauigkeit vorherzusagen. Erst bei statistischer Mittlung über einen längeren Zeitraum verlieren diese Unsicherheiten an Bedeutung.

1. Berechnungsverfahren für Ausbreitungsvorgänge in der Atmosphäre

Die Konzentration $C(x, y, z)$ am Ort mit den Koordinaten (x, y, z) ist der Emissionsrate \dot{A} proportional

$$C(x, y, z) = \dot{A} \chi(x, y, z) \quad (1)$$

Der ortsabhängige Proportionalitätsfaktor χ ist im folgenden als Ausbreitungsfaktor bezeichnet. In Analogie zur molekularen Gasdiffusion kann die Konzentrationsverteilung in der Abgasfahne durch eine doppelte Gaußverteilung angenähert werden.

$$C(x, y, z) = \frac{\dot{A}}{u} \frac{\exp - \frac{y^2}{2 \sigma_y^2}}{\sqrt{2 \pi} \sigma_y(x)} \frac{\exp - \frac{(z - H)^2}{2 \sigma_z^2} + \exp - \frac{(z + H)^2}{2 \sigma_z^2}}{\sqrt{2 \pi} \sigma_z(x)} \quad (2)$$

Hierin bedeuten

- \bar{u} über die Ausbreitungsschicht gemittelte Windgeschwindigkeit in m/s
- $\sigma_y(x), \sigma_z(x)$ entfernungs- und stabilitätsabhängige Ausbreitungsparameter in m
- H effektive Emissionshöhe in m.

Die Konzentration am Boden ($z = 0$) wird durch die bekannte Form der Gleichung (3) ausgedrückt.

$$C(x, y, z) = \frac{\dot{A}}{\bar{u}} \frac{1}{\pi \sigma_y(x) \sigma_z(x)} \exp - \left(\frac{y^2}{2\sigma_y^2} + \frac{H^2}{2\sigma_z^2} \right) \quad (3)$$

Abb. 1 zeigt die Geometrie einer idealisierten Abgasfahne bei $\dot{A} = 1 \text{ Ci/h}$, $H = 100 \text{ m}$ und Kategorie D und die Konzentrationsverteilung an zwei Vertikalschnitten. In $x = 2,3 \text{ km}$ Entfernung vom Kamin ist etwa das Maximum der Konzentration am Boden erreicht, während die anfänglich sehr hohe Konzentration auf der Abgasfahnenachse bereits weitgehend abgebaut ist. Der Wert σ_z -Wert gibt die Höhe der Gaußverteilung an. In einem Abstand von $2,15 \sigma$ von der Mittellinie (meist als "Rand" der Abgasfahne bezeichnet) ist die Konzentration auf $1/10$ des Scheitelwertes auf der Achse abgesunken. Durch die σ -Werte wird also der Grad der Ausbreitung der Abgasfahne beschrieben. Sie hängen sehr stark vom Grad der Turbulenz und somit von der Stabilität der Luftschichtung ab und werden experimentell bestimmt. Bei den hier beschriebenen Ausbreitungsexperimenten wird eine Leitsubstanz mit konstanter Rate emittiert und deren Konzentration an verschiedenen Punkten in Bodennähe gemessen. Um die Abhängigkeit der σ -Werte von der Stabilität der Luftschichtung beschreiben zu können, muß die Stabilität selbst beschrieben werden. F. Pasquill hat ein einfaches und einprägsames Schema entworfen, welches die verschiedenen Stabilitätszustände in die Kategorien A (sehr instabil, bei starker Sonnenbestrahlung) bis F (stabil, bei starker nächtlicher Abstrahlung von der Erdoberfläche) einteilt. (Allerdings werden Pasquills Einteilungskriterien heute kaum mehr verwendet.)

Die σ -Werte haben Pasquill und nach ihm Gifford im wesentlichen aus den "Prärie-Gras-Experimenten" gewonnen, Experimente über flachem, unbebautem Gelände in den USA.

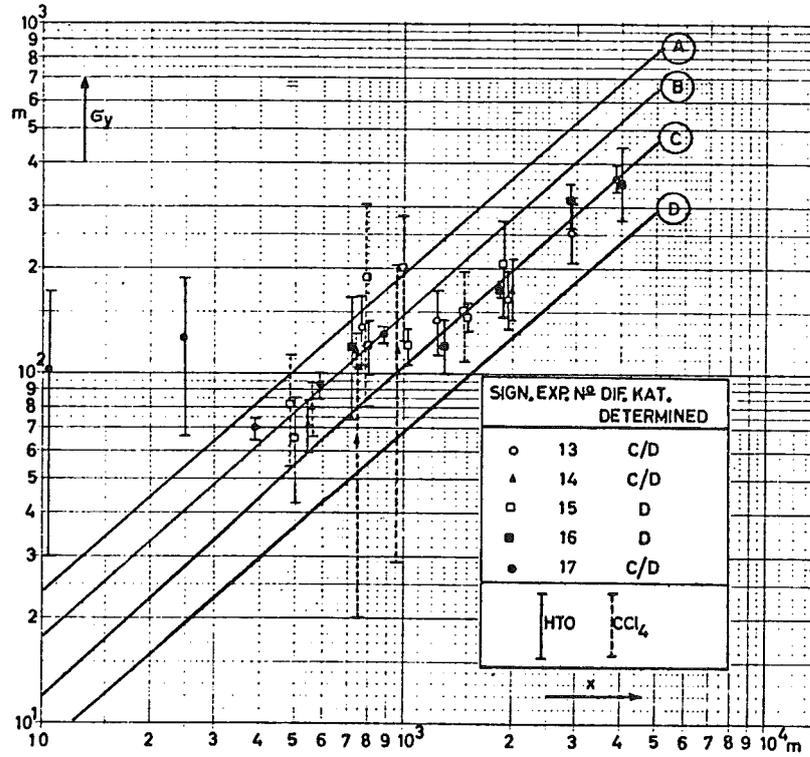


Abb. 4312-2 Aus den Meßergebnissen der Ausbreitungsexperimente Nr. 13 bis 17 berechnete Streuungen σ_y in Abhängigkeit von der Quelldistanz r

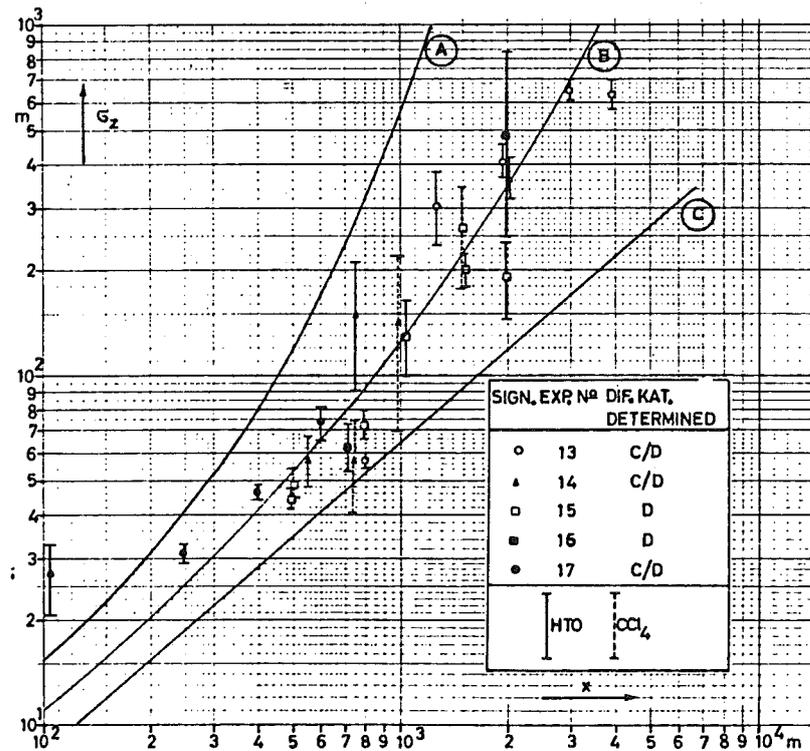


Abb. 4312-3 Aus den Meßergebnissen der Ausbreitungsexperimente Nr. 13 bis 17 berechnete Streuungen σ_z in Abhängigkeit von der Quelldistanz r

Pasquill's Kategorienschema zusammen mit den σ_y , σ_z -Scharen von Pasquill/Gifford stellt eine komplette Berechnungsunterlage für Ausbreitungsrechnungen dar. Gerade in der Kerntechnik werden diese Berechnungsunterlagen sehr vielfältig verwendet und empfohlen; als Beispiel sei nur das von D.H. Slade herausgegebene Buch "Meteorology and Atomic Energy 1968" genannt /1/.

2. Ziel der Ausbreitungsexperimente

Ist eine so weitgehende Verwendung insbesondere der σ -Scharen gerechtfertigt, obwohl diese aus Versuchen unter anderen topographischen Verhältnissen gewonnen wurden? Eine Antwort auf diese Frage geben die Abbildungen 4312-2 und 4312-3 (aus /2/ mit freundlicher Erlaubnis der Autoren übernommen). Die ausgezogenen Kurven stellen die Pasquill/Gifford'schen σ -Scharen für die Stabilitätsklassen A bis D dar. Dazu sind die aus Ausbreitungsversuchen in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe gefundenen σ -Werte eingetragen. Als Leitsubstanzen wurden Tritium (HTO) und Tetrachlorkohlenstoff (CCl_4) emittiert. Bei den Versuchen Nr. 13 bis 17, deren Ergebnisse in Abb. 4312-3 und 4312-4 gezeigt sind, hat jeweils eine neutrale oder leicht labile Wetterlage (D oder C/D) geherrscht. Die Abweichungen der ausgewerteten σ -Werte zu den Kurvenscharen sind beträchtlich; sie sind durchweg größer, und entsprechen einer um eine oder sogar zwei Stufen labileren Stabilitätskategorie. Die σ_y -Werte entsprechen in über 1 km Entfernung der Kategorie C, in kürzeren Abständen sogar der Kategorie B; die σ_z -Werte entsprechen etwa der Kategorie B. Neben dieser Abweichung von den Pasquill/Gifford'schen Kurvenscharen ist auch eine starke Streuung zu beobachten, und zwar sowohl eine Streuung des einzelnen σ -Wertes eines Versuches (siehe die in Abb. 4312-3 und 4312-4 senkrecht eingetragenen "Fehlerbreiten") als auch eine Streuung der σ -Werte verschiedener Versuche bei gleicher Kategorie.

Aus diesen Ergebnissen wird zweierlei deutlich:

1. Die Verwendung der Pasquill/Gifford'schen σ -Scharen bei anderen Verhältnissen, als sie am Ort der Versuche vorlagen, kann bestenfalls ein Notbehelf sein, solange keine aus eigenen Ausbreitungsversuchen ermittelten σ -Scharen bekannt sind.

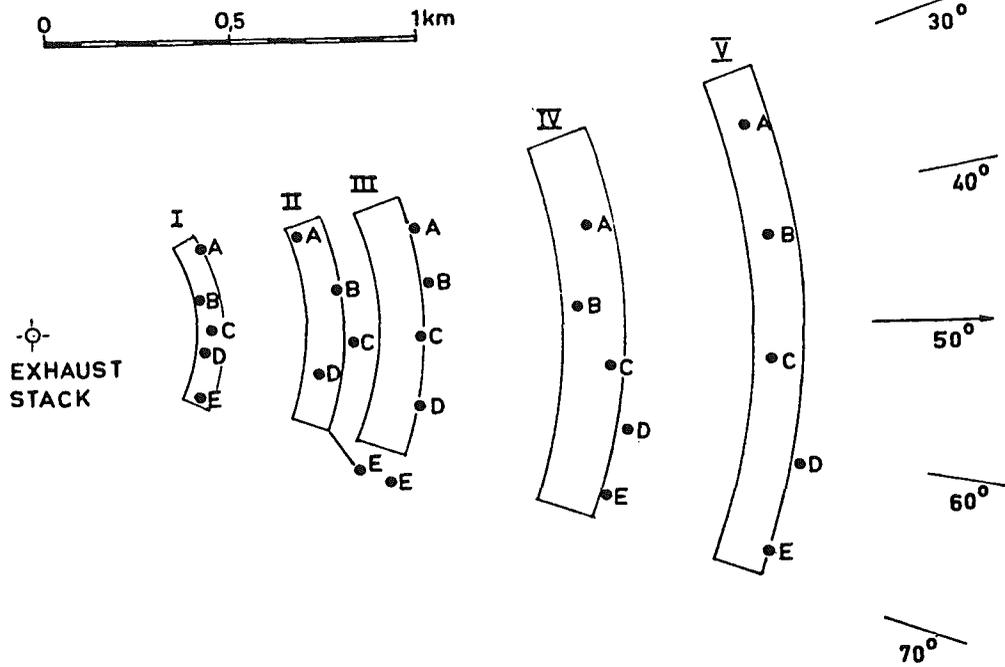


Abb. 4312-4 Beispiel einer Verteilung der Probenahmestellen im Versuchsfeld (Versuch Nr. 15)

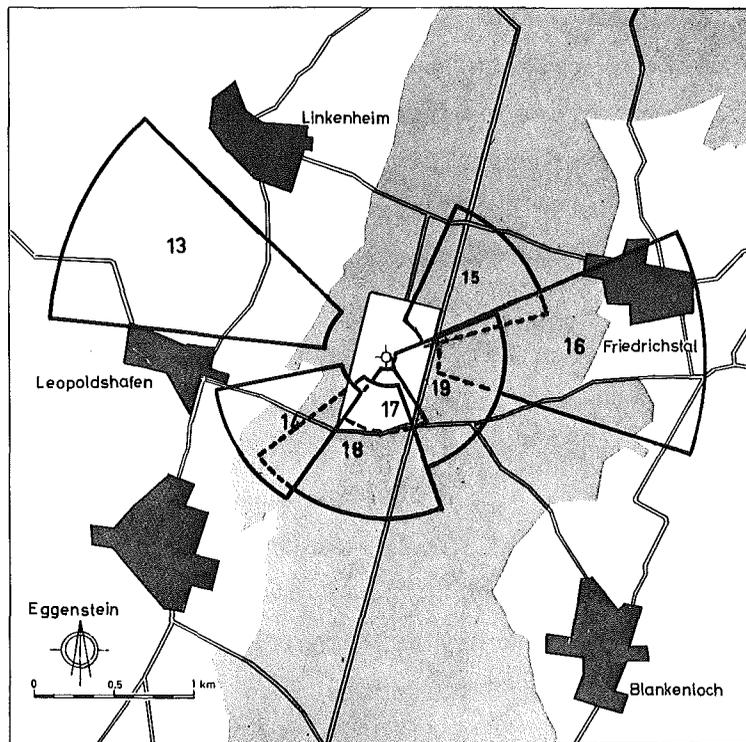


Abb. 4312-5 Lage des KFZK und der Versuchsfelder bei den Ausbreitungsexperimenten Nr. 13 bis 19

☉ Emissionsort: Abluftkamin des FR 2
 Quellhöhe: 100 m
 Waldgebiet

2. Die Pasquill/Gifford'schen σ -Scharen sind ungeeignet, bei Einzelmissionen (dazu zählen z.B. größere störfallbedingte Emissionen) die maximale Höhe der zu erwartenden Schadstoffkonzentrationen zu berechnen, da sie keine Aussage über die Streuung dieser σ -Werte machen.

3. Versuchstechnik

3.1 Anordnung der Probenahmestellen

Die Gestalt des Versuchsfeldes muß dem Ausbreitungsvorgang angepaßt sein, um eine leichte Auswertung der gemessenen Konzentrationswerte zu ermöglichen. Unsere Versuche werden so durchgeführt, daß der Sektor, in welchem die Probenahmestellen aufgestellt werden, für jeden Versuch individuell bestimmt wird. Die Sammelstellen sind mit je einer Person besetzt; durch das verfügbare Personal ist die Zahl der Sammelstellen auf 25 beschränkt. Diese werden in einem 5x5-Raster aufgestellt, siehe Abb. 4312-4, d.h. auf 5 Kreisbögen (Zonen I - V) werden je 5 Sammelstellen A bis E gleichmäßig verteilt. Wurde die Windrichtung richtig prognostiziert, dann erlaubt diese Meßstellenanordnung die Bestimmung der Lateralprofile in den 5 Entfernungen bzw. Zonen sowie des Axialprofils der Bodenkonzentration unter der Ausbreitungsachse. Aus diesen Profilen können die σ_y - bzw. σ_z -Werte bestimmt werden.

Die Lage der Meßsektoren der Versuche 13 bis 19 zeigt Abb. 4312-5. Sie erstrecken sich sowohl über bewaldetes als auch über offenes, bebautes und unbebautes Gelände.

3.2 Tritiiertes Wasserdampf als Leitsubstanz

Die Leitsubstanz (oder Tracer) muß einer Reihe von Anforderungen genügen. Die wichtigsten sind folgende:

1. Sie muß sich in der Atmosphäre genauso ausbreiten wie die Stoffe, deren Ausbreitungsverhalten gesucht ist (im vorliegenden Fall Gase).
2. Das Probenahmeverfahren muß die zeitliche Mittelung der Tracerkonzentration am Sammelort ermöglichen.

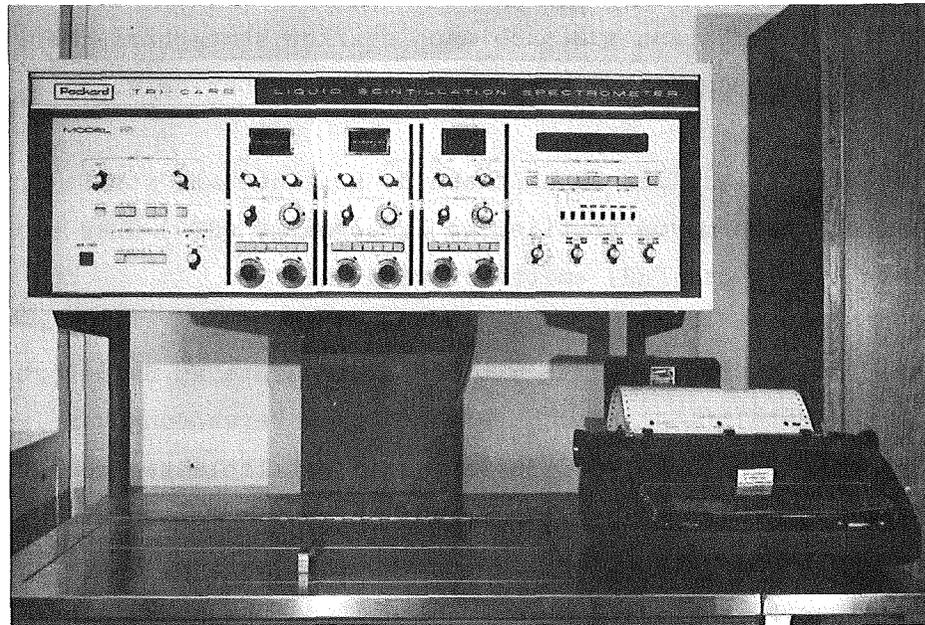


Abb. 4312-6 Flüssig-Szintillations-Spektrometer zur Messung von Tritium-Konzentrationen

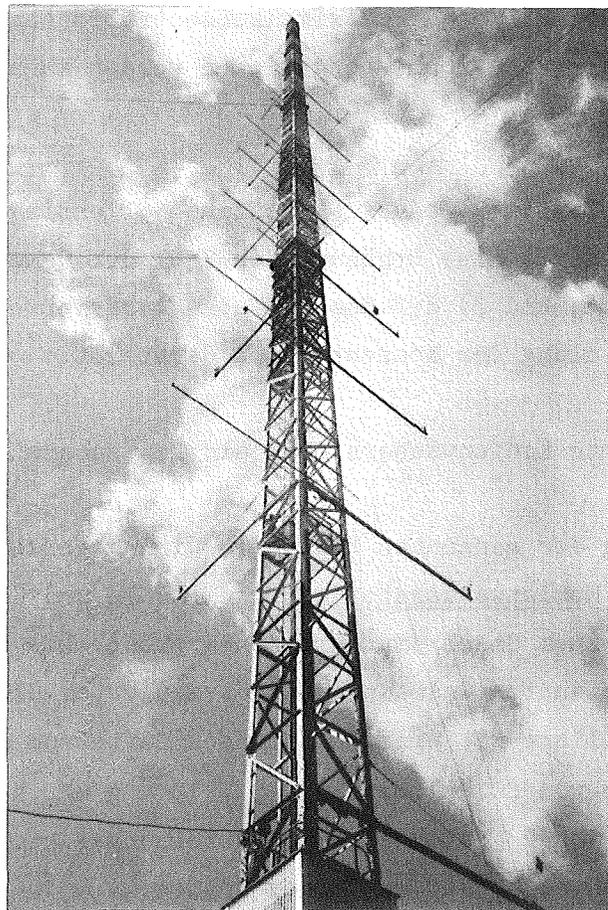


Abb. 4312-7 Meteorologischer Meßturm im KFZK

3. Die Leitsubstanz muß auch nach starker atmosphärischer Verdünnung noch hinreichend empfindlich meßbar sein.

Eine relativ einfach zu handhabende Leitsubstanz stellt Tritium dar, welches in Form von tritiiertem Wasserdampf (HTO) über einen 100 m hohen Kamin (Kamin des FR2) emittiert wird, s. /3/.

Das Tritium wird zusammen mit der Luftfeuchte am Sammelort an unterkühlten Metallflächen ausgefroren. Durch Verwendung von Trockeneis wird eine gleichmäßige Temperatur der Metallplatten gewährleistet. Bereits in 1 cm³ Probenflüssigkeit läßt sich der Tritiumgehalt mit einem Flüssig-Szintillations-Spektrometer messen. Es werden meist 3 Sammelperioden von 1/2 h Dauer nacheinander während einer Emission durchgeführt. Die Auswertung erfolgt in demselben Gerät, mit dem auch der Tritiumgehalt der Proben für die Umgebungsüberwachung gemessen wird, s. Abb. 4312-6.

Die Nachweisgrenze liegt, abhängig von der Luftfeuchte, 5 - 15 pCi/m³ Luft, so daß bei $10^9 \frac{\text{Ci}}{\text{p}_s}$ ein Ausbreitungsfaktor von 10^{-8} s/m^3 und eine Konzentration von 1^o/oo der Maximalkonzentration (bei 100 m Emissionshöhe und Kategorie C) noch nachgewiesen werden kann. Das ist voll ausreichend.

Nachteile der Tritium-Technik bestehen allerdings darin, daß 1) wegen des Personalbedarfs eine Erhöhung der Zahl der Sammelstellen Schwierigkeiten bereitet; und 2) daß das einfache Ausfrierverfahren keine exakte zeitliche Mittelung der Konzentration darstellt.

3.3 Halogenierte Kohlenwasserstoffe als Leitsubstanz

Zur Vermeidung der genannten Nachteile wird gegenwärtig die Emission halogenierter Kohlenwasserstoffe (CCl₄, CFCl₃ und CF₂Br₂) und deren Nachweis mit einem Gaschromatographen erprobt. Die Probenahme erfolgt mit einer sogenannten Gasmaus, einem evakuierten Glaskolben, welcher über eine Kapillare mit einem konstanten Luftstrom gefüllt wird. Die Nachweisgrenze von CCl₄ liegt bei $30 \cdot 10^{-9} \text{ g/m}^3$, so daß bei einer Emissionsrate von 2 g/s ebenfalls Ausbreitungsfaktoren bis herunter auf $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ s/m}^3$ nachgewiesen werden können.

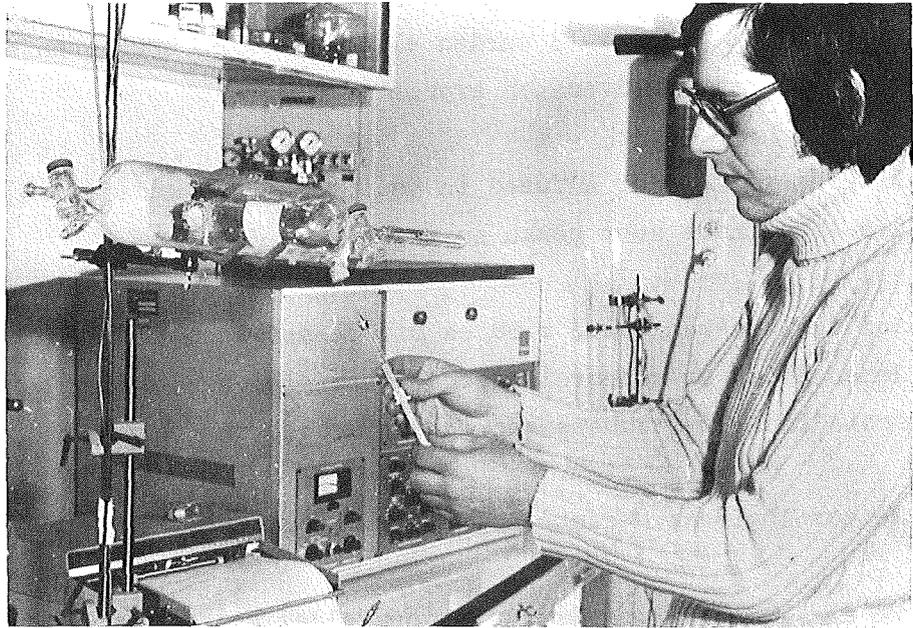


Abb. 4312-8 Auswertung einer Gasprobe

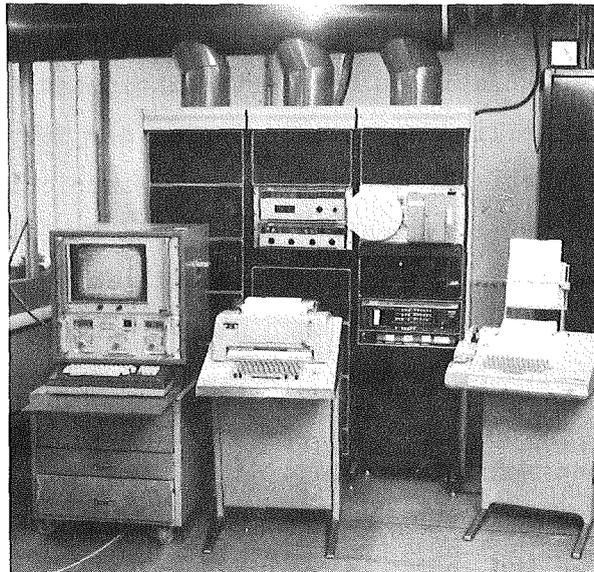


Abb. 4312-9 Datenstation der meteorologischen Meßwarte

Abb. 4312-8 zeigt einen Arbeitsgang der Auswertung und den Gaschromatographen. Im Jahre 1973 wurden alle drei oben erwähnten chemischen Leit-substanzen im Feldversuch erprobt.

Allerdings muß der Aufwand in Kauf genommen werden, den Nullpegel in der Atmosphäre sehr genau zu messen.

Auf der anderen Seite wird es mit dieser Technik möglich, in verschiedenen Höhen am meteorologischen Turm gleichzeitig emittierte unterschiedliche Leitsubstanzen in den Proben zu trennen und parallel zu messen.

4. Meteorologische Messungen

Zu der Messung des Konzentrationsfeldes bei einem Ausbreitungsversuch gehört auch eine möglichst detaillierte Messung aller meteorologisch relevanten Parameter in der Atmosphäre.

Die Höhe des Turms von 200 m, s. Abb. 4312-9, gestattet es, die Höhenprofile der wichtigsten Parameter, nämlich der Temperatur, der Windgeschwindigkeit und der Windrichtung sowie deren Fluktuationen in der für die Ausbreitung entscheidenden unteren Luftschicht kontinuierlich zu messen. Neben Schalenanemometern und Windfahnen zur Messung der Horizontalkomponenten der Windrichtung und -geschwindigkeit sind zwei Vektorfahnen am Turm montiert, welche den Windvektor messen und somit Aufschluß über die Fluktuationen der Vertikalkomponente des Windes geben. Zur Bestimmung der Stabilitätskategorie werden der Temperaturgradient, die Horizontal- und Vertikalfluktuationen der Windrichtung sowie das Windgeschwindigkeitsprofil verwendet. Damit sind Fehldiagnosen, die bei Verwendung nur eines dieser Parameter gelegentlich unterlaufen können, weitgehend ausgeschaltet, und es können die verschiedenen Schemata zur Bestimmung der Stabilitätskategorie geprüft und verglichen werden.

Alle meteorologischen Meßinstrumente sind an eine automatische Datenverarbeitungs- und -registrieranlage angeschlossen. Die Datenstation in der Meßwarte zeigt Abb. 4312-9. Ein kleiner Prozeßrechner des Typs PDP-8/I fragt die Meßgeräte periodisch ab (die Anemometer und Windfahnen z.B. in Abständen von 4 Sekunden) und liefert alle 10 Minuten einen Datensatz an einen Telefunken-Rechner in der Datenverarbeitungszentrale. Dieser speichert die Datensätze auf Magnetband und hält daneben die Daten der letzten 48 Stunden auf einem Plattenspeicher fest. Ein

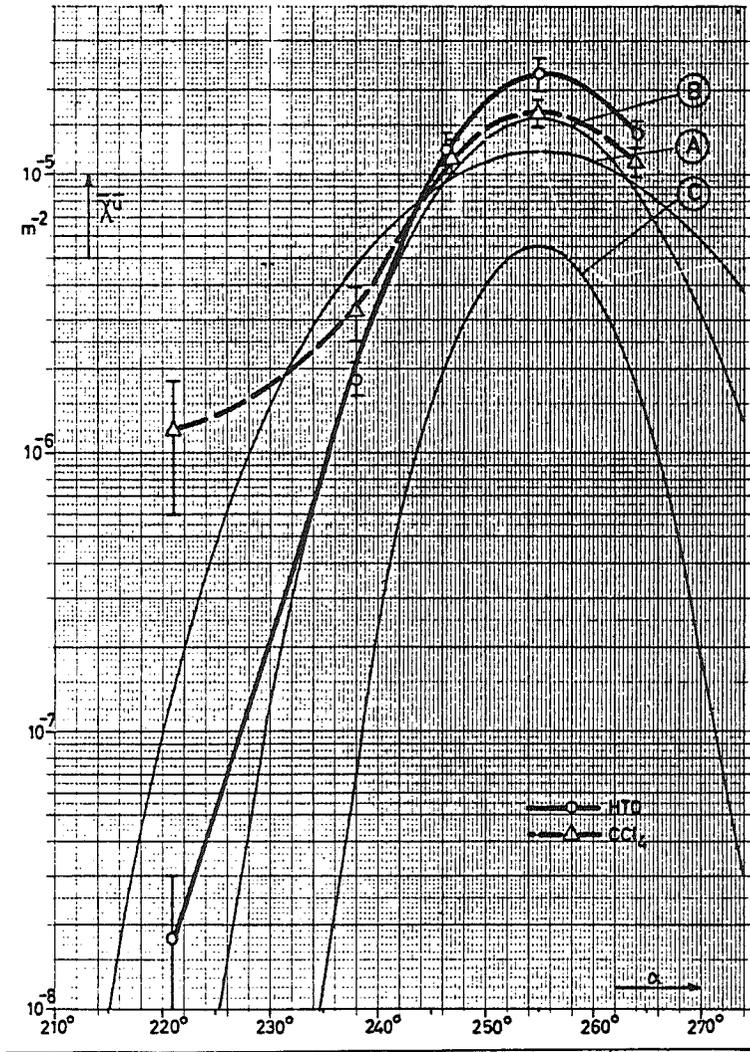


Abb. 4312-10

Beispiel einer experimentell bestimmten azimuthalen Verteilung des normierten Ausbreitungsfaktors χ_u , Versuch Nr. 14, Zone I (Quelldistanz 575 m), 2. Sammelperiode, Quellhöhe: 100 m, diagn. Diffusionskategorie: C/D

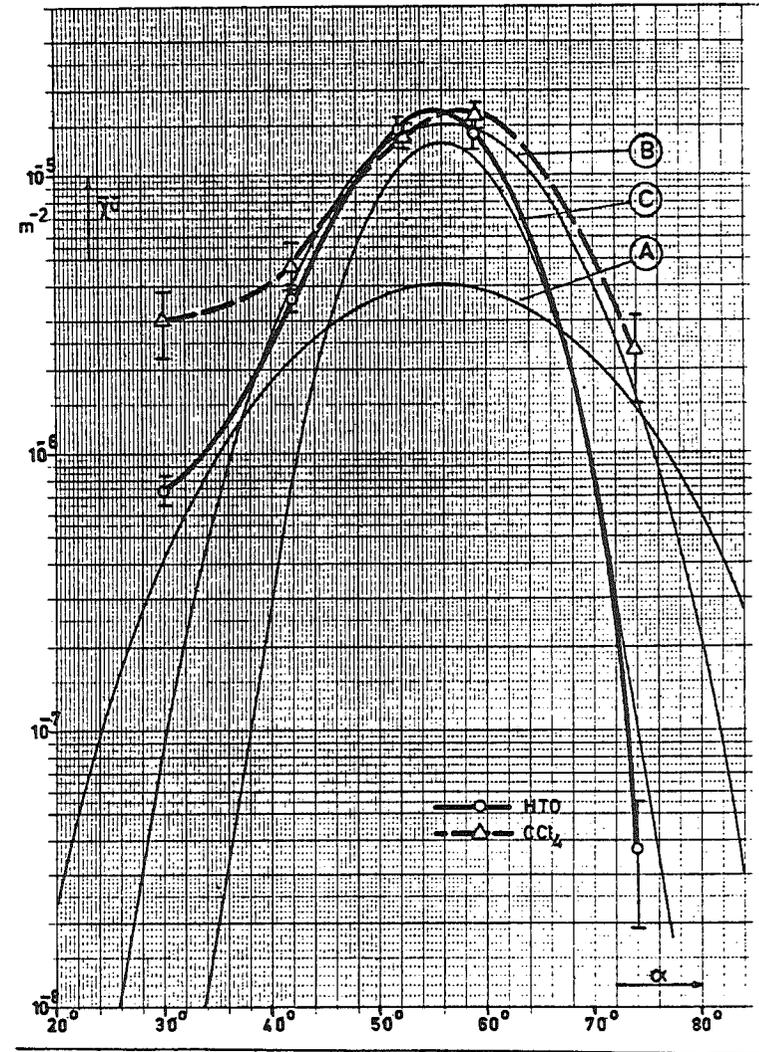


Abb. 4312-11 Beispiel einer experimentell bestimmten azimuthalen Verteilung des normierten Ausbreitungsfaktors χ_u , Versuch Nr. 15, Zone II (Quelldistanz 834 m), 2. Sammelperiode, Quellhöhe: 100 m, diagn. Diffusionskategorie: D

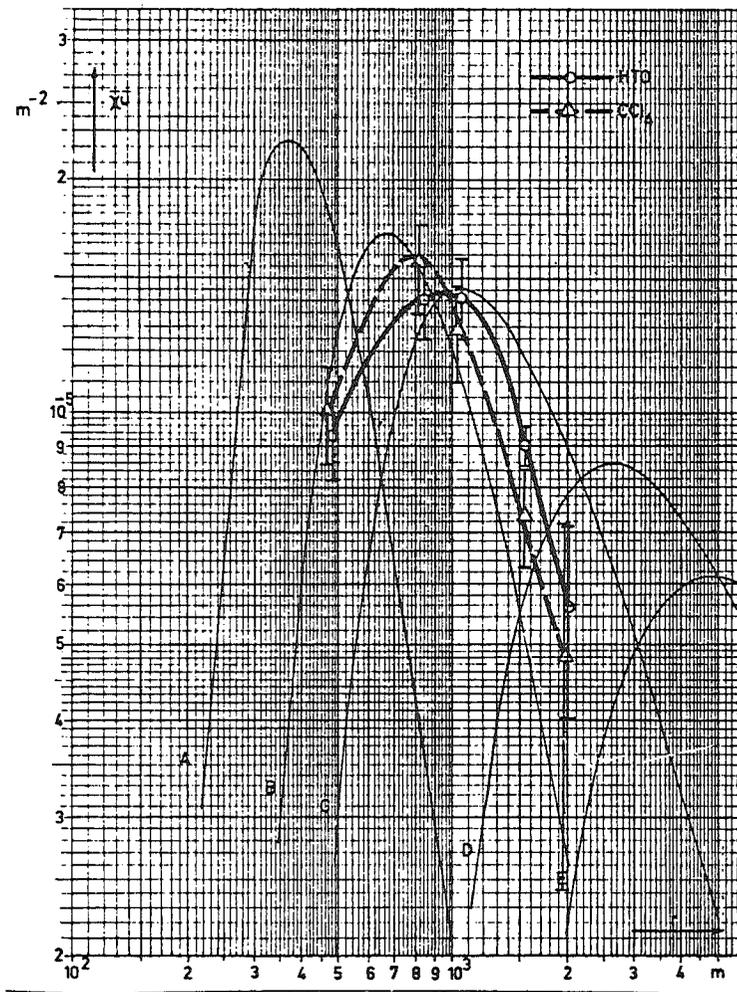
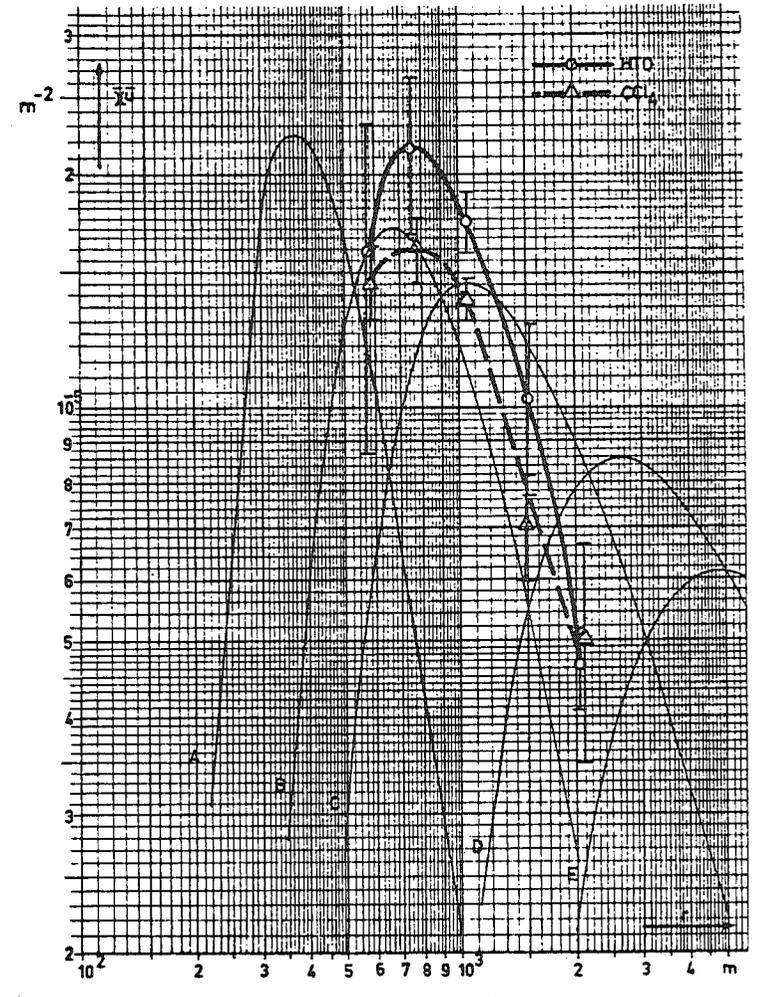


Abb. 4312-12

Abhängigkeit des experimentell bestimmten Ausbreitungsfaktors x_0 von der Queldistanz r in Ausbreitungsrichtung, Versuch Nr. 14, diagn. Diffusionskategorie: C/D, Quellhöhe: 100 m



Abhängigkeit des experimentell bestimmten Ausbreitungsfaktors x_0 von der Queldistanz r in Ausbreitungsrichtung, Versuch Nr. 15, diagn. Diffusionskategorie: D, Quellhöhe: 100 m

Programmsystem erlaubt die Auswertung und übersichtliche Darstellung dieser Daten auf einem Bildschirm. Auf diese Weise kann sich der Meteorologe während eines Ausbreitungsversuchs jederzeit ein Bild über das Geschehen in der Atmosphäre machen. Das gilt natürlich nicht nur für den Ausbreitungsversuch, sondern auch für einen potentiellen nuklearen Störfall mit erhöhter Aktivitätsemission in die Atmosphäre.

5. Ergebnisse der Ausbreitungsversuche

Die Ausbreitungsversuche der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit wurden 1969 begonnen /4/. Bisher wurden insgesamt 23 Versuche gezählt; davon sind 18 zur Beurteilung der Ausbreitung in der Atmosphäre geeignet. Fast alle Versuche haben bei neutralen oder labilen Wetterlagen stattgefunden; ein Versuch - der letzte - wurde bei stabiler Lage (Kategorie E nach Pasquill) durchgeführt.

Nur in wenigen Fällen stimmen die Azimutalprofile mit einer Gaußverteilung angenähert überein, wie z.B. in Versuch 14, Zone 1, s. Abb. 4312-10.

Der auf eine Windgeschwindigkeit von 1 m/s "normierte" Ausbreitungsfaktor ist in einem Schnitt senkrecht zur Ausbreitungsrichtung über dem Azimutalwinkel α aufgetragen.

Zum Vergleich sind die mit den Pasquill/Gifford'schen σ -Werten berechneten Profile eingezeichnet. Nach Breite und Höhe entspricht das gemessene Profil beider Leitsubstanzen etwa dem berechneten der Kategorie B; es war jedoch Kategorie C/D diagnostiziert. Der Unterschied von einer zu 1 1/2 Stufen der Kategorienskala wurde im Mittel auch bei den anderen Versuchen festgestellt (s. z.B. Abb. 4312-11), wenn auch im einzelnen erhebliche Abweichungen von dieser mittleren Verschiebung zu beobachten waren.

Aus den Scheitelwerten der Azimutalverteilung in den fünf Zonen kann ein Axialprofil der Bodenkonzentration unter der Abgasfahnenachse konstruiert werden, s. /5/. In Abb. 4312-12 ist der Scheitelwert des "normierten Ausbreitungsfaktors" $\bar{\chi}_u$ über der Entfernung x vom Emissionsort aufgetragen. Die Breite der Fehlerbereiche der einzelnen Scheitel-

werte kennzeichnet im wesentlichen die Unschärfe der Bestimmung eines solchen Scheitelwertes. Zum Vergleich sind wiederum die aus den Pasquill/Gifford'schen σ -Scharen errechneten Axialprofile eingetragen. Der aus den Messungen ausgewertete Verlauf entspricht etwa einem Mittel der berechneten Profile der Kategorien C und B. Das bedeutet gegenüber der diagnostizierten Kategorie C/D eine Verschiebung um eine Stufe. Diese Verschiebung wurde wiederum im Mittel auch bei den anderen Ausbreitungsversuchen beobachtet (z.B. Versuch 15, Abb. 4312-13), wenngleich auch bei dieser Verschiebung im einzelnen starke Abweichungen vom Mittel zu beobachten waren.

Die Abweichungen zwischen berechneten "Normkurven" und gemessenen oder ausgewerteten Profilen können zwanglos durch erhöhte Bodenrauigkeit in der Umgebung des Kernforschungszentrums erklärt werden (Wald, Bebauung). Von Bedeutung für Unfallbetrachtungen ist insbesondere die durch die verstärkte Turbulenz bewirkte Erhöhung der Maximalkonzentration. Diese lag z.B. bei Versuch Nr. 15 um den Faktor 2,5 höher als die mit den Pasquill/Gifford'schen Parametern errechnete, s. Abb. 4312-13. Dieses Maximum tritt außerdem näher zum Emittenten auf als das berechnete. Die hier berichteten Ergebnisse befinden sich zumindest qualitativ in guter Übereinstimmung mit denen der in der Kernforschungsanlage Jülich durchgeführten Versuche, s. /6/. Daher kann angenommen werden, daß die aus unseren Ausbreitungsversuchen gewonnenen Ergebnisse nicht auf die Umgebung des KFZK beschränkt bleiben, sondern auch auf andere Standorte mit ähnlichen Verhältnissen in der Umgebung angewendet werden können.

Die Versuche werden weitergeführt, um die bisher erarbeiteten Ergebnisse auf eine statistisch breitere Basis zu stellen und um auch andere, insbesondere stabile Wetterlagen, zu erfassen. Die Verwendung nicht-aktiver Leitsubstanzen wird die letztere Aufgabe erleichtern und es außerdem ermöglichen, durch Emission in beliebigen Höhen bis zu 200 m den Einfluß der Emissionshöhe zu ermitteln. Daneben werden auch Messungen der Gammastrahlung der Abluftfahne des FR2 durchgeführt, um auch das Berechnungsmodell für γ -Dosen zu überprüfen. Die gesamte erarbeitete Information wird eine - verglichen mit dem bisher verwendeten Modell - realistischere und brauchbarere Unterlage zur Abschätzung von Strahledosen bei störfallbedingten Einzelemissionen darstellen und darüber hinaus unsere Kenntnis der so wichtigen Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre erweitern.

Literatur

- /1/ D.H. Slade ed.,
Meteorology and Atomic Energy 1968
TID-24 190, July 1968
- /2/ L.A. König, K. Nester, H. Schüttelkopf, M. Winter:
Experiments Conducted at the Karlsruhe Nuclear Research
Center to Determine Diffusion in the Atmosphere by Means
of Various Tracers
IAEA-WMO-Symposium on the Physical Behaviour of Radioactive
Contaminants in the Atmosphere,
Wien, 12.-16. Nov. 1973
IAEA-SM-181/4
- /3/ H. Kiefer, L.A. König, M. Winter:
Untersuchungen der atmosphärischen Ausbreitung mit Hilfe
von Tritium
Kerntechnik 12, 212-218 (1970)
- /4/ H. Kiefer, W. Koelzer:
Jahresberichte 1969 bis 1972 der Abteilung Strahlenschutz
und Sicherheit
KFK 1158 (März 1970)
KFK 1365 (Febr. 1971)
KFK 1565 (März 1972)
KFK 1818 (Mai 1973)
- /5/ L.A. König, M. Winter:
Graphische Auswertung von Experimenten zur Bestimmung der
atmosphärischen Ausbreitung mit tritiiertem Wasserdampf
als Tracer
KFK 1667, Nov. 1972
- /6/ K.J. Vogt et al.:
Jahresbericht Juli 1970 - Juni 1971 über das Forschungsvor-
haben Ausbreitung und Ablagerung
Jülich-807-ST, Aug. 1971

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

Um die allgemeine Gültigkeit der statistischen Aussagen des vorhergehenden Berichts zu prüfen, sind diese mit umfangreicherem Datenmaterial aus den Jahren 1968-1970 wiederholt worden. Zusätzlich sind die Diffusionsklassen nach einem anderen Schema - diesmal nicht nach dem von Klug [1969] sondern nach dem von Polster [1971] bzw. Vogt [1970] - bestimmt worden. Tabelle 4312-FA-1 zeigt die Häufigkeiten in [%], mit denen diese Diffusionsklassen in den Jahren 1968-1970 an den Stationen Hamburg, Bremen und Hannover auftreten, sowie im Vergleich dazu die relativen Häufigkeiten der Diffusionskategorien aus den Jahren 1965 bis 1970 in Jülich nach Polster [1970] und so, wie sie von der KWU [1971] in einem Sicherheitsbericht für das Gebiet der Unterweser angegeben werden.

Tab. 4312 FA-1:

Station	mittlere Häufigkeiten der Diffusionskategorien in [%]							
	A	B	C	D	D ⁺	E	F	G
Hamburg	0,3	4,0	7,1	64,5	4,0	10,3	3,1	6,7
Bremen	0,4	4,7	7,8	60,6	5,2	11,0	3,2	7,1
Hannover	0,4	4,3	7,8	63,1	4,6	10,6	3,7	5,5
Jülich	1,3	9,2	10,6	46,1	10,8	8,9	3,7	9,4
Unterweser	6,0	9,0	50,0	22,0	-	2,0	11,0	-

Auffällig an dieser Statistik ist, daß die Werte für Hamburg, Bremen und Hannover untereinander gut übereinstimmen. Die geringfügigen Abweichungen der Jülicher Werte - weniger neutrale aber vermehrte instabile und schwachwindige Fälle - sind bedingt durch die geographische Lage. Damit ist aber nicht zu erklären, warum die Statistik für das Unterwesergebiet so erheblich abweicht.

Im weiteren zeigen sich in den Statistiken aus den Jahren 1968-1970 erhebliche Unterschiede in Einzelheiten gegenüber denjenigen aus dem Jahre 1965, wie sie im vorhergehenden Bericht angegeben worden sind,

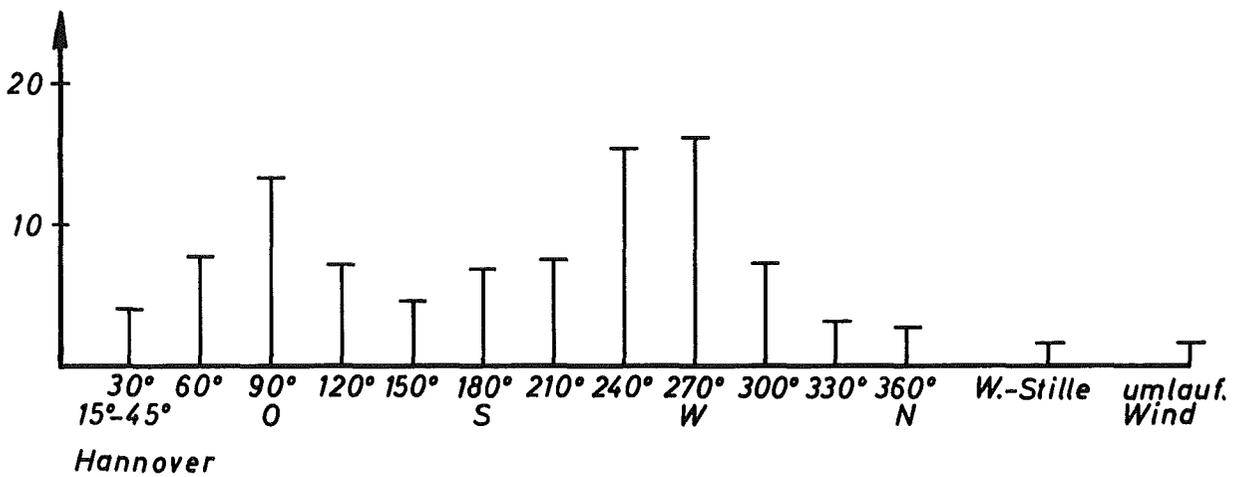
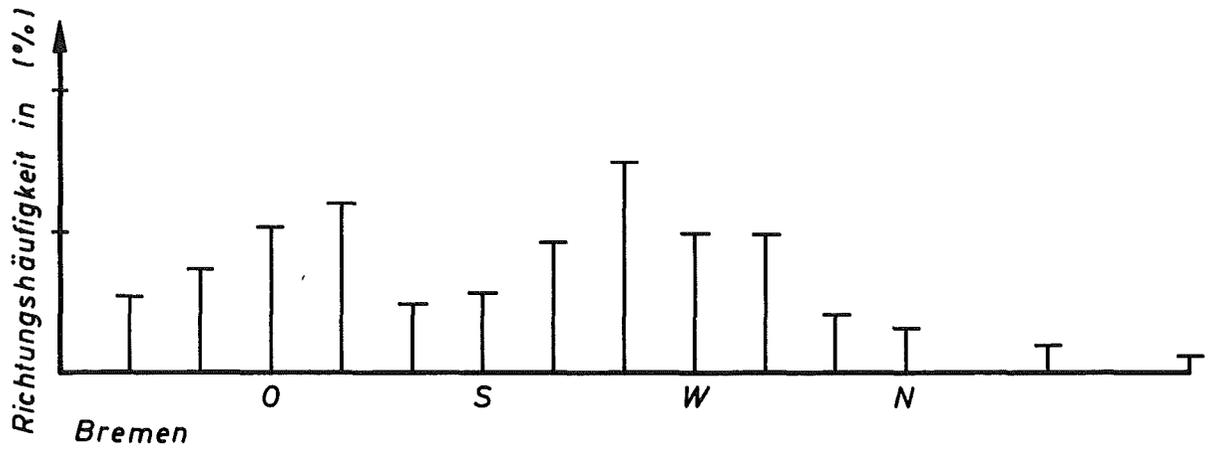
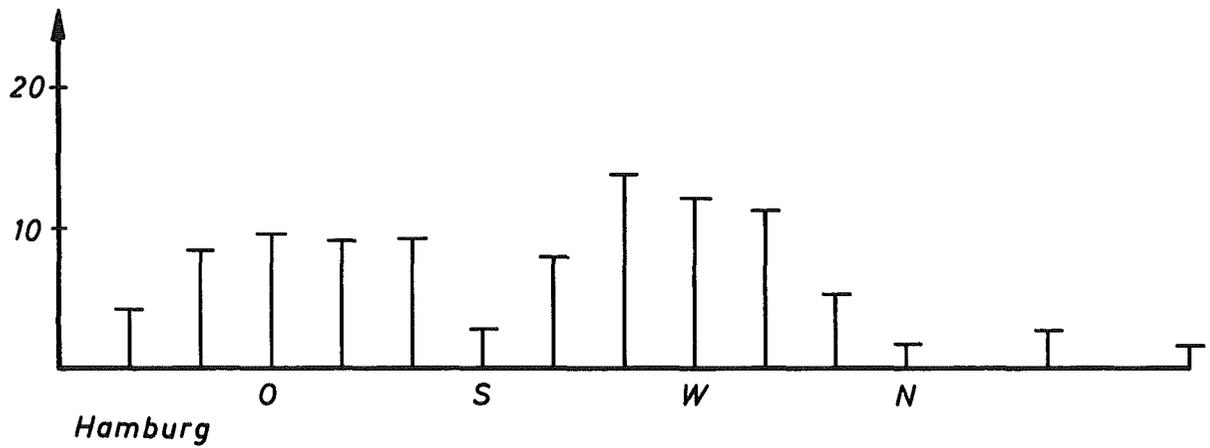


Abb. 4312.FA-1 Relative Häufigkeit der Windrichtungen für Hamburg, Bremen und Hannover in den Jahren 1968-70, aufgeschlüsselt nach 30°-Sektoren.

so daß es geraten erscheint, das umfassendere Datenmaterial auszuwerten. Dennoch bleiben die Tendenzen erhalten, wie sie aus der Statistik für 1965 zu erkennen gewesen sind, nämlich daß die Häufigkeit für das Auftreten einer Diffusionsklasse in Norddeutschland unter anderem auch von der Windrichtung abhängt - z.B. tritt die neutrale Klasse bei Wind aus südöstlichen und die leicht stabile bei Wind aus nördlichen Richtungen vermehrt auf - und daß die meteorologischen Verhältnisse auf kurze Dauer in Hannover wechselhalfter sind als in Hamburg und Bremen, wohingegen Hannover bei längerer Dauer stabilere Zustände aufweist. Dies läßt sich bei den kurzen Perioden durch den erhöhten Einfluß des auf Klassensprünge ausgleichend wirkenden Seeklimas in Hamburg und Bremen begründen, während sich dort bei längeren Perioden der Tagesgang in der Windrichtung entscheidend bemerkbar macht. Diese Aussagen werden auch grundsätzlich nicht geändert, wenn man die Diffusionsklassen nach anderen Schemata bestimmt z. B. nach Polster [1971] oder nach Klug [1969].

Abbildung 4312 FA-1 zeigt nochmals die Häufigkeit /%, mit der der Wind in den Jahren 1968-1970 in Hamburg, Bremen und Hannover aus einem 30°-Sektor geweht hat. Abbildung 4312 FA-2 zeigt, wie oft prozentual eine Diffusionsklasse innerhalb eines Windrichtungssektors aufgetreten ist. Wie im 1. Halbjahresbericht hat diese Statistik für die drei Stationen die gleiche Tendenz. Ähnliches ergeben nach Polster [1970] die Jülicher Werte, die ebenfalls eingetragen sind, nur daß der relative Anteil der neutralen und leicht stabilen Lagen geringer und der der leicht instabilen höher ist.

Nun liegt es nahe, Ausbreitungszustände zu definieren, die beschrieben sind durch eine gleichbleibende Diffusionsklasse durch ein Windgeschwindigkeitsintervall und durch Windrichtungsschwankungen innerhalb eines Sektors, der so gewählt sein sollte, daß sich Bodenkonzentrationen von aufeinanderfolgenden Emissionen aus erhöhten Quellen noch erkennbar überlagern können. Diese Zustände sind zunächst einmal unabhängig von Geschwindigkeitsintervallen abhängig von ihrer Dauer nach dem stündlichen Beginn sortiert worden. Für den Richtungssektor erscheint eine Öffnung von 30° oder 40° geeignet. Aus der Abbildung 4312 FA-3 ist zu erkennen, daß häufig nachts und in den Vormittagsstunden derartige Zustände von kürzerer Dauer beginnen. Das entspricht den stabilen Nachtklassen und der tagsüber besonders in den

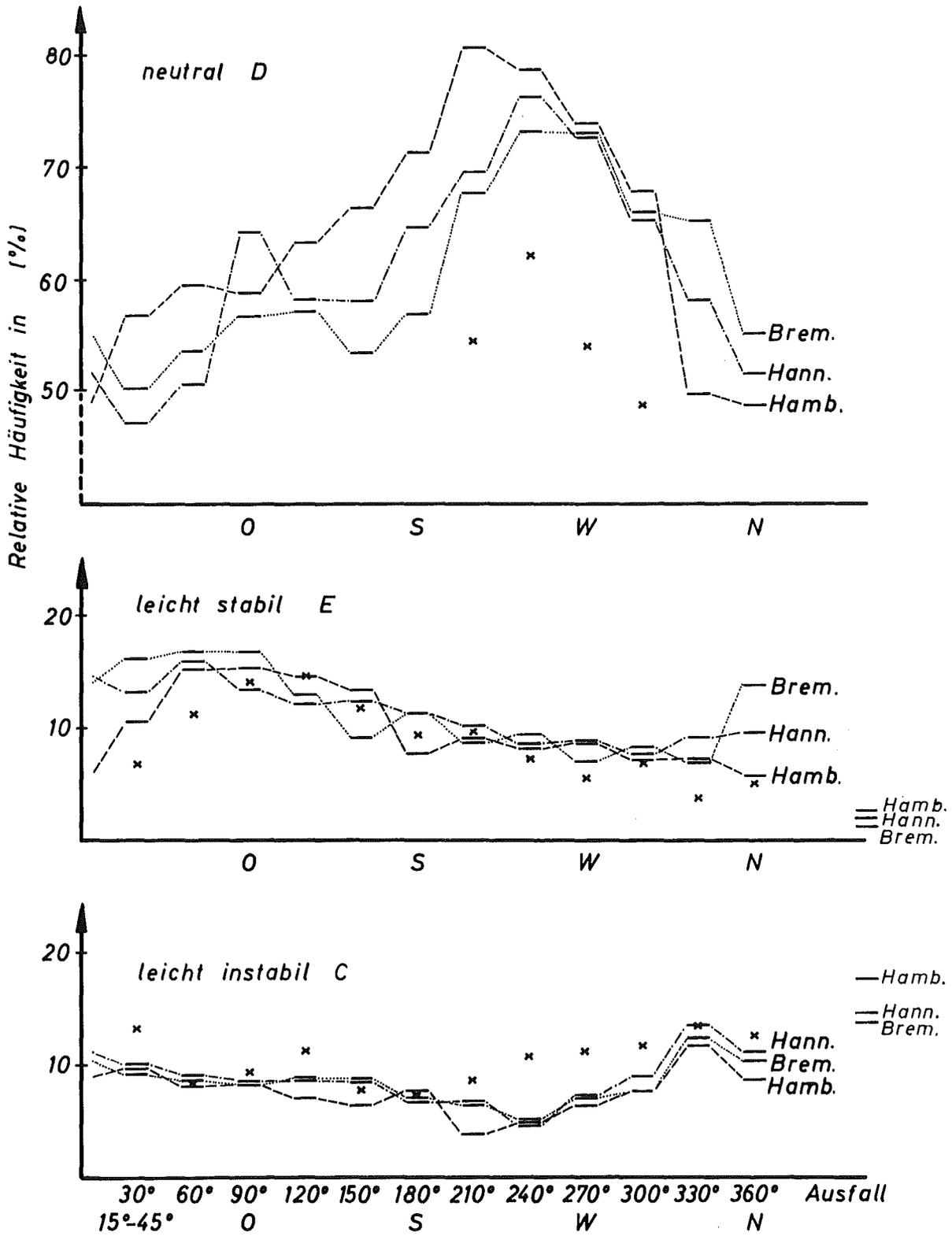


Abb. 4312.FA-2 Relative Häufigkeit für das Auftreten einer Diffusionskategorie in Hamburg, Bremen und Hannover, wenn der Wind aus einem vorgegebenen Richtungssektor weht, bezogen auf alle Ereignisse der Jahre 1968-70, bei denen der Wind aus diesem Sektor geweht hat. Die Mittelwerte der Häufigkeit der Diffusionskategorien für Jülich 1965-1969 nach Polster [1970] sind angekreuzt.

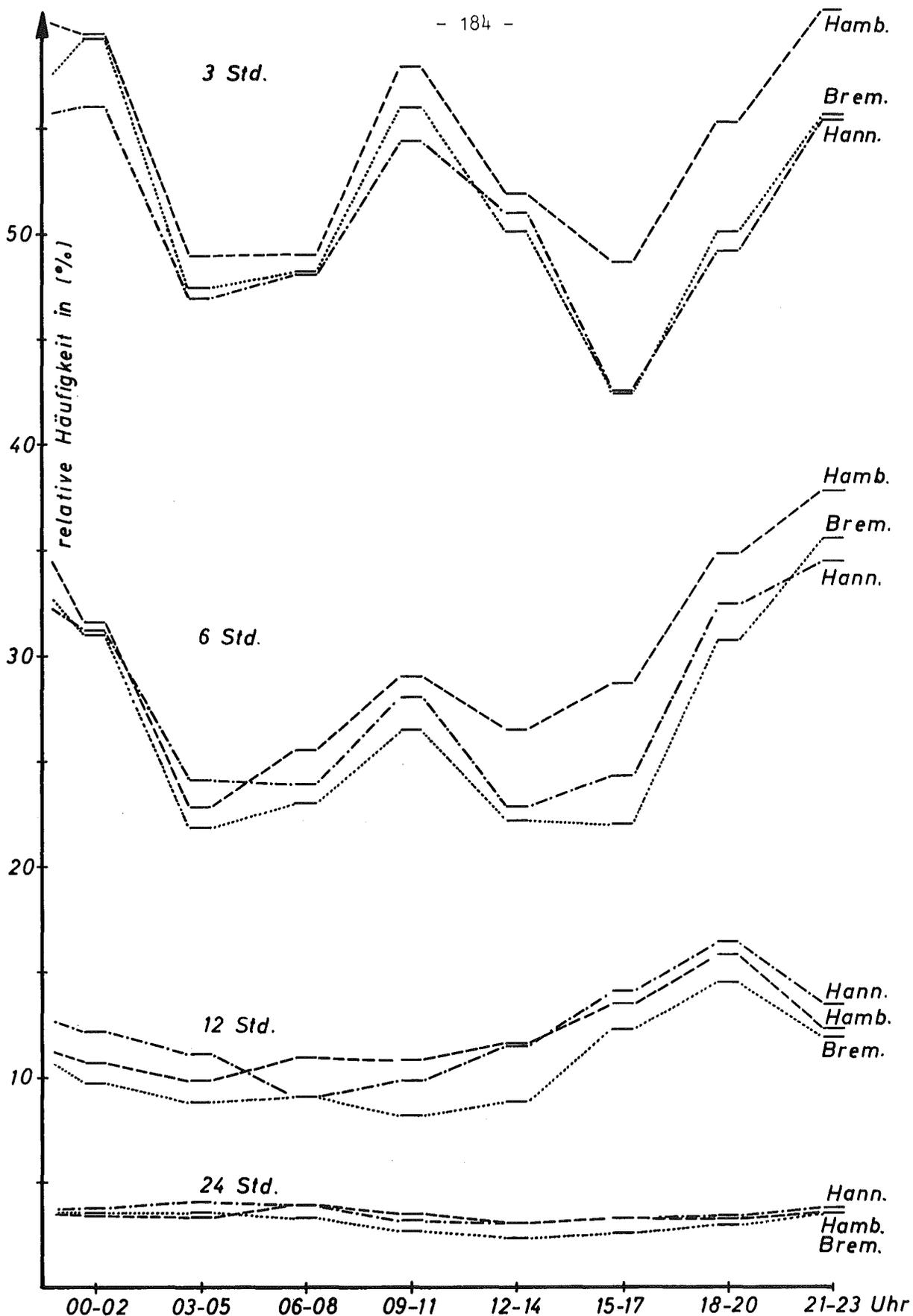


Abb. 4312.FA-3 Relative Häufigkeit eines Ausbreitungszustandes mit fester Diffusionsklasse und Windrichtungsschwankungen in einem 40° -Sektor abhängig vom Beginn und der Dauer des Zustandes in den Jahren 1968-70. Anzahl der theor. möglichen Fälle pro Zeitintervall 3288.

Frühjahrs- und Herbstmonaten auftretenden leicht instabilen Klasse. Werden diese Zustände nach Diffusionsklassen unterschieden, wie es in Abbildung 4312-FA-4 für kurzzeitige Perioden in Hamburg entsprechend dem Klug'schen Schema dargestellt ist, so wird die Erfahrung bestätigt, daß kurzzeitige Ausbreitungszustände der neutralen Klasse häufig spät abends oder nachts beginnen, während die leicht instabile Lage in den Morgenstunden anfängt und über den Tag anhält. Bei längerer Konstanz als sechs Stunden werden die Ausbreitungszustände fast ausschließlich von der neutralen Klasse getragen. Auffällig ist, daß bei dreistündiger Dauer die mäßig instabile Lage mit hoher Wahrscheinlichkeit in den frühen Morgenstunden beginnt, ebenso daß die leicht stabile Nachtklasse auch am frühen Nachmittag beginnen kann. Diese Eigenschaft ist wohl eher auf das Bestimmungsschema der Klassen - in diesem Falle nach Klug [1969] - zurückzuführen als auf natürliche Gegebenheiten.

2. Das Verhalten der Maximalkonzentration im Lee einer erhöhten Quelle bei längerdauernder Emission

Wenn man etwas über die Konzentrationsverteilung der Schornsteinabluft bei solchen längerdauernden Ausbreitungszuständen aussagen will, so müssen zuerst die Vorschriften für die Konzentrationsberechnung bei stationären Zuständen erweitert werden; denn sowohl bei Klug /1969/ als auch bei Polster /1971/ - basierend auf dem Bestimmungsschema nach Pasquill /1962/ - werden nur für sechs Diffusionsklassen Berechnungsvorschriften angegeben, bzw. lassen sich solche zuordnen. Es werden aber von Klug /1969/ eine zusätzliche Klasse, die jeweils bei Nebel auftritt, und bei Polster /1971/ eine neutrale Schwachwindlage D^+ und eine stabile Schwachwindlage G eingeführt. Für diese Lagen gibt es bisher keine überzeugenden Vorschriften zur Berechnung der Konzentrationsverteilungen. Daher soll bis auf weiteres die Konzentration bei der extremen G-Lage näherungsweise mit den σ -Kurven der F-Lage nach Pasquill /1962/ berechnet werden. Für die Nebellage nach Klug /1969/ und die D^+ -Lage nach Polster /1971/ lassen sich folgende Aussagen treffen: Wenn man diese beiden Diffusionsklassen als Zwischen- oder Übergangslagen ansieht, so kann man sie mit den Ausbreitungszuständen vor ihrem Eintreten und nach ihrem Ende vergleichen. Dabei ergibt sich aus der Klassenstatistik der Jahre 1968-1970 für die Stationen Hamburg, Bremen und Hannover, daß die D^+ -Lage schwerpunktmäßig genau zwischen der neutralen Lage D und der leicht stabilen Lage E einzuordnen ist, während vor der Nebellage nach Klug /1968/ schwerpunktmäßig die leicht stabile und danach eine

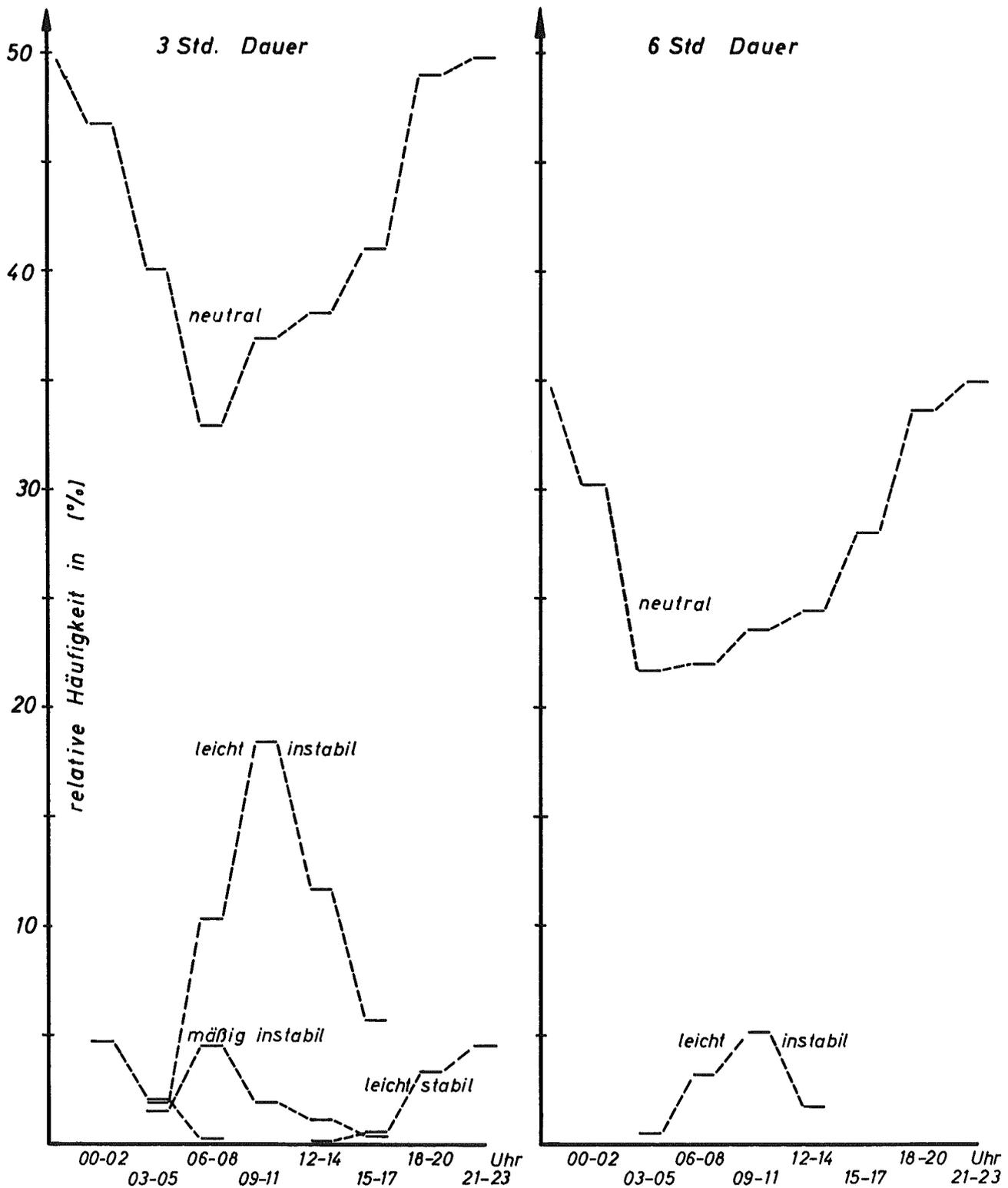


Abb. 4312.FA-4 Relative Häufigkeit eines Ausbreitungszustandes mit vorgegebener Diffusionsklasse bei Windrichtungsschwankungen in einem 40° -Sektor während der Zeitintervalle von 3 und 6 Stunden abhängig von seinem Beginn bezogen auf alle möglichen Fälle pro Zeitintervall (Anzahl: 3288) in Hamburg 1968-70. Diffusionsklassen nach Klug [1969]

neutrale bis leicht stabile Lage auftritt, so daß dieser Fall als Übergangslage zwischen leicht stabil und neutral einzuordnen ist. Tatsächlich tritt die Nebellage hauptsächlich in den Morgenstunden auf, wenn ein solcher Übergang zu erwarten ist. Zur Berechnung der Konzentrationen bei dieser Lage werden demnach die Parameter zur Bestimmung der σ -Werte nach Klug /1969/ linear zwischen denen für neutral und leicht stabil interpoliert, während bei D^+ die Parameter zur Bestimmung der σ -Werte nach Voelz /1973/ linear zwischen den Lagen D und E interpoliert werden. Die sich daraus ergebenden Kurven für die Konzentration unterhalb der Wolkenzentrallinie passen gut in das Schema der entsprechenden Kurven für die anderen Diffusionsklassen.

Mit dem vorhandenen Datenmaterial läßt sich jetzt die Frage beantworten, wie sich das Maximum der Konzentration bei längerdauernder Emission verhält. Dafür wird zu einer vorgegebenen Startzeit mit den dann vorhandenen Daten das Konzentrationsmaximum χ_{\max} im Lee einer beispielsweise 100 m hohen Quelle bestimmt und über ein festes Emissionszeitintervall festgehalten. Daneben wird für dasselbe Zeitintervall am Ort der maximalen Konzentration χ_{\max} zur Startzeit diejenige Konzentration χ_t bestimmt, die sich ergibt, wenn man das gesamte Emissionszeitintervall in kleinere Zeiteinheiten einteilt und die Konzentration mit den jeweiligen Daten zu Beginn dieser Zeiteinheiten errechnet und über das gesamte Emissionszeitintervall aufsummiert. Dieses wird für alle möglichen Anfangszeiten gemacht, wobei Emissionsdauer und -art veränderlich gewählt werden können. Bei der Rechnung werden stündlich beobachtete Werte verwendet. Hierbei können die meteorologischen Größen durchaus auf halbstündliche Werte gemittelt werden. Ein Vergleich der Bestimmungsarten ergibt, daß in weniger als 10 % aller betrachteten Fälle die Maximalkonzentration χ_{\max} , wie sie allein mit den Daten zur Startzeit berechnet ist, von χ_t übertroffen wird und daß dagegen in über 70 % aller Fälle eine Korrektur von χ_{\max} um den Faktor 0,5 bis 0,6 je nach Emissionsdauer angemessen erscheint, um die tatsächliche Konzentration χ_t zu erhalten.

Abbildung 4312 FA-5 zeigt das Verhältnis χ_t/χ_{\max} der tatsächlichen Konzentration, die sich aus den einzelnen Anteilen mehrerer Meßzeiten innerhalb der Emissionsdauer zusammensetzt, gegenüber der Maximalkonzentration - errechnet nur aus einem Datensatz zu Emissionsbeginn - am Ort der maximalen Konzentration χ_{\max} für die Emission von drei, sechs und zwölf Stunden bei gleichbleibender Emissionsstärke. Es ist mit stündlichen Registrierungen

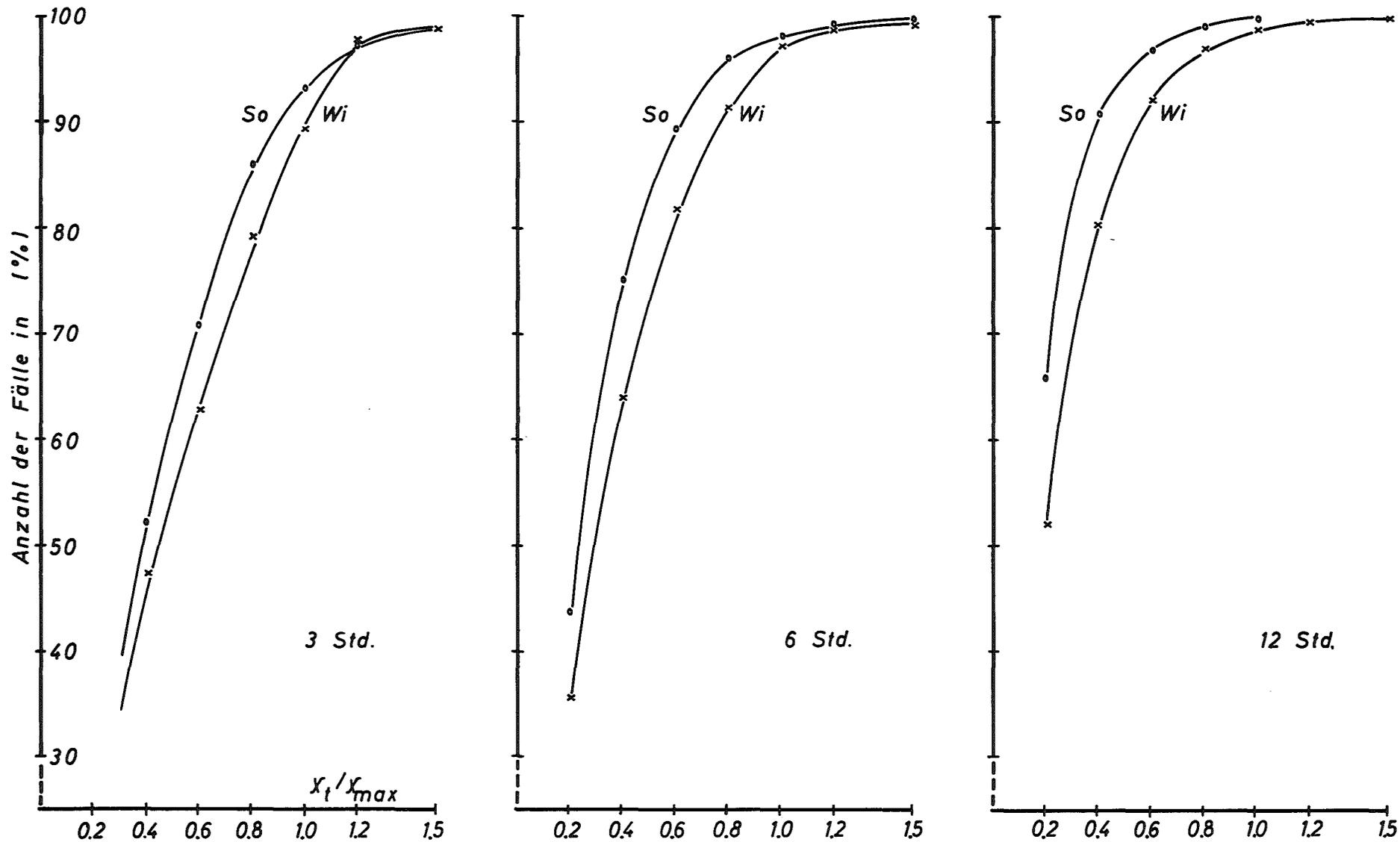


Abb. 4312.FA-5 Verhältnis x_t / x_{max} der tatsächlichen Konzentration bei wechselnden, meteorologischen Bedingungen zur Maximalkonzentration bei konstant anhaltenden, met. Bedingungen am Ort der maximalen Konzentration während einer 3-, 6-, bzw. 12-stündigen, gleichmäßigen Emission in Hamburg im Sommer und im Winter 1968, Diffusionsklassen nach Polster.

aus Hamburg 1968 errechnet worden, wobei die meteorologischen Daten zu halbstündlichen Werten gemittelt worden sind. Werden die Daten nach Winter und Sommer getrennt verarbeitet, so liegt im Sommer bei einem bestimmten Wert von χ_t/χ_{\max} die Summenhäufigkeit dafür höher, daß dieses Verhältnis erreicht wird, bzw. bei gleicher Summenhäufigkeit liegt der Zahlenwert von χ_t/χ_{\max} niedriger. Das ist zu erwarten gewesen und entspricht den stabileren meteorologischen Bedingungen im Winter. Die Diffusionsklassen hierfür sind nach dem Schema von Polster bestimmt.

Die Abbildung 4312 FA-6 gibt das Verhältnis χ_t/χ_{\max} während eines sechsständigen Ausstoßes einmal bei konstant andauernder und einmal bei linear abnehmender Emissionstärke an, wobei die Diffusionsklassen nach Polster /1971/ bestimmt sind, und ein anderes Mal bei konstanter Emissionstärke, wobei die Klassen nach Klug /1969/ ermittelt sind. Die Startzeit ist jeweils nach Winter und Sommer aufgeschlüsselt. Bei der linear abnehmenden Emission ist der Prozentsatz geringer, bei dem ein fester Wert für χ_t/χ_{\max} erreicht wird, weil die anfängliche Emissionsrate mehr Gewicht hat und deswegen niedrigere Verhältniswerte entweder seltener oder gar nicht auftreten können. Demgegenüber ist das Korrekturverhältnis χ_t/χ_{\max} für einen vorgegebenen Prozentsatz geringer, wenn die Diffusionsklassen nach Klug /1969/ bestimmt werden, weil die Maxima vergleichbarer Ausbreitungskategorien in diesem Falle weiter von der Quelle entfernt liegen und sich deswegen später emittierte Anteile dort weniger überlagern und weniger zu χ_t beitragen, wenn sich die Windrichtung geringfügig ändert.

In Abbildung 4312 FA-7 wird das Verhältnis χ_t/χ_{\max} bei drei-, sechs- und zwölfständiger, gleichmäßiger Emission an den Stationen Hamburg, Bremen und Hannover über das ganze Jahr 1968 gemittelt verglichen. Die einzelnen Werte der drei Stationen liegen so dicht beieinander, daß man den jeweiligen Mittelwert als charakteristisch für Norddeutschland ansehen kann. Für ein festes Verhältnis von χ_t/χ_{\max} sind die Prozentzahlen, bei denen dieser Wert erreicht wird, für Hamburg etwas niedriger als für Bremen und Hannover. Das deutet wiederum auf die kurzzeitig stabileren Verhältnisse in Hamburg hin.

Aufgrund des niedrigen Verhältnisse χ_t/χ_{\max} ergibt sich in einer relativ

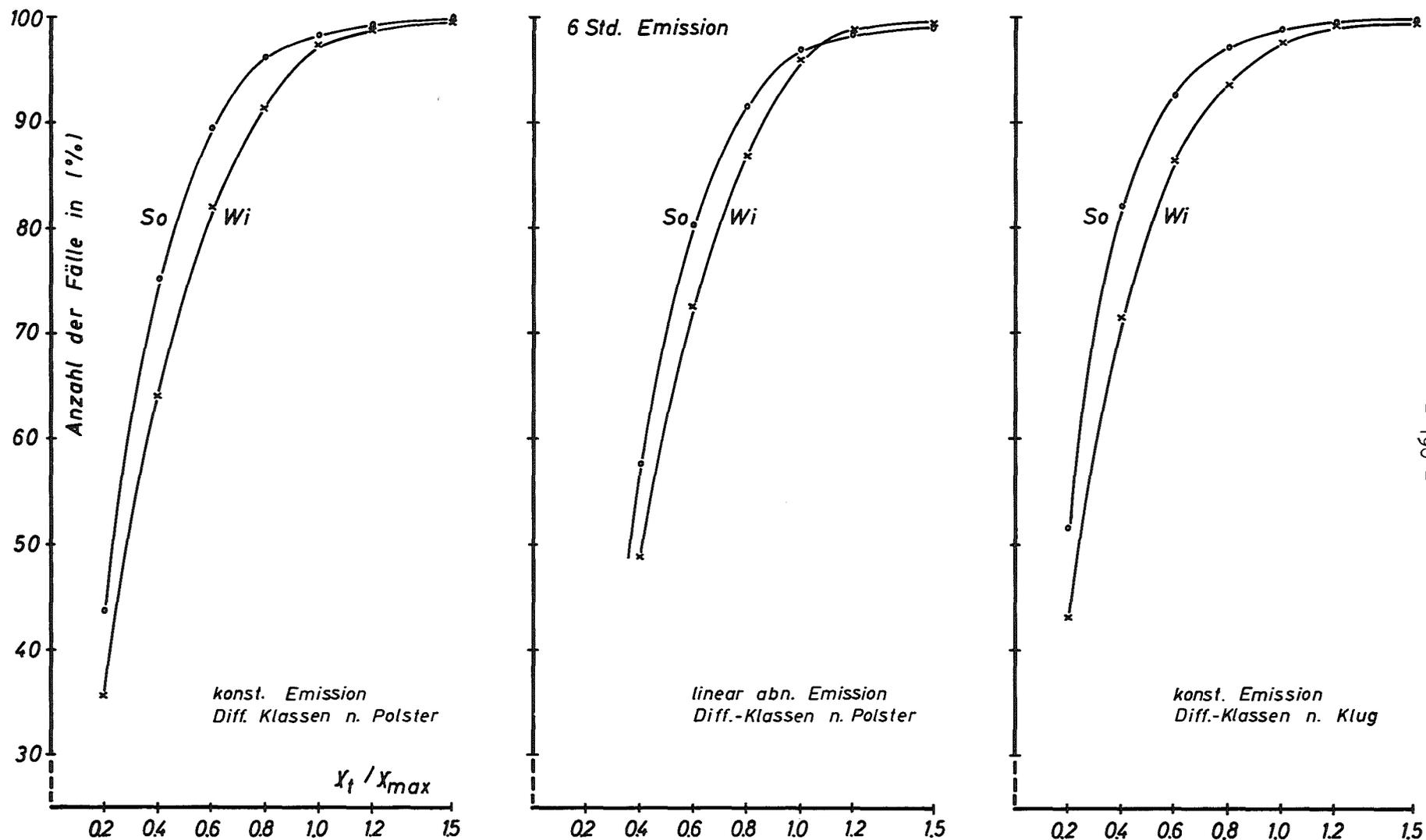


Abb. 4312.FA-6 Vergleich des Verhältnisses χ_t/χ_{max} am Ort der anfänglichen, maximalen Konzentration während einer sechsständigen Emission je einmal bei konstanter und bei linear abnehmender Emissionsrate mit Diffusionsklassen nach Polster [1971] und bei konstanter Emissionsrate und Diffusionsklassen nach Klug [1969] gemittelt über das Sommer- und Winterhalbjahr 1968 in Hamburg.

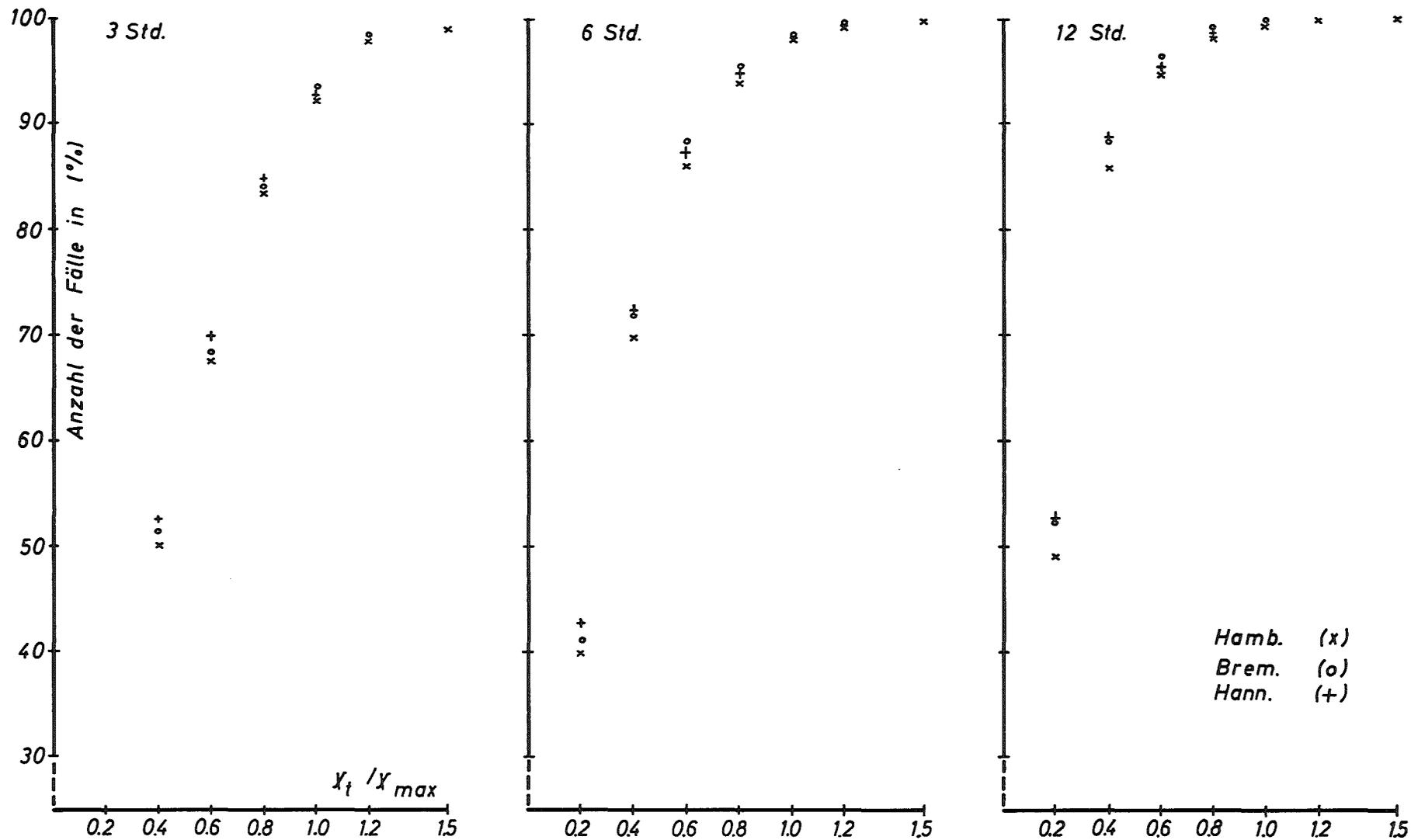


Abb. 4312.FA-7 Vergleich des Verhältnisses der tatsächlichen Konzentration bei wechselnden meteorologischen Bedingungen zur Maximalkonzentration bei gleichbleibenden met. Bedingungen am Ort der anfänglichen, maximalen Konzentration während einer drei-, sechs- und zwölfstündigen, konstanten Emission in Hamburg (x), Bremen (o) und Hannover (+), gemittelt über das Jahr 1968.

hohen Zahl von Fällen eine Korrektur der Maximalkonzentration χ_{\max} . Man kann den Wert des Verhältnisses also auch als statistischen Korrekturfaktor für χ_{\max} ansehen. Er wird dadurch hervorgerufen, daß sich entweder die Ausbreitungskategorie ändern kann oder daß die Windrichtung schwankt. Nur wenn beide annähernd konstant bleiben und gleichzeitig die Windgeschwindigkeit während des Emissionszeitraumes geringer ist als zu dessen Anfang, dann sind am Ort der maximalen Konzentration höhere Konzentrationswerte zu erwarten. Dieses tritt bei einer Emissionsdauer von drei Stunden höchstens im Winter in 10 % aller Fälle ein. Im Sommer oder bei längeren Abblasezeiten sind größere Werte wesentlich seltener und teilweise sogar vernachlässigbar. In Abbildung 4312 FA-8 ist das Verhältnis χ_t/χ_{\max} am Ort des Maximums abhängig von der Emissionsdauer aufgetragen. Als Parameter dient der Prozentsatz, bei dem dieser Korrekturfaktor erreicht wird. Für Bremen und Hannover ist das Verhältnis χ_t/χ_{\max} bei gleichen Parametern niedriger als in Hamburg, so daß für diese Stationen der Korrekturfaktor noch niedriger liegt. Ab zwölf Stunden Emissionsdauer können hiernach in über 90 % aller möglichen Fälle die Maximalwerte halbiert werden.

Diese Betrachtungsweise sagt allerdings nur etwas über die Maximalkonzentration zur Startzeit aus. Das wahre Maximum kann im vorgegebenen Emissionszeitraum wegen der wechselnden, meteorologischen Bedingungen an einer anderen Stelle liegen und auch höhere Werte annehmen, als sich aus der Konzentrationsverteilung mit den Daten zur Startzeit schließen läßt. Weil aber alle möglichen Startzeiten betrachtet worden sind, wobei der Emissionsbeginn jeweils um eine Stunde verschoben worden ist und wobei die Beiträge während der gesamten Abblasezeit halbstündlich mit neuen meteorologischen Daten berechnet worden sind, so gilt - statistisch gesehen - dieses Korrekturverhältnis bei nahezu gleichmäßigem Ausstoß natürlich auch für alle weiteren Konzentrationswerte, die jeweils für den Ort des Maximums mit einem einzelnen Datensatz während des Emissionsintervalles ermittelt und als gültig für den ganzen Zeitraum angenommen worden sind. Man erhält also allein durch den Wert des Maximums und den oben beschriebenen Korrekturfaktor an so vielen, fest vorgegebenen Stellen eine statistische Aussage über die Konzentrationsverteilung nach länger andauerndem Ausfluß, wie verschiedene Datensätze vorliegen. Die Konzentration im Maximum ist bei gleichbleibender Quellhöhe nur abhängig von der Diffusionsklasse und umgekehrt proportional zur Windgeschwindigkeit,

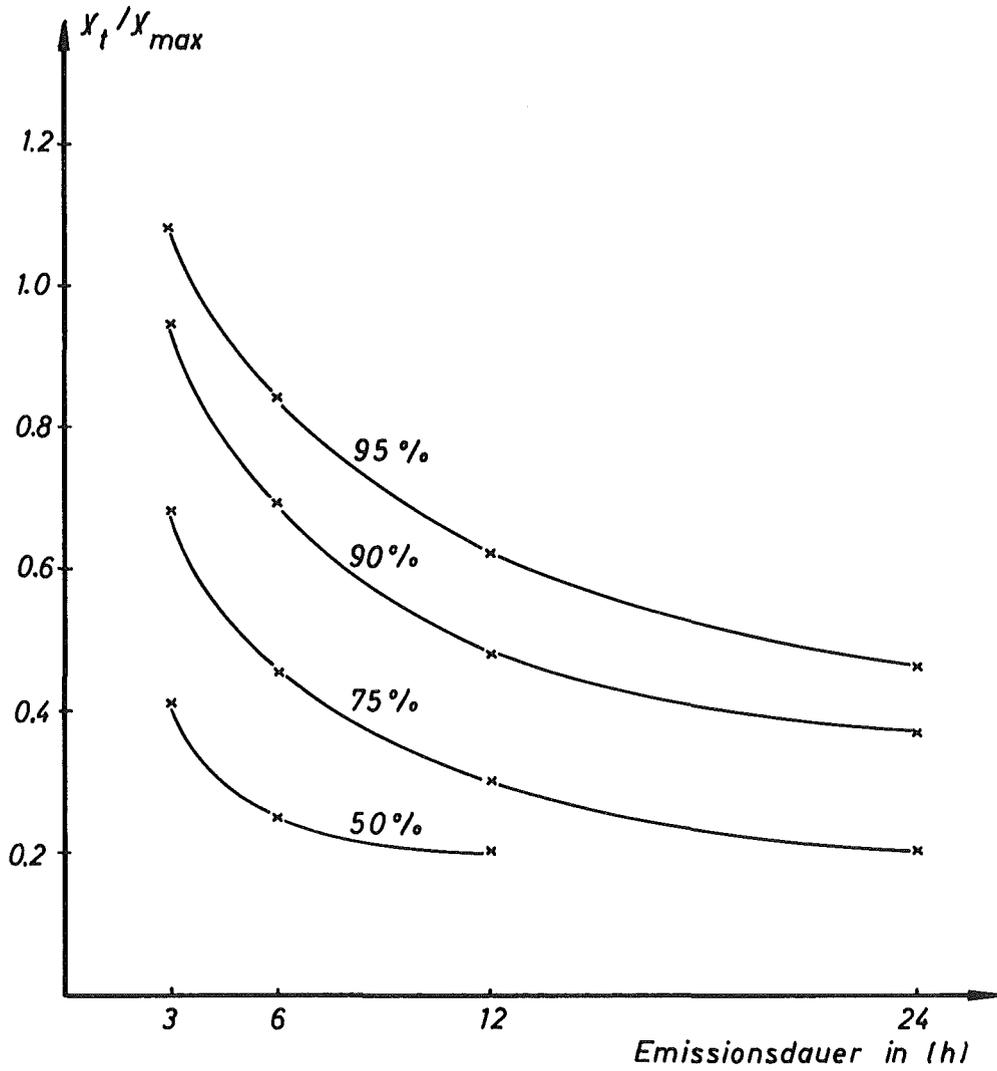


Abb. 4312.FA-8 Verhältnis χ_t / χ_{max} abhängig von der Emissionsdauer und der relativen Anzahl der Fälle in [%], in denen das Verhältnis im Mittel über alle Diffusionsklassen erreicht wird für Hamburg 1968.

deren Einfluß aber schon in χ_t/χ_{\max} berücksichtigt ist, während dessen Lage von der Ausbreitungsrichtung und wiederum von der Ausbreitungs-klasse abhängt. Damit ist an den wichtigsten Stellen - nämlich denen der Konzentrationsmaxima - bei gleichbleibender Emission eine Konzen-trationsverteilung vorherprogrammierbar allein durch die Festlegung der Diffussionsklasse und der Windrichtung, wobei nachträglich jeder schon einmal bestimmte Werte durch das emissionszeitabhängige Korrektur-verhältnis entsprechend der gewünschten statistischen Sicherheit ver-bessert werden kann.

Dieses emissionszeitabhängige Korrekturverhältnis läßt die Untersuchungen hinfällig erscheinen, wie sich Windgeschwindigkeit und -richtung während einer längeranhaltenden Emission entwickeln, weil χ_t/χ_{\max} schon statistisch beide Bestimmungsgrößen berücksichtigt. Die einzelnen Meßgrößen dienen lediglich dazu, das Konzentrationsmaximum und dessen Lage zu bestimmen. Beides ist aber teilweise vorherprogrammierbar. Der Vorteil dieser Methode besteht darin, daß man mit ziemlich hoher Wahrscheinlichkeit schnell etwas über die Konzentrationsverteilung bei länger anhaltenden, kon-stanten Emissionen aussagen kann, ohne unmittelbar meteorologische Ent-wicklungen berücksichtigen zu müssen. Nachteilig ist, daß dieses bisher nur bei konstanter Abblaserate gilt und nur für wenige Stellen anwendbar ist.

Im weiteren sollte versucht werden, diese Statistiken einmal auf die maximal mögliche Konzentration bei der Windgeschwindigkeit $u = 1$ m/s zu beziehen und ein anderes Mal durch zusätzliche Parameter wie die Tageszeit, Windgeschwindigkeit und Wetterlage einzugrenzen, um die statistischen Aussagen noch weiter zu sichern.

Literatur:

W. Klug,

Ein Verfahren zur Bestimmung der Ausbreitungsbedingungen aus synoptischen Beobachtungen.

Staub - Reinhaltung Luft, 29 Nr. 4, April 1969

Kraftwerk Union AG,
Sicherheitsbericht für Nordwestdeutsche Kraftwerke Band 1,
März 1971

F. Pasquill,
Atmospheric Diffusion, van Nostrand,
London 1962

G. Polster,
Meteorologische Untersuchungen der turbulenten Diffusion,
Arbeitsbericht 1969 der Zentralabteilung Strahlenschutz,
Jül-670-ST, 1970

G. Polster,
Jahresbericht 1970/71, Ausbreitung und Ablagerung,
Jül-807-ST, 1971

E. Voelz,
Methoden zur Vorhersage von Konzentrationsfeldern radioaktiver Stoffe ...,
ATS-TUH-1073, Hannover, April 1973

K.-J. Vogt,
Umweltkontamination und Strahlenbelastung durch radioaktive Abluft,
Diss. T.H. Aachen, Jül-637-ST,
Jan. 1970

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

Auch in diesem Halbjahr wurde die Suche nach auswertbaren Kavernen-Experimenten im Rahmen des US-Plowshare-Programms, bei denen meßbare Mengen von Radioaktivität austraten, fortgesetzt. Dabei wurde mehr Gewicht auf eine Analyse der Berechnungsmethoden gelegt, die für diese Probleme herangezogen worden waren. Schließlich wurden auch solche Rechenprogramme und Methoden auf ihre Übertragbarkeit auf Probleme der Reaktorstörfälle geprüft, die nicht zum unmittelbaren Plowshare-Programm gehören.

Zur Fragestellung, ob ein Plowshare-Experiment existiert, für das ein ausreichender Satz sowohl an meteorologischen als auch an radiologischen Meßdaten nach einem Austritt von Radioaktivität in die Atmosphäre vorliegt, haben unsere Studien und die erst kürzlich geführten Fachgespräche von Prof. Schultz in den USA im Air Resources Laboratory in Las Vegas und im Lawrence Livermore Laboratory bei San Francisco ergeben, daß die Berechnungen und Messungen für die großen Explosionswolken, die bei den sogenannten Kraterexplosionen zur Aushebung von künstlichen Kanälen und Hafenbecken auftreten, wegen der enormen Sprengkraft und großen räumlichen Dimensionen der Explosionswolke sowie der großen Flughöhe und Reichweite nicht auf das Problem der Reaktorstörfälle übertragbar sind.

Bei den Plowshare-Versuchen zur Erzeugung unterirdischer Kavernen, z.B. zur Freisetzung oder Speicherung von Öl oder Gas, ist dagegen niemals soviel Radioaktivität ausgetreten, daß eines der vorgeplanten umfangreichen Meßprogramme hätte erfolgreich durchgeführt werden können. Zwar trat beim ersten Plowshare-Versuch GNOME im Jahre 1961 unvorhergesehen etwas Radioaktivität aus einem Nebenschacht aus; da man jedoch damals noch kein Meßprogramm vorgesehen hatte, fehlen ausreichende Meßergebnisse. /1/
Auch in einer Abhandlung von Higgins /2/ und in verschiedenen Vorträgen, insbesondere von Tewes und Siddons, auf einem Symposium über "Engineering with Nuclear Explosives" in Las Vegas 1970 /3/ kommt zum Ausdruck, daß bei Kavernenexplosionen im Rahmen des Plowshare-Programms während der Explosionen kein Austritt von meßbaren Mengen Radioaktivität in die Atmosphäre erfolgt ist.

Es gibt zwar Hinweise auf unterirdische nukleare Waffentests, bei denen radioaktive Stoffe ausgetreten sein sollen, doch war es bisher nicht möglich, für diese militärischen Experimente radiologische und meteorologische Meßergebnisse in ausreichendem Umfang zu bekommen. Lediglich für einen 1970 durchgeführten mißglückten unterirdischen Waffentest "Baneberry" konnten einige wenige Daten beschafft werden.

Ähnliches gilt für einen Bericht über die Operation "Plumbbob" /4/ in der Nevada Test Side", bei der 1957 mit Hilfe von konventionellem Sprengstoff eine kleine Menge Plutonium in die Atmosphäre verteilt und die Einwirkung der Radioaktivität auf tierische Lebewesen beobachtet wurde. Während das Schwergewicht dieser Untersuchung auf biomedizinische Probleme bei Tieren gelegt wurde, entsprachen der Umfang und die Qualität der Rechnungen und Messungen zur Bestimmung und Ausbreitung der radioaktiven Wolke in der Atmosphäre noch nicht den Anforderungen, wie sie an die späteren Plowshare-Versuche Gasbuggy, Rulison und Rio-Blanco angelegt wurden.

Ferner könnten noch Meßergebnisse der Ausbreitung radioaktiver Stoffe aus der Produktions-Testphase von solchen Kavernen-Plowshare-Versuchen interessant sein, bei denen versuchsweise das in der Kaverne angereicherte schwach radioaktive Erdgas in die Atmosphäre abgefackelt wird. In diesem Zusammenhang verfügen wir über einige Daten aus der Gasproduktions-Testphase des Plowshare-Versuchs "Rulison" aus den Jahren 1970 und 1971 /5/. Bei diesem Versuch wurden drei Perioden des Abfackelns unterschieden: 1. Produktionstest mit hoher Ausflußrate (1970), 2. Produktionstest mit mittlerer Ausflußrate (1970) und 3. Produktstest mit langzeitlichem Ausfluß (1971). Für jeden der drei Produktionstests liegt eine ausführliche Übersicht über die räumliche und zeitliche Konzentrationsverteilung der Radioaktivität in Tabellenform vor. Leider wurde keine Zuordnung zu meteorologischen Daten vorgenommen, so daß auch hier eine Auswertung für eine Vergleichsrechnung bisher nicht möglich war.

Obwohl den ausgewerteten amerikanischen Berichten Angaben zur Durchführung unabhängiger Kontrollrechnungen nicht im erforderlichen Umfang entnommen werden konnten, enthielten sie jedoch wertvolle Informationen über neuere Rechenprogramme zur Umweltbelastung, aus denen hervorging, daß mit diesen Programmen auch die Umweltgefährdung nach größeren Reaktorstörfällen bei veränderlichen Ausbreitungsbedingungen erfaßt werden könnte.

Wir haben uns daher bemüht, genauere Unterlagen über diese Rechenprogramme zu beschaffen, um beurteilen zu können, inwieweit eine Anwendung auf Reaktorstörfälle möglich ist.

Nach Johnson [6] lassen sich grundsätzlich unter den in den USA entwickelten Rechenmethoden für den Transport von Luftverschmutzung über größere Entfernungen bei veränderlichen Ausbreitungsbedingungen folgende vier Rechenmethoden unterscheiden:

1. Lösung der zeitabhängigen Diffusionsgleichung durch ein Differenzenverfahren in einem raumfixierten Gitter. (Eulersche Koordinaten)
2. Lösung der zeitabhängigen Transportgleichung für Luftpakete in einem mit der Wolke bewegten Koordinatensystem entlang der Windtrajektorien (Quasi-Lagrange). Oft wird dabei nur die vertikale Diffusion berücksichtigt.
3. Lösung der zeitabhängigen Diffusions- bzw. Transportgleichung mit Hilfe eines Vielzellenmodells, wobei die Zellen nach Größe und Form den Ausbreitungsbedingungen angepaßt werden können und die Konzentration in den Zellen in den meisten Programmen als homogen angesetzt wird.
4. Lösung der zeitabhängigen Transportgleichung mit Hilfe der Ausbreitungsrechnungen für statistisch verteilte sogen. "marker"-Teilchen in einem Eulerschen Gitter. Das bedeutet eine Kombination aus Eulerscher Diffusionsrechnung und einer Transportrechnung für charakteristische Teilchen in einem Zellensystem.

Ein Nachteil des ersten und dritten Verfahrens besteht darin, daß durch die Anwendung eines starren Differenzverfahrens eine falsche künstliche Diffusion verursacht werden kann. Im zweiten Fall ist bei Vernachlässigung der horizontalen Diffusion offenbar eine Anwendung auf weiträumige Ausbreitungsprozesse kaum möglich, da sich dann die Vernachlässigung der horizontalen Diffusion zunehmend bemerkbar macht. Andererseits führt die vertikale Diffusionsrechnung zunehmend zu Schwierigkeiten wegen der Scherung zwischen den Trajektorien in verschiedenen Höhenschichten. Das vierte Verfahren vermeidet die genannten Nachteile, erfordert jedoch einen sehr großen Rechenaufwand.

Ohne Anspruch auf Vollständigkeit erheben zu wollen, sind aus der großen Anzahl der uns bisher bekannt gewordenen amerikanischen Rechenmodelle folgende acht besonders aufgeführt, weil sie entweder für die historische Entwicklung derartiger Rechenprogramme interessant sind oder für Probleme der Reaktorstörfälle als besonders geeignet erscheinen.

1. Das Wettervorhersagemodell des Air Force Global Weather Center.
2. Das Gaußfunktions-Wolken-Modell von Heffter.
3. Ein Rechenmodell von Crawford aus dem Lawrence Livermore Laboratory (LLL) für die Diffusion sehr großer nuklearer Explosionswolken über weite Entfernungen.
4. Das Programmsystem von MacCracken (LLL) zur Erfassung der Ausbreitung im mittleren (mesoscale) Entfernungsbereich.
5. Das Windfeld-Trajektorien Diffusions-Modell von Van der Hoven.
6. Ein Konzentrationsvorhersage-Modell von Randerson für den mittleren (mesoscale) Bereich.
7. Ein Rechenprogramm NEXUS nach der "particle-in-cell"-Methode unter Verwendung von Lagrange-Marker-Teilchen von Sklarew (Systems, Science and Software, La Jolla)
8. Das Programmsystem ADPIC von Knox und Lange (LLL), das ebenfalls mit den Lagrange-Marker-Teilchen arbeitet.

Über diese Rechenmodelle haben wir folgendes ermitteln können:

1. Das "Planetary Boundary-Layer"-Modell [7] des Air Force Global Weather Center (AFGWC) ermöglicht eine Vorhersage von meteorologischen Parametern: Temperatur, Feuchtigkeit, 3dim-Windgeschwindigkeitsfeld. Es ist abgestimmt auf experimentelle Daten und synoptische Beobachtungen, kann aber keine neuen Wetterentwicklungen berücksichtigen und versagt bei starker Zufuhr von Feuchtigkeit in Verbindung mit Sturmentwicklungen.
2. Beim Programm von Heffter [7] wurde zur Vorhersage von radioaktiven Konzentrationsverteilungen in der Atmosphäre versucht, das Gaußsche Wolkenmodell zu benutzen unter Verwendung von geeigneten σ -Werten, die aus nuklearen Staubwolken-Experimenten für

Transportzeiten von 20 h bis 100 h und Wolkenabmessungen von 2 bis 20 km abgeleitet wurden ($\sigma = 30$ bis 200 km).

Hauptnachteile dieses Programms: die mittlere Windgeschwindigkeit muß über das gesamte Zeitintervall konstant bleiben, eine Annahme, die bei diesen Großen Transportzeiten kaum zutrifft. Außerdem ist die Annäherung durch Gaußfunktionen dann unrealistisch.

3. Crawford [8] u. [9] geht in seiner Modellrechnung für die Ausbreitung einer großen primären Wolke von einer numerischen Integration der Diffusionsgleichung in Raum und Zeit aus, bei der nach der Ähnlichkeitstheorie bestimmte Austauschkoefizienten verwendet werden. Das Modell erfaßt nur das diffusionsbedingte Auseinanderlaufen der Wolken in verschiedene Höhenschichten gegenüber dem Wolkenschwerpunkt während des Transportes entlang der Windtrajektorien.

Bei der Lösung der Diffusionsgleichung in Zylinderkoordinaten mit Hilfe eines endlichen Differenzenverfahrens in einem mitbewegten Gitter verwendet Crawford für die radialen, d. h. horizontalen Diffusionskoefizienten K_h die aus der Ähnlichkeitstheorie bekannte Beziehung

$$K_h = c \cdot \epsilon^{1/3} \cdot \sigma^{4/3}$$

In dieser Formel bedeuten

- c eine Konstante, die etwa = 1 ist und
- ϵ die Energieaustauschrate und
- σ die Standardabweichung

Dagegen wird der Verlauf des vertikalen Diffusionskoefizienten mit der Höhe und Zeit durch in das Programm eingegebene Werte für wenige Stützpunkte vorgegeben, zwischen denen im Programm interpoliert wird. Damit entspricht das Crawfordsche Programm etwa der 2. auf Seite 4 angeführten Rechenmethode. Da es sich dabei um Wolken handelt, die von Anfang an Dimensionen von

mehreren Kilometern haben und die über hunderte von Kilometern verfolgt werden, ist dies von Crawford angewendete Verfahren auf Probleme der Reaktorstörfälle kaum übertragbar.

4. Eine Erfassung der Ausbreitung über mittlere Entfernungen (meso-scale) ist dagegen mit einem von MacCracken [10] ebenfalls im Lawrence Livermore Laboratory entwickelten Programmsystem möglich, das die zeitabhängige Diffusions-Transportgleichung mit Hilfe eines raumfesten Vielzellen-multibox-Systems löst, das unter die auf Seite 4 aufgeführte dritte Rechenmethode fällt.

Nach entsprechender Umformung der partiellen Differentialgleichung wird ein System von gewöhnlichen Differentialgleichungen mit Hilfe eines Differenzenverfahrens gelöst. Das Verfahren wird auf ein einschichtiges Zellensystem angewendet, wobei jede Zelle vom Erdboden bis zur Inversionsschicht reicht und für das vertikale Windprofil ein Potenz-Gesetz zugrunde gelegt wird.

Zur Bestimmung der übrigen Transportparameter an den Zellengrenzen müssen zunächst die an wenigen Stationen beobachteten meteorologischen Daten zu einem massenkonsistenten Windfeld aufgearbeitet werden, aus dem die Diffusionskoeffizienten für die Zellen berechnet werden. Aus der Abbildung 1 ersieht man, wie aus den wenigen Beobachtungsdaten ein über den gesamten interessierenden Bereich verteiltes Windfeld erzeugt wurde.

Die Quellen können in diesem Programm nur als homogene Flächenquellen in einzelnen Zellen eingegeben werden, so daß die Ausbreitung in der Umgebung einer Punktquelle nur durch Wahl sehr kleiner Zellendimensionen genau genug erfaßt werden kann.

Ein weiterer Nachteil des Programms ist der Aufbau aus einer einzigen Schicht von Zellen, die bis zu einer Inversionsschicht reicht, wobei das Windprofil durch ein hypothetisches Gesetz angenähert wird.

Außerdem besteht auch hier wegen des angewendeten Differenzenverfahrens die Gefahr von Fehlern durch unechte, künstliche Diffusion.

5. Van der Hoven [11] und Wendell [12] ermitteln in ihrem Windfeld-Trajektorien-Diffusions-Modell für den mittleren Bereich zunächst Trajektorien für hypothetische Teilchen auf Grund eines räumlich und zeitlich vorgegebenen Windfeldes. Dieses Modell berechnet dann die Diffusion entlang der gekrümmten Trajektorien, wobei die Schwankungen der Rauchfahne einer kontinuierlichen Quelle durch ausreichend viele einzelne Gaußsche Wolken (puffs) simuliert werden, die überlagert werden.

Damit lassen sich Statistiken der mittleren Konzentrationshäufigkeiten über Stunden, Tage oder Monate im betreffenden Bereich gewinnen.

6. Das von Randerson [7] im "Air Resources Laboratory", Las Vegas, entwickelte Rechenprogramm ist ebenfalls für Ausbreitungsrechnungen im mittleren (mesoscale) Bereich verwendbar. Es basiert auf grundlegenden Studien von Kurihara, wobei davon ausgegangen wird, daß die vertikale Windscherung über der planetarischen Grenzschicht für ein Zeitintervall von wenigstens 6 h über einem Bereich von etwa $250 \times 250 \text{ km}^2$ nahezu konstant bleibt, was einer zeitlichen Konstanz des horizontalen Wirbelfeldes entspricht.

Randerson setzt das totale Differential nach der Zeit = 0

$$\frac{d}{dt} (S_u) = \frac{d}{dt} (S_v) = 0$$

$$\text{wobei } S_u = \frac{\partial u}{\partial z} \quad \text{und} \quad S_v = \frac{\partial v}{\partial z}$$

die Vertikalscherungen der horizontalen Windgeschwindigkeitskomponenten u und v des Windgeschwindigkeitsvektors $\bar{U}(u, v, w, t)$ sind. Bei der Ausführung der totalen Differentiation ergibt sich für beide Profile

$$\frac{\partial S}{\partial t} + u \frac{\partial S}{\partial X} + v \frac{\partial S}{\partial Y} + w \frac{\partial S}{\partial z} = 0 \quad \text{mit } S = S_u \text{ bzw. } S_v$$

Es wird eine inkompressible Atmosphäre angenommen:

$$\nabla \bar{U} = \text{div } \bar{U} = \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0$$

Nun gilt im allgemeinen für ein Vektorfeld, dessen Divergenz Null ist, daß das Vektorfeld nicht wirbelfrei ist, was einem Impulsaustausch zwischen benachbarten Trajektorien entspricht.

Randerson beschränkt sich darauf, das Auseinanderlaufen der Konzentrationen durch den Transport entlang der Trajektorien in diesem Feld zu beschreiben, und macht keinen dem Fick'schen Gesetz analogen Ansatz für die Diffusion innerhalb der bewegten Luftpakete.

Für die radioaktive Konzentration $Q(x, y, z, t)$ wird ein dem totalen Differential für die vertikalen Windscherungen entsprechender Ansatz gemacht:

$$\frac{\partial Q}{\partial t} + u \frac{\partial Q}{\partial x} + v \frac{\partial Q}{\partial y} + w \frac{\partial Q}{\partial z} + D = 0$$

wobei durch den Term $D = D(t)$ auch noch ein eventueller radioaktiver Zerfall berücksichtigt wird.

Der Rechenablauf vollzieht sich nun in folgender Weise:
Zunächst wird der interessierende Bereich für die Differenzenrechnungen in ein Gitterwerk eingeteilt, bei dem aus Stabilitätsgründen für die räumlichen Maschenweiten der Windparameter und die Zeitschrittweite folgende Ungleichung eingehalten werden muß:

$$\Delta t \leq \left[\frac{u}{\Delta x} + \frac{v}{\Delta y} + \frac{w}{\Delta z} \right]^{-1}$$

Randerson setzt z. B. für die horizontalen Windgeschwindigkeitskomponenten bis 5 km Höhe 13 m/s und für die vertikale Geschwindigkeitskomponente 0,2 m/s an, womit sich für horizontale Maschenweiten von etwa 37 km und für eine vertikale Maschenweite von etwa 0,3 km eine Zeitschrittweite von 12 min ergibt.

Siehe Abb. 4312 FB-2.

Für die Konzentrationsverteilung wird das horizontale Maschennetz nochmals in kleinere Quadrate mit der Kantenlänge von ca. 7,4 km (4 nautische Meilen) unterteilt.

Da die Landschaft um das Nevada Test Gebiet sehr gebirgig und zerklüftet ist, wie aus der Abbildung 4312 FB-3 zu ersehen ist, nimmt Randerson für die Erdoberfläche bei der Rechnung zunächst eine Glättung vor. Um das benötigte Windgeschwindigkeitsfeld für das gesamte Gitternetz zur Zeit $t = 0$ zu erhalten, von dem man auszugehen hat, um Vorhersagen bis zu 6 Stunden für die zukünftigen Windfeld- und Konzentrationsverhältnisse anstellen zu können, werden zuerst die Daten der wenigen Beobachtungsstationen nach einem Verfahren von Bergthorssen, Döös und Cressmann [13, 14] für die Gitterpunkte iterativ wie folgt aufgearbeitet. Man beginnt bei der obersten Schicht mit einer Schätzung für die Windverteilung zwischen den Beobachtungspunkten und rechnet danach von Schicht zu Schicht abwärts, wobei das Windprofil schrittweise von den höheren Schichten zur nächst tieferen Schicht extrapoliert wird unter Anpassung an das Windprofil an den Beobachtungsorten. Um die kleinen vertikalen Komponenten der Geschwindigkeiten zu erhalten, wird die Gleichung für die Inkompressibilität mit Hilfe eines Differenzenverfahrens integriert, wobei als Randbedingung $u = v = w = 0$ am Erdboden gilt.

Aus dem so erhaltenen vertikalen Windscherfeld $S_u(z)$ bzw. $S_v(z)$ zur Zeit $t = 0$ wird dann mit Hilfe von Differenzgleichungen für das totale Differential der Scherungskomponenten S_u bzw. S_v das Windscherfeld für den Zeitpunkt $t_0 + t$ vorausbestimmt.

Die zugehörigen horizontalen Geschwindigkeitskomponenten ergeben sich daraus dann durch die Beziehung:

$$V(z) = V(z + \Delta z) - C(V')\Delta z,$$

wobei für V entweder u oder v einzusetzen ist und $C(V')$ eine mittlere Windscherung zwischen den Ebenen z und $z + \Delta z$ bedeutet. Schließlich wird auch das totale Differential für die radioaktive Konzentrationsverteilung mit Hilfe eines Differenzenverfahrens gelöst, wobei von einer vertikalen Linienquelle zur Zeit $t = 0$ ausgegangen wird.

Als Ergebnisse erhält man stündliche Vorhersagen für die Windgeschwindigkeiten und die radioaktiven Konzentrationsverteilungen über einen Zeitraum von etwa 4 bis 6 Stunden, wozu das Programm bisher insgesamt etwa 25 min braucht.

7. Im 3-dimensionalen atmosphärischen Transport-Programm NEXUS

[15] wird die sogenannte PICK-Methode angewendet:

"Particle-in-cell"-Technik in Verbindung mit Näherungen aus der K-Theorie. Dabei repräsentieren sogenannte Lagrange-Marker-Teilchen die Masse der Verschmutzungsteilchen, deren Ortsänderungen den Verschmutzungstransport infolge von Advektion und Diffusion simulieren. Die vollständige Differentialgleichung für turbulente Diffusion in der Atmosphäre lautet bekanntlich:

$$(I) \quad \frac{\partial Q}{\partial t} + \vec{U}\nabla Q = \nabla (K\nabla Q)$$

wobei Q die Luftverschmutzungskonzentration

K der Diffusionskoeffizient und

\vec{U} ein massenkonsistentes Windgeschwindigkeitsvektorfeld ist.

Unter der Annahme, daß das Windgeschwindigkeitsfeld \vec{U} quellenfrei ist, d. h. $\nabla \vec{U} = \text{div } \vec{U} = 0$, und durch Einführung einer Pseudogeschwindigkeit

$$(II) \quad \vec{U}' = \vec{U} - \frac{K}{Q} \nabla Q$$

erhält man nach entsprechender Umformung die Diffusionsgleichung in folgender Form:

$$(III) \quad \frac{\partial Q}{\partial t} + \nabla (\vec{U}' \cdot Q) = 0$$

Das ist formal eine Kontinuumgleichung für eine kompressible Flüssigkeit, da im allgemeinen $\text{div } \vec{U}'$ ungleich Null sein wird. Mit anderen Worten, das ursprüngliche Problem der turbulenten Diffusion in der Atmosphäre ist in die Beschreibung einer advektiven Dichteänderung einer kompressiblen Flüssigkeit transformiert worden. Damit bietet sich eine Behandlung des Problems durch die Bewegung Masse-transportierender Teilchen an. Bei der PICK-Methode werden die räumlichen Verschmutzungsverteilungen durch eine entsprechend große Anzahl von Lagrange-Marker-Teilchen repräsentiert, die in dem fiktiven Vektorfeld der Pseudogeschwindigkeiten von Zelle zu Zelle transportiert werden, nachdem der gesamte interessierende Raum in ein Eulersches Netzwerk eingeteilt worden ist. Der Beitrag eines Marker-Teilchens zur Luftverschmutzungskonzentration in den Zellen, die den jeweiligen Aufenthaltsort umgeben, wird durch ein Volumenwichtungsverfahren ermittelt, indem man sich zunächst das Marker-Teilchen gleichmäßig auf ein Volumen von der Größe einer Zelle mit dem Aufenthaltsort als Schwerpunkt verteilt denkt und dann die Konzentrationsbeiträge in den umgebenden Zellen entsprechend den in diese Zelle hineinragenden Teilmolumina beaufschlagt.

Für ein ebenes Problem ist dieses Wichtungsverfahren in Abbildung 4312 FB-4 dargestellt. Analog wird durch ein Volumenwichtungsverfahren aus dem vorgegebenen Windgeschwindigkeitsfeld die

Windgeschwindigkeit für den jeweiligen Aufenthaltsort des Marker-Teilchens ermittelt.

Das notwendige Rechenprogramm zur Bestimmung und Vorhersage des Windgeschwindigkeitsfeldes MESOMET befindet sich noch im Entwicklungsstadium [16].

8. Auch das Programmsystem des Lawrence Livermore Laboratory gliedert sich in zwei Teilprogramme, von denen eines MACAW, die meteorologischen Daten eines massenkonsistenten Windfeldes vorhersagt, und das andere, ADPIC, eben diese Daten für eine Ausbreitungsrechnung von Luftverschmutzungen benutzt.

Aus den bisherigen Unterlagen [17, 18 u. 19] ergibt sich folgendes Bild über den Aufbau und das Grundkonzept dieses Programmsystems: Das eigentliche 3-dimensionale Diffusions-Transport-Programm ADPIC ist dem unter 7. erwähnten Programm NEXUS sehr ähnlich. Es bestimmt die raum- und zeitabhängige Verteilung der Verschmutzungskonzentration ebenfalls mit Hilfe einer hybriden Euler-Lagrange-Methode. Auch hier wird die Konzentration nach der sogenannten "particle-in-cell"-Methode statistisch durch den Transport sogenannter "Lagrange-Marker"-Teilchen in einem festen Eulerschen Netzwerk beschrieben, das aus einheitlichen rechtwinkligen Zellen besteht.

Ausgangsgleichung ist wieder die Differentialgleichung (III) für die Konzentration mit einer Pseudogeschwindigkeit gemäß (II) auf Seite 11. Diese Transport-Diffusionsgleichung wird dann durch zyklische Anwendung des Euler- und Lagrange-Schemas in folgender Weise gelöst: Für den Eulerschen Schritt werden zunächst Konzentrationen Q_1 für die Zentren der Zellen vorgegeben. Daraus werden durch lineare Interpolation die Konzentration Q und der Gradient Q für die Zellenecken und mit den Diffusionskoeffizienten K , die aus dem mit MACAW berechneten massenkonsistenten Windfeld abgeleitet werden, die effektiven Diffusionsgeschwindigkeiten $\vec{U}_D = -\frac{K}{Q}\nabla Q$

an den Zellenecken berechnet. Man erhält die Pseudotransportgeschwindigkeiten \vec{U}' für jede Zellecke durch jeweilige Addition

der so ermittelten Diffusionsgeschwindigkeiten \vec{U}_D zu den Advektionsgeschwindigkeiten \vec{U} , die aus dem massenkonsistenten Windfeld ebenfalls für jede Zellenecke vorliegen.

In dem anschließenden Lagrange-Schritt wird die räumliche Verrückung eines Lagrange-marker-Teilchens mit der Geschwindigkeit \vec{U}'_p , das sich irgendwo in irgendeiner Zelle befindet, während des Zeitschritts Δt wie folgt berechnet,

$$\vec{X}_2 - \vec{X}_1 = \vec{U}'_p \Delta t$$

wobei \vec{X} die Ortvektoren vor und nach einem Zeitschritt Δt sind.

Dabei wird die Pseudotransportgeschwindigkeit eines Teilchens am Aufenthaltsort in einer Zelle \vec{U}'_p durch eine Volumen-Wichtung aus den Pseudogeschwindigkeiten an den Ecken der Zelle \vec{U}' ermittelt.

Schließlich wird, ebenfalls mit einem Volumenwichtungsverfahren, die neue Konzentrationsverteilung Q_2 aus den neuen Positionen aller in dem Zeitschritt Δt weitergeführten Marker-Teilchen errechnet. Darauf folgt wieder der Eulerschritt usw.

Die Startpositionen der Marker-Teilchen werden durch einen Zufallszahlengenerator gemäß der Quellverteilung (Fläche oder Wolke) ausgewählt. Die Randbedingungen in der Atmosphäre werden durch eine Schicht von leeren Grenzzellen erfüllt, die das Zellensystem umgeben. Sobald ein Teilchen in eine dieser Grenzzellen gelangt, wird das Zellensystem automatisch so aufgebläht, daß die Randzellen wieder leer bleiben. Die Erdoberfläche und eine Inversionsschicht werden durch eine Ablagerungs- bzw. Reflexionsrandbedingung repräsentiert.

Durch die Kombination Eulerscher Transportdaten mit den statistischen Schicksalen zahlreicher, einzelner Marker-Teilchen können in Verbindung mit geeigneten Mittelungs- und Wichtungsverfahren bei ausreichender Teilchenzahl auch noch Strukturen der Konzentrations-

verteilung innerhalb relativ großer Zellen erfaßt werden. Außerdem wird dadurch nach Meinung der Autoren trotz fest vorgegebener Zeit- und Gitterschritte eine künstliche, falsche Diffusion vermieden.

Das zweite Teilprogramm MACAW erzeugt durch eine geeignete räumliche und zeitliche Glättung der beobachteten meteorologischen Daten mit Hilfe iterativer Methoden ein massenkonsistentes Windfeld, wobei nach Dickerson [19] ein Kompromiß zwischen der Erhaltung der Masse und möglichst geringer Änderung der beobachteten Werte in einem vorgegebenen Gitternetzwerk anzustreben ist. Aus dem resultierenden raum- und zeitabhängigen, aber massenkonsistenten Windfeld können dann die lokalen horizontalen und vertikalen Diffusionskoeffizienten K bestimmt werden.

Aufgrund von Angaben bei MacCracken [10] vermuten wir, daß auch bei dem uns im Detail noch nicht bekannten Programm MACAW die horizontalen Diffusionskoeffizienten gemäß der Ähnlichkeitstheorie nach der bekannten Beziehung von Richardson ermittelt werden:

$$K_h = \frac{1}{H} \int_0^H \epsilon(z)^{1/3} l^{4/3} dz$$

wobei H die Höhe der oberen Grenzschicht, ϵ der Energie-Austauschkoeffizient (Energie-Transfer-Rate) und l der mittlere Abstand benachbarter Zellenzentren ist.

Nach Crawford wird ferner $\epsilon(z) = \frac{Z_0}{Z} \cdot \left[\frac{u(z)}{u_0} \right]^3$ gesetzt, mit $u_0 = 5 \text{ m/s}$ und $Z_0 = 300 \text{ m}$.

Für die vertikalen Diffusionskoeffizienten wird offenbar wie bei MacCracken [10] die Formel von Sutton angewendet:

$$K_z = \alpha u^+$$

wobei $\alpha = 0,4$ die von-Karman-Konstante und u^+ die sogenannte Reibungsgeschwindigkeit (friction velocity) ist, die hier gleich $1/10$ der aus dem Windprofil bestimmten Geschwindigkeit in 1 m Höhe gesetzt wird.

Während die Programme unter 1 bis 3 im wesentlichen nur zur Darlegung der historischen Entwicklung angeführt sind und die Nachteile des Programms unter 4 schon im Text ausführlich erläutert sind, erscheint auch die Anwendung des Programms unter 6 auf Reaktorstörfälle nicht empfehlenswert. Dieses von Randerson entwickelte Programmsystem ist in der bisher vorliegenden Form für die Vorausberechnung der atmosphärischen Ausbreitung von reaktiven Stoffen nach Reaktorstörfällen in Deutschland kaum geeignet, weil das Programm nur für große Höhen von etwa 1 bis 5 km ausgelegt ist und weil außerdem im mitteleuropäischen Raum die Großwetterlage im allgemeinen schneller wechselt als in dem betrachteten Gebiet im Inneren des nordamerikanischen Kontinents.

Bei dem unter 5 beschriebenen Programm von Van der Hoven ist die zugrundeliegende Rechenmethode verhältnismäßig einfach, wobei jedoch die Verwendung des Gaußverteilungsmodells problematisch ist. Außerdem sind die für eine Statistik der Häufigkeit des Auftretens bestimmter Ausbreitungsverhältnisse benötigten Datenmengen nicht auf andere Verhältnisse übertragbar. Trotzdem könnte es interessant sein, falls sich dieses Programm beschaffen läßt, diese Methode auch auf die Verhältnisse in Deutschland anzuwenden, um die Häufigkeitsaussagen zu kontrollieren, die gerade im Rahmen des PNS, unter anderen auch von Voelz, ermittelt werden.

Die Untersuchungen haben somit ergeben, daß vor allem die Programmsysteme NEXUS-MESOMET und ADPIC-MACAW für Ausbreitungsrechnungen in dem bei Reaktorstörfällen besonders wichtigen mittleren Entfernungsbereich geeignet sind. Wir haben deshalb die Beschaffung dieser beiden Programmsysteme eingeleitet.

Soweit möglich soll eines dieser Programmsysteme an den uns zur Verfügung stehenden Meßwerten während der Produktionsphase des Plowshare-Versuchs Rulison sowie während des unterirdischen Waffentests Baneberry [20] und während des Austritts von Argon 41 aus einem gasgekühlten Reaktor in Brookhaven (NY) [21] getestet werden und mit entsprechenden Rechnungen von Voelz mittels einer Modifikation des stationären Rauchfahnenmodells verglichen werden.

Schließlich sollte mit diesem Programmsystem auch eine Rechnung für einen interessierenden Standort in Nordwestdeutschland durchgeführt werden. Hinsichtlich der Erstellung eines massenkonsistenten Windfeldes haben unsere Nachforschungen ergeben, daß für dieses Gebiet genügend Daten in einem ausreichend feinen Netz von Wetterstationen beschafft werden können.

Literaturverzeichnis

- [1] Ginsburg, Th.
Die friedliche Anwendung von nuklearen Explosionen
Thiemig, 1965
- [2] Higgins, G. H.
Summary of Nuclear Explosion Data for Underground
Engineering Applications
URCL-50853, April 1970
Lawrence Livermore Laboratory
- [3] Proceedings of the Symposium on Engineering with
Nuclear Explosives
Las Vegas, Nevada 1970
CONF-700101 (Vol. 1 und 2)
- [4] Wilson, R. H., Thomas, R. G., Stannard, J. N.
Biomedical and Aerosol Studies Associated with a
Field Release of Plutonium
Sandia Corporation, Albuquerque, New Mexico
WT- 1511 1961
- [5] Project Rulison
Final Operational Radioactivity Report
Production Tests
Peaceful Applications Division
Nevada Operations Office
PNE-R-57 (NVO-112) 1972
- [6] Johnson, W. B.
The Status of Air Quality Simulation Modeling
Proceedings of Interagency Conference on the Environ-
ment. LLL, USA 1972

- [7_] Randerson, D., John S. Cornett
Numerical Prediction of the Mesoscale Transport of
Atmospheric Effluents.
NOAA-TM-ERL-ARL-37 1973
National Oceanic and Atmospheric Administration
- [8_] Crawford, T. V.
Computer Program for Calculating the Atmospheric
Dispersion of Large Clouds
UCRL-50179 (unclas), Nov. 23, 1966
Lawrence Radiation Lab., Livermore
- [9_] Knox, J. B., T. V. Crawford
Radioactivity Released From Underground Nuclear
Detonations: Source, Transport, Diffusion, and
Deposition
UCRL-50230, March 2, 1970
Lawrence Livermore Laboratory
- [10_] Mac Cracken, M. C., T. V. Crawford, K. R. Peterson,
J. B. Knox
Initial Application of a Multi-Box Air Pollution
Model to the San Francisco Bay Area
UCRL-73944, 1972
Lawrence Livermore Laboratory, USA
- [11_] Van der Hoven, I., C. R. Dickson, G. E. Start,
L. L. Wendell
Recent Analytical and Experimental Efforts on
Single Source Effluent Dispersion to Distances
of 100 KM
IAEA/SM-181/8 1973
National Oceanic and Atmospheric Administration,
Maryland and Idaho Falls, USA

- [12] Wendell, L. L.
Mesoscale Wind Field and Transport Estimates
Determined from a Network of Wind Towers
Monthly Weather Review, Vol. 100. No. 7 1972
- [13] Bergthórsson, P., B. R. Döös
Numerical weather map analysis
Tellus 7, 1955
- [14] Cressman, G. P.
An operational objective analysis system
Monthly Weather Review, 87 1959
- [15] Sklarew, R. C., A. J. Fabrick, J. E. Prager
A Particle-in-Cell Method for Numerical Solution
of the Atmospheric Diffusion Equation and Applications
to Air Pollution Problems
CSR-844 Vol. I 1971
System, Science and Software, La Jolla, USA
- [16] Intermittent Emission Control
Systems, Science and Software, La Jolla, USA 1973
- [17] Knox, J. B., R. Lange
An Investigation of Scavenging of Radioactivity
from Nuclear Debris Clouds
UCRL-51328, Jan. 17, 1973
Lawrence Livermore Laboratory, USA
- [18] Knox, J. B.
Numerical Modeling of the Transport, Diffusion and
Deposition of Pollutants for Regions and Extended
Scales.
UCRL-74666 1973
Lawrence Livermore Laboratory, USA

- [19] Dickerson, M. H.
A Mass-consistent Wind Field Model for the San
Francisco Bay Area.
UCRL-74265, 1973
Lawrence Livermore Laboratory, USA
- [20] Final Report of Off-Site Surveillance for the
BANEERRY-Event December 18, 1970.
SWRHL-107r, 1972
Western Environmental Research Laboratory.
Environmental Protection Agency.
- [21] Peterson, Kendall, R.
Post-Frontal Plume Behaviour Out to 250 N. Miles
from a Continuous Point Source
Air Resources Laboratories
Environmental Science Services Administration
Silver Spring, Maryland 1968

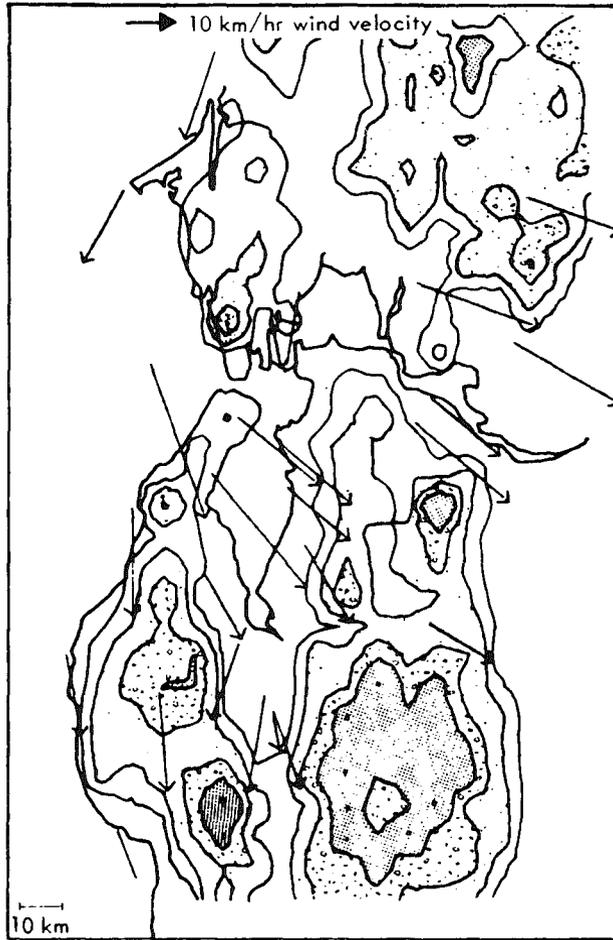


Fig. 2 Observed surface winds, 1800 July 11, 1968.

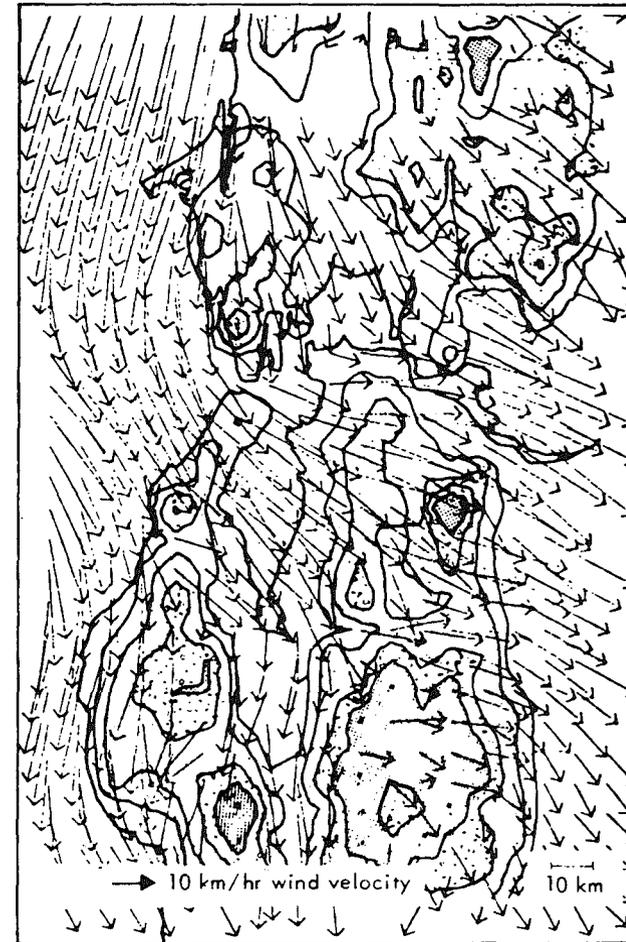


Fig. 4 Adjusted mean wind field, 2230 July 11, 1968.

Abb. 4312.FB-1 Erzeugung des massenkonsistenten Windfeldes

N

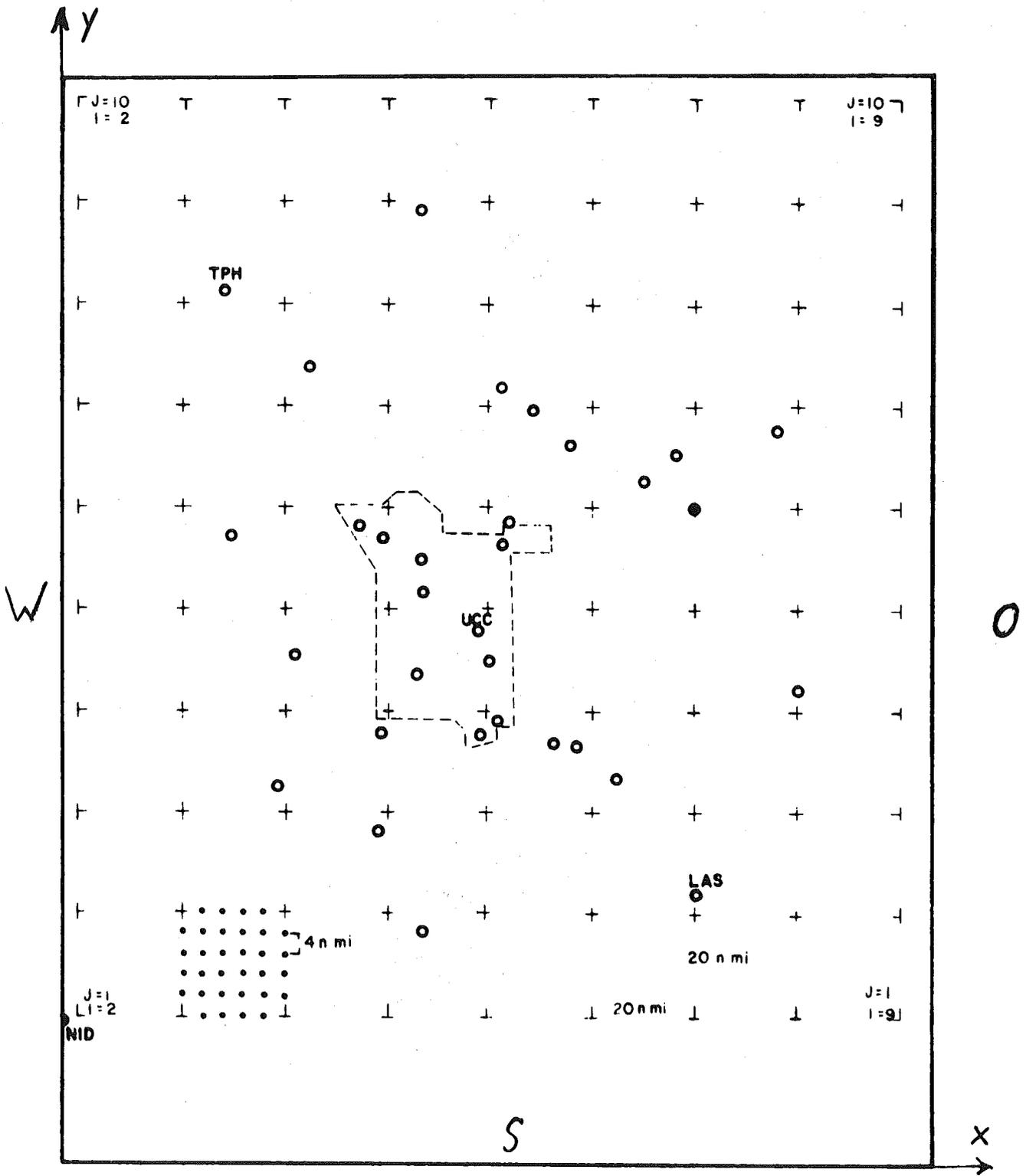


Abb. 4312.FB-2 Gittereinteilung in der Umgebung des "Nevada Test Gebiets".



Abb. 4312.FB-3 Topologie der Umgebung des "Nevada Test Gebiets"

Cellular concentration in

Cell (1,1)	=	0.04
(1,2)	=	0.36
(2,1)	=	0.29
(2,2)	=	1.01
(1,3)	=	0.10
(2,3)	=	0.20

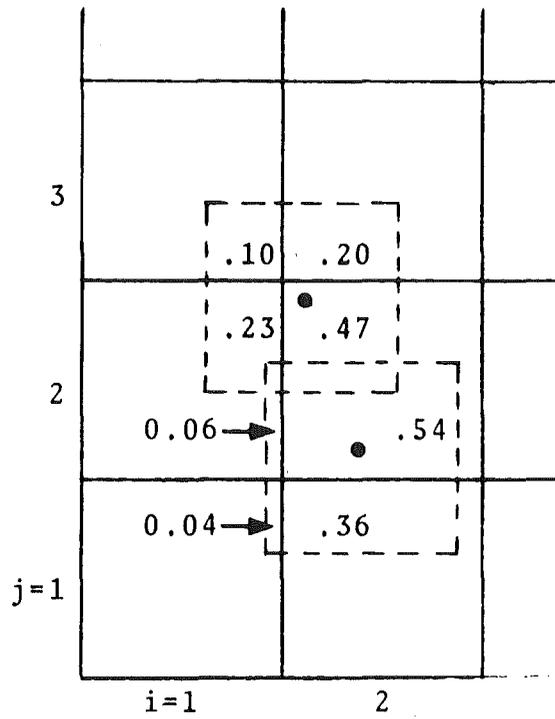


Abb. 4312.FB-4 Berechnung der Zellenkonzentration.

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG VON KONTAMINATIONEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren

Entwicklung von Reinigungslösungen für Dekontaminationszwecke

(S. Kunze, ADB)

Die Arbeiten über Reinigungslösungen zum Dekontaminieren von Oberflächen wurden fortgesetzt.

Die nun folgenden Versuchsreihen wurden unter zwei Gesichtspunkten ausgeführt, nämlich für einen Dekontaminationsreiniger das günstigste Mischungsverhältnis der schaumregulierten nichtionogenen Tenside zu finden und die Wirksamkeit dieser Lösungen mit Zusätzen der wichtigsten Komplexbildner in Abhängigkeit vom pH-Wert an verschiedenen Oberflächen zu untersuchen.

a) Dekontaminationsversuche mit Tensidmischungen

Abb. 4411-1 - stellt die Abhängigkeit der Dekontaminationswirkung der schaumregulierten nichtionogenen Tenside vom Mischungsverhältnis im Dekontaminationsmittel dar. Die Edelstahlplatten wurden wie im vorherigen Halbjahresbericht KFK 1859, S. 199, kontaminiert und dekontaminiert. Die graphische Darstellung zeigt:

- 1) Die Kontamination ist nach 20 min. Einwirkung praktisch entfernt. Eine Verdoppelung der Zeit ergibt nur eine unwesentliche Steigerung der Effektivität.
- 2) Der Zusatz von schaumarmen Komponenten (B) zu den Nonylphenolpolyglycoläthern (A) bewirkt bei ca. 1/3 - Anteil B eine Steigerung, beim Mischungsverhältnis 1 : 1 ist das Maximum bereits überschritten und bei ca. 2/3 - Anteil B liegen die Dekontaminationswerte unter denen der Komponente A.

b) Dekontaminationsversuche mit Komplexbildnern

Der Einfluß eines Zusatzes von Komplexbildnern auf schaumregulierte nichtionogene Tensidlösungen wurde an PVC-Fußbodenbelag, epoxidlackbeschichteten Oberflächen und Edelstahl (Werkstoff Nr. 1.4541) getestet. Als Komplexbildner wurden Ameisensäure, Dinatriumdihydrogenäthylendiamintetraacetat (EDTA-Na_2), Glucon-, Milchsäure, Natriumorthophosphat, Oxal-, Thioglycol-, Wein- und Zitronensäure verwendet. Untersucht wurden Lösungen im pH-Bereich von 3 bis 9.

Kontaminiert und dekontaminiert wurde wie unter a) beschrieben. Es wurde bei epoxidlackbeschichteten Oberflächen und PVC-Fußbodenbelag die 2 Stunden Alterung nicht bei 200°C , sondern bei Raumtemperatur aus Gründen der Materialbeständigkeit durchgeführt.

Den Versuchsergebnissen (Abb. 4411-2 bis 4) lassen sich folgende Regelmäßigkeiten entnehmen:

- 1) Die Dekontaminierbarkeit nimmt wie folgt ab:
PVC-Fußbodenbelag > epoxidlackbeschichtete Oberflächen > Edelstahloberflächen (Werkstoff Nr. 1.4541)
- 2) Fast sämtliche Oberflächen sind im sauren Bereich besser zu dekontaminieren als im alkalischen.
- 3) Die Komplexbildner lassen sich nach ihrer Wirksamkeit näherungsweise in 3 Gruppen zusammenfassen:
 EDTA-Na_2 , Thioglycolsäure, Zitronensäure > Natriumphosphat, Milchsäure, Weinsäure > Ameisensäure, Gluconsäure, (Oxalsäure).

Die Dekontaminationsergebnisse der ersten Gruppe sind sowohl in stärker sauren als auch alkalischen Tensidlösungen auf allen Oberflächen am besten. Enthalten die Dekontaminationslösungen Komplexbildner der letzten Gruppe, so liegen die Resultate (Sonderstellung der Oxalsäure auf Edelstahl) sogar unter denen von wässrigen Tensidgemischen. Die mit Komplexbildnern der mittleren Gruppe eingestellten Reiniger zeigen praktisch nur im sauren Gebiet eine Steigerung der Effektivität.

Sind die zu entfernenden Radionuklide bekannt, so kann man durch Abstimmen auf die Kontaminationsart, also durch eine gezielte Auswahl von mehreren Komplexbildnern zur wässrigen Tensidmischung, eingestellt auf den günstigsten pH-Wert, einen Spezialreiniger mit optimalen Erfolg herstellen [1].

Eigene Veröffentlichungen:

[1] S. Kunze
Entwicklung eines Reinigers für Dekontaminationszwecke mit reguliertem Schaumvermögen.
KFK 1848, Dez. 1973

Dekontaminationsversuche mit Salzschnmelzen

(D. Hentschel, S. Kunze, ADB)

Nach Durchführung der entsprechenden Literaturarbeiten wurden Dekontaminationsversuche an Oberflächen mit Salzschnmelzen begonnen.

Für erste Versuche wurden die Salzgemische KOH/NaOH (Mol % 60/40, Eutektikum 185°C bzw. K Cl/Al Cl₃ (Mol % 33, 3/66, 6, Eutektikum 138°C) ausgewählt.

Durchführung der Versuche: Gebeizte Edelstahlplättchen (Werkstoff-Nr. 1.4541, 25 x 25 x 2 mm) wurden mit 0,1 ml einer schwach salz- oder salpetersauren Nuklidlösung, welche ⁴⁵Ca, ¹³⁷Cs, ¹⁰⁶Ru und ⁶⁰Co in annähernd gleicher Konzentration enthielt, kontaminiert (spez. Aktivität der Lsg 10 µ Ci/ml) und eine Stunde bei 425°C gehalten. Es wurde die Anfangsimpulsrate an einem digitalen Strahlungsmeßgerät gemessen. Nach festgelegten Zeitintervallen wurden die ausgemessenen Plättchen im Salzbad kurz oberhalb des Schmelzpunktes behandelt. Anschließend wurden die Salzkrusten teilweise mit NaOH/KOH oder Salpetersäure nachbehandelt, in Wasser gespült, getrocknet und die Restaktivität ermittelt.

a) Dekontaminationsergebnisse mit Kalium-/Natriumhydroxyd

Restaktivität in % nach einer Tauchbadbehandlung von

	<u>15</u>	<u>30</u>	<u>45</u>	<u>60</u>	<u>Minuten</u>
1, <u>KOH/NaOH-Schmelze</u>					
20 min Spülen mit H ₂ O	11	6	5	4	
20 min Spülen mit 2nHNO ₃ + H ₂ O	4	0,3	0,2	0,8	
2, <u>KOH/NaOH + 1% Na₂O₂</u> <u>Schmelze</u>					
20 min Spülen mit H ₂ O	16	9	8	12	
20 min Spülen mit 2nHNO ₃ + H ₂ O	0,8	0,7	0,3	1,0	

Die ersten Versuchsergebnisse zeigten, daß sich Edelstähle in alkalischen Schmelzen mit und ohne Zusätze von Oxydationsmitteln recht gut dekontaminieren lassen. Eine Nachbehandlung an Stelle von Wasser mit Säure ergab wesentlich günstigere Resultate. Nach 45 Minuten Salzbadbehandlung wurden die besten Dekontaminationsergebnisse erzielt. Längere Einwirkzeiten in den Salzschnmelzen führten infolge Rückdiffusion der Aktivität auf die Edelstahloberfläche zu schlechteren Werten. Die Materialabnahmen während der Behandlung blieben gering < 2 mg/dm²; die Metalloberflächen waren glatt und sauber.

b) Dekontaminationsergebnisse mit KCl/AlCl₃

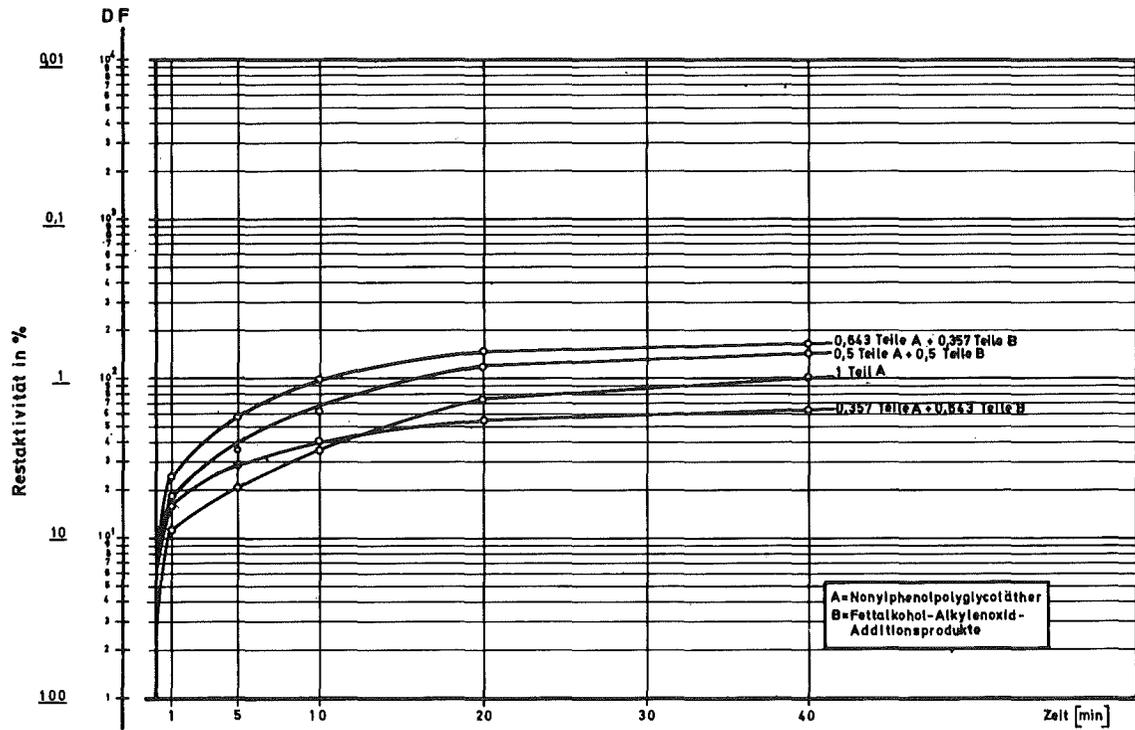
Vers. Reihe	Min. in	Min. in	Min. in	Rest-aktivität %	pH Waschwasser	Cl ⁻ - Nachweis	
	KCl/Al/Cl ₃ T 270°	KOH/NaOH T 380°	H ₂ O			1 x 10 min in H ₂ O	2 x 10 min in H ₂ O
1	-	-	10	57,6	-	-	-
2	-	-	20/30	57,5	-	-	-
3	15	-	1	7,6	4	+	Spuren
4	15	-	10	3,4	4-5	+	Spuren
5	15	10	1	4,3	11,5	Spuren	-
6	15	10	10	2,3	11,5	Spuren	-

Versuchsreihen 1 und 2 sind Blindversuche.

Die Ergebnisse zeigten ein gutes Dekontaminationsvermögen der KCl/AlCl₃ - Schmelzen für Edelstahl. Eine Verbesserung der Resultate läßt sich durch die Nachbehandlung mit NaOH/KOH erzielen, auffallend ist die Verringerung der Restaktivität mit der Erhöhung der Tauchzeit in Wasser. Längere Verweilzeiten der Plättchen im Salzbad brachten nur ein geringfügiges Absinken der Restaktivität. Im Hinblick auf die Dekontamination Pu-kontaminierter Oberflächen wurden als Modell die Edelstahlplättchen mit Uranyl nitrat behandelt und gereinigt. Hier konnten nach Tauchzeiten von 10 Minuten in KCl/AlCl₃ 10 Minuten in KOH/NaOH und 10 Minuten Wasser Restaktivitäten von 9 %, bei Auslassen der alkalischen Behandlung von 18 % erzielt werden.

Die Versuche werden mit anderen Salzschnmelzen und an Plättchen, die im Autoklaven kontaminiert wurden, fortgesetzt.

Abb: 44 11-1 Zeitabhängigkeit der Dekontamination vom Mischungsverhältnis zweier nichtionogener Tenside im Dekontaminationsmittel



23.8.73
KAUPMANN RB7/M

Abb: 44 11-2 Abhängigkeit der Dekontamination vom pH-Wert u. Komplexbildnerzusatz in tensidhaltigen Reinigungslösungen - an PVC - Fußbodenbelag -

- | | |
|--|--|
| 1: Tensidgemisch in Wasser | 6: Natriumorthophosphat u. Tensidgemisch in Wasser |
| 2: Ameisensäure u. Tensidgemisch in Wasser | 7: Oxalsäure u. " " " " |
| 3: EDTA-Na ₂ u. " " " " | 8: Thioglycolsäure u. " " " " |
| 4: Glucosäure u. " " " " | 9: Weinsäure u. " " " " |
| 5: Milchsäure u. " " " " | 10: Zitronensäure u. " " " " |

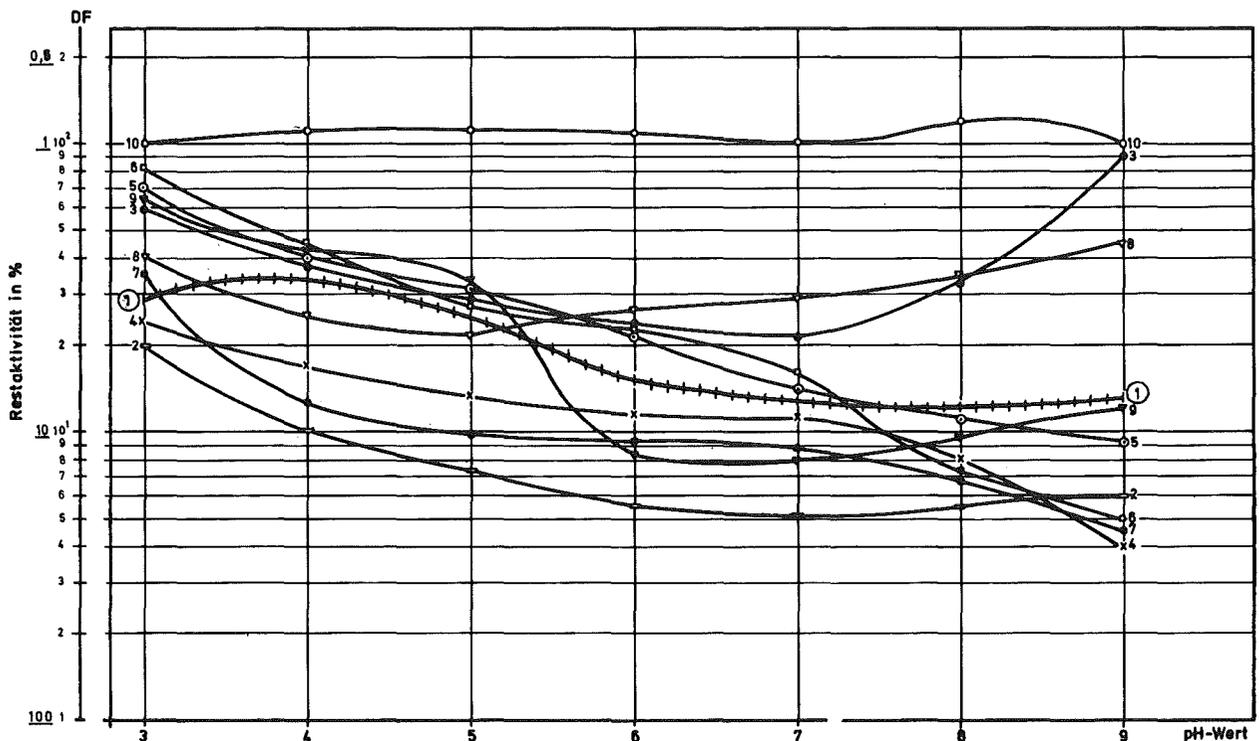


Abb:44 11-3 Abhängigkeit der Dekontamination vom pH-Wert u. Komplexbildnerzusatz in tensidhaltigen Reinigungslösungen
- an epoxidlackbeschichteten Oberflächen -

- | | |
|--|--|
| 1: Tensidgemisch in Wasser | 6: Natriumorthophosphat u. Tensidgemisch in Wasser |
| 2: Ameisensäure u. Tensidgemisch in Wasser | 7: Oxalsäure u. " " " " |
| 3: EDTA - Na ₂ u. " " " " | 8: Thioglycolsäure u. " " " " |
| 4: Gluconsäure u. " " " " | 9: Weinsäure u. " " " " |
| 5: Milchsäure u. " " " " | 10: Zitronensäure u. " " " " |

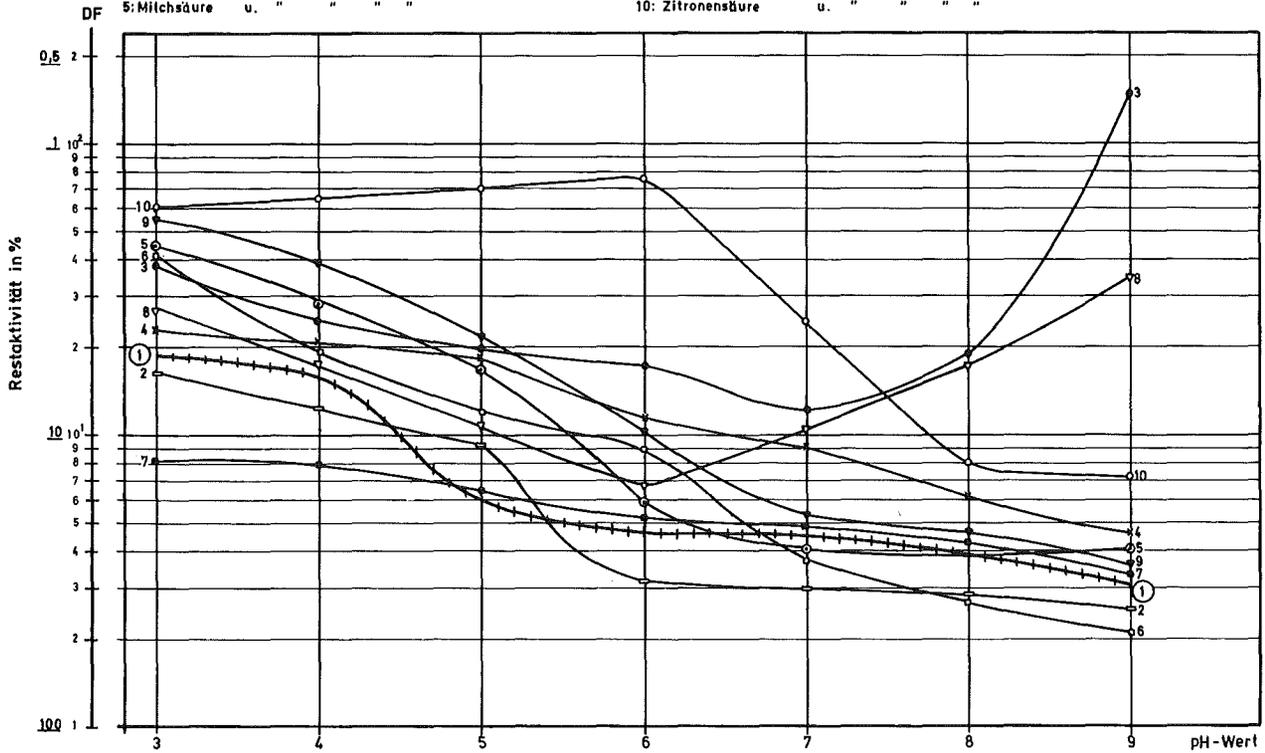
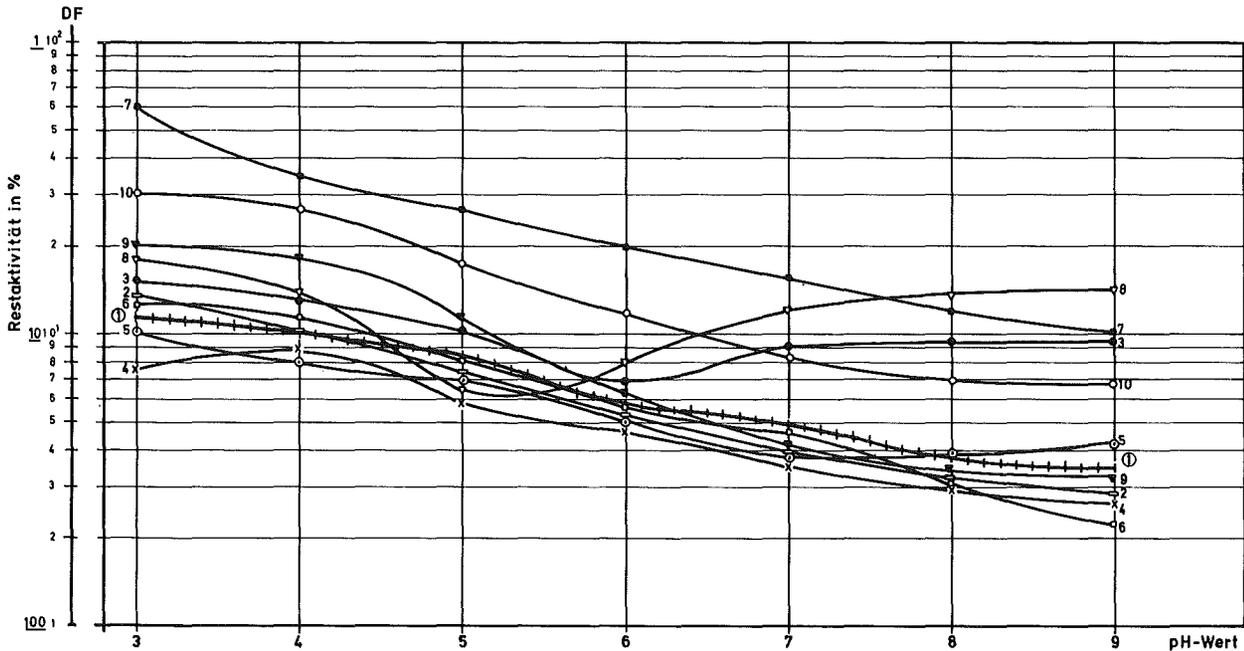


Abb:44 11-4 Abhängigkeit der Dekontamination vom pH-Wert u. Komplexbildnerzusatz in tensidhaltigen Reinigungslösungen
- an Edelstahloberflächen(1.4541) -

- | | |
|--|--|
| 1: Tensidgemisch in Wasser | 6: Natriumorthophosphat u. Tensidgemisch in Wasser |
| 2: Ameisensäure u. Tensidgemisch in Wasser | 7: Oxalsäure u. " " " " |
| 3: EDTA - Na ₂ u. " " " " | 8: Thioglycolsäure u. " " " " |
| 4: Gluconsäure u. " " " " | 9: Weinsäure u. " " " " |
| 5: Milchsäure u. " " " " | 10: Zitronensäure u. " " " " |



Dekontamination von Kreislaufnatrium und Kreisläufen natriumgekühlter Reaktoren

(D. Hentschel, ADB)

Die notwendigen Literatarbeiten zur Konzipierung der Dekontaminationsversuche von Reaktornatrium sind abgeschlossen. Die Studien erstreckten sich auf Kontaminationen in Reaktorkreisläufen und die Dekontaminationsmöglichkeiten. Aus den Resultaten wurde eine Versuchsapparatur erstellt.

1. Kontamination der Kreisläufe

Schematisch gesehen setzt sich das Kühlsystem natriumgekühlter Reaktoren aus zwei Natriumkreisläufen zusammen [1]. Der Primärkreislauf dient zur Kühlung der Brennelemente, der zweite zur Wärmeübertragung auf die Dampferzeuger. Bei normalem Betrieb ist nur ersterer radioaktiv kontaminiert. Die Kontamination kann vier Quellen haben:

1.1 Kontaminationen, die auf Neutronenaktivierung des Natriums sowie dessen ursprüngliche Verunreinigungen beruhen.

Zu nennen sind hier die Nuklide ^{24}Na und ^{22}Na . Ihre Konzentration ist vom Reaktor abhängig. Die Angaben schwanken für ^{24}Na zwischen $(1-30) \cdot 10^{-2} \text{ Ci/cm}^3 \text{ Na}$, für ^{22}Na liegen sie unter $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ Ci/g Na}$ [2, 3, 4]. ^{24}Na klingt innerhalb von 15 Tagen [3] ab, ist also nur bei Störfällen bedeutend, während ^{22}Na für längere Zeit bestehen bleibt.

Andere Aktivierungsprodukte haben aufgrund kurzer Halbwertszeiten keine Bedeutung [2].

Weitere durch Natrium eingeschleppte Kontaminationen hängen von dessen Reinheitsgrad ab.

1.2 Kontaminationen, die durch Neutronenaktivierung von Korrosionsprodukten aus Reaktormaterialien verursacht werden.

Die Korrosion in Natriumkreisläufen ist im wesentlichen durch geringfügig im Natrium gelösten O_2 sowie C, N_2 und H_2 bedingt [1, 5, 6, 7]. Durch den Sauerstoff können Metalle oxydiert werden, andererseits werden Metalloxide unter den herrschenden Bedingungen reduziert. Beide Produkte sind begrenzt im Natrium löslich [5]. Für die Dekontamination bedeutet dies, daß aus den Stählen Bestandteile herausgelöst und durch Neutronen aktiviert werden. Die wichtigsten so entstandenen Nuklide dieser Korrosionsprodukte und deren zu erwartenden Konzentrationen im Kreislauf sind in der Tabelle verzeichnet. Diese Werte sollen als Richtwerte für Dekontaminationsversuche gelten.

1.3 Kontaminationen durch Spaltprodukte

Spaltprodukte gelangen durch Brennstoff-kontaminierte Brennelementhüllen oder durch Lecks in diesen in den Kreislauf. Ihre Konzentration dort ist daher weitgehend vom Zustand der Hüllen abhängig. Die wichtigsten Spaltnuklide sind die in der Tabelle 4411-2 aufgeführten sowie Edelgasnuklide [8]. Ihre Verteilung im Kreislauf wird bestimmt durch deren Flüchtigkeit, Löslichkeit und Halbwertszeit [3].

Die Verteilung der Aktivität sowie deren zeitliches Verhalten sind für das SRE⁺ nach dessen Störfall gemessen und berechnet worden. Die Werte können der Tabelle 4411-2 entnommen werden [8]. Die Resultate haben für die Dekontamination große Bedeutung, da durch Extrapolationen Aktivitäten im Natrium bzw. im Kreislauf für andere Reaktoren bei normalem Betrieb oder bei Störfällen abgeschätzt werden können.

1.4 Kontaminationen durch Brennstoffe

Hierüber liegen kaum Daten vor. Als Toleranzgrenze gilt für das SRE⁺ 10 ppm U (gefunden 0,2), für RAPSODIE 10^{-6} μ Ci Pu/g Na [8, 4].

⁺Sodium Reactor Experiment

2. Behandlung von kontaminiertem Natrium

Dazu werden in der Praxis mehrere Verfahren angewandt; ihnen gemeinsam ist der beträchtliche apparative Aufwand. Unter dem Gesichtspunkt des Waste-Anfalls und der Natriumwiederverwendung lassen sich drei Möglichkeiten nennen:

- a) Die Lagerung des Natriums mit den Kontaminationen wird angewandt, wenn größere Mengen Kreislaufnatrium anfallen (z. B. bei Reaktorstillegungen). Hier gibt es aus zeitlichen und apparativen Gründen praktisch keine andere Möglichkeit. Waste fällt hierbei nicht an, eine Wiederverwendung in Reaktorneubauten ist möglich [10, 11].
- b) Vernichtung des Natriums mit den Kontaminationen.
Bei diesen Verfahren wird das Natrium durch geeignete Reagenzien chemisch gebunden. Man geht so vor, daß man kontaminiertes Natrium bzw. damit behaftete Reaktorteile unter Inertgas in die Reagenzien taucht oder diese aufsprüht. Die Kontaminationen werden mit den entstandenen Natriumverbindungen weggespült und gelangen so in Lösungen, die vor der Endlagerung aufkonzentriert werden müssen. Es ergibt sich hierbei ein beträchtlicher Waste-Anfall. Im wesentlichen existieren vier Reaktionen zur Natriumvernichtung, die in der Praxis hauptsächlich zur Gerätereinigung eingesetzt werden. Es sind dies die Reaktionen mit Wasser, Alkoholen, Ammoniak sowie als Sonderfall die Verbrennung [12, 13].
- c) Dekontaminationsverfahren
Bei diesen Verfahren werden dem Natrium die Verunreinigungen entzogen; das Natrium ist wiederverwendbar und der Waste-Anfall ist gering. Anwendung finden folgende Methoden (ihre Wirksamkeit siehe in der Tabelle 4411-2).
 1. Die Filtration durch Glaswolle oder Stahldrahtnetze zur Vorreinigung von Natrium [6, 14].

2. Die Reinigung mit Hilfe von Kalt-, Diffusions- und Heißfallen während des Reaktorbetriebes [1, 6].
3. Die Vakuumdestillation zur Reinigung des Natriums bzw. damit benetzter Teile sowie für analytische Zwecke [6, 14, 15, 16].

3. Auswahl und Aufbau einer Apparatur zur Natriumdekontamination

Von den beschriebenen Verfahren zur Isolierung von Kontaminationen im bzw. aus Natrium erscheint als bestgeeignetes die Vakuumdestillation. Sie ist zwar ebenso aufwendig wie alle anderen Methoden, hat jedoch den Vorteil, daß die geringsten Waste-Volumina anfallen. Um dieses Verfahren auf die Dekontamination anwenden zu können, ist es notwendig, Trenneffekte im Labormaßstab zu untersuchen und die gewonnenen Erfahrungen zu übertragen. Geeignete Apparaturen sind vielfach in der Literatur beschrieben worden [s. Lit. 2]. Danach können Destillationsgefäße aus Edelstahl, Nickel und Glas eingesetzt werden (Aus Glas löst Natrium jedoch bei höheren Temperaturen Bor und Silizium heraus [14]). Zu Versuchszwecken kann folgende Apparatur eingesetzt werden: Ein Glaskolben dient als Vorlage, in diesem wird ein Nickeltiegel an einer Halterung angebracht, in den das zu destillierende Natrium eingefüllt wird. Während des Destillationsvorganges verdampft das Natrium aus dem Tiegel und setzt sich an den kalten Wänden des Glasgefäßes ab [17]. Dieses Verfahren ist nur bei indirekter Beheizung des Tiegels möglich. Dazu eignet sich gut eine Induktionsheizung [17]. Zur Einstellung des erforderlichen Vakuums muß eine Öldiffusionspumpe eingesetzt werden, da die günstigsten Destillationsraten und -ergebnisse bei Temperaturen um 350° C und Drucken $< 10^{-4}$ Torr liegen [14] (Druckmessung erfolgt über ein Combitron. Messung zwischen 760 und 10^{-6} Torr möglich).

Welche Reinigungseffekte zu erwarten sind, kann der Tabelle 4411-2 entnommen werden. Es sei darauf hingewiesen, daß die

Homologen des Natriums, Kalium, Rubidium und Cäsium leichter flüchtig als dieses sind [16], und daß daher die Abtrennungen dieser Elemente durch Destillation zu modifizieren sind [18]. Aus Dampfdruckkurven ergibt sich weiterhin, daß man auch gute Trenneffekte zwischen Natrium und Sr, Ba, Te sowie NaJ erwarten kann [16].

Zur Klärung der Dekontaminationswirksamkeit des Destillationsverfahrens ist folgender Gang der Versuche geplant:

Eine bestimmte Menge Natrium wird in einer geeigneten Glasapparatur unter Inertgas geschmolzen und mit einer definierten Menge repräsentativer Nuklide (s. 1) kontaminiert. Der Kontaminationsgrad sollte etwa dem in Reaktoren anzutreffenden entsprechen. Von dem so kontaminierten Produkt werden zwei Proben entnommen. Zur Bestimmung der spezifischen Aktivität im Natrium werden diese gewogen, das Natrium mit Alkohol unter Inertgas vernichtet und die Zählrate des Rückstandes ermittelt. Ca. 10 g des kontaminierten Natriums werden der Destillation unterworfen. Aus dem Destillat sollen dann wiederum zwei Proben zur Ermittlung der spezifischen Aktivität nach dem oben beschriebenen Verfahren genommen werden. Der Quotient zwischen den spezifischen Aktivitäten vor und nach der Destillation ergibt den Dekontaminationsfaktor, der Aussagen über die Qualität des Verfahrens zuläßt.

Die für die Arbeiten erforderlichen Geräte sind beschafft und getestet. Aufgrund von Termenschwierigkeiten bei der Auslieferung von Geräten konnte erst jetzt mit Versuchen begonnen werden. Die Experimente werden im 1. Halbjahr 1974 durchgeführt.

Kontamination						
Element	Nuklid	T _{1/2}	Aktivität [Ci]	Spez. Aktivität [µCi/gNa] ⁺⁺		
				2.8.59 _{g.}	31.10.59 ₈	31.10.59 _b
Cs	¹³⁴ Cs	2 a	⁺⁺ 2.10 ²	0,02	0,006	0,02
	¹³⁷ Cs	30 a	⁺⁺ 8,7.10 ³	1,26	0,45	1,26
Sr	⁸⁹ Sr	50 d	⁺⁺ 1,6.10 ⁵	19,0	0,25	5,8
	⁹⁰ Sr	28,1a	⁺⁺ 8,15.10 ³	0,97	0,06	0,97
Ba	¹⁴⁰ Ba(La)	12,8d	⁺⁺ 5,61.10 ⁵	-	-	-
Zr	⁹⁵ Zr(Nb)	65 d	⁺⁺ 5,53.10 ⁵	13,0	6,7.10 ⁻³	5,2
Cr	⁵¹ Cr	27,8d	+21/gNa	-	-	-
Mn	⁵⁴ Mn	303 d	^o 10 ⁻⁷ / _g Na	-	-	-
Fe	⁵⁹ Fe	45 d	+0,096/ _g Na	-	-	-
Co	⁵⁸ Co	71 d	+0,17/ _g Na	-	-	-
	⁶⁰ Co	5,2a	+1,02.10 ³ / _g Na	-	-	-
Ni	⁶³ Ni	92 a	-	-	-	-
Ru	¹⁰³ Ru	39,6d	⁺⁺ 7,52.10 ⁴	0,85	4,5.10 ⁻³	0,19
Ce	¹⁴¹ Ce	33d	⁺⁺ 1,27.10 ⁵	3,7	8,8.10 ⁻⁵	0,54
	¹⁴⁴ Ce	284d	⁺⁺ 1,69.10 ⁵	5,1	3,1.10 ⁻⁴	3,9
J	¹³¹ J	8,5d	⁺⁺ 1,68.10 ⁴	0,42	1,2.10 ⁻⁴	1,9.10 ⁻⁴

Reinigung						
Element	Ursprünglich ppm	Verbliebene Verunreinigung nach				
		Kaltfalle ppm	Heißfalle ppm	Destillation		
				ppm	o/oR	o/oR
K	130	100	100	10	-	-
Mg	9	0,1	<1	<g	100	98
Ca	510	<0,5	<1	<100	100	107
Ba	-	<0,5	<1	-	-	-
Al	< 100	<0,2	<1	<15	>97	100
Cr	2	< 2	<2	< 5	100	100
Mo	< 0,5	< 0,5	<0,5	< 5	100	100
Mn	1	1	1	< 3	98	100
Fe	5 - 10	~ 5	4	<10	98	100
Co	-	< 0,1	< 1	<15	97	98
Ni	3	< 1	< 1	< 5	97	100

- keine Angaben

⁺⁺ SRE, b=berechnet, g=gefunden [8]

+ [9], ^o[4]

Spalte 9-12: [6]/[14]

Spalte 13 [17]:Metalle; Spalte 14:[17]Chloride

Literaturverzeichnis

- /1/ Mausbeck, H.,
Atomkernenergie 15 (1970), S. 1

- /2/ Ullmann, H., Künstler, K., Richter, W.,
Kernenergie 16 (1973) S. 96

- /3/ Kunkel, W.P., et al.,
AI-AEC-12687

- /4/ Berlin C., Gautier M.,
IAEO-Fachtagung "Measure et Controle des Impuretes dans le Sodium"

- /5/ Rettig, D.,
Kernenergie 14 (1971) S. 349

- /6/ Ullmann H.,
Kernenergie 13 (1970) S. 341

- /7/ Borgstedt H.U.,
Atomwirtschaft-Atomtechnik XVII (1972), S. 174

- /8/ Hart R.S.,
NAA-SR-6890

- /9/ Claxton K.T., Collier J.G.,
AERE-R-7001 (1972) S. 63

- /10/ Ureda B., Heine W.F.,
Nuclear News 1970, S. 40

- /11/ Eggleston R.R.,
AI-AEC-12572

- /12/ Poucher F.W., Kohl A.L.,
Trans. ANS 11 (1968) S.114

- /13/ IAEA, IWGFR Specialist's Meeting on Decontamination of Plant Components from Sodium and Radioactivity, Dounreay, UK, 9. - 12.4. 1973
- /14/ Horsley, G.W.,
AERE-MR-1152 (1953)
- /15/ Wykoff, W.R., BNWL-1200-4 (1970)
- /16/ Castleman jr. A.W.,
Nuclear Safety 11 (1970) S. 379
- /17/ Ramachandran T.P., Harland W.A.,
ANL-7668 (1970)
- /18/ Clough W.S., Wade, S.W.,
Journal of Nucl. En. 25 (1971), S. 445
- /19/ Bergstresser, K.S., Waterbury, G.R., Metz, C.F.,
LA-3343

4420 Technik der Räum- und Demontagearbeiten

4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte

(L. Bösch, G.W. Köhler, M. Salaske, M. Selig, RBT)

1. Mittleres Manipulator-Fahrzeug "MF2" +)

Nach der Abnahme des Fahrzeuges wurde mit der Einweisung des Betriebspersonals und der Erprobung des Gerätes begonnen. Zwischenzeitlich erwies sich als Ergänzung eine zusätzliche Überwachung der Versorgungsspannungen der PCM-Anlagen als zweckmäßig.

2. Leichtes Manipulator-Fahrzeug "MF3" ++)

Für das Fahrgestell wurde von einer beauftragten Fachfirma die Detail-Konstruktion durchgeführt und die Auslegung der zugehörigen elektrischen Steuerung geht dem Abschluß entgegen, so daß der Auftrag für die Fertigung in Kürze erteilt werden kann.

Der Prototyp des elektrischen Master-Slave-Manipulators "EMSM I" erwies sich in der bisherigen Erprobung als recht zuverlässig. Er wird als Basis für die Entwicklung der Leichtbau-Version "EMSM II" dienen, die als Standard-Arbeitsgeräte für das MF3 vorgesehen ist. Der EMSM I ist aufgrund der Kraft-Reflexion, seiner direkten Steuerung nach dem Master-Slave-Prinzip, großen Beweglichkeit sowie seiner hohen Positioniergenauigkeit für komplizierte Arbeiten geeignet. Dazu kommt eine leichte Steuerbarkeit dank der geringen am Bedienungsarm auftretenden Reibungs- und Trägheitskräfte sowie eine hohe Arbeitsgeschwindigkeit. Die erreichbaren Geschwindigkeiten liegen höher als diejeniger, mit denen ein Operateur beim Arbeiten normalerweise kontrollierte Bewegungen ausführt, so daß das Gerät diesbezüglich nicht die Grenze darstellt.

+) Siehe auch 1. Halbjahresbericht des PNS, KFK 1702

++) Siehe auch 1. Halbjahresbericht des PNS, KFK 1702, und 3. Halbjahresbericht des PNS, KFK 1859

Mit dem Manipulator können vielerlei handelsübliche Handwerkzeuge und Elektrowerkzeuge - wenn möglich mit den Zangenbacken angepaßten Griffen versehen - zum Einsatz gebracht werden, indem man sie mit der Greifzange faßt.

Hinsichtlich der Einsatzmöglichkeiten des MF3 in Kernkraftwerken siehe PNS 4430.

4423 Ferngesteuerte mobile Systeme zur Schadenserfassung
(L. Bösch, G.W. Köhler, M. Selig, RBT)

Mit der Lieferung des mittleren Manipulatorfahrzeuges "MF2" (vgl. PNS 4422) ist jetzt ein Fahrzeug vorhanden, das aufgrund seiner zusätzlichen Ausrüstung in gewissem Umfang auch zur Schadenserfassung im Freien und in Hallen geeignet ist.⁺⁾

Es wurde vorgeschlagen, das geplante leichte Manipulator-Fahrzeug "MF3" (vgl. PNS 4422) zur Schadenserfassung in Gebäuden als Übergangslösung zusätzlich mit einem Meßgeräte nach Wahl auszurüsten.⁺⁾

⁺⁾ Siehe auch 3. Halbjahresbericht des PNS, KFK 1859

4430 Vorsorgliche bauliche und verfahrenstechnische Maßnahmen zur
 Erleichterung der Schadensbeseitigung
 (W. Bahm, G.W. Köhler, G. Scholer, RBT)

Im Rahmen der Befragungsaktion⁺) wurden im Berichtszeitraum moderne Kernkraftwerke besucht. Im Mittelpunkt der Untersuchungen stand die Frage nach der Zugänglichkeit und den Einsatzmöglichkeiten des Manipulatorfahrzeuges "MF3".

Für die Vorliegenden quantitative Untersuchung⁺⁺⁾ wurde als Beispiel das Kernkraftwerk Biblis-A ausgewählt. Biblis bot sich an, weil einerseits der bauliche Zustand im Vergleich z.B. zu den Kernkraftwerken Brunsbüttel und Philippsburg am weitesten fortgeschritten war, andererseits die für eine genaue Auswertung erforderlichen ausreichend detaillierten Baupläne rechtzeitig zur Verfügung standen. Bei den anderen modernen Kernkraftwerken wurden die Verhältnisse aufgrund der Eindrücke während der Rundgänge und der an Ort und Stelle gemachten Aufzeichnungen abgeschätzt.

Hinsichtlich der Zugänglichkeit im KKW Biblis - es wurden hier alle Räume des Containments in Betracht gezogen - ergab sich zusammenfassend folgendes Ergebnis:

Die für das Fahrzeug in Frage kommenden Hauptaufgaben (Inspektion, Messungen, Manipulation) können in ca. 50 % aller Fälle ausgeführt werden. Mit vertretbarem Aufwand kann eine Steigerung auf etwa 75 % erreicht werden.

Für die anderen modernen Kernkraftwerke gilt ungefähr dasselbe.

Im Vergleich zu den älteren Kernkraftwerken, wie Obrigheim und Gundremmingen, ist eine wesentliche Verbesserung der Zugangsmöglichkeiten für ferngesteuerte mobile Geräte festzustellen.

Es bestätigte sich, daß für die Hantierung von schweren Gegenständen und

⁺) Siehe auch 3. Halbjahresbericht des PNS, KFK 1859

⁺⁺⁾ Trägerfahrzeug "MF3", Einsatzmöglichkeiten in Kernkraftwerken, von
W. Bahm, G.W. Köhler, G. Scholer

für den Einsatz großer Elektrowerkzeuge neben den für die komplizierten Arbeiten erforderlichen elektrischen Master-Slave-Manipulatoren ein Kraft-Manipulator mit einer Tragfähigkeit von etwa 100 kg zweckmäßig ist. Hierdurch würden sich die Verwendungsmöglichkeiten des MF3 für Reparaturarbeiten erheblich erweitern.

Weitere Einsatzmöglichkeiten würden sich in vielen Fällen ohne Mehraufwand ergeben, wenn bei der Planung von neuen Kernkraftwerken der Einsatz von mobilen ferngesteuerten Geräten von vornherein berücksichtigt würde, z.B. durch entsprechende Bemessung von Türen und Treppenabsätzen, Labyrinth, Gängen usw., Vermeidung von Verengungen in Gängen und häufigere Verwendung von Setzsteinwänden.

4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG NUKLEARER ANLAGEN

4510 Informationssystem zur Reaktorsicherheit (RESI)

Am Institut für Reaktorentwicklung (IRE) der GfK werden gemeinsam mit dem Institut für Reaktortechnik der Universität Karlsruhe (TH) in einer Systemstudie die Möglichkeiten der Erstellung und der Nutzen eines Informationssystems im Bereich der Reaktorsicherheit und der atomrechtlichen Genehmigungsverfahren untersucht. Einen Überblick über den Stand der Arbeiten und eine Vorschau auf die im weiteren vorgeschlagene Fortführung des Vorhabens gibt der Zeitplan in Abb. 4510-1.

Das Forschungsvorhaben wird in engem Kontakt mit zahlreichen in den Problembereich Reaktorsicherheit einbezogenen Institutionen bearbeitet. In einer Reihe von Demonstrations- und Diskussionsveranstaltungen wurde über Art und Umfang der Arbeiten vor allem im Laufe des Jahres 1973 informiert, wie Abb. 4510-2 zusammenfassend zeigt.

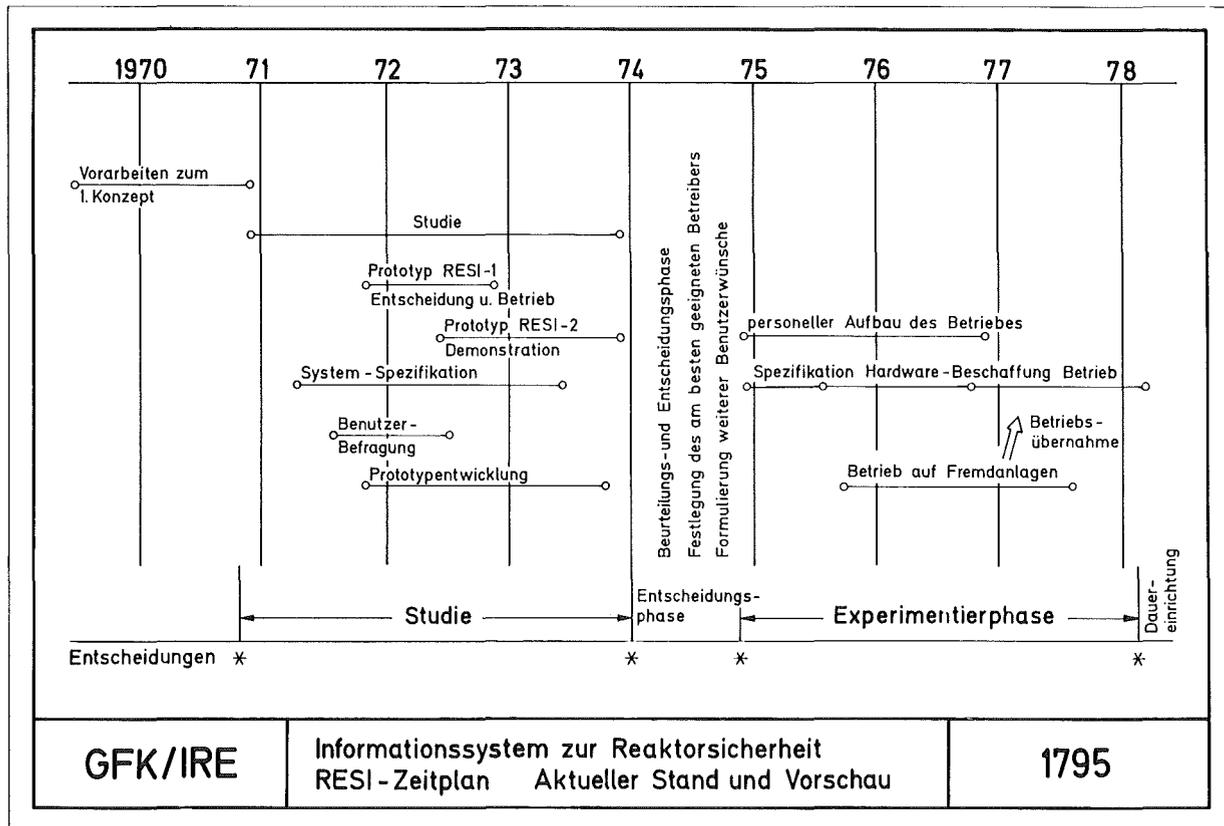


Abb. 4510-1

Datum	Art der Veranstaltung	Teilnehmer	Institution
2.6.1972	Demonstration RESI-1	Jahns	RSK, Geschäftsstelle
14.9.1972	Demonstration RESI-2	Sahl	BMEW (Jetzt BMT)
5.10.1972	Demonstration RESI-2	Seipel Ziegler	BMEW (Jetzt BMFT) BMEW (Jetzt BMFT)
30./31.10.1972	Demonstration RESI-1 und RESI-2	Berg	BMEW (Jetzt BMT)
2./6.4.1973	IRS-Workshop	Drittler Eggert Handge Hoffmann Mogros Röhrs Schmitz	IRS, Köln " " " " " "
9.4.1973	Demonstration RESI-2	Watzel	RWE, Essen
8./10.5.1973	ZAED-Workshop	Niedermeyr Paul Prinz Wenske	ZAED, Leopoldshafen " " "
14.5.1973	Demonstration RESI-2	Elter	TÜV Baden, Mannheim
23.5.1973	Demonstration RESI-2	Deckers Stöbel	TÜV Rheinland, Köln "
29.5.1973	Demonstration RESI-2	Graeff	Min.f.Wirtschaft und Verkehr, Rheinland-Pfalz
5.6.1973	Demonstration RESI-2	Blickle Geiger) Pucher)	Min.f.Wirtschaft, Mittelstand und Verkehr Min.f.Arbeit, Gesundheit und Sozialordnung Baden-Württemberg
6.6.1973	Demonstration RESI-2	Schur Ritter	Bayr.Staatsmin.f.Landesentwicklung u.Umweltfragen Min.f.Arbeit, Gesundheit u.Soziales, Nordrhein-Westf.
7.6.1973	Demonstration RESI-2	Kraemer Kerber	AGIS, Arbeitsgruppe Informationssystem beim Statistischen Landesamt Baden-Württemberg
14.6.1973	Demonstration RESI-2	Rittberger Rosén	ZAED, Leopoldshafen NEA, Paris
15.6.1973	Kolloquium	Blickle Boonekamp Graeff Jehlioka Mazur Niedermeyr Frau Reisig Rittberger Ritter Schur Stöbel Volland Ziegler	Min.f.Wirtschaft, Mittelstand und Verkehr Arbeit- u.Sozialbehörde der Freien u.Hansestadt Hamburg Min.f.Wirtschaft und Verkehr, Rheinland-Pfalz TÜV Baden, Mannheim TÜV Hannover ZAED, Leopoldshafen Hessisches Min.f.Wirtschaft und Technik ZAED, Leopoldshafen Min.f.Arbeit, Gesundheit u.Soziales, Nordrhein-Westf. Bayr.Staatsmin.f.Landesentwicklung u.Umweltfragen TÜV Rheinland, Köln Senator für Wirtschaft, Berlin BMFT, Bonn
26.7.1973	Demonstration RESI-2	Fuchs Holderied Schröder Stolper	Badenwerk, Karlsruhe " " "
25./26.9.1973	TÜV-Workshop I	Hüesker Quirrenbach Masuhr Jeske Vogel Renk Schinke Schöbel Stöhr	vartÜV, Essen " TÜV Rheinland, Köln TÜV Stuttgart " TÜV Norddeutschland RW-TÜV, Essen " "
22./23.10.1973	TÜV-Workshop II	Heimhuber Mazur Jehlioka Kruse Goppelt	TÜV Pfalz, Kaiserslautern TÜV Hannover TÜV Baden, Mannheim " TÜV Bayern, München

Abb. 4510-2: Zusammenstellung der Informationsveranstaltungen über RESI

Im Rahmen von zwei weiteren, je 2-tägigen "Workshops" wurden die Arbeiten sowohl zur Systemstudie als auch zu den Prototypentwicklungen Vertretern der Technischen Überwachungsvereine vorgestellt und im Detail erläutert und diskutiert. Eine Stellungnahme der TÜV-Vertreter wird nach Abschluß weiterer Beratungen auch im Bereich der TÜVIS (TÜV-
Informations-System)-Entwicklung erwartet.

Der Länderausschuß für Atomkernenergie hat in seiner Sitzung am 20.9.1973 festgestellt, daß für eine weitere Beratung zunächst der Abschlußbericht über die Studie abgewartet werden soll, welcher Anfang 1974 vorliegen wird.

Ein Überblick über den Stand der Arbeiten und die zu erwartenden Vorschläge wurde anläßlich des PNS-Kolloquiums am 11.12.1973 gegeben [1].

4511 Erstellung einer Systemstudie

(T.Krings, E.G.Schlechtendahl, G.F.Schultheiß, D.Smidt, IRE)

Stand der Arbeiten

Für die Erstellung des Abschlußberichtes "Studie über ein Informationssystem zur Reaktorsicherheit (RESI)" [2] wurde zunächst ein detailliertes Konzept erarbeitet. Bis Mitte Dezember war die Rohfassung des Berichtes fertiggestellt.

Zusammenfassung des Berichtes:

In der "Studie über ein Informationssystem zur Reaktorsicherheit RESI" werden Probleme der Informationsverarbeitung im Rahmen der atomrechtlichen Genehmigungsverfahren in der Bundesrepublik Deutschland untersucht. Es wird ein Vorschlag für ein Informationssystem und seine Anwendung in diesem Bereich gemacht. Über die Grundlagen zum Systemkonzept, die ausführlichen Untersuchungen in Form von Befragungsaktionen und die Entwicklung von zwei Prototypsystemen (RESI-1 und RESI-2) einschließlich der damit durchgeführten Demonstrationsveranstaltungen wird berichtet. Die Auswirkungen der dabei gewonnenen Erfahrungen auf das vorgeschlagene Systemkonzept werden aufgezeigt, wobei eine Reihe von speziellen Problemen eingehender behandelt wird. Abschließend wird der Vorschlag einer etwa dreijährigen Experimentierphase

auch hinsichtlich des erforderlichen Aufwandes und möglicher Betreiberorganisationen erläutert. Die dafür erforderlichen Entscheidungen der zuständigen Instanzen unter Einbeziehung der bisherigen Forschungsergebnisse werden aufgezeigt.

Weiteres Vorgehen:

Anfang 1974 wird die Dokumentation abgeschlossen und zur weiteren Beratung und Entscheidung den zuständigen Instanzen zugeleitet. Bis auf gelegentliche beratende Unterstützung bei eventuellen Anfragen werden die Arbeiten an diesem Forschungsvorhaben im IRE damit abgeschlossen.

4512 Erstellung eines Prototypsystems
 (W.Eglin, F.W.Katz, R.Mangelsdorf, A.Pee, E.G.Schlechtendahl,
 G.F.Schultheiß, D.Smidt, IRE)

Stand der Arbeiten

Die Vorbereitung und Durchführung der Informationsveranstaltungen bildeten auch beim Prototypbetrieb einen Schwerpunkt.

Eine bereits im ersten Halbjahr 1973 begonnene Untersuchung zum Zeitbedarf in den Einzelschritten des Arbeitsprozesses wurde abgeschlossen. Einen Überblick über die wesentlichen Ergebnisse zeigt Abb. 4510-3. Dabei ist zu beachten, daß sich der mittlere fachliche Bearbeitungszeitaufwand pro Dokumentseite bzw. pro Dokument nur auf die Tätigkeitsbereiche "Indexieren", "Prüfen" bzw. "Formulieren" und "Prüfen" (bei der Erstellung von reaktortypspezifischen, sicherheitstechnischen Fragen (TF)) bezieht. Die Ergebnisse stimmen mit denen aus anderen Bereichen gut überein.

Das Prototypsystem RESI-2 wurde im Herbst 1973 in seinem Inhalt eingefroren. Danach wurde eine weitere Überarbeitung des Thesaurus zur Vorbereitung einer Dokumentation [3] durchgeführt. Zum Jahresende wurden alle Arbeiten zur Datensicherung abgeschlossen und der Betrieb von RESI-2 eingestellt. An dieser Stelle muß dem Rechenzentrum des Bundespresse- und Informationsamtes (BPA) in Bonn für seine zuvorkommende Unterstützung

bei der Durchführung des Prototypbetriebes herzlich gedankt werden. Diese außergewöhnlich tatkräftige Hilfe trug dazu bei, die Arbeiten termingerecht abzuwickeln.

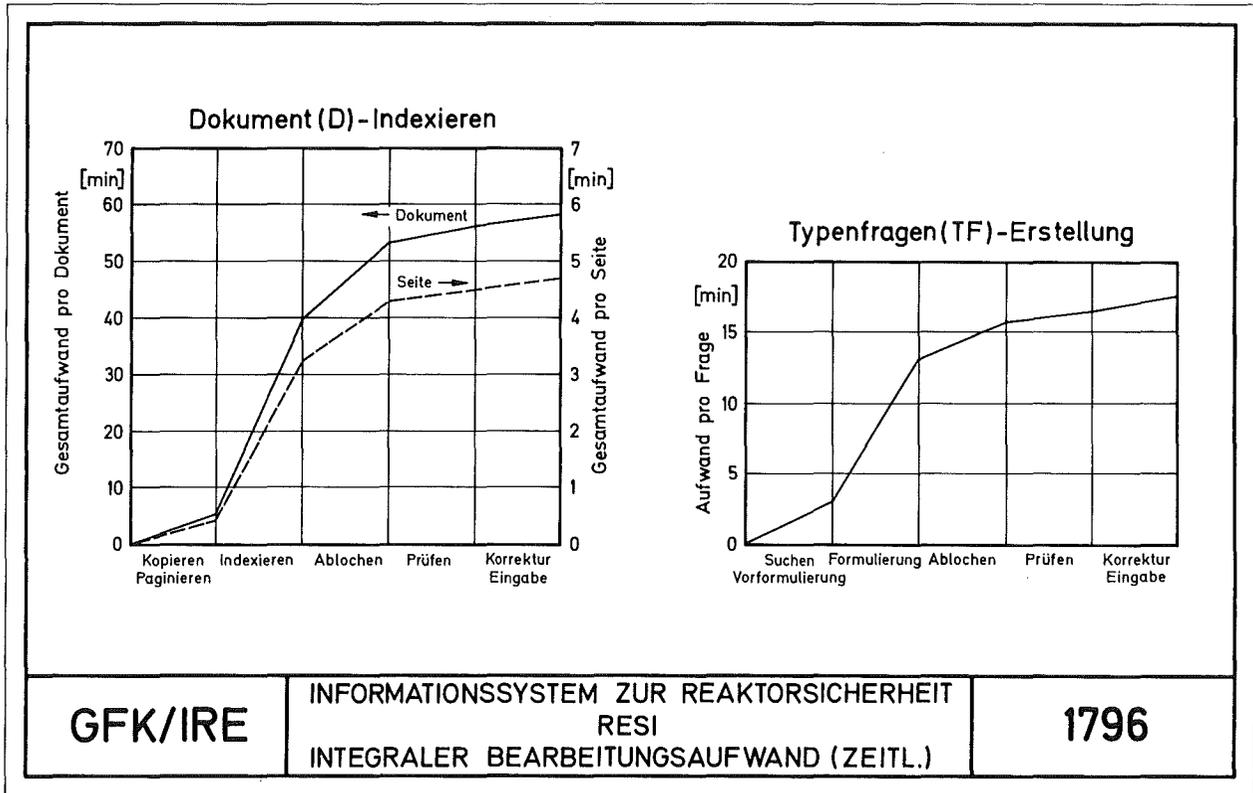


Abb. 4510-3

Weiteres Vorgehen

Die Dokumentation über die Prototypentwicklung von RESI-1 und RESI-2 [4] wird Anfang 1974 so abgeschlossen, daß eine Wiederaufnahme der Arbeiten auch an anderer Stelle möglich wird.

Eigene Veröffentlichungen:

- [1_] Schultheiß,G.F.: Entwicklung eines Informationssystems zur Reaktorsicherheit RESI, Jahreskolloquium 1973 des Projektes Nukleare Sicherheit, 11.Dez.1973 (KFK-Bericht in Vorbereitung)
- [2_] Schultheiß,G.F., Schlechtendahl,E.G.: Studie über ein Informationssystem zur Reaktorsicherheit (RESI), KFK 1900 (im Druck)
- [3_] Eglin,W., Krings,Th., Schultheiß,G.F.: RESI-Thesaurus für das Informationssystem zur Reaktorsicherheit, KFK 1902 (im Druck)
- [4_] Schultheiß,G.F. et al.: RESI-1 und RESI-2, Prototypen für ein Informationssystem zur Reaktorsicherheit, KFK 1901 (in Vorbereitung)
- [5_] Eglin,W., Katz,F.W., Krings,Th., Pee,A., Schlechtendahl,E.G., Schultheiß,G.F.: Ergebnisse aus dem Betrieb eines "Prototyp-Informationssystems zur Reaktorsicherheit (RESI)", Atomwirtschaft-Atomtechnik, XVIII/Nr. 10, Oktober 1973, pp. 469-471
- [6_] Sameith,H., Schultheiß,G.F., Smidt,D.: Forschungsarbeiten zur Sicherheit von Kernkraftwerken, Fridericiana, Zeitschrift der Universität Karlsruhe, LCCC Nr. 79-90856, Heft 13, Nov. 1973, pp. 41-48
- [7_] Schultheiß,G.F., Nietfeld,G.: Informationssystem zur Reaktorsicherheit RESI - rechnergestützt durch GOLEM, z. Veröffentlichung vorgesehen in Siemens-Zeitschrift DATA-REPORT
- [8_] Schlechtendahl,E.G., Schultheiß,G.F.: Fortschritte im Informationssystem zur Reaktorsicherheit RESI, KFK-Nachrichten 4/73 pp. 9-14

4530 Risiko- und Zuverlässigkeitsanalysen nuklearer Anlagen
- State of the art - Studie über Methoden und Verfahren
der quantitativen Risikobetrachtung -
(R. Papp IASR)

Die Bewertung existierender quantitativer Methoden zur Ermittlung von Risiken im Zusammenhang mit Reaktorstörfällen stellt einen ersten Schritt dar, die Risiken des gesamten Brennstoffzyklus zu erfassen. Bisher publizierte Risikobetrachtungen konzentrieren sich im wesentlichen auf drei Bereiche: den Transport von Kernbrennstoffen, die Handhabung von radioaktivem Abfall und schließlich auf die Berechnung der Wahrscheinlichkeiten für das Auftreten von unterschiedlich schweren Reaktorstörfällen. Im Gegensatz zu den beiden erstgenannten Bereichen ist man bei der Reaktorstörfall-Berechnung auf probabilistische Methoden angewiesen. Vorrangige Bedeutung kommt daher den notwendigen Zuverlässigkeitsdaten zu.

Zur state-of-the-art-Studie über Methoden und Verfahren der quantitativen Risikobetrachtung - eine Untersuchung, die auf Wunsch des BMFT durchgeführt wird und im Frühjahr 1974 abgeschlossen sein wird - gehören deshalb auch die Fragen nach der Zuverlässigkeit von Anlagensystemen und einzelnen Komponenten. Insbesondere sind die generelle Möglichkeit der Beschaffung von Daten und die Kriterien für die Qualität der Daten zu diskutieren.

Eine der einander kritisch gegenüberzustellenden Methoden zur Berechnung des Risikos bei Reaktorstörfällen geht auf Farmer zurück und wurde durch Otway und Erdmann weiterentwickelt. Sie stützt sich im wesentlichen auf die genaue Betrachtung von Unfallsequenzen. Mit Hilfe der Fehlerbaum-methode werden die Wahrscheinlichkeiten für das Eintreten von Ausfällen berechnet. Ebenso wird die bei einem betrachteten Unfall auftretende Freisetzung an radioaktivem Material abgeschätzt. Dieser Zusammenhang zwischen Unfallwahrscheinlichkeit und Emission dient als Quellterm für die Berechnung des Gesamt-Risikos, in dem weitere Einflußgrößen - Wetterbedingungen, Bevölkerungsdichte, biologische Wirkung radioaktiver Strahlung - in Rechnung gestellt werden.

Nicht analysierte Unfälle versucht man dadurch zu berücksichtigen, daß durch die bei der Analyse erhaltenen Werte eine stetige Funktion angenähert wird.

Einen etwas anderen Weg zur Berechnung des Risikos bei Reaktorstorfällen schlägt Rasmussen vom M.I.T. ein. Seine Risikostudie wurde durch das testimony vor einem USAEC-Ausschuß bekannt. Bei einem persönlichen Gespräch mit Rasmussen am M.I.T. ergab sich folgendes Bild: Die Rasmussen-Analyse konzentriert sich im wesentlichen auf Unfälle, die zu Core-Schmelzen führen. Von einer großen Zahl möglicher Unfälle ausgehend, werden schließlich 8 wesentliche herausgegriffen, wobei als schwerster Unfall derjenige betrachtet wird, bei dem die Schmelze das Containment durchdringt. Mit Hilfe von Fehler- und Ereignis-Baum-Analysen werden die Unfallwahrscheinlichkeiten berechnet. Die verwendeten Zuverlässigkeits-Daten stammen von der FARADA-Datenbank (in Kalifornien) und aus England (System Reliability Service). Die Datenbeschaffung stellte keine große Schwierigkeit dar. Die Übereinstimmung zwischen Reliability-Daten aus verschiedenen Quellen war zufriedenstellend.

Die vom Edison Electric Institut, AEC und American National Standard Inst. begonnene Datensammlung steht z. Zt. noch nicht zur Verfügung. Es soll hier im wesentlichen Unterschied zu früheren Arbeiten (etwa dem Bericht WASH-740), keine "worst-case" Analyse durchgeführt werden, sondern man will ein möglichst realistisches Bild von Unfallwahrscheinlichkeiten und Konsequenzen gewinnen. Dazu gehört beispielsweise auch die Berücksichtigung von Effekten, wie Aufheizung der radioaktiven Wolke, Abschirmung durch Gebäude und Evakuierung der Bevölkerung. Insbesondere soll dabei auch versucht werden, der Öffentlichkeit die äußerst geringe Wahrscheinlichkeit eines Reaktorunfalls zu verdeutlichen.

Dieser letzte Punkt berührt das Problem der Risk-Acceptance. Die Zusammenarbeit des IASR mit der amerikanischen Firma Mathematica in Princeton, N. J. hat sowohl die reine Quantifizierung der Risiko-Komponenten (freiwilliges - unfreiwilliges Risiko, Zeitabhängigkeit usw.) zum Ziel, als auch die Möglichkeit einer Verknüpfung von an sich unvereinbaren Größen (Sicherheit, Kosten, Nutzen, Umweltbeeinflussung usw.) mit Hilfe der Utility-Theorie. Die Notwendigkeit solcher Verknüpfungen ergeben sich etwa im Rahmen von Nutzen/Kosten/Risiko-Analysen.

In den USA zeigt sich deutlich, daß die Erfüllung der USAEC-Regulations wohl eine notwendige, nicht jedoch hinreichende Bedingung für die Erlangung einer Bau- bzw. Betriebsgenehmigung von Reaktoren ist. Dabei stellt die Aufklärung der Öffentlichkeit offensichtlich eine Notwendigkeit dar, da schon eine kleine Gruppe von Gegnern ein Hinauszögern der Bau- und Betriebsgenehmigung erwirken kann. Eine von einem EVU in New Jersey unternommene Meinungsumfrage bestätigte, daß eine positive Einstellung zur Kernenergie direkt proportional zum Wissensstand einer Bevölkerungsgruppe ist. Als Kosten für die Arbeiten, die zur Erlangung einer Genehmigung erforderlich sind, wurden 10 Mio. \$ genannt. Die Wahl eines neuen Standorts (bedingt durch die große Bevölkerungsdichte in New Jersey) verursacht Mehrkosten von 180 Mio. \$. Die Frage der Risk-Acceptance gewinnt damit noch an Bedeutung. Mehr und mehr muß man zu der Überzeugung kommen, daß Risiko-Berechnungen erst dann ihre volle Bedeutung erlangen, wenn sie mit Nutzenüberlegungen gekoppelt sind (wie das in den amerikan. Environment Imp. Statem. gefordert wird) und wenn die Ergebnisse dieser Berechnung auch der Öffentlichkeit verständlich gemacht werden können.

Abschließend sei mitgeteilt, daß die oben erwähnte state-of-the-art-Studie, die im April d. J. fertiggestellt wird, folgende Probleme im Zusammenhang behandelt:

- Wahrscheinlichkeit von Unfällen und Unfallfolgen, Gegenwärtiger Stand der Überlegungen.
- Unfallwahrscheinlichkeiten
- Emissionswahrscheinlichkeiten
- Unfallfolgen
- Zusätzlich notwendige Überlegungen zu den Wahrscheinlichkeitsbetrachtungen.
- Vergleich von angenommenen und tatsächlichen Standards in Prozeduren und Qualitätskontrolle.
- Mögliche Rückschlüsse aus der bisherigen Unfallstatistik
- Spezielle Aspekte von Aufbereitung, Transport und Endlagerung.
- Zumutbarkeitsfragen.

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1973

1. Halbjahresbericht 1973 des Projekts Nukleare Sicherheit,
KFK 1859, Nov. 1973

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

A. Bayer, R. Kalckbrenner, T.H. Krishnamurthi,
"Die zukünftige Tritium-Belastung des Oberrheins",
Reaktortagung 1974 Berlin

L.A. König, K. Nester, H. Schüttelkopf, M. Winter,
Experiments Conducted at the Karlsruhe Nuclear Research Center
to determine Diffusion in the Atmosphere by Means of Various
Tracers
IAEA-WMO-Symposium on the Physical Behaviour of Radioactive
Contaminants in the Atmosphere,
Wien, 12. - 16. Nov. 1974
IAEA-SM-181-4

G.F. Schultheiß, E.G. Schlechtendahl,
Studie über ein Informationssystem zur Reaktorsicherheit (RESI)
KFK 1900, Febr. 1974

W.Eglin, Th. Krings, G.F. Schultheiß,
RESI-Thesaurus für das Informationssystem zur Reaktorsicherheit,
KFK 1902, Febr. 1974

W.Eglin, F.W. Katz, Th. Krings, A. Pee, E.G. Schlechtendahl, G.F. Schultheiß,
Ergebnisse aus dem Betrieb eines "Prototyp-Informationssystems zur
Reaktorsicherheit (RESI)",
Atomwirtschaft-Atomtechnik, XVIII/Nr. 10, Oktober 1973, pp. 469-471

H. Sameith, G.F. Schultheiß, D. Smidt,
Forschungsarbeiten zur Sicherheit von Kernkraftwerken,
Fridericiana, Zeitschrift der Universität Karlsruhe,
LCCC Nr. 79-90856, Heft 13, Nov. 1973, pp. 41-48

J.P. Hosemann, W. Schikarski, H. Wild,
Radioactive pollutants released in accidents at LWR Power Plants -
A Review and Attempt at Classification
IAEA/WMO Symposium on the Physical Behavior of Radioactive
Contaminants in the Atmosphere
Wien, 12.-16. Nov. 1973
(Proc.: IAEA-SM-181/18)

G. Grathwohl,
Erzeugung und Freisetzung von Tritium durch Reaktoren und Wiederauf-
arbeitungsanlagen und die voraussichtliche Belastung bis zum Jahr 2000
Bericht: KFK-Ext. 4/73-36 (1973)

L.A. König, K. Nester, H. Schüttelkopf, M. Winter,
Experimente am Kernforschungszentrum Karlsruhe zur
Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung mit Hilfe
verschiedener Leitsubstanzen
Nov. 1973 , KFK 1918

Projektberichte (beschränkter Verteiler)

F. Porz,

Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Jodisotopen durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000

September 1973

S. Vogt,

Ausbreitungsklimatologischer Standortvergleich

August 1973

M. Fischer,

Statusbericht der Projektleitung über das 1. Halbjahr 1973 des Projekts Nukleare Sicherheit

Oktober 1973

S. Dorner,

Zum Problem der Wasserstofffreisetzung beim Versagen der Notkühlung eines wassergekühlten Reaktors

November 1973

A. Schmitt,

Emissions- und Immissions-Messung im Kernforschungszentrum

November 1973

O. Götzmann, P. Hofmann,

Versuche zum Verhalten der Core-Schmelze

Nov. 1973

S. Dorner,

Versprödung der Zircaloy-Hüllrohre durch die Wasserdampf-Reaktion

Nov. 1973

S. Malang,

Bericht über das Water Reactor Safety Research Meeting der USAEC vom 4. bis 6. Dezember 1973, in Washington

Jan. 1974

Leichsenring, Ammon, Witte,
Edelgasabtrennung nach dem Freonverfahren
Dezember 1973

G.F. Schultheiß, Nietfeld, G.,
Informationssystem zur Reaktorsicherheit RESI -
rechnergestützt durch GOLEM,
z. Veröffentlichung vorgesehen in Siemens-Zeitschrift DATA-REPORT

E.G. Schlechtendahl, G.F. Schultheiß,
Fortschritte im Informationssystem zur Reaktorsicherheit RESI,
KFK-Nachrichten 4/73, pp. 9 - 14

Vorträge gehalten am 11. Dezember 1973 anlässlich des 1. PNS-Jahres-
kolloquiums des Projekts Nukleare Sicherheit:

- M. Fischer: Überblick über das Projekt Nukleare Sicherheit
- R.A. Müller: Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen
bei Kühlmittelverlustunfällen
- J.P. Hosemann: Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines
LWR-Containments
- J.G. Wilhelm: Neue Entwicklungen auf dem Gebiet der Abgassysteme
für kerntechnische Anlagen
- H. Krause: Probleme der Eindämmung und Beseitigung von Kontaminationen
in Betriebs- und Störfallsituationen
- W. Hübschmann: Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Aus-
breitung radioaktiver Gase
- L.A. König, Messung und Überwachung der in der Umwelt erzeugten
M. Winter, Kontaminationen durch Tritium
- G.F. Schultheiß: Entwicklung eines Informationssystems zur Reaktor-
sicherheit RESI