

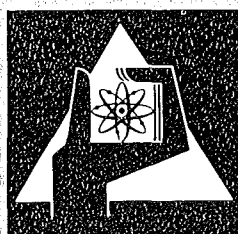
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

August 1974

KFK 2050

Projekt Nukleare Sicherheit

1. Halbjahresbericht 1974



**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

KFK 2050

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

5. Projektbericht / 1. Halbjahr 1974

Gesellschaft für Kernforschung
m.b.H., Karlsruhe

Vorwort

Im Rahmen des Projekts 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

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten des PNS sind Bestandteil des Reaktorsicherheitsforschungsprogramms des BUNDESMINISTERIUMS FÜR FORSCHUNG UND TECHNOLOGIE (BMFT) und werden in Zusammenarbeit mit dem Institut für Reaktorsicherheit (IRS), Herstellern und Betreibern, Gutachtern, Genehmigungsbehörden sowie anderen Forschungsinstitutionen durchgeführt.

Der vorliegende 5. Halbjahresbericht 1/1974 beschreibt die Arbeiten am PNS, die von den Instituten und Abteilungen der GfK und den im Auftrag der GfK arbeitenden externen Institutionen auf dem Gebiet der nuklearen Sicherheit durchgeführt werden. Er enthält außerdem erstmals eine KURZFASSUNG (S. 1 - 69) in deutsch und englisch, in der über

- Durchgeführte Arbeiten
- Erzielte Ergebnisse
- Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

jedes einzelnen Forschungsvorhabens kurz informiert wird.

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Kurzfassung	1
Summary	35
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN	70
4110 Entwicklung von Filtern und Abgassystemen	70
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	70
4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen	79
4114 Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgaben. Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien.	84
4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen und deren Reinigung	91
4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktorkühlmitteln	91
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	94
4131 Messung der Tritiumkontamination der Umwelt	94
4132 Untersuchung der ¹²⁹ J- Radioökologie	99
4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung kerntechnischer Anlagen	103
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen	111
4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen	118
4151 Untersuchungen zur thermischen Belastung des Rheines	118
4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf ihre Umgebung	123

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	129
4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen	129
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen	129
4212 Dynamische Beanspruchung von Druckbehältereinbauten bei Kühlmittelverlustunfällen von LWR	135
4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massen- strommessung in instationären Mehrphasenströmungen	138
4230 Notkühlung von LWR	144
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall	144
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittel- verlustunfall	154
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy- Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlustunfall	154
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall	160
4235.3 Experimentelle Untersuchungen zur chemischen Wechsel- wirkung Brennstoff/Zry-Hülle	169
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown- Phase eines Kühlmittelverlustunfalles Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben	173
4237.1 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Auf- heizphase eines Kühlmittelverlustunfalles In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontami- nations-Loop (DK-Loop) des FR2	178
4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Brennstäben mit Zircaloy-Hülle und einsetzender Kernnot- kühlung	182
4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von defi- nierten Kühlkanalblockagen auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles	190
4240 Coresmelzen von LWR	196
4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO_2 - Zircaloy-Brennstäben bei versagender Notkühlung	196

	<u>Seite</u>
4242 Untersuchungen zur Wasserstoffbildung und -Rekombi- nation beim LWR-Coreschmelzen	210
4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	216
4244 Versuche zur Erstellung von Zustandsdiagrammen und zum Reaktionsverhalten von Corekomponenten sowie phasenanaly- tische Charakterisierung von Abschmelzexperimenten	228
4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	231
4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktions- vorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Stör- fällen	231
4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Aus- breitung radioaktiver Gase	231
4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN	245
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	245
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	245
4412 Verhalten von Plutonium im "Boden"	256
4420 Technik der Räum- und Demontgearbeiten	267
4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen	267
4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte	268
4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG NUKLEARER ANLAGEN	270
4530 Risiko- und Zuverlässigkeitsanalyse nuklearer Anlagen	270
Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1974	275

NUCLEAR SAFETY PROJECT
FIRST SEMIANNUAL REPORT 1974

This 5th Project Report 1/1974 is a description of work on the Nuclear Safety Project performed in the first six months of 1974 in the nuclear safety field by GfK institutes and departments and by external institutions on behalf of GfK. It includes for each individual research activity short summaries (pp. 35 - 69) on

- work completed,
- essential results,
- planning for the near future.

This report was compiled by the project management.

Kurzfassung

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, LFT)

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Es werden Versuche zur Bestimmung des Abscheidungsverhaltens des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 im Strahlungsfeld durchgeführt.

Bei $1,6 \cdot 10^8$ rad Strahlungsdosis, akkumuliert im Strahlungsfeld bei einer Dosisleistung von $2,6 \cdot 10^7$ rad/h, wurde im Jod-Abscheidungstest bei 100 % relativer Luftfeuchte und 80°C mit einem 2,5 cm tiefen Testbett ein Abscheidungsgrad von 99,967 % erreicht. Versuche bei höherer Temperatur und mit radioaktiv markiertem Methyljodid als Prüfmittel sind geplant.

Die Stickoxidentwicklung aus der Imprägnierung des AC 6120 unter Bedingungen, die im Reaktorschutzgebäude eines HTR nach dem Druckentlastungsstörfall erreicht werden können, wurde untersucht und der Einfluß der Veränderung der Imprägnierung auf den Abscheidegrad gemessen. Nach kurzzeitiger Erhitzung auf 360°C war kein Absinken der Abscheideleistung in Abscheidungsversuchen bei Normaltemperatur festzustellen. Dies erlaubt Rückschlüsse auf das Filterverhalten am Ende der Abkühlphase nach einem HTR-Störfall. Bei hohen Abscheidetemperaturen wurden selbst nach starker Zersetzung der Imprägnierung hohe Abscheidegrade gemessen. Der Einfluß von Druck und Durchflußgeschwindigkeit auf die Zersetzung ist zu klären.

Erste Versuche zur Flammenverdampfungsmethode als Aerosol-Erzeugungsverfahren zur Prüfung von Schwebstofffiltern bei hoher Temperatur und Feuchte wurden durchgeführt. Es bestehen noch Schwierigkeiten bei der Dosierung kleiner Aerosolmengen. Fließmittel und Dosiermethoden werden erprobt.

Eine Prototyp-Störfallumluftfilteranlage wurde an den technischen Filterprüfstand angeschlossen. Nach Abschluß des Austausches der Feuchtmess-

richtungen ist der Probetrieb unter simulierten Störfallbedingungen in bezug auf Feuchte und Temperatur geplant. Versuche unter Druck werden nach Errichtung des Druckbehälters im geplanten Erweiterungsbau durchgeführt.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das Reaktionsverhalten von sekundärem und tertiärem Butyljodid an AC 6120 wurde aufgeklärt. Die Versuche zum Reaktionsverhalten werden mit Arylhalogeniden fortgesetzt.

Mischimprägnierung des AC 6120 führte zu geringeren Auswachsrate des Imprägnierungsmittels. Unter den Bedingungen der Abgasfiltration in Wiederaufarbeitungsanlagen tritt kein wesentlich verringerter Abscheidegrad durch Mischimprägnierung auf. Die Versuche werden über längere Standzeiten fortgesetzt.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Alterungsuntersuchungen an TEDA-imprägnierten Kohlen wurden durchgeführt. Vergleichsuntersuchungen an KJ-imprägnierten Aktivkohlen unter gleichen Bedingungen sind noch nicht abgeschlossen. Bei tiefen TEDA-imprägnierten Aktivkohlenbetten scheint ein besseres Alterungsverhalten als bei Verwendung von KJ-imprägnierten Aktivkohlen vorzuliegen.

Unterjodige Säure als penetrierende Jodverbindung in Abgasen kerntechnischer Installationen wird diskutiert. Bisherige Versuche ergaben keine Flüchtigkeit von HOJ. Versuche bei höheren Feuchten und Temperaturen des Trägergases (Feuchtluft) werden z. Z. durchgeführt.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen und deren Reinigung

4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktorkühlmitteln
(I. Michael, G. Bechtold, W. Götzmann, IRB)

Durchgeführte Arbeiten

Untersuchung der Eigenmetallabgaberate eines Autoklaven.

Betriebsdaten des Autoklaven:

Druck: 230 bar, Temperatur: 480 °C, Volumen 3,9 Liter.

Physikalisch-chemische Analytik: Atom-Absorptions-Spektroskopie.

Der Autoklav wurde bei Zwischenwerten der Temperatur bis 300 °C und der Drücke bis 86 bar insgesamt ca. 1000 Stunden betrieben.

Erprobung einer industriell gefertigten Email-pH-Sonde 574 Stunden bei 107 °C und 1,3 bar und 380 Stunden bei 200 °C und 16 bar.

Erzielte Ergebnisse

Die mittlere Metallabgaberate bei 300 °C und 86 bar betrug für Eisen: 0,13 mg/dm² · Tag.

Für Nickel und Chrom: Nicht nachweisbar.

Der Angriff auf die Email-pH-Sonde durch das Druckwasser war bei 107°C noch gering, bei 200 °C jedoch erheblich.

Die Stoffabgabe, offenbar aus dem Na₂O-Gehalt des verwendeten Emails an das Wasser führte nach 380 Stunden zu einem Anstieg des pH-Wertes von 5,6 auf 12,0.

Mittlere Na-Abgabe 130 mg Na/dm² · Tag.

Visuell feststellbar erhebliche Beschädigung der pH-Sonde.

Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Untersuchung der Metallabgaberate des Autoklaven bis 345 °C und 160 bar und danach von Incoloy 800 bis zu den gleichen Betriebszuständen.

Um den störenden Einfluß chemisch gleichartiger Stoffkomponenten bei den Untersuchungen der Metallabgaberate und der Löslichkeit von Fremdstoffen zu verhindern, wurden Vorbereitungen zur Aufbringung einer Schutzschicht aus Gold getroffen.

Erweiterung der pH-Meßtechnik über die Glaselektrodenteknik hinaus auf der Basis einfacher Metalloxide wie z.B. Zirkonoxid.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das Programm zur Messung der Tritiumkontamination der Umwelt wurde fortgeführt. Im 1. Halbjahr 1974 wurden insgesamt 1225 Proben genommen und gemessen. Davon entfallen 498 auf Oberflächengewässer, 196 auf Grundwasser, 263 auf Trinkwasser und 237 auf Niederschläge. Hinzu kommen noch 31 Sonderproben. Da die Tritiumkonzentration im Niederschlag und daraus resultierend in verschiedenen Wasserproben anderer Herkunft einen jahreszeitlichen Gang zeigt, sollen die im 1. Halbjahr gewonnenen Meßergebnisse erst am Jahresende diskutiert werden.

Es ist beabsichtigt, zukünftig an verschiedenen Stellen der Flußläufe in Baden-Württemberg kontinuierlich Wasserproben zu nehmen und auf Tritium auszumessen, was nicht nur eine erhebliche Erweiterung des überwachten Bereiches bedeutet, sondern auch genauere Aussagen über die mittlere Tritiumkontamination des Flußwassers bringen wird.

4132 Untersuchung der ^{129}J -Radioökologie
(H. Schüttelkopf, ASS)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

^{129}J ist ein Radionuklid mit $1,6 \cdot 10^7$ a Halbwertszeit und wird von Wiederaufarbeitungsanlagen während der Auflösung und der folgenden Behandlung der Reaktorbrennelemente abgegeben.

Das Radionuklid tritt über Abwasser und Abluft aus der Anlage aus. Dosisbetrachtungen haben gezeigt, daß bei einer Anlage mit 1500 to Jahresdurchsatz über den Milchpfad wesentliche Überschreitungen der für Kleinkinder empfohlenen maximalen Jahresdosis schon bei eintägigem Ausfall der Jodrückhalteanlage eintreten können. Anreicherungen um die amerikanischen Anlagen Nuclear Fuel Services, West Valley, SRP, Savannah River und Purex 200 E, Hanford, wurden beobachtet, welche zum Teil bis zu der kritischen

spezifischen ^{129}J -Aktivität des natürlichen Jodes reichten. Eine Studie der ^{129}J -Radioökologie unter besonderer Berücksichtigung der Deposition am Boden und der Wanderung im Boden, des Milchzyklus', des Wasser-Fisch-Systems und der Sedimentationsanreicherung sind notwendig. Die WAK stellt in der BRD die einzige Möglichkeit für solche Studien dar.

Bisher wurde eine analytische Methode für ^{129}J in Abwasser entwickelt, ein ^{129}J -Eichstandard für die Neutronenaktivierung hergestellt, analytische Methoden für Luftfilter, Milch-, Boden-, Pflanzen- und Fleischproben entwickelt und die ^{129}J -Gehalte von ca. 45 Abwasserchargen der WAK gemessen.

- 4134 Langfristige radiologische Belastungen durch eine Anhäufung kerntechnischer Anlagen
(A. Bayer, R. Kalckbrenner, T.N. Krishnamurthi, D. Schiesser, M. Schückler, INR)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Arbeiten zur Berechnung der radiologischen Belastung im Oberrheingebiet durch kerntechnische Anlagen wurden fortgesetzt mit der Erstellung von Programmteilen zu den atmosphärischen und hydrosphärischen Transportvorgängen. Für die betrachtete Region wurden die kerntechnischen Anlagen zusammengestellt, die nach verschiedenen Verlautbarungen vermutlich bis etwa 1985 in Betrieb gehen werden. Unter Zugrundelegung der veröffentlichten Abgaberaten von in bereits in Betrieb befindlichen Anlagen und der Abgaberaten, die bei zukünftigen modernen Kernkraftwerken zu erwarten sind, wurden die in der Atmosphäre und der Hydrosphäre zu erwartenden Tritium-, Edelgas- und Jod-131-Konzentrationen und die resultierenden Dosen berechnet. Für einige Isotope von Strontium, Ruthenium, Cäsium und Cer wurden Freisetzungsraten zusammengestellt und ausgewertet, um sie als Eingangsdaten in das Programm einzubauen.

4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft
kerntechnischer Anlagen
(v. Ammon, IHCH, Hutter, RBT, C.H. Leichsenring, PNS-PL)

Durchgeführte Arbeiten

Die beiden Verfahren

- Absorption in flüssigem Frigen-12 (FA)
- Tieftemperatur-Rektifikation (TTR)

wurden für die Abtrennung der Spaltedelgase Krypton und Xenon aus dem Abgas einer großen Wiederaufarbeitungsanlage detailliert untersucht. Zusammen mit der Industrie (FA: Fa. Nukem; TTR: Fa. Linde AG) wurden Ingenieurprojekte ausgearbeitet, auf deren Grundlage eine Verfahrensauswahl getroffen wurde und eine Versuchsanlage zur Durchführung zunächst kalter Tests spezifiziert wurde.

Erzielte Ergebnisse

Ein Vergleich der Vor- und Nachteile der beiden Verfahren führt zu folgenden Schlußfolgerungen:

- a) Das größere Entwicklungspotential der TTR liegt darin, daß das Endprodukt Krypton konzentriert und verunreinigungsfrei gewonnen werden kann. Damit werden die Endlagerkosten und -Risiken für eine große WA-Anlage wesentlich geringer sein.
- b) Das geringere Entwicklungsrisiko der TTR liegt in folgenden Parallel-Aktivitäten: in Idaho Falls, USA (ICCP) wurde eine Anlage zur Gewinnung von ⁸⁵Kr entwickelt und betrieben, allerdings bisher nicht mit dem Ziel eines hohen Dekontaminationsfaktors für Kr und ohne Abtrennung von O₂; bei der Fa. Air Products Corp. (Allentown, USA) wird die Entwicklung der TTR für die Anwendung in Kernkraftwerken vorangetrieben; beim CEA ist ebenfalls eine Präferenz für die TTR festzustellen.

Demgegenüber wurde die FA bisher lediglich bei der ORGDP in Oak Ridge (USA) kalt erprobt. Darüber hinausgehende Anlagen sind bisher nicht in Angriff genommen worden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Auf der Grundlage dieser Ergebnisse wird nunmehr die Entwicklung der TTR als aussichtsreicheres Verfahren und der dazu notwendigen Vorreinigung in kalten und heißen Tests verstärkt fortgesetzt. Bis Ende 1974 wird der Auftrag zum Bau der Versuchsanlage erteilt.

4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die im Rahmen des Meßprogramms erforderlichen Baumaßnahmen bei Rheinhausen wurden abgewickelt. Es stehen somit ein Meßmast im Rhein, ein 40 m hoher meteorologischer Mast am Ufer sowie eine hochwassergeschützte Datenhütte zur Verfügung. Die Installation der Meßleitungen ist jeweils bis zu den Anschlußkästen fortgeschritten.

Auf der Seite der Meßtechnik sind bis auf wenige Ausnahmen Sonden, Versorgungs- und Vorverstärkereinheiten zur Endmontage vorbereitet. Die Aufgaben des Prozeßrechners wurden spezifiziert und werden derzeit in ein Programm umgesetzt.

Im 2. Halbjahr 1974 wird die Meßtechnik montiert bzw. installiert und nötigenfalls geringfügig erweitert.

Danach läuft die Test- und Erprobungsphase an, mit deren Ende im Spätherbst gerechnet wird, so daß noch in diesem Halbjahr zum regulären Meßbetrieb übergegangen werden kann.

4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf
ihre Umgebung
(K. Nester, ASS)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Es wurde eine erste Version eines Computer-Programms zur Berechnung des Aufstiegs von Kühlturmflüssen erstellt. Dieses Programm erlaubt die

Berechnung der dreidimensionalen Verteilung von Temperatur, Vertikalgeschwindigkeit und Feuchte in der Fahne in Abhängigkeit von beliebigen Umgebungsbedingungen. Für die Verbreitung der Fahne senkrecht zur mittleren Strömungsrichtung wird ein Diffusionsansatz gemacht. Es werden in dieser ersten Version des Programms nur solche Fälle behandelt, bei denen kein Ausregnen von Tröpfchen zu erwarten ist. Die Ergebnisse werden an einem Beispiel erläutert. Auffällig ist die asymmetrische Verteilung der oben genannten Parameter mit einem starken Gradienten an der Luv-Seite der Fahne.

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen
(E. Wolf, IRE)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Experimentelle Untersuchungen des lokalen Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage der Kondensationskammer und Messungen der Massenströme des während des Kühlmittelverlustunfalls in die Kondensationskammer strömenden Dampf-Wasser-Luftgemisches wurden im Rahmen der 1:1-Blow-downversuche im Kernkraftwerk MARVIKEN (Schweden) im Zeitraum August 1972 bis Mai 1973 durchgeführt. Im 1. Halbjahr 1974 wurden die Berichte über die eingesetzte Instrumentierung (MXA-1-110 und 111 Instrumentation I und II) fertiggestellt. Mit der Auswertung und Darstellung der Meßergebnisse wurde begonnen. Danach kann das untersuchte Druckpulsationsfeld als eine Überlagerung von relativ flachen stochastischen Druckpulsationswellen interpretiert werden, die in einigen schmalen Bändern im Frequenzbereich von 3 Hz bis 40 Hz konzentriert sind. In den einzelnen Frequenzbändern liegen die Effektivwerte der Druckamplituden im Bereich von $0,005 \text{ kp/cm}^2$ bis $0,1 \text{ kp/cm}^2$. Zwischen der Spektraldichte der Druckpulsationen und den Zeitverläufen der gemessenen Dampf-, Wasser- und Luftströmungen in die Kondensationskammer wurde qualitativ ein Zusammenhang festgestellt. Die Interpretation der beobachteten Phänomene und die Aufstellung entsprechender theoretischer Modelle ist das Ziel zukünftiger Arbeiten.

Ein Instrumentierungsvorschlag für die Messungen des Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage der Kondensationskammer und für die Messung der dynamischen Reaktion des Sicherheitsbehälters im Kernkraftwerk Brunsbüttel wurde ausgearbeitet. Die Messungen werden in Zusammenarbeit mit der KWU im Rahmen der Inbetriebnahme des Kraftwerkes in der zweiten Jahreshälfte 1974 durchgeführt. In diesem Fall wird der Wasserdampf über die Entlastungsventile in die Wasservorlage der Kondensationskammer eingeblasen.

Um die Berechnungen der dynamischen Reaktion des Sicherheitsbehälters auf das gegebene Druckpulsationsfeld zu ermöglichen, wurde in die Rechen-

anlage IBM 370/175 ein ICES-STRUDL-Programmsystem implementiert. Einige Berechnungen unter vereinfachten Annahmen konnten bereits durchgeführt werden. Die Erweiterung der Berechnungsmöglichkeiten mit diesem System ist für die Zukunft geplant.

4212 Dynamische Beanspruchung von Druckbehältereinbauten bei Kühlmittelverlustunfällen von LWR

Sicherheitsexperimente am HDR - Belastungen von RDB-Einbauten durch Druckentlastung während eines Kühlmittelverlustunfalles (J.W. Palmowski, PNS-PL)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Auftrag des BMFT wurden unter Federführung des PNS in Zusammenarbeit mit verschiedenen Institutionen die Sicherheitsexperimente im HDR - Teilprojekt Blowdown-Versuche - spezifiziert. Bei den Blowdown-Versuchen handelt es sich u.a. um experimentelle und theoretische Untersuchungen der Belastung von RDB-Einbauten durch Druckentlastung während eines Kühlmittelverlustunfalles. Diese Untersuchungen besitzen eine hohe Priorität. Die HDR-Anlage bietet für die Durchführung derartiger Sicherheitsexperimente eine einmalige Gelegenheit, da ein relativ großer RDB mit entsprechenden Stützen und Nennweiten bei relativ geringer Aktivierung zur Verfügung steht. Aus Zeitgründen konnten jedoch in der Spezifikation nicht alle Probleme ausreichend betrachtet werden, so daß eine Detaillierungsphase erforderlich wird. Der Terminplan sieht eine Reihe von simulierten DWR- sowie einige SWR-Versuche vor.

4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrom-
messung in instationären Mehrphasenströmungen
(R. Löffel, LIT)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Zweiphasenmassenstrommessung spielt vor allem bei den Reaktorsicherheitsexperimenten eine wesentliche Rolle. Geeignete Meßverfahren sind noch nicht ausgereift oder müssen erst noch entwickelt werden. Zu den erfolgversprechendsten Verfahren gehört das Radionuklidverfahren des LIT, mit dem der Zweiphasenmassenstrom aus der getrennten Geschwindigkeitsmessung beider Phasen mittels zweier verschiedener Radiotracer und einer damit gekoppelten γ -Absorptionsdichtemessung bestimmt werden soll. Das Verfahren soll in den nächsten Jahren entwickelt und bei verschiedenen Reaktorsicherheitsexperimenten eingesetzt werden.

Zur Vorbereitung der Radiotracergeschwindigkeitsmessungen im Rahmen des Marviken-Nachfolgeprogramms sowie für die Battelle-Blowdown-Experimente RS 50 wurde mit der Planung einer Teststrecke für das System gas/flüssig und mit dem Aufbau einer 12-Sonden-Geschwindigkeitsmeßeinrichtung begonnen. Einzelheiten dieser Arbeiten werden im nächsten Berichtszeitraum beschrieben werden.

Die bei der Abteilung Reaktorbetrieb und Technik (RBT) erstellte Argon-Aktivierungseinrichtung wird voraussichtlich ab August 1974 betriebsbereit sein.

- 4230 Notkühlung von LWR
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall und zur Auswirkung von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung
- 4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall
(D. Kirsch, IRE; H. Unger, IKE/Stuttgart)

Durchgeführte Arbeiten

Die Programme THETA 1B zur transienten thermischen Berechnung von LWR-Brennstäben und RIBD zur Berechnung der Spaltprodukt-Konzentrationen abhängig von Abbrandzustand des Brennstabes wurden als Moduln des Programmsystems SSSYST verfügbar gemacht. Als neue Moduln dieses Programmsystems zur Beschreibung des Brennstabverhaltens beim Kühlmittelverlustunfall wurden ein Modul zur Berechnung des Innendruckes (basierend auf RIBD), ein Modul zur Berechnung der Wärmeübergangszahl im Spalt und verschiedene Steuermoduln für das Zusammenspiel von hydraulischer, thermischer und Deformations-Analyse programmiert und ausgetestet. Der vorläufig zur Deformations-Analyse benutzte Modul HRODE 2 wurde unter Berücksichtigung von Kriechvorgängen (Nortonsches Kriechgesetz) verbessert.

Zur Absicherung der hydraulischen Analyse des Blowdown wurde eine Vergleichsrechnung zwischen den Programmen RELAP 3 und BRUCH-D durchgeführt. Für verschiedene experimentelle Vorhaben (PNS 4236, 4237, 4238) wurden Auslegungsrechnungen durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

Eine erste Rechnung zur Hüllrohrdeformation beim Kühlmittelverlustunfall brachte insofern gute Ergebnisse, als sich ein sehr gut aufeinander abgestimmtes Zusammenspiel der bereits vorhandenen Moduln zeigt. Quantitative Ergebnisse dieser Rechnungen anzugeben ist noch nicht sinnvoll, da wesentliche Moduln bei dieser Rechnung noch fehlten (z.B. Innendruck-Modul).

Die Vergleichsrechnungen BRUCH-D/RELAP 3 ergaben fast immer qualitativ,

meist auch quantitativ recht gut übereinstimmende Ergebnisse.
Über die Ergebnisse der Auslegungsrechnungen wird bei den entsprechenden Vorhaben berichtet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Für das nächste Halbjahr sind als wesentliche Aufgaben vorgesehen:

- Bereitstellung von RELAP 4;
- Fertigstellung des Innendruckmoduls zur besseren (axial feiner unterteilten) Berechnung der Kühlkanalhydraulik;
- Bereitstellung eines Moduls zur Beschreibung der Hydraulik des Primärkreises beim Wiederauffüllen des Kerns;
- Erstellung eines Moduls zur verbesserten, zweidimensionalen (rotations-symmetrischen) Beschreibung der Hüllrohrdeformation;
- Fortführung der Auslegungsrechnungen
- Konzipierung einer Erweiterung des Programmsystems zur Beschreibung von Stabbündeln beim Kühlmittelverlustunfall.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohren
(M. Božek, IMF)

Durchgeführte Arbeiten

Das Versuchsprogramm zur Untersuchung der Texturänderung von Zircaloy-hüllrohren bei typischen LOCA-Temperaturtransienten und deren Einfluß auf das plastische Verhalten von Zircaloy-4-Hüllrohren wurde fortgesetzt.

Erzielte Ergebnisse

Die Zircaloy-4-Hüllrohrsegmente, die einer Wärmebehandlung bei konstanter Glühtemperatur von 1260 °C und einer Aufheizgeschwindigkeit von 35 °C/sec

unterzogen wurden, zeigen eine deutliche Änderung der Textur. Diese vollzieht sich bei 1260 °C in den ersten 10 Sekunden. Danach bleibt die Textur bis für $t_a \approx 120$ sec unverändert und zeigt dann wieder eine Vergrößerung des Kippwinkels der $\langle 0002 \rangle$ Basispole gegen die Axial-Radialrichtung des Rohres. Proben aus Hüllrohrsegmenten, die derselben Wärmebehandlung unterzogen wurden, sind in Zugversuchen bei 400 °C verformt worden. Das Verhalten der Bruchspannung und der Gleichmaßdehnung, gegen die Glühzeit aufgetragen, zeigt einen analogen Verlauf wie der Kippwinkel der Basispole.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- Weitere Versuche zur Untersuchung der Texturänderung bei unterschiedlichen Aufheizgeschwindigkeiten sind als Abschluß dieser Untersuchung geplant;
- das mechanische Verhalten an voroxidierten Zugproben wird gegenwärtig in einem Temperaturbereich von 370 °C - 1200 °C untersucht.

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy-Hüllmaterial
(S. Leistikow, IMF)

Durchgeführte Arbeiten

Isotherme und temperaturtransiente Zircaloy-4/Wasserdampf-Oxidationsreaktionen wurden unter Verwendung gebeizter Rohrabschnitte bei 900 °C bis 1300 °C während 2 - 15 Minuten aufgeführt.

Erzielte Ergebnisse

Die Sauerstoffaufnahme und -verteilung wurde durch gravimetrische und metallographisch-planimetrische Methoden ermittelt. Die Messungen ergeben nach einem kurzen Zeitraum hoher Oberflächen-Reaktionsgeschwindigkeit lineare Zeitgesetze mit zunehmenden Geschwindigkeitskonstanten sowie ein in erster Näherung temperaturunabhängigen, zu der aufgenommenen Sauerstoffmenge lineares Wachstum der sauerstoffreichen Phasen.

Der Versuch, isotherme Reaktionen durchzuführen, wurde durch freiwerdende Reaktionswärme mit Temperaturüberhöhungen der Proben um 240°C - 280°C vereitelt. Dieser Effekt klingt mit zunehmender Voroxidation ab.

Dem Zeit-bei-Temperatur-Verlauf eines Kühlmittelverlustunfalles ähnliche transiente Bedingungen wurden erstmals angewandt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die dem Kühlmittelverlustunfall maßstäblichen Untersuchungen sollen unter induktiver Beheizung der Proben demnächst reproduzierbar elektrisch gesteuert und von nachgeordneter mechanischer Prüfung des Versuchsmaterials begleitet werden.

4235.3 Experimentelle Untersuchungen zur chemischen Wechselwirkung
Brennstoff/Zircaloy-Hülle
(P. Hofmann, O. Götzmann, IMF)

Im Rahmen dieses neu aufgenommenen Versuchsprogramms soll die Änderung der mechanischen Eigenschaften von Zircaloy-4 durch chemische Wechselwirkungen mit dem Oxidbrennstoff und den Spaltprodukten während eines Kühlmittelverlustunfalls in out-of-pile-Experimenten untersucht werden. Die Versuche werden mit kurzen Zry-Brennstäben, die mit spaltprodukt-dotiertem Oxidbrennstoff gefüllt sind, unter isothermen und transienten Temperaturbedingungen durchgeführt. Das Ziel dieser Untersuchungen ist, die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren in Abhängigkeit von der Temperatur, der Zeit und dem Abbrandzustand (Sauerstoffpotential, Spaltproduktkonzentration) des Brennstoffes zu ermitteln.

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Versuche über die Verträglichkeit von UO_2 -Ringpellets mit dem Graphit-Heizstab wurden abgeschlossen. Messungen, theoretische Überlegungen sowie erste Versuche in einer Testanordnung mit komplettem Stabaufbau zum

elektrischen Verhalten des Brennstabsimulators wurden durchgeführt. Die konstruktive Stabausführung wurde in Angriff genommen.

Zwei Kreislaufkomponenten wurden untersucht. Die technischen Spezifikationen für die Hauptkomponenten des Kreislaufes wurden ausgearbeitet; diese Komponenten befinden sich im Anfragestadium, die Umwälzpumpe wurde bestellt.

Die Anforderungen an die Meßgeräte wurden spezifiziert, die Gamma-Durchstrahlungsmethode zur instationären Dichtemessung untersucht. Ein Meßgerät für die instationäre Messung des Zweiphasenmassenstromes ("true mass flow meter") wurde entwickelt und in Vorversuchen erprobt.

Erzielte Ergebnisse

Die Kurzzeitverträglichkeit von UO_2 mit Graphit bis ca. 2900°C wird durch Aufdampfen einer Sperrschicht aus Tantalkarbid auf den Graphit hinreichend gesichert. Auf den UO_2 -Ringpellets muß zur Verbesserung der Isolationswirkung eine elektrisch nicht leitende Sperrschicht aufgebracht werden, um bei dem im Extremfall möglichen sehr kleinen spezifischen Widerstand von UO_2 einen Stromdurchschlag zur Hülle zu vermeiden.

Eine Absicherung der Durchführbarkeit des Kreislaufkonzeptes hinsichtlich des Versuchszieles konnte mit RELAP 3-Rechnungen (vgl. PNS 4231) erreicht werden. Bei der Dichtemessung in den Kühlmittelpfaden mittels Gammadurchstrahlung läßt sich ohne bzw. mit Berücksichtigung der inhomogenen Phasenverteilung eine Meßunsicherheit von ca. 2 % bzw. 5 % erreichen. Die Funktionsfähigkeit des true mass flow meter-Meßprinzips konnte in Vorversuchen demonstriert werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Untersuchungen zur Aufbringung einer elektrischen Isolierschicht auf den UO_2 -Ringpellets werden fortgeführt.

Sobald die endgültigen Randbedingungen für die Stabanordnung festliegen, kann die eigentliche Teststrecke konstruktiv angegangen werden. Die wesentlichen Komponenten des Kreislaufes werden bis zur Bestellreife geführt.

Die Instrumentierung der Teststrecke und des Kreislaufes wird weiterentwickelt. Über die Ausführung der Gammadurchstrahlung und des true mass flow meter für Blowdown-Bedingungen wird in Kürze entschieden.

4237.1 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, RBT)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Das Hauptziel der Arbeiten im Berichtszeitraum lag auf der Vorbereitung und Durchführung von Vorversuchen mit Brennstabprüflingen, die geometrisch denen der Hauptversuche entsprechen. Die Brennstäbe wurden nach der Spezifikation deutscher Druckwasserreaktoren hergestellt. Im Unterschied zu den DWR-Stäben der Leistungsreaktoren sind die Vorversuchsstäbe lediglich kürzer (Gesamtlänge rund 700 mm), ohne unteres Plenum, mit verkürztem oberem Plenum sowie ohne Vorinnendruck ausgeführt.

Zwei Versuchsreihen waren im Juni 1974 durchgeführt worden. Sie werden zur Zeit ausgewertet. Ein dritter Stab wird voraussichtlich im Juli in den FR2 eingesetzt.

Wie bei den Hauptversuchen wird die Aufheizung des Brennstabes (Transiente) durch die Unterbrechung der Dampfkühlung erreicht. Die Beendigung der Transiente erfolgt durch die Rücknahme der Reaktorleistung. Mit jedem Brennstab werden mehrere Transienten durchgeführt.

Das Ziel dabei ist es, diejenige Brennstableistung zu ermitteln, mit der der Referenztemperaturverlauf der Hülle während der 2. Aufheizphase eines LOCA (Temperaturanstieg) am besten wiedergegeben wird.

Als Referenztemperaturverlauf der Hülle werden die von den Reaktorherstellern neu berechneten Temperaturverläufe zugrunde gelegt. Diese neuen Rechnungen weisen gegenüber den vorherigen gerade in der 2. Aufheizphase des LOCA gravierende Unterschiede auf: Der Temperaturanstieg zu Beginn ist um mehr als eine Größenordnung geringer (etwa 10 K/S statt bisher 160 K/S), die Temperatur zu Beginn liegt mit 700 bis 800 °C wesentlich über der des Normalbetriebes.

Vorausberechnungen der hydraulischen Daten bei den Vorversuchen mit dem RELAP 3-Programm wurden im Juni vom IKE Stuttgart fertiggestellt. Für die Transiente wurden Massenstrom, Druck und Wärmeübergangszahl als Zeitfunktion ermittelt. Daraus soll die Thermodynamik des Brennstabes und seiner Umgebung berechnet werden. Zur Zeit steht das vom IKE Stuttgart dafür vorgesehene Programm noch nicht zur Verfügung.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Rechnungen und Vorversuche zur Brennstabauslegung, insbesondere zur Festlegung der Anfangsanreicherung des Brennstoffs, werden fortgesetzt. Die Spezifikation der Brennstäbe soll noch in diesem Jahr erfolgen.

4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden
 Zircaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung
 (K.Wiehr, H.J. Neitzel, IRB)

Durchgeführte Arbeiten

Zur Erzielung einer größeren Rechengenauigkeit bei gleichzeitiger Senkung der Rechenkosten mußte der bisher bei den Auslegungen verwendete Wärmeleit-Code auf das Verfahren nach Crank-Nicholson umgestellt werden. Mit Hilfe des neuen Codes wurden weitere Auslegungsrechnungen für Brennstabsimulatoren durchgeführt.

Weiterhin wurde ein detailliertes Versuchsprogramm aufgestellt. Die konstruktive Planung des Versuchsstandes wurde abgeschlossen.

Die Planung für eine zentrale Messdaten-Erfassung und das Erstellen der dazugehörigen Auswerte-Programme wurde in Angriff genommen.

Für die Beobachtung des Aufblähvorganges des Hüllrohres wurde die Röntgendurchleuchtungstechnik auf ihre Verwendbarkeit untersucht. Bezüglich der berührungslosen Temperaturmessung an der aufblähenden Stelle des Hüllrohres wurden verschiedene Meßverfahren überprüft.

Erzielte Ergebnisse

Mit Hilfe des neu erstellten Wärmeleit-Codes wurden drei Brennstabsimulatoren ausgelegt, welche eine zufriedenstellende thermodynamische

Übereinstimmung mit dem Brennstab aufweisen.

Die Konstruktion des Versuchsstandes wurde vom TÜV abgenommen. Für die zentrale Meßdaten-Erfassung und -Verarbeitung wird das bei der GfK vorhandene System CALAS eingesetzt werden. Bezüglich der Röntgenkinematographie konnte durch Vorversuche gezeigt werden, daß diese ein aussichtsreiches Verfahren zur meßtechnischen Erfassung des Aufblähvorganges der Zircaloy-Hülle darstellt. Die berührungslose Temperaturmessung soll durch Umbau eines neueren Quotientenpyrometers ermöglicht werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im Vordergrund stehen fertigungstechnische Probleme der Simulatorentwicklung.

Weitere Vorversuche mit einer Röntgeneinrichtung müssen zeigen, daß auch rasch verlaufende Aufblähvorgänge erfaßt werden können.

Als weitere Arbeiten stehen an:

Umbau des Quotientenpyrometers, Aufbau des Prüfstandes, Auslegung der Stromversorgung und Erstellung von Auswerteprogrammen für die zentrale Datenerfassung.

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

Durchgeführte Arbeiten

Entwurf und Konstruktion des Versuchskreislaufes wurden fortgesetzt und weitgehend abgeschlossen. Fehlende Teile sind und werden bestellt. Für den Teststreckenentwurf und die Auswahl und Vorprüfung geeigneter Meß- und Beobachtungsverfahren wurde eine kleine Versuchsanordnung aus zwei Heizstäben aufgebaut und in Betrieb genommen.

Zur Auswahl, Beschaffung und Instrumentierung geeigneter Heizstäbe und Blockagekonfigurationen wurden zwei Vorversuche durchgeführt, in denen die Wärmedurchgangszahl zwischen Stromleiter und Hülle des vorgesehenen Heizstabes und weitere, für instationäre Wärmeleitrechnungen wichtige thermische Heizstabeigenschaften bestimmt wurden. Ein Vorversuch

zur Betriebsprüfung der vorgesehenen Blockage und ihrer Befestigung auf dem Heizstab wurde vorbereitet.

Vergleichsrechnungen zum thermischen Verhalten von Brennstab und Heizstab während des Flutens wurden durchgeführt, mit dem Ergebnis, daß weitere Rechnungen nur nach Vorgabe konkreter zeitabhängiger Kühlbedingungen für Einzelfälle sinnvoll sind.

Erzielte Ergebnisse

Die Wärmedurchgangszahl zwischen Wärmequelle und Wand im Heizstab wurde bei geringer Temperaturabhängigkeit zu etwa $0,03 \text{ W/cm}^{\circ}\text{C}$ gemessen.

In einer gemischt experimentellen und rechnerischen Untersuchung wurden die spezifische Wärmekapazität des Heizstabisolators und die Wärmeübergangszahl zwischen Isolator und Hülle des Heizstabs bestimmt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im 2. Halbjahr 1974 werden die Vorversuche zur Teststreckenauslegung, zur Beobachtungs- und Meßtechnik und zur Blockagebefestigung im Vordergrund stehen. Daneben ist die Konstruktion der Teststrecke und der Aufbau des Versuchskreislaufes vorgesehen. Die Lieferung der Heizstäbe für die erste Versuchsanordnung wird im 4. Quartal 1974 erfolgen.

4240 Coreschmelzen von LWR

4241 Experimentelle Untersuchungen zur Abschmelzphase von
UO₂-Zircaloy-Brennstäben bei versagender Notkühlung
(S. Hagen, RBT)

Durchgeführte Arbeiten

In dem ersten Untersuchungsabschnitt zum Abschmelzverhalten der Brennelemente von Leichtwasserreaktoren in Wasserdampfatosphäre werden die dort vorliegenden Verhältnisse durch Aufheizen eines im Wasserdampf voroxidierten Einzelstabes im Schutzgas simuliert. Für diese Untersuchung wurde ein vorhandener Kessel umgebaut, mit den notwendigen Einrichtungen (Fenster, Stromdurchführungen, Einspannvorrichtung usw.) versehen, an die Versorgungsaggregate (Strom, Vakuum, Schutzgas, Kühlung) angeschlossen und erfolgreich auf seine Funktionsfähigkeit erprobt.

Der Brennstabsimulator wurde entwickelt und ein erster Stab mit 22 cm Länge der UO₂-Säule niedergeschmolzen. Parallel zu diesen Arbeiten wurde die Konstruktion eines Druckkessels durchgeführt, der Bündelversuche in Wasserdampf möglich macht.

Weiterhin wurden Rechnungen zum Oxidationsverhalten bei verschiedener Auslegungsgeschwindigkeit der Hülltemperatur durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

Das Abschmelzen des nicht voroxidierten Stabes erfolgte bei einer Oberflächentemperatur der Hülle von 1870°C nach Anzeige des Pyrometers. Die Leistung wurde so gesteigert, daß die Temperatur mit ca. 0,5°C/sec anstieg und beim Abschmelzen einen Wert von ca. 300 W/cm erreichte.

Praktisch gleichzeitig mit der Hülle schmolz auch das UO₂, was auf eine starke Eutektikumbildung hinweist. Nach dem Abschmelzen umhüllte das Schmelzgut die untere Hälfte des Stabes. Genauere Aussagen können erst nach Durchführung der metallurgischen Untersuchungen gemacht werden.

Die Rechnungen zum oxidativen Verhalten bei verschiedener Temperaturanstiegsgeschwindigkeit nach der Baker-Just-Beziehung zeigen, daß bei

0,5°C/sec die Zircaloyhülle beim Erreichen der Schmelztemperatur das Zircaloy voll durchoxidiert ist, während bei 10°C/sec die Hülle nur ca. 20% durchoxidiert ist.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

In dem vorhandenen Kessel werden Abschmelzversuche an Einzelstäben durchgeführt, bei denen der Oxidationsgrad sowie der zeitliche und örtliche Temperaturgradient (Verwendung von Strahlenschirmen) variiert werden soll. Nach der Fertigstellung des Druckkessels kann mit Experimenten an Einzelstäben und Brennstabbündeln im Wasserdampf begonnen werden. Bei diesen Versuchen soll auch der Einfluß von Abstandhaltern und Abschaltstäben auf das Brennstabversagen untersucht werden.

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

Durchgeführte Arbeiten

Es wurde gezeigt, daß neben der Inertisierung der Räume innerhalb der Sicherheitshülle eines LWR noch die Rekombination des Wasserstoffs ein möglicher Weg zur Vermeidung eines Knallgasgemisches nach einem Coreschmelzenunfall ist.

Der Sachverständigenkreis "Coreschmelzen" empfahl daher, die Anfertigung einer theoretischen Studie über Gleichgewichte und Kinetik bei der Wasserstoffbindung in LWR durch die GfK unter Beteiligung der KWU-RB. Diese Studie wurde im Berichtszeitraum fertiggestellt

Es wurde auf einige Punkte, die eine Rolle bei der Rekombination des bei einem Störfall freigesetzten Wasserstoffs mittels luftgetragener CuO-Partikeln spielen, näher eingegangen. So wurde die Gleichgewichtskonstante der Reaktion



und deren Kinetik auf Grund von Literaturangaben untersucht.

Erzielte Ergebnisse

Aus den Untersuchungen wurden Überlegungen zur praktischen Durchführung der Rekombination angestellt. Es kann geschlossen werden, daß die CuO-Partikeln eine Dicke von weniger als 10 µm haben sollten, um in kurzer Zeit ($\leq 0,4$ sec) reduziert werden zu können.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die genügend rasche Kontaktierung des gasförmigen Wasserstoffs mit den CuO-Partikeln ist noch problematisch. Daher sollen bei Weiterverfolgung dieser Methode experimentelle Untersuchungen durchgeführt werden.

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen
(H. Albrecht)

Durchgeführte Arbeiten

Für den im Dezember 1973 bei der Industrie in Auftrag gegebenen Hochfrequenz-Induktionsofen, in dem Schmelzversuche mit schwach aktiven Coriummengen bis zu 1 kg unter Schutzgas, Luft und Wasserdampf vorgesehen sind, wurden eine Reihe von Zusatzeinrichtungen wie Handschuhbox, Wasserstoffüberwachung, Gasdosiereinrichtungen spezifiziert und in Auftrag gegeben. Ferner wurden alle konventionellen und radiologischen Aspekte des Anlagenbetriebes in einer Sicherheitsbetrachtung dargestellt und dem Ministerium für Arbeit, Gesundheit und Sozialordnung in Stuttgart zur Genehmigung vorgelegt.

Für das zur Temperaturmessung vorgesehene Quotienten-Pyrometer wurde eine Abbildungsoptik und eine Eichmeßstrecke entwickelt, mit der sich mögliche Meßfehler infolge einer selektiven Absorption oder Reflexion des Ofenfensters feststellen lassen. Mit Hilfe von zwei geeichten Wolfram-Bandlampen war es auch möglich, die Langzeitkonstanz der Pyrometer-Anzeige zu untersuchen.

Die in der Schmelzanlage freigesetzten Spalt- und Aktivierungsprodukte werden durch ein Rohrsystem aus Al_2O_3 bzw. Edelstahl zu einer Filterstrecke geführt, die eine Reihe verschieden feiner Glasfaser- und Membranfilter

sowie eine 6 cm lange Aktivkohle enthält. U.U. kommen auch Sintermetallfilter zum Einsatz.

In Vorversuchen sind zunächst die Eigenschaften der Filtermaterialien bzgl. Rückhaltevermögen, Druckverlust und Temperatur- bzw. Wasserdampf-Verträglichkeit zu ermitteln. Dabei wird ein käuflicher Aerosolgenerator eingesetzt, der es gestattet, auch Aerosole von schwerflüchtigen Metalloxiden herzustellen.

Die Vorbereitungen für den Aufbau eines entsprechenden Versuchsaufbaus wurden weitgehend abgeschlossen. Auch die Geräte zur Durchführung der γ -Spektroskopie (Detektor, Vielkanal-Analysator, Magnetbandgerät etc.) sind inzwischen vorhanden.

Für die Auswertung der Freisetzungsversuche wurde mit der Entwicklung eines Rechenprogramms SPALT begonnen, das u.a. dazu dient

- a) die γ -Linien-Intensitäten der im Schmelzgut vorhandenen Spalt- und Aktivierungsprodukte als Funktion der Bestrahlungs- und Kühlzeit auszurechnen.
- b) die γ -Linien der gemessenen Spektren zu identifizieren und aus ihrer Intensität durch Vergleich mit der Inventarrechnung (a) die prozentuale Freisetzung zu bestimmen.

Erzielte Ergebnisse

Um das Verhalten von ThO_2 -Tiegeln gegenüber Corium-Schmelzen zu untersuchen, wurden Versuche sowohl mit hochdichten (90 % TD) als auch porösen (75 % TD) Tiegeln mit etwa 30 g Schmelzgut unter Schutzgas (Ar) durchgeführt. Die Aufheizung erfolgte über einen äußeren Grafitteigel, der an das Induktionsfeld (Mittelfrequenz) ankoppelte.

Beide Tiegelausführungen erwiesen sich als geeignet, flüssiges Corium bei Temperaturen $\geq 2500^\circ\text{C}$ zu halten, ohne daß chemische Wechselwirkungen mit dem Tiegelmateriale auftraten. Der gleiche Befund ergab sich auch bei Versuchen, bei denen alle Coriumkomponenten in oxidischer Form (als ZrO_2 , NiO , Cr_2O_3 neben UO_2) eingesetzt wurden.

Während die porösen Tiegel die Versuche ohne Schaden überstanden, zersprangen die dichteren Tiegel jedesmal beim Abkühlen des erstarrten Coriums. Offenbar können die mechanischen Spannungen, die infolge des unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten von ThO_2 und dem erstarrten Corium auftreten, nur von den porösen Tiegeln durch Kriechvorgänge abgebaut werden. Wichtig ist je-

doch die Feststellung, daß kein flüssiges Corium aus den zerstörten Tiegeln ausläuft, weil es zunächst zur Erstarrung der Schmelze kommt. Oberhalb von etwa 1900°C erfolgt eine mit der Temperatur stark zunehmende Verdampfung von Coriumkomponenten (hauptsächlich von UO_2). Wegen der damit verbundenen Bildung von Rauchschwaden ist eine exakte pyrometrische Temperaturmessung in Frage gestellt.

Um erste Erfahrungen beim induktiven Schmelzen von Corium unter Wasserdampf zu sammeln, wurden Vorversuche mit einer einfachen Glasapparatur durchgeführt. Die ThO_2 -Tiegel wurden dabei mit einer 0,15 mm dicken Grafitfolie umwickelt, die an das Induktionsfeld ($f = 400 \text{ kHz}$) ankoppelte und die in ihr entbundene Wärme von außen an den Schmelztiegel übertrug. Bei ca 1000°C übernimmt das Schmelzgut die Ankopplung an das HF-Feld, weil dann die Grafitfolie verbrennt.

Mit dieser Methode ist es möglich, größere Rißbildungen in der Tiegelfwand während des Aufheizens zu vermeiden (bei früheren Versuchen ohne Grafitfolie waren die Tiegel stets gesprungen). Daneben zeigte sich, daß der Wasserdampf gegenüber einer Luftatmosphäre über dem Schmelzgut keine grundsätzliche Erschwerung der experimentellen Bedingungen bedeutet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Als wichtigste Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen

- Aufbau und Inbetriebnahme der neuen Schmelzanlage
- Installation der Temperatur-Meßtechnik
- Aufbau der Spaltprodukt-Transport- und Filterstrecke
- Versuche mit dem Aerosolgenerator zur Auswahl der Filter (s.o.)
- Vorversuche mit der Gesamtanlage
- Weiterentwicklung des Computer-Codes SPALT

4244 Versuche zur Erstellung von Zustandsdiagrammen und zum Reaktionsverhalten von Corekomponenten sowie phasenanalytische Charakterisierung von Abschmelzexperimenten (H. Holleck, IMF)

Durchgeführte Arbeiten

An im Lichtbogen erschmolzenen und bei verschiedenen Temperaturen homogenisierten Proben des Systems U-Zr-O wurden röntgenographische Untersuchungen sowie Schmelzpunktsbestimmungen durchgeführt. Besondere Bedeutung kam dabei den Schmelzpunktuntersuchungen zu, da sie für die Klärung der Kinetik des Abschmelzvorganges wichtige Daten liefern können.

Die Schmelzpunktbestimmung erfolgte in einem speziellen Hochtemperatur-ofen, bei welchem unter max. 20 bar Schutzgas gearbeitet werden kann. Die Geometrie der Proben wurde so gewählt, daß der Schmelzbeginn beobachtet werden konnte.

Die Temperatur wurde sowohl mit einem Zweifarben-Mikropyrometer (550 mm und 650 mm) als auch mit einem automatischen Teilstrahlungs-pyrometer gemessen. Die Versuchsanordnung wurde durch die Schmelztemperatur von Al_2O_3 (2050°C) und Mo (2610°C) geeicht. Die Genauigkeit beträgt je nach Emissionsverhältnis und Zusammensetzung $\pm 10^\circ\text{C}$ bei 1800°C bzw. $\pm 25^\circ\text{C} - 40^\circ\text{C}$ bei 2840°C (Schmelzpunkt von UO_2).

Erzielte Ergebnisse

Im Gefüge von Proben der Zusammensetzung UO_2 -Zr 50/50 (Mol.%) nach dem Schmelzen bei 2500°C wurden folgende 3 Phasen beobachtet: Primär ausgeschiedenes UO_2 , sekundär ausgeschiedene α -(Zr,O) und ein niedrig schmelzender U,Zr-Mischkristall. Dieses ist ein erster Hinweis darauf, daß auf dem Schnitt UO_2 -Zr ein Dreiphasenfeld (mit einer offensichtlich niedrig schmelzenden Phase) auftritt.

Erste Erfahrung bei der Präparation von Proben aus einem Abschmelzexperiment (PNS 4241) wurden an einem niedergeschmolzenen Stab gewonnen.

Da das Vorhaben PNS 4244 ein neues Programm darstellt, kann über weitergehende Ergebnisse erst zu einem späteren Zeitpunkt berichtet werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Ziel der Untersuchungen ist die Bereitstellung experimenteller Daten über mögliche Phasen-Neubildungen und Reaktionen der Corekomponenten untereinander beim Abschmelzvorgang. Hierzu werden Versuche unter angenäherten Gleichgewichtsbedingungen durchgeführt, um zunächst unter Ausschaltung kinetischer Effekte die in den beteiligten chemischen Systemen potentiell auftretenden Phasen und ihre Stabilitätsbedingungen zu ermitteln. Eine wichtige Fragestellung in diesem Zusammenhang ist: Welche niedrig schmelzenden Phasen und/oder Eutektika existieren im Gesamtsystem oder in Teilsystemen, und welches sind ihre Schmelztemperaturen?

Neben diesen Gleichgewichtsuntersuchungen werden phasenanalytische Untersuchungen an Proben von Abschmelzexperimenten und Verträglichkeitstests anderer Arbeitsgruppen durchgeführt, um einerseits zur Deutung der Abschmelzexperimente beizutragen und andererseits zu einer Einengung der chemischen und thermodynamischen Parameter bei den Systemuntersuchungen zu gelangen.

Den chemischen Zusammensetzungen der hauptsächlichlichen Kernmaterialien UO_2 , Zircaloy und Edelstahl entsprechend bewegen sich die Untersuchungen im polynären System U-Zr-Fe-Cr-Ni-O. Ein wichtiges Teilsystem dieses Gesamtsystems ist das System U-Zr-O, dessen binärer Schnitt UO_2 -Zr die Reaktionsmöglichkeiten zwischen Brennstab und Hülle in nichtoxidierender Umgebung aufzeigt.

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN
BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

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

4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung
radioaktiver Gase

(H. Dilger, W. Hübschmann, L.A. König, D. Papadopoulos, H. Schüttel-
kopf, P. Thomas, S. Vogt, M. Winter, ASS)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Instrumentierung des 200 m hohen meteorologischen Turmes ist mit Inbetriebnahme der Feuchtemeßstellen im wesentlichen abgeschlossen. Die ersten Auswertungen der Temperaturprofile konnten veröffentlicht werden. Mit der Inbetriebnahme der Vektorfahnen konnte auch die Bestimmung der Stabilitätskategorien soweit verbessert und vereinfacht werden, daß eine Bestimmung durch den Prozeßrechner möglich ist. Damit konnte ein Unterprogramm des Prozeßrechners in Betrieb genommen werden, welches Isodosenkarten für kurzzeitige Emissionen auf dem Bildschirm der Sichtstationen darstellt.

Der ausbreitungsklimatologische Standortvergleich in der Rheinebene konnte durch weitere Datenbeschaffung auf 7 Stationen ausgedehnt werden. Zur Prüfung der Berechnung der Gammadosis aus einer gamma-aktiven Abluftfahne werden Meßfahrten mit einem Szintillationsdosimeter unter der Argon-Abgasfahne des FR 2 durchgeführt. Erste Messungen haben gezeigt, daß bei stabilen bis neutralen Wetterlagen eine solche Prüfung mit den gegebenen Mitteln möglich ist. Die Messungen werden fortgesetzt.

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN.

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen.

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren.

1. Dekontamination von Edelstählen und Nickelbasislegierungen

(S. Kunze, ADB)

Durchgeführte Arbeiten

Es wurde die Dekontaminierbarkeit von sechs Edelstählen und vier Nickelbasislegierungen (Tab. 4411-1) mit vier Dekontaminationsmitteln untersucht (Tab. 4411-2). Die Materialproben waren dazu einmal mit einer relativ locker aufsitzenden Kontamination, zum anderen mit einer fest aufsitzenden Kontamination versehen worden. Als typische Bearbeitungszustände wurde die Beizung der Proben und das Anbringen einer Schweißnaht gewählt.

Erzielte Ergebnisse

Die Versuchsergebnisse wiesen alkalische Permanganatlösung als das wirksamste Dekontaminationsmittel aus. Unterschiede in der Dekontaminierbarkeit der untersuchten Werkstoffe sind wenig ausgeprägt; lediglich die Inconel-Typen zeigen eine überdurchschnittlich gute Dekontaminierbarkeit. Der Bearbeitungszustand der Materialproben und die Art der Kontamination hatten keinen signifikanten Einfluß auf das Dekontaminationsergebnis. Die Untersuchungen der Dekontaminierbarkeit von Edelstählen mit Nickelbasislegierungen ist mit diesem Experiment vorläufig abgeschlossen.

2. Entwicklung einer Dekontaminationspaste

(S. Kunze, ADB)

Durchgeführte Arbeiten

Zur Entwicklung einer Dekontaminationspaste wurden zunächst herkömmliche Reinigungs- und Beizpasten auf ihre Zusammensetzung und ihre wirksamen Bestandteile untersucht. In der Regel bestehen sie aus einem Trägerstoff, z.B. Plastikpulver unterschiedlicher Teilchengröße, einem Adsorbtionsmittel,

Tab. 4411 - 1 Werkstoffauswahl

Edelstähle	Nickelbasislegierungen
Nr. 1.4301	Inconel 600
Nr. 1.4541	Inconel 625
Nr. 1.4571	Incoloy 800
Nr. 1.4580	Hastealloy X
Nr. 1.4981	
Nr. 1.4988	

Tab. 4411 - 2 Dekontaminationsmittel und Anwendungsmodus

Dek.-lösung	Anwendungsmodus
3% KMnO_4 + 10% NaOH	2h bei 100°C , Spülung mit 3% Oxalsäure, 15 min bei 60°C
0,3% KMnO_4 + 1% NaOH	wie oben
0,5% Zitronensäure + 0,05% EDTA-Na_2 ; pH=4,1	2h bei 100°C
2n HNO_3	2h bei 60°C
3% Flußsäure + 20% HNO_3	15 min bei 20°C

wie Tonerde oder Kieselgur und einem chemisch aktiven Stoff, wie Mineralsäuren oder organischen Säuren. Als Netzmittel sind in der Regel waschaktive Substanzen enthalten.

Erzielte Ergebnisse

Erste Dekontaminationsversuche mit einer Paste, deren Komponenten mit den gebräuchlichen Abfallbehandlungs- und Abfallverfestigungsverfahren verträglich sind, ergaben nur mäßige Dekontaminationserfolge. Dies war auf das Fehlen von Halogenwasserstoffsäuren zurückzuführen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die laufenden Versuche werden fortgesetzt mit dem Ziel, die Anteile an Halogenwasserstoffsäure durch andere wirksame Chemikalien zu ersetzen.

3. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzsämelzen

(D. Hentschel, S. Kunze, ADB)

Durchgeführte Arbeiten

Mit Hilfe der Ergebnisse von Vorversuchen und Angaben aus der Literatur wurden Salzmischungen hergestellt und die Dekontaminationswirkung ihrer Schmelzen an Edelstahlflächen untersucht, auf denen radioaktive Substanzen mit unterschiedlicher Haftfestigkeit aufgebracht waren. Der Dekontaminationsprozess wurde so ausgeführt, daß die Edelstahlproben in die etwas überhitzte Schmelze 15 min lang eingetaucht wurden. Danach wurde das anhaftende Salz mit Wasser entfernt. Der Tauch- und Reinigungsschritt wurde bis zu vier-mal wiederholt.

Erzielte Ergebnisse

Die besten Dekontaminationsergebnisse findet man mit sauren Phosphaten bzw. Sulfaten, mit Alkalihydroxiden und mit Alkali-Aluminiumchloriden. Oxidierende Schmelzen, wie Nitrate, sind ungeeignet, wiewohl kleine

Zusätze oxidierender Substanzen in alkalischen Schmelzen deren Wirksamkeit erhöhen. Materialabtragende Schmelzen zeigen in der Regel bessere Dekontaminationsergebnisse als Schmelzen ohne ausgeprägten Materialabtrag.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Zur Fortsetzung dieser Untersuchungen ist die Prüfung weiterer Salzarten bzw. noch zusätzlich modifizierte Gemische vorgesehen. Einen Arbeitsschwerpunkt bildet die Erarbeitung einer zuverlässigen und praxisnahen Auftragstechnik und Abtragstechnik, sowie die Prüfung der als verwendbar gefundenen Schmelzen auf etwaige Selektivität bezüglich bestimmter Nuklide.

4412 Verhalten von Plutonium im "Boden"

Bestehende und potentielle Quellen für Plutoniumkontaminationen in der Umwelt
(A. Jakubick, ADB)

Durchgeführte Arbeiten

Zur Ermittlung bestehender und potentieller Quellen für Plutoniumkontaminationen in der Umwelt wurden die Ursache für Plutoniumfreisetzungen und die Verteilung des freigesetzten Plutonium an Hand von Literaturangaben untersucht. Diese Kenntnisse sind die Voraussetzung für die Analyse von Migrationswegen und Transportmechanismen.

Erzielte Ergebnisse

Typische Plutoniumkonzentrationen in europäischen Breitengraden liegen bei

10^{-22} Ci/cm ³	in der Luft
$3,5 \cdot 10^{-19}$ bis $30 \cdot 10^{-12}$ Ci/cm ³	im Meerwasser
10^{-13} bis 10^{-14} Ci/g	in der obersten Bodenschicht
10^{-3} Ci/km ²	in der obersten Bodenschicht bis ca. 20 m Tiefe

Darüber hinausgehende Plutoniumgehalte sind in der Regel auf bestimmte Ereignisse zurückzuführen. Selektive Anreicherung durch natürliche Prozesse sind selten, wiewohl Bodenmedien als Fänger für Plutonium aus Luft und Wasser wirken. Grundsätzlich kommen zwei Arten von Plutoniumquellen in Betracht: Geringe, ständige Freisetzungen und Freisetzungen durch Einzelergebnisse. Erstere sind ihrem Umfang nach kalkulierbar, letztere besitzen statistische Natur, wobei die freigesetzte Plutoniummenge von der Art des Ereignisses und seiner Begleitumstände abhängt. Die Ausbreitung des Plutoniums erfolgt in bodennahen Luftschichten. Unter dem Aspekt der langfristigen Lagerung von Plutonium müssen exogene Kräfte auf die geologischen Formationen und die Suffosion in Sicherheitsbetrachtungen einbezogen werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im Hinblick auf eine Sicherheitsstudie sind Untersuchungen über das Rückhaltevermögen geologischer Formationen, über die Dispersion und Verrückung von Plutonium unter Berücksichtigung hydrologischer, geologischer und bodenkundlicher Aspekte geplant.

4420 Technik der Räum- und Demontearbeiten

4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen
(W. Bahm, G.W. Köhler, G. Scholer, RBT)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Hinblick auf eine Stilllegung, die durch einen schweren Störfall erzwungen wird, wurde ein koordiniertes Arbeitsprogramm aufgestellt, an dem die Gesellschaft für Kernforschung und die Firmen Kraftanlagen Heidelberg, Nuklear-Ingenieur-Service, Nukem und Transnuklear beteiligt sind.

Es ist beabsichtigt, im Rahmen PNS 4421 von den als vorrangig erkannten Teil-Aufgaben das Problem der Räumung eines durch einen schweren Störfall beschädigten Cores zu bearbeiten.

4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte

(G.W. Köhler, M. Salaske, M. Selig, RBT)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das mittlere Manipulator-Fahrzeug "MF2" wurde dem Kerntechnischen Hilfszug übergeben und einer ersten Erprobungsphase unterzogen. Der Auftrag zur Fertigung des Fahrgestelles für das leichte Manipulator-Fahrzeug "MF3" wurde Anfang des Berichtszeitraumes an eine Fachfirma vergeben.

Das Fahrzeug wird voraussichtlich mit zwei leichten elektrischen Master-Slave-Manipulatoren ausgerüstet, die im Detail zu entwickeln und zu beschaffen wären.

Es wurde begonnen, den elektrischen Master-Slave-Manipulator "EMSMI" mit einigen ergänzenden Komponenten zu versehen, um Versuchseinsätze durchführen zu können.

4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG NUKLEARER ANLAGEN

4530 Risiko- und Zuverlässigkeitsanalyse nuklearer Anlagen
(R. Papp, L. Caldarola, IASR)

Durchgeführte Arbeiten

Im Berichtszeitraum wurde der Statusbericht "Methoden zur quantitativen Analyse von Kernenergie-Risiken" fertiggestellt. Der Statusbericht besteht aus 13 Kapiteln. In dem vorliegenden Halbjahresbericht wird ein Überblick gegeben.

Summary

4100 ENVIRONMENTAL IMPACT OF NUCLEAR POWER STATIONS AND REPROCESSING PLANTS

4110 Development of filters and offgas systems

4111 Post Accident Recirculation Air Cleanup Filters for Fission
Product Removal from the Atmosphere of the Reactor Containment

Work Completed, Essential Results

Experiments are being carried out to determine the removal behavior of the iodine sorption material AC 6120 in the radiation field.

With a radiation dose of 1.6×10^8 rad accumulated in the radiation field at a dose rate of 2.6×10^7 rad/h a removal efficiency for iodine of 99.96 % was achieved with a test bed 2.5 cm deep at 80 °C and 100 % relative humidity of the air (Test performed by Savannah River Plant Laboratory). Tests at higher temperatures using radioactively labeled methyl iodide as a testing agent are in preparation.

The generation of nitric oxide from the impregnation material of AC 6120 under conditions which might be reached in a HTR containment following the depressurisation accident was investigated and the influence was measured of the changing impregnation on the removal efficiency. Short term heating up to 360 °C did not yield a reduction in the removal efficiency in removal tests performed at normal temperature (simulating the cooling phase after the accident; high removal efficiencies will be obtained at high temperatures even after strong decomposition of the impregnation). The influence must be elucidated which is exerted by the pressure and flow speeds on the decomposition.

Preliminary tests were conducted on the flame evaporation method as an aerosol producer for testing aerosol filters at high temperature and humidity. Difficulties still exist in dosing small amounts of aerosols. Flowing agents and dosing methods are being tested.

A prototype post accident recirculation air cleanup filter system was connected to the technical filter test facility. After the replacement of the humidity measurement equipments trial operation will be started under simulated accident conditions with respect to humidity and temperature. Tests with the pressurized system will be carried

out after installation of the pressure vessel in the projected extension building.

4112 Development of Exhaust Air Filters for Reprocessing Plants

Work Completed, Essential Results

The reaction behaviour at AC 6120 of secondary and tertiary butyl iodides was clarified. The tests on the reaction behaviour will be continued with aryl halogenides.

Mixed impregnation of AC 6120 resulted in lower rates of crystal growth of the impregnating agent. Under the conditions of effluent gas filtration in reprocessing plants mixed impregnation does not cause noticeable reduction in the removal efficiency. The experiments will be carried on over extended service lives.

4114 Exhaust Air Filtration at Reactors; Identification of Iodine Compounds in Gaseous Reactor Effluents; Aging and Poisoning of Iodine Sorption Materials

Work Completed, Essential Results

Aging studies were carried out with TEDA impregnated charcoals. Comparison studies relating to KI-impregnated charcoals under identical conditions have not yet been completed. Deep TEDA impregnated charcoal beds seem to show a better aging behaviour than KI-impregnated active charcoals.

Hypoiodous acid as a penetrating iodine compound in gaseous effluents of nuclear installations is being discussed. Previous experiments have not proved volatility of HOI. Tests are presently carried out at higher humidities and temperatures of the carrier gas (humid air).

4120 Release, Transport and Deposition of Fission Products in
Reactor Circuits and their Decontamination

4123 Contaminating Substances in Light Water Reactor Coolants
(I. Michael, G. Bechtold, W. Götzmann, IRB)

Work Completed

Investigation of the amount of metal loss of the autoclave itself.

Operating data of the autoclave system:

Pressure: 230 bar; Temperature: 480 °C; Volume 3,9 l.

Analytical method: atomic absorption spectroscopy.

The autoclave system was operated at temperatures up to 300 °C and at a pressure up to 86 bar over a total period of 1000 hours.

Testing of an enamel ph-probe supplied by industry over 574 hours at 107 °C and 1, 3 bar and over 380 hours at 200 °C and 16 bar.

Essential Results

For iron average metal loss rate at 300 °C and 86 bar was 0,13 mg/dm² · day.

Nickel and chromium was not measurable.

There was minor attack to the enamel ph-probe by pressurized water at 107 °C, which rose considerably at 200 °C.

Material loss to water, obviously from the Na₂O-content of the enamel caused the ph-value to rise from 5,6 to 12,0 after 380 hours.

Average sodium loss 130 mg Na/dm² · day.

Considerable damage of the ph-probe was obvious.

Planning for the Near Future

Investigation of the metal loss rate of the autoclave system up to 345 °C and 160 bar and subsequently of Incoloy 800 under the same operating conditions.

To prevent the disturbing influence by material components of the autoclave wall preparations were made for application of a protective gold layer to the inside of the autoclave.

Testing of other materials than glass for the pH-measurement technology on the basis of metal oxides, such as zirconium oxide.

4130 Long-Term Radiological Environmental Burden

4131 Measurement of Environmental Tritium Contamination
(L.A. König, M. Winter, ASS)

Work Completed, Essential Results

The program on tritium contamination measurement in the environment has been carried on. In the first six months of 1974 a total of 1225 samples were taken and measured. 498 of these samples relate to surface water, 196 to ground water, 263 to drinking water, and 237 to precipitations. 31 additional samples were measured. Since the tritium contamination in precipitation and hence the contamination of water samples of a different origin are subject to seasonal variations the results obtained will be discussed at the end of this year.

It is intended to measure water samples taken continuously at different points in rivers of Baden-Württemberg which does not only imply a considerable extension of the area monitored but will also provide more precise information about the mean tritium concentration of the river water.

4132 Measurement of Iodine-129 Concentration in the Environmental
(H. Schüttelkopf, ASS)

Work Completed, Essential Results

¹²⁹I is a radionuclide with a half-life of 1.6×10^7 yrs, which is released by reprocessing plants in the course of dissolution and subsequent treatment of reactor fuel elements.

The radionuclide leaves the plant with the effluent air and water. Dose evaluations have shown that for a plant with an annual throughput of 1500 t/y already a breakdown for one day of the iodine retention system leads to considerable exceeding via the milk path of the maximum annual dose

recommended for infants. In the environment of the US plants Nuclear Fuel Services, West Valley, SRP, Savannah River, and Purex 200 E, Hanford, enrichments were observed which partly attained the critical specific ^{129}I -activity of natural iodine. Studies must be made on ^{129}I -radioecology with special regard to the deposition on the ground, the migration in the soil, the milk cycle, the water-fish system, and the sedimentation enrichment. In the Federal Republic of Germany the WAK plant is the only to offer the possibility of performing such studies.

Work completed so far includes the development of an analytical method for ^{129}I in waste water, the establishment of a ^{129}I -calibration standard for neutron activation, the development of analytical methods for air filter, milk, soil, and meat samples, and the measurement of ^{129}I -contents in about 45 waste water batches discharged by WAK.

4134 Investigation of the Long-Term Radiological Environmental Burden caused by an Accumulation of Nuclear Facilities
(A. Bayer, R. Kalckbrenner, T.N. Krishnamurthi, D. Schiesser, M. Schückler, INR)

Work Completed, Essential Results

Investigations on the radiological impact on the Upper Rhine river basin due to the operation of nuclear facilities are continued. The computer program written for this evaluation considers the atmospheric and hydrospheric transport paths. Data on the nuclear facilities that are likely to be in operation by the year 1985 have been compiled from several publications. Using the published release rates for the plants already in operation and the expected figures for those under construction or planning, concentrations of tritium, noble gases and iodine-131 have been evaluated together with the accompanying doses rates to various organs. For some isotopes of strontium, ruthenium, cesium and cerium release rates have been collected and evaluated for use as input data for further studies.

4140 Separation of Krypton and Xenon from the Offgas of Nuclear Installations
(v. Ammon, IHCH, Hutter, RBT, C.H. Leichsenring, PNS-PL)

Work Completed

The two processes

- absorption in liquid frigen-12 (FA)
- low-temperature rectification (LTR)

were studied in detail with the aim of separating the fission gases krypton and xenon from the offgas of a large reprocessing plant. Engineering projects were carried out in cooperation with industry (FA: Nukem; LTR: Linde AG). On this basis a pilot plant for cold and - at a later stage - hot tests were specified.

Essential Results

The following conclusions could be drawn from a comparison of advantages and drawbacks of both processes:

- a) LTR has the higher potential of development, because the product krypton is collected in highly concentrated form and relatively free of impurities. Thus cost and risk of final storage should be appreciably lower for a large reprocessing plant.
- b) LTR implies less risk of development due to the following analogous external activities:
A pilot plant for the recovery of Kr-85 was developed and successfully operated at ICCP (Idaho Falls, USA).

However, a high decontamination factor for krypton was not achieved and oxygen was not separated so far.

At Air Products Corp. (Allentown, USA) LTR is being developed for application in reactor stations.

CEA (France) also indicated a definite preference for LTR.

On the other side, freone absorption was demonstrated at ORGDP (Oak Ridge, USA), but only in cold tests. Further development is not being planned.

Planning for the Near Future

On the basis of these results LTR is considered the most promising process. The development of this process together with the necessary pretreatment of the offgas will therefore be continued with highest priority. The pilot plant will be ordered before the end of 1974.

4150 Waste Heat Problems Associated with Nuclear Facilities

4151 Investigations of Effects of Thermal Discharges into River
 Waters
 (G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, IASR)

Work Completed

Construction in connection with measuring apparatus at Rheinhausen has been completed. This includes a mast for supporting measuring instruments above the Rhine, a 40 m high meteorology mast on the adjacent shore and a high water protected housing for an on-line computer. Installation of the telemetry cable has also been completed.

With few exception, all probes, power supplies and amplifiers are ready for final installation. The task of the on-line computer has been specified and is being formulated as a code.

Planning for the Near Future

During the latter half of 1974 all measuring apparatus will be installed. This will be followed by a test period expected to last into late autumn. Data gathering is expected to commence before the end of the year.

4152 Effects of Cooling Towers of Large Nuclear Power Stations
 on the Environment
 (K. Nester, ASS)

Work Completed, Essential Results

A first version of a computer program was developed allowing the calculation of the uplift of cooling tower vanes. Using this program, the three-dimensional distribution of temperature, vertical velocity and humidity in the vane can be calculated as a function of any environmental conditions. A diffusion ansatz is made for the distribution of the vane normal to the average flow direction. In this first version only such cases are treated where the precipitation of droplets is not expected. The results are explained with an example. A conspicuous feature is the asymmetric distribution of the parameters stated above with a strong gradient on the weather side of the vane.

4200 SYSTEM BEHAVIOUR OF NUCLEAR PLANTS DURING INCIDENTS

4210 Dynamic Load of Components and Systems

4211 Dynamic Load of LWR Pressure Reduction Systems
(E. Wolf, IRE)

Work Completed, Essential Results

Experimental investigations of the local pressure pulsation field in the water pool of the condensation chamber as well as measurements of mass flow of the steam/water/air mixture flowing into the condensation chamber during a simulated LOCA were performed within the framework of true scale blowdown tests carried out at the MARVIKEN Nuclear Power Station (Sweden) from August 1972 until May 1973. In the first half-year of 1974 the reports were completed on the instrumentation provided (MXA-1-110 and 111, Instrumentation I and II). The evaluation and representation of measured results were started. It appears that the pressure pulsation field investigated can be interpreted as a superposition of relatively flat random pressure pulsation waves concentrated to some narrow frequency bands in the range from 3 cps to 40 cps. Within the individual frequency bands the rms values of the pressure amplitudes are situated within the range from 0.0005 kp/cm² to 0,1 kp/cm². A qualitative relationship was found to exist between the spectral density of the pressure pulsations and the time curves of the measured steam, water and air flows into the condensation chamber. The interpretation of the phenomena observed and the establishment of theoretical models related to them are the objective of future activities.

A proposal of instrumentation was elaborated for the measurements of the pressure pulsation field appearing in the water pool of the condensation chamber and for the measurement of the dynamic response of the safety containment at the Brunsbüttel Nuclear Power Station. The measurements are carried out in cooperation with Kraftwerk Union within the framework of commissioning of the power station in the second half year of 1974. In this case the steam will be blow down through relief valves into the water pool of the condensation chamber.

To allow computations of the dynamic response of the safety containment to the given pressure pulsation field, an ICES-STRUDL program system was implemented at the IBM 370/175 computer system. Some computations could already be performed on simplifying assumptational possibilities using this system.

4212 Dynamic Load of Pressure Vessel Internals in LWR Loss-of-Coolant
 Accidents

HDR Safety Experiments - Loading of Reactor Pressure Vessel
Internals through Pressure Relief during a Loss-of-Coolant
Accident

(J.W. Palmowski, PNS-PL)

Work Completed, Essential Results

On behalf of the Federal Ministry of Research and Technology and under the responsibility of PNS (Nuclear Safety Project) the safety experiments at HDR - subproject blowdown tests - were specified in cooperation with various institutions. The blowdown tests include experimental and theoretical investigations to the dynamic loading of reactor pressure vessel internals due to depressurization during a loss-of-collant accident. High priority will be placed on these investigations. The HDR plant offers a unique opportunity to carry out such safety experiments, since a relatively large reactor pressure vessel provided with corresponding nozzles and nominal widths is available with a relatively low activity.

However, for lack of time, not all the problems could be sufficiently considered in the specification so that a phase of detailed work is required. According to the envisaged time schedule a series of simulated pressurized water reactor and also some boiling water reactor experiments will be carried out.

4214 Development of a Radionuclide Technique for Measurement of
the Mass Flow in Non-steady Multiphase Flows
(R. Löffel, LIT)

Work Completed, Essential Results

Measurement of the two-phase mass flow plays a particular role in reactor safety experiments. Appropriate measurement techniques have not yet matured or still wait for development. Among the most promising methods is the radionuclide technique developed by LIT which allows to determine the two-phase mass flow from the separate measurement of velocities of both phases using two different radiotracers and gamma-adsorption density measurement coupled with it. The technique shall be developed within the years to come and used in various reactor safety experiments.

In preparation of radiotracer velocity measurements within the framework of the Marviken follow-on program and for the Battelle blowdown experiments RS 50 planning of a test section for the gaseous/liquid system and mounting of a velocity measurement device containing 12 probes were initiated. Details on these activities will be described in the next period of reporting.

The argon activation system built at the Reactor Operations and Engineering Department (RBT) will probably be ready for operation from August 1974.

- 4230 Emergency Core Cooling of LWR's
- 4231 Theoretical Investigations of the Fuel Rod Behavior during
 a LOCA
 (D. Kirsch, IRE; H. Unger, IKE/Stuttgart)

Work Completed

The computer codes THETA 1 B for calculations of the transient thermal behavior of LWR fuel rods and RIBD for the calculations of fission product concentrations dependent on the fuel rod burn-up have been made available as moduli of the code system SSYST. Some new moduli of this code system for calculation of the fuel rod behavior during a LOCA have been programmed and tested: a modulus for calculation of the fuel rod internal pressure (using RIBD data as input), another one for calculation of the heat transfer coefficient in the gap, and different smaller moduli controlling the intercommunication of hydraulic, thermal and deformation analysis. The modulus HRODE 2, preliminarily used for the deformation analysis, has been improved by taking into account creep behavior (Norton's creep law).

In order to make sure, that the code RELAP 3 can be used for the hydraulic blowdown analysis, comparative calculations have been made with the codes RELAP 3 and BRUCH-D. Design calculations have been performed for different experimental investigations (PNS 4236, 4237, 4238).

Essential Results

A first calculation of the cladding deformation during a LOCA showed good results in so far as the intercommunication between the moduli already completed has turned out to be very good. It is not yet reasonable to give quantitative results of this calculation, since important moduli had not been completed for this calculation (e.g. internal pressure modulus).

The comparative calculations with the codes BRUCH-D and RELAP 3 showed results, which agree rather well nearly always qualitatively and in most cases also quantitatively.

The results of the design calculations are reported under the respective headings.

Planning for the Near Future

The following tasks are planned for the next half-year:

- Implementation of the code RELAP 4;
- Completion of the internal pressure modulus and of a modulus for a better (axially more discretized) calculation of the coolant channel hydraulics;
- Implementation of a modulus for calculation of the primary loop hydraulics during core refilling;
- Completion of a modulus for improved, two-dimensional (axisymmetric) calculation of the cladding deformation;
- Continuation of the design calculations;
- Design of an extension of the code system in order to describe the behavior of rod bundles during a LOCA.

4235 Studies on the Material Behavior of Zircaloy Cladding Tubes during a Loss-of-Coolant Accident

4235.1 Studies of the Mechanical Behavior of Zircaloy-4
(M. Boček, C. Petersen, IMF)

Work Completed

The test program to investigate the changes in texture and their influence on the plastic behavior of Zircaloy-4 cladding was pursued.

Essential Results

The influence of annealing time t_a upon the texture of Zircaloy-4 cladding was examined at constant annealing temperature $T_a = 1260^\circ\text{C}$ and heating rate ($35^\circ\text{C}/\text{sec}$). The change in texture observed occurred during the first 10 seconds and then remained constant up to $t_a = 120$ sec. Samples subjected to the same heat treatment were deformed in a tensile test at 400°C . The behavior of the UTS and the elongation to necking, when plotted against the annealing time is analogous to the change of the $\langle 0002 \rangle$ basal poles, tilted by variable angles, with the annealing time t_a .

Planning for the Near Future

- The investigations in texture change will come to an end with a last test for different heating rates.
- The mechanical behavior of preoxidized tensile specimens will be investigated in the next time at temperatures of 370°C to 1200°C .

4235.2 High Temperature Corrosion Studies on Zircaloy-4 Cladding Tubes
(S. Leistikow, IMF)

Work Completed

Isothermal and temperature transient Zircaloy/steam high temperature oxidation reactions were performed using pickled tube sections at $900 - 1300^\circ\text{C}$ during a duration of 2 - 15 minutes.

Essential Results

The oxygen consumption and distribution were measured by gravimetric and metallographic-planimetric methods. They resulted for the oxygen take-up in linear rate laws of increasing linear rate constants and a temperature independent, linear relationship for the growth of the oxygen-rich surface phases.

The attempt to oxidize isothermally was prevented by a sudden heat production during first surface oxidation, causing a temperature increase of 240 - 280 °C. This effect decreases with increasing degree of preoxidation.

Planning for the Near Future

LOCA-similar time-at-temperature conditions were applied for kinetic measurements. Under automatic control this process will be performed reproducibly using an inductive heating system. Corroded tensile specimens will be tested mechanically.

4235.3 Experiments on Chemical Interaction between Fuel and Zircaloy Cladding
(P. Hofmann, O. Götzmann, IMF)

The experimental program involves a study of the influence of the chemical interaction between fuel and fission products respectively and Zircaloy-4-cladding on the mechanical properties of Zry during a LOCA. The experiments will be carried out on short Zry-pins which contain oxide fuel doped with simulated fission products under isothermal and transient temperature conditions. The aim of these experiments is to obtain information on the influence of parameters such as temperature, time and burn up on the mechanical properties of Zircaloy-cladding.

4236 Investigations of the Fuel Rod Behavior during the Blowdown-Phase of a Loss-of-Coolant Accident
Out-of-pile Experiments with Electrically Heated Single Rods
(G. Class, IRE; K. Hain, RBT)

Work Completed

Experiments relating to the compatibility of the UO₂ ring pellets with the graphite heating rod were terminated. Measurements and theoretical considerations were carried out; preliminary experiments were made in a test rig with a complete rod assembly on the electric behavior of the

rod simulator. Constructional design of the rod was started.

Two loop concepts were studied. The technical specifications for the main loop components were established. Enquiries have been made for these components, the circulating pump was already ordered.

The requirements of the measurement equipments were specified and the gamma transmission method for non-stationary density measurements was investigated. A measurement instrument for non-stationary measurement of the two-phase mass flow (true mass flow meter) was developed and subjected to preliminary testing.

Essential Results

Short-term compatibility of UO_2 with graphite up to about $2900^\circ C$ is sufficiently guaranteed by vaporization of a tantalum carbide barrier layer on graphite. To improve the insulating effect, an electrically non-conducting barrier layer must be applied to the UO_2 ring pellets, thus avoiding disruptive discharge to the cladding in case of very small resistivity of UO_2 , which might occur under extreme conditions.

The feasibility of the loop concept as regards the objectives of the experiment was ensured by RELAP 3 calculations (cf. PNS 4231).

In density measurement of the coolant plenums through gamma transmission an uncertainty of measurement of about 2 % and 5 %, respectively can be achieved with/without consideration of the inhomogeneous phase distribution. The performance of the measurement principle based on the true mass flow meter was demonstrated by preliminary tests.

Planning for the Near Future

Studies will be carried on which relate to the application of an electric insulating layer on the UO_2 ring pellets.

As soon as the definite boundary conditions will be fixed for the rod configuration, construction of the test section can be started. The

loop components will be carried until the ordering phase.

The instrumentation of the test section and of the loop will be developed. A decision will soon be taken on the gamma transmission concept and on the design of the mass flow meter for blowdown conditions.

4237 Studies on the Fuel Rod Failure in the 2nd Heatup Phase of
 a LOCA
 In-pile Experiments with Single Rods in the DK Loop of the
 FR2 Reactor
 (E. Karb, L. Sepold, RBT)

Work Completed and Results Achieved:

The main objective of activities performed within the report period was the preparation and realization of preliminary tests with fuel rod specimens corresponding to that of the main tests as regards geometry. The fuel rods were made according to the specification for German pressurized water reactors, the rods used in the preliminary tests are only shorter (overall length approx. 700 mm), without lower plenum, with shortened upper plenum, and without internal inlet pressure.

Two test series were performed in June 1974. They are currently being evaluated. It is intended to insert a third rod into FR2 in July.

Similar to the main tests heating of the fuel rod (transient) is performed by interruption of steam cooling. The transient is discontinued by reduction of reactor power. Several transients are performed with each fuel rod.

The aim is to determine the fuel rod power best representing the reference temperature plot of the cladding in the course of the second heatup phase of the LOCA (temperature rise).

The reference temperature plots of the cladding are assumed to be the temperature plots recalculated by the reactor manufacturers. As compared to previous calculations, the present calculations show significant differences in the very second heatup phase of LOCA: The initial temperature rise is smaller by more than one order of magnitude (roughly

10 K/S instead of 160 K/S previously), the initial temperature of 700 to 800 °C considerably exceeds that in normal operation.

Preliminary calculations of hydraulic data in the preliminary tests using the RELAP-3-program were completed by IKE Stuttgart: The mass flow, pressure and heat transfer coefficient were determined as a function of time for the transient. This will allow computation of the thermodynamics of the fuel rod and of its environment.

Planning for the Near Future

The computation and preliminary tests will be continued. They aim at fuel rod design, above all the definition of the initial enrichment of the fuel. It is intended to specify the fuel rods within this year.

4238 Investigations of the Interaction between Ballooning Fuel Rods
 with Zircaloy Clads and Reflooding Emergency Core Cooling Water
 in the Low Pressure Phase of a LOCA
 (K. Wiehr, H.J. Neitzel, IRB)

Work Completed

To achieve better accuracy in computation and reduce the costs of computation the thermal code used so far for the design calculations had to be adapted to the integration method of Crank-Nicholson. Using the new code further design calculations were performed for fuel rod simulators.

Moreover, a detailed test program was set up. Constructional design of the test facility was terminated.

Planning of a central recording system for measurement data and the elaboration of the related programs of evaluation were initiated.

The X-ray technique was examined for its suitability in the observation of cladding tube ballooning.

Different measuring techniques were examined for their suitability to contact-free temperature measurement at the ballooning point of the cladding tube.

Essential Results

Using the recently established thermal code three fuel rod simulators were designed which show satisfactory thermodynamic agreement with the fuel rod.

The design of the test facility was accepted by the German Technical Inspectorate (TÜV).

The CALAS system available at GfK will be employed for central recording and processing of measurement data. As to X-ray cinematography, preliminary tests have shown that this is a promissory technique for measurement of ballooning of the Zircaloy cladding. Contact-free-temperature measurement shall be made possible by modification of a relatively new quotient pyrometer.

Planning for the Near Future

Manufacturing problems of simulator development are in the foreground.

Further preliminary tests with an X-ray instrument will have to show that also fast ballooning processes can be recorded.

Further Work:

Modification of the quotient pyrometer, assembly of the test facility design of the power supply, and elaboration of programs of evaluation for central data recording.

- 4239 Influence of Size and Shape of Defined Cooling Channel Blockages
 on the Cooling Mechanisms of Emergency Core Cooling in the Flooding
 Phase of a LOCA
 (G. Hofmann, P. Ihle, IRB)

Work Completed

Planning and design of the experimental circuit have been carried on and are nearly finished. Some components have been ordered.

As an activity aiming at the design of the test section and at the selection and pre-testing of suitable measuring and observation techniques a small testing configuration consisting of two heater rods has been built.

For the selection of suitable heater rods and blockage configurations two pre-tests have been run to determine the resistivity to heat between the electric conductor and the cladding of an available heater rod and to get information on some further thermal properties of the rod necessary for transient thermal conduction calculations. Testing of the operational behavior of the planned blockage sleeves and their fixing at the rod has been prepared.

Calculations to compare the thermal behavior of fuel and heater rods during flooding have shown that additional work should be done only for single cases with specified time-dependent cooling conditions as found in typical experiments.

Essential Results

The thermal conductance between the electric conductor and cladding of the heater rod has been found to be $0,03 \text{ W/cm } ^\circ\text{C}$ and to be only little temperature dependent. In a mixed experimental and analytical investigation the specific heat capacity of the MgO-insulating material of the heater rod and the thermal conductance in the gap between MgO and cladding have been determined.

Planning for the Near Future

In the second half of 1974 the prepared pre-tests will be performed. Further the design of the test section and the installation of the experimental circuit will be done. The delivery of the heater rods for the first test configuration is planned for the last quarter 1974.

4240 Core Meltdown of LWR's

4241 Experimental Investigations of the Meltdown Phase of UO_2 -
Zircaloy Fuel Rods under Conditions of Failure of Emergency
Cooling
(S. Hagen, RBT)

Work Completed

In the first phase of examination of the meltdown behavior of LWR fuel elements under water vapor atmosphere the conditions encountered there are simulated by heating a single rod subject to preliminary oxidation in steam under a cover gas. To make possible this investigation, an existing vessel had to be modified, provided with the necessary devices (window, current penetrations, fixing device, ect.), connected with the supply units (current, vacuum, cover gas, cooling) and subjected to a performance test which was successful.

The fuel rod simulator was developed and an initial rod molten down whose UO_2 -column was 22 cm in length. These activities were paralleled by the construction of a pressure vessel allowing bundle tests to be performed in steam.

In addition, computations were made on the oxidation behavior at various design speeds of the cladding temperature.

Essential Results

Meltdown of the rod not subject to previous oxidation took place at a cladding surface temperature of $1870^{\circ}C$ as indicated by the pyrometer. The power was so increased that the temperature was increased by about $0,5^{\circ}C/sec$ and reached the maximum value of about 300 W/cm during meltdown.

Practically at the same time as the cladding UO_2 also melted which indicates formation of a considerable eutectic mixture. Following meltdown the melt surrounded the lower half of the rod. More detailed statements can be made only after completion of the metallurgical studies.

Computations of the oxidation behaviour at different rates of temperature rise according to the Baker-Just-relation show that at 0,5 °C/sec the Zircaloy-cladding has fully oxidized upon attainment of the melting temperature while at 10 °C/sec the cladding has oxidized by 20 % only.

Planning for the Near Future

In the existing vessel meltdown experiments will be carried out with single rods with variation of the degree of oxidation and of the time and location dependent temperature gradient (use of radiation shields). Upon completion of the pressure vessel experiments can start with individual rods and fuel rod bundles in steam. In these experiments also the influence exerted by spacers and safety rods on fuel rod failure will be examined.

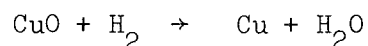
4242 Investigations of Hydrogen Formation and Recombination during
 LWR Core Meltdown
 (S. Dorner, INR)

Work Completed

It was shown that besides inertization of the spaces within the LWR safety containment hydrogen recombination presents another means of avoiding the formation of a oxyhydrogen gas mixture following an incident.

The expert group "Core Meltdown" therefore recommended elaboration by GfK with the cooperation by KWU-RB of a theoretical study on the equilibria and kinetics of hydrogen binding in LWR's. This study was completed in the period of reporting.

Some points were detailed upon which play a part in the recombination of hydrogen released in an incident via airborne CuO particles. The equilibrium constant of the reaction



and its kinetics were studied on the basis of literature data.

Essential Results

The investigations provided the basis for considerations on the practical implementation of recombination. It can be concluded that the CuO particles should be less than 10 μm in thickness to be reduced within a short time interval ($\leq 0,4$ sec).

Planning for the Near Future

Problems are still encountered in contacting gaseous hydrogen with the CuO particles at a sufficient fast rate. Therefore, experimental studies should be conducted to advance this method.

4243 Experiments on Recording and Limiting of Fission and Activation Products Release during Core Meltdown
(H. Albrecht, IRCH)

Work Completed

For the high-frequency induction furnace ordered from an industrial firm in December 1973, which is intended for melting experiments with up to 1 kg of low-active corium under cover gas, air and steam, quite a number of auxiliaries, such as glove-box, hydrogen monitor, gas metering device, have been specified and ordered. Moreover, all conventional and radiological aspects of operation of the melting facility were described in a safety consideration and submitted for approval to the Ministry of Labor, Health and Social Order in Stuttgart.

For the pyrometer intended for temperature measurement an imaging optic and a calibration measurement section were developed allowing to determine possible errors in measurement by selective absorption or reflexion of the window provided in the furnace. Also, two calibrated tungsten band lamps permitted to examine the long-term stability of the pyrometer reading.

The fission and activation products released in the melting facility are carried through Al_2O_3 and stainless steel piping, respectively, to a filter bench containing a number of glass fiber and membrane filters of different finenesses and a 6 cm long active charcoal. If applicable,

sinter metal filters will also be used.

Preliminary experiments will serve to determine the properties of filter materials, in particular retention capacity, pressure loss, temperature and steam compatibility, respectively. A commercially available aerosol generator will be used allowing to generate also aerosols of low-volatile metal oxides.

Preparations for construction of a test bench have been largely completed. Also equipment for gamma spectroscopy (detector, multichannel analyzer, magnetic tape unit, etc.) have been supplied meanwhile.

To evaluate the release experiments the development of a computer program SPALT was initiated which serves the specific purpose of

- a) calculating the gamma-line intensities of the fission and activation products contained in the melt as a function of the irradiation and cooling times;
- b) identifying the gamma-lines of the measured spectra and determining from their intensities the percentage release by comparison with the inventory computation (a).

Essential Results

To examine the behavior of ThO_2 crucibles with respect to corium melt. experiments were conducted under a cover gas (Ar) both with high-density (90 % TD) and porous (75 % TD) crucibles containing some 30 g of melt. They were heated via an external graphite crucible coupled to the induction field (medium frequency).

Both crucible designs proved suitable to keep liquid corium at temperature ≥ 2500 °C without chemical interactions taking place with the crucible material. The same finding resulted from experiments with all corium components used in the oxide form as ThO_2 , NiO, Cr_2O_3 in addition to UO_2 .

While the porous crucibles were not damaged by the experiments, the denser crucibles burst every time the solidified corium cooled down. Obviously, the mechanical stresses occurring as a result of the dissimilar dilatation coefficients of ThO_2 and the solidified corium can only be creeping in the porous crucibles. However, it is important to note that liquid corium does not leak out from the destroyed crucibles, because first of all the melt solidifies. Above about 1900°C evaporation of corium components (especially UO_2) strongly increases with temperature. Since this process is accompanied by formation of clouds of smoke, an exact pyrometric temperature measurement is questionable.

To gather first experience in inductive melting of corium under steam preliminary tests were conducted with a simple glass equipment. The ThO_2 -crucibles were wrapped in a 0,15 mm graphite foil coupling to the induction field ($f = 400 \text{ kHz}$) and transferring the heat released in it from outside to the melting crucible. At about 1000°C the melt takes over coupling to the HF-field because the graphite foil burns at this temperature.

This method allows to avoid major crack formation in the crucible wall during the heating process (in former experiments without graphite foil the crucibles have always cracked). Moreover, it became evident that the water vapor does not entail a basic complication of experimental conditions as compared to air atmosphere.

Planning for the Near Future

The foremost activities of the months to come will be

- setup and commissioning of the new melting facility;
- installation of the temperature measurement equipment;
- setup of the fission product transport and filter bench;
- test with the aerosol generator for the purpose of filter selection (see above);
- preliminary tests with the entire facility;
- development of the computer code SPALT.

4244 Experiments on Diagram of State Plotting and on the Reaction Behavior of Core Components as well as Phase Analytical Characterization of Meltdown Experiments
(H. Holleck, IMF)

Work Completed

Samples of the U-Zr-O system obtained by arc melting and homogenized at different temperature were X-rayed and their melting points were determined. Examinations of the melting point were of special importance they may provide significant data allowing to elucidate the kinetics of the meltdown process.

The melting point was determined in a specifically designed high temperature furnace allowing operation under a cover gas at a maximum pressure of 20 bar. The sample geometry was chosen in that way that the beginning of melting could be observed.

The temperature was measured both with a two-color micropyrometer (550 nm and 650 nm) and an automatic selected radiation pyrometer. The experimental setup was calibrated by the melting temperatures of Al_2O_3 (2050 °C) and Mo (2610 °C). Depending on the emission ratio and the composition of accuracy is ± 10 °C at 1800 °C and ± 25 °C - 40 °C at 2840 °C, respectively (melting point of UO_2).

Essential Results

In the microstructure of the samples composed of UO_2 -Zr 50/50 (mol %) the following 3 phases were observed after melting at 2500 °C: UO_2 due to primary precipitation α -(Zr, O) due to secondary precipitation, and a low-melting U, Zr mixed crystal.

This is a first indication that on the UO_2 -Zr section a three-phase field (obviously with a low-melting phase) occurs.

First experience on the preparation of samples from a meltdown experiments (PNS 4241) were obtained in a molten down rod.

Since the PNS 4244 project is a new program, more detailed results can be reported at a later date only.

Planning for the Near Future

The investigations are intended to provide experimental data on possible new phase formations and reactions among the core components during meltdown. Appropriate experiments are conducted phases and their stability conditions potentially occurring in the participating chemical systems, kinetic effects being left aside at the initial stage. An important question in this context is: Which are the low-melting phases and/or eutectica existing in the aggregate system or in subsystems and which are their melting temperatures?

Besides these equilibrium studies phase analytical investigations with samples obtained in meltdown experiments and compatibility tests are performed by other working groups to contribute, on the one hand, to an interpretation of meltdown experiments and to achieve, on the other hand, a reduction of chemical and thermodynamic parameters in the investigation of the systems.

In conformity with the chemical compositions of the main nuclear materials UO_2 , Zircaloy and stainless steel investigations cover the polynary system U-Zr-Fe-Cr-Ni-O. An important subsystem of this aggregate system is the U-Zr-O system whose binary section UO_2 -Zr indicates the possibilities of reactions taking place between the fuel rod and the cladding in a nonoxidizing environment.

4300 DISTRIBUTION AND REACTION PROCESSES OF NUCLEAR CONTAMINANTS IN MAJOR INCIDENTS, THEIR DEPENDENCE ON TIME AND THEIR MEASUREMENT

4310 Study of the Time Dependent Distribution and Reaction Processes of Fission Products and Aerosols in the Atmosphere and Hydrosphere Following Major Incidents

4312 Theoretical and Experimental Investigation of the Atmospheric Dispersion of Radioactive Gases

Work Completed, Essential Results

The instrumentation of the 200 m high meteorological tower is essentially completed by the installation of the dew point meters. First temperature profile evaluations have been published. Due to the operation of vector vanes the determination of the stability category was improved and simplified to such extent as to be programmable by the data processor. As consequence, a sub-program is now available which exhibits isodose charts of short-time emissions on the terminal screen.

The comparison of Rhine valley sites with respect to atmospheric dispersion now covers 7 sites, due to further meteorological data acquisition.

To test the calculation of the γ -dose from a radioactive offgas plume, a scintillation dose meter is used to measure the dose rate below the FR2 off-gas plume. First checks proved that such a test is feasible during stable and neutral stratifications. The measurements will be continued.

4400 CONFINEMENT AND ELIMINATION OF THE CONSEQUENCES OF INCIDENTS

4410 Isolation and Removal of Contaminations

4411 Development of Decontamination Methods

1. Decontamination of Stainless Steel and Nickel Base Alloy

(S. Kunze, ADB)

Work Completed

Decontamination of six stainless steel and four nickel base alloy samples (Table 4411-1) was examined using four decontamination agents (Table 4411-2). The material samples were prepared with a relatively loosely deposited contamination in one example and with a fixed contamination in the other example. Surface conditions were simulated by etching and by welding seams on the sample surface.

Essential Results

Experimental results show best decontamination effects with alkaline potassium permanganate solution. Differences in the decontamination results of the tested metals are significant; the Inconel-type alloys excepted. These can be decontaminated to a higher degree of cleanness. The conditions of treatment of the material samples and the type of contamination seem to be of minor influence to the results of decontamination. The investigation on decontamination of stainless steel with nickel base alloy will be finished by these experiments.

2. Development of a Cleansing Paste for Decontamination

(S. Kunze, ADB)

Work Completed

Standard type pasty cleansing agents had been analysed for their compositions and their active components. They normally consist of a carrier material, such as plastic powder of different particle sizes, and adsorption agent such as alumina or kieselgur and chemically active constituents such as mineral acids or organic acids. In most cases detergents are added.

Tabl. 4411-1 Materials

stainless steels	nickel-base-alloys
Nr. 1.4301	inconel 600
Nr. 1.4541	inconel 625
Nr. 1.4571	Incoloy 800
Nr. 1.4580	hastealloy X
Nr. 1.4891	-
Nr. 1.4948	-

Tab. 4411 - 2 Decontamination solution and application

decontamination solution	application
3 0/0 KMnO _n +10 0/0 NaOH	2 h at 100°C, rinsed with 3 0/0 oxalic acid at 60°C, 15 min
0,3 0/0 KMnO _n + 1 0/0 NaOH	same
0,5 0/0 Citric acid +0,05 0/0 DETA-Na ₂ , pH=4,2	2 h at 100°C
2n HNO ₃	2 h at 60°C
3 0/0 HF +20 0/0 HNO ₃	15 min at 20°C

Essential Results

The components of the paste had been selected according to their compatibility with the current waste treatment and waste solidification techniques. First experiments with these pastes showed only moderate decontamination results. Most probably the reason for this was the absence of halogen acids.

Planning for the Near Future

New experiments are planned to substitute the hydro-halogen-acids by other effective chemicals.

3. Decontamination of Metal Surfaces by Molten Salts

(D. Hentschel, S. Kunze, ADB)

Work Completed

According to results of preliminary experiments and data from literature salt mixtures have been prepared for testing their melts on the decontamination effectiveness on stainless steel surfaces. Stainless steel samples had been prepared with different adhesion strengths to the radioactive substances. The decontamination process had been carried out by immersing the stainless steel samples in the slightly overheated melt for 15 minutes and dissolving the attached salt residues by water. The immersing and removing process was repeated up to four times.

Essential Results

Melts of acidic phosphates, acidic sulfates, alkaline hydroxides and alkaline-aluminium-chlorides show best decontamination results. Oxidizing melts, as nitrates, are less appropriate for decontamination. In spite of this fact the addition of small amounts of oxidizing agents to alkaline hydroxide melts improves the effectiveness of this type of melts significantly. Moreover, slightly abrasive melts show better results than those without significant abrasion.

Planning for the Near Future

It is planned to continue these experiments with other salts and modified salt mixtures. Emphasis is given to the development of devices for coating metal surfaces with the melt and removal of the melts after reaction. In addition the selectiveness of the melts with respect to the contaminating nuclides will be tested.

4412 Behavior of Plutonium in the Soil
Existing and Potential Sources of Plutonium Contamination
in the Environment
(A. Jakubick, ADB)

Work Completed

Published data on existing and potential sources of Pu were evaluated. The distribution of Pu from gaseous and liquid effluents in the vicinity of nuclear facilities was also considered. These data are required for the analysis of Pu pathways as well as for the description of transport mechanisms in nature.

Essential Results

Typical Pu-concentration in European latitudes are:

10^{-22} Ci/cm ³	in the air
$3,5 \cdot 10^{-19} - 30 \cdot 10^{-19}$ Ci/cm ³	in the sea water
$10^{-13} - 10^{-14}$ Ci/g	in the top soil
or	
10^{-3} Ci/km ²	in the upper 20 m soil layer

Pu levels increased above this background could be always directly related to documented cases of environmental release. Secondary accumulations by natural processes were not observed in terrestrial environments till now. However the soil seems to be an accumulator of Pu from air and water.

Besides of nuclear weapon tests and military accidents there is a contribution from the fuel cycle to the environmental contamination as well: by planned routine discharges and unplanned accidental release.

Pu release arising from normal operations are kept as low as to have no considerable environmental effect. Their source strength may be controlled by design criteria. Contrary to this, accidents are of statistical nature. The characterization of Pu-release from this source must be given in terms of hazard probability.

In both cases the release takes place through the ventilation system and the spreading of contaminants can be expected in ground level.

The hazard resulting from disposal of α -bearing wastes is difficult to evaluate. They may become a source of Pu contamination under influence of long-term geologic factors such as: underground erosion and denudation.

Planning for the Near Future

Different nuclear safety reports are calling for new environmental criteria on transuranium elements produced in the fuel cycle. In order to substantiate them, experiments are planned on migration and dispersion of these nuclides.

4420 Techniques of Clearing and Dismantling

4421 Development of Methods and Procedures for the Decommissioning
 and Final Disposal of Nuclear Facilities

Work Completed, Essential Results

A coordinated working program was set up with respect to decommissioning as a consequence of a major accident. This program was compiled by the Gesellschaft für Kernforschung, Kraftanlagen Heidelberg, Nuclear-Ingenieur-Service, Nukem and Transnuclear.

The problem of clearing a nuclear reactor core damaged by a major accident will be tackled first.

4422 Remotely Controlled Equipment

Work Completed, Essential Results

The medium sized manipulator vehicle MF2 was handed to the Kern-technischer Hilfszug (Nuclear Emergency Assistance Team) and the first test period started. The manufacture of the light manipulator vehicle MF3 was commissioned to a specialized company in the beginning of this year.

The vehicle will be equipped with two light electric Master Slave manipulators which have to be designed in detail.

The electric EMSM I Master Slave maipulator has been fitted by a some components to allow test runs.

4500 SAFETY ASSESSMENT OF NUCLEAR PLANTS

4530 Risk and Reliability Analysis of Nuclear Plants
(R. Papp, L. Caldarola, IASR)

A state of the art study on "Methods for the quantitative Analysis and Evaluation of the Risks in the Nuclear Fuel Cycle" has been finished.

The status reports consists of 13 chapters. An outline is given in the present PNS progress report.

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, LFT)

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 sollen sowohl nach kleinen Betriebszwischenfällen mit relativ geringer Aktivitätsfreisetzung als auch nach großen Störfällen betrieben werden.

Strahlungsbeständigkeit des Sorptionsmaterials Bayer Sorbens VP AC 6120

Die Komponenten einer Störfallumluftfilteranlage können nach schweren Störfällen einer hohen Strahlenbelastung ausgesetzt sein. Dies gilt insbesondere für das Sorptionsmaterial und die Schwebstofffilter, in denen die Radionuklide aus der Atmosphäre des Reaktorsicherheitsbehälters abgeschieden werden. Bereits in Karlsruhe durchgeführte Bestrahlungsuntersuchungen am Sorptionsmaterial AC 6120 zeigten praktisch keine Verringerung der Abscheideleistung bei Strahlungsdosen bis zu $8,6 \cdot 10^8$ rad (KFK 1565). Die Bestrahlung konnte jedoch nur unter statischen Bedingungen an Sorptionsmaterialien durchgeführt werden, die in Plastikfolie eingeschweißt waren. Der Abscheidegrad wurde nach Bestrahlungsende in einer Laborapparatur außerhalb des Strahlungsfeldes bestimmt. Da unter diesen Bedingungen u. a. die Stickoxide, die während der Bestrahlung entstehen, nicht durch den zu filternden Gasstrom abgeführt werden, entsprechen die Prüfbedingungen nicht ausreichend denen, die nach einem Störfall zu erwarten sind.

Eine geeignete Anordnung für Abscheidungsuntersuchungen im Strahlungsfeld setzt eine sehr hohe Dosisleistung der Strahlenquelle voraus. Im Savannah River Laboratory (SRL), USA, sind entsprechende Bestrahlungseinrichtungen vorhanden, die eine Dosisleistung von $2,6 \cdot 10^7$ rad/h im Sorptionsbett unter Test erzeugten.

Das Jod-Sorptionsmaterial VP AC 6120 wurde mit dem Standard 5-Stunden Abscheidungs- und Desorptionstest des SRL geprüft, der unter folgenden Bedingungen durchgeführt wurde:

Vorkonditionierung:

30 min Bestrahlungsdauer bei einer Dosisleistung von $2,6 \cdot 10^7$ rad/h und einer linearen Geschwindigkeit der als Spülgas dienenden Raumluft von 26 cm/s. Anschließend Beaufschlagung mit einem Luft-Dampfgemisch bei 80°C und 100 % relativer Gasfeuchte für 30 min bei gleicher Dosisleistung.

Beaufschlagung mit Jod:

Beladung des Sorptionsmaterials mit 0,58 mg radioaktiv markiertem J_2 pro g AC 6120 innerhalb einer Stunde unter den zuletzt angegebenen Bedingungen.

Desorptionstest:

Über weitere 4 Stunden Spülen des mit markiertem J_2 beaufschlagten Sorptionsmaterials mit Feuchtluft von ebenfalls 80°C, 100 % r. F., 26 cm/s linearer Gasgeschwindigkeit in einem Strahlenfeld von $2,6 \cdot 10^7$ rad/h Dosisleistung.

Strahlungsdosis insgesamt:

$\sim 1,6 \cdot 10^8$ rad, davon $1,3 \cdot 10^8$ rad während und nach der Beaufschlagung mit J_2 .

Prüfergebnisse für ein 2,54 cm tiefes Testbett:

Durchlässigkeit für Jod während der Beladung	0,014 %
Desorbiertes Jod während der folgenden 4 Stunden Spülzeit (Desorptionstest)	<u>0,019 %</u>
Insgesamt durchgebrochenes Jod	0,033 %
Abscheidegrad	99,967 % =====

Die Durchlässigkeit des AC 6120 unter den angegebenen Bedingungen entspricht in etwa der von KJ- und TEDA-imprägnierten Aktivkohlen auf Kokosnuß-Basis, die allerdings bei hohen Temperaturen wegen Desorption und Brandgefahr nicht eingesetzt werden können.

Da das Jod-Sorptionsmaterial AC 6120 nicht für den Einsatz bei extrem hohen Luftfeuchten entwickelt wurde, überrascht der unter den vorstehenden Bedingungen erreichte hohe Abscheidegrad. Die Versuche sollen, falls eine entsprechende Vereinbarung mit dem SRL erreicht werden kann, mit höheren Temperaturen und radioaktiv markiertem Methyljodid als Prüfmittel fortgesetzt werden.

Umluftfilter für gasgekühlte Reaktoren

Im KFK 1908 (2. Halbjahresbericht 1973 PNS) wurden Versuche zum Abscheideverhalten eines AgNO_3 -imprägnierten Produktes auf der Basis amorpher Kieselsäure (Jod-Sorptionsmaterial VP AC 6120 der Fa. Bayer, Leverkusen) bei Temperaturen des Luftstromes zwischen 200°C und 350°C beschrieben. Als Trägergas wurde Laborluft verwendet. Da bei längerer Einwirkung hoher Temperaturen ($> 200^\circ\text{C}$) Veränderungen in der Imprägnierung des Sorptionsmaterials auftraten, wurden die Versuche fortgesetzt.

Bei einem GaU in einem Helium-Hochtemperaturreaktor kann die Temperatur in der Atmosphäre eines Reaktorschutzgebäudes Spitzenwerte von 360°C erreichen. Die Atmosphäre des Reaktorschutzgebäudes besteht dann aus einem Gemisch von 47 Vol.% Helium und 53 Vol.% Luft. Der Druck im Reaktorgebäude beträgt 3,9 bar. 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 $< 100^\circ\text{C}$ erreicht.

Es wurde die Abscheideleistung von AC 6120 bei dem angenommenen Temperaturanstieg und -abfall nach einem GaU mit Bestimmung der Zersetzungsrates der Imprägnierung untersucht (Tab. 4111,1).

Tab. 4111.1: Zersetzung der AgNO₃-Imprägnierung im AC 6120 bei hohen Temperaturen

Testbett-Temp. vor Einleitung (°C)	Testbett-Temp. während Ein- leitung (°C)	Spülgas He/Luft	Gasdruck (bar)		Maßanalyse w/o AgNO ₃ - Zersetzung	Abscheidegrade integral	
			a +)	b ++)		5 cm	10 cm
360	27	1 : 1	1	1	18,2	99,768	99,9996
360	27	1 : 1	2,6	2,6	8,8	99,981	99,9999
360	27	1 : 1	3,9	1	3,6	98,711	99,9995
360	27	1 : 1	3,9	1	3,6	99,474	99,9997
400	27	1 : 1	2,6	1,6	29,8	99,340	99,997

a +) Gasdruck während der Vorströmzeit

b ++) Gasdruck während der Einleitung und beim Nachströmen

Bei der Zersetzung der AgNO_3 -Imprägnierung entstehen Stickstoffdioxid und Sauerstoff nach folgender Reaktionsgleichung:



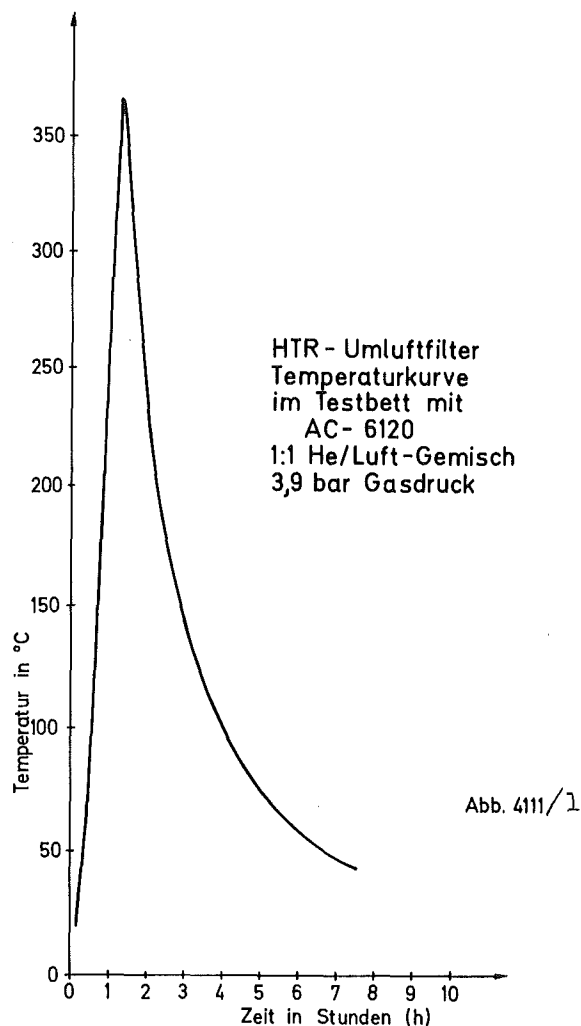
Versuchsdurchführung: Das Sorptionsmaterial wurde kurzzeitig (~ 5 min) bei einem Druck bis zu 3,9 bar und auf eine Spitztemperatur bis zu $T = 400^\circ\text{C}$ erhitzt. Das bei der Zersetzung der AgNO_3 -Imprägnierung entstehende NO_2 -Gas wurde in Waschflaschen mit 0,1 n NaOH aufgefangen und der Anteil der Zersetzung quantitativ bestimmt. Die Waschflaschen wurden über den gesamten Aufheiz- und Abkühlzeitraum mit dem Abgas durchspült. Das anströmende Gas hatte eine Zusammensetzung von Luft und Helium im Verhältnis 1 : 1. Die Verweilzeit betrug 0,2 s bei 10 cm Bett-Tiefe. Die Spitztemperaturen der die Testbetten anströmenden Gase wurden über die Dauer von fünf Minuten gehalten bevor der Abkühlvorgang eingeleitet wurde.

Die Abscheideleistungen des Jod-Sorptionsmaterials wurden unter einem Druck von 1 bar, 2,1 bar und einer Temperatur von 27°C mit ^{131}J markiertem CH_3J untersucht. Die Untersuchung der Abscheideleistung von AC 6120 nach der Vorbehandlung wurde unter ungünstigsten Bedingungen, nämlich bei 27°C , durchgeführt. Die Chemisorption von CH_3J bei höherer Temperatur verläuft wesentlich schneller und führt zu wesentlich höheren Abscheidegraden (s. KFK 1908, S. 3). Die Bett-Tiefe der beiden durch Stahlnetze getrennten Betten betrug pro Bett 5 cm. Aufheizzeit und Abkühlzeit dauerten insgesamt 7 h. Die Einleitzeit des Prüfmediums $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ wurde auf 1 Stunde, die Nachströmzeit auf 2 Stunden festgelegt.

Ergebnisse:

1. AC 6120 sollte unter den angegebenen Bedingungen bis zu einer Maximaltemperatur von 360°C eingesetzt werden.
2. Mit steigendem Druck wird die Zersetzung zurückgedrängt. Möglicherweise ist dieser Effekt jedoch auf die Verringerung der linearen Gasgeschwindigkeit und entsprechend verlangsamte Abfuhr von Stickoxiden zurückzuführen, die durch die Druckerhöhung des Trägergases im Testbett (bei gleichbleibendem Volumenstrom der eingespeisten Spülluft vor der Pumpe, durch die eine Druckerhöhung im Testbett bewirkt wird) auftritt. Der Einfluß der linearen Gasgeschwindigkeit des Spülgases und damit des Partialdampfdruckes der Stickoxide über dem Sorptionsmaterial auf die Zersetzungsgeschwindigkeit wird z. Z. untersucht.

Bei den angenommenen GaU-Bedingungen von 3,9 bar und 360°C (s. Temperaturkurve Abb. 4111.1) werden nur 3,6 % der Imprägnierung zersetzt; das bedeutet einen NO₂-Gehalt der Atmosphäre im Reaktorgebäude von 1,15 ppm NO₂. Diese geringe Menge führt zu keinerlei Beeinträchtigung von Apparate- und Gebäudeteilen. Durch das nur kurzzeitige Anstehen der Spitztemperatur tritt praktisch keine Beeinflussung der Abscheideleistung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 in einem Umluftfilter auf, wenn eine Spitztemperatur von 360°C nicht überschritten wird. Die Abweichungen im Abscheidegrad, die bei 360°C gemessen wurden, liegen im Rahmen der Reproduzierbarkeit.



Prüfverfahren für Schwebstofffilter zur Anwendung bei hoher Lufttemperatur und Feuchte

Für die Weiterentwicklung des Aerosolerzeugungsverfahrens nach der Flammenverdampfungsmethode wurde in einer Technikumshalle ein Versuchsstand aufgebaut. Er besteht aus einem Kanal mit quadratischem Querschnitt. Für den in Stufen einstellbaren Luftdurchsatz sorgt ein Radialgebläse mit einer Nennleistung von $1000 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$. Der Lufteintritt am Kanaleingang erfolgt über eine Schwebstofffilterzelle Sonderklasse "S", so daß die Luft im Kanal weitgehend von störenden Teilchen aus der Umgebung befreit ist. Im Mittelteil können Schwebstofffilter mit dem Querschnitt $610 \text{ mm} \times 610 \text{ mm}$ eingesetzt werden. Für die Entnahme der Natriumchlorid-Aerosole, die am Anfang der Strecke vom Generator geliefert werden, wurden an verschiedenen Punkten vor und nach der Testfilterposition Probenahmestellen angebracht.

Als Aerosolgenerator kommt eine Pulverspritzpistole zur Anwendung. Dies ist ein schweißbrennerähnliches Gerät, in das neben den Brenngasen zusätzlich Preßluft eingeblasen wird, die an einem Injektorsystem Unterdruck erzeugt. Dadurch wird das pulverförmig vorliegende Natriumchlorid aus einem Vorratsbehälter angesaugt und in die Flamme gefördert, wo es verdampft, um dann zu submikroskopisch kleinen Teilchen zu rekondensieren.

Bei der Vorbereitung des Natriumchlorids für die Dosierung ergaben sich Schwierigkeiten. Da handelsübliches NaCl zu grobkörnig ist, wurde es in einer Achatkugelmühle gemahlen, durch ein Sieb mit $0,1 \text{ mm}$ Maschenweite gesiebt und bei 120°C getrocknet. Die Rieselfähigkeit des so erhaltenen Pulvers erwies sich als nicht ausreichend, da es infolge seiner hygroskopischen Eigenschaften leicht zusammenbackte. Auch die Beimischung von kolloidalem Graphit, die in der Literatur vorgeschlagen wird, brachte nicht den gewünschten Erfolg. Gute Ergebnisse lieferte schließlich ein von der Industrie angebotenes Produkt zur Erhaltung der Fließfähigkeit und zur Hydrophobierung von Pulvern. Es handelt sich dabei um ein in feinsten Form vorliegendes Pulver auf SiO_2 -Basis mit einer äußerst geringen Schüttdichte von $0,06 \text{ g cm}^{-3}$. Ein Anteil dieses Pulvers von $0,5 - 1 \text{ Gew.}\%$ an Natriumchlorid ergab ein stabiles, gut rieselfähiges Produkt.

Zum Nachweis der damit erzeugten Aerosole wurden zwei verschiedene Meßgeräte bestellt, von denen seit kurzem eines zur Verfügung steht. Es ist ein hochempfindliches Flammenfotometer, das von einer englischen Firma für die im British Standard 3928 festgelegte Filterprüfmethode mit NaCl hergestellt wird. Im Gegensatz zu handelsüblichen Flammenfotometern, die mit wässrigen Lösungen arbeiten, ist das Gerät in der Lage, Teilchen direkt im Luftstrom zu erfassen und nachzuweisen. Die untere Nachweisgrenze für NaCl liegt bei $1,5 \cdot 10^{-7} \text{ g m}^{-3}$, während die maximal erfaßbare Aerosol-Konzentration 15 mg m^{-3} beträgt.

Es lassen sich also mit einem dem Luftdurchsatz entsprechend dimensionierten Aerosolgenerator Filter mit Abscheidegraden bis zu 99,999 % untersuchen.

Mit Hilfe des Flammenfotometers wurden die Funktionsfähigkeit des Aerosolgenerators und die Gleichmäßigkeit der Salzdosierung einer ersten Prüfung unterzogen. Das Salz befindet sich in einem Vorratsbehälter, der auf einem speziellen Vibrationsmotor (Originalbezeichnung: "Pulverschwinggerät") angebracht ist, wodurch ein Zusammenbacken verhindert werden soll. Der Pulverfluß zum Brenner wird durch den vom Saugluftdurchsatz abhängigen Unterdruck und über ein Nadelventil am Vorratsbehälter geregelt. Es ergab sich, daß im unteren Meßbereich des Fotometers, d. h. bei äußerst geringer Salzdosierung, starke Schwankungen des mit einem Kompensationslinienschreiber aufgezeichneten Ausgangssignals des Fotometers auftraten. Die Ursache dafür liegt nach bisherigen Erkenntnissen in der Regelcharakteristik des Nadelventils, das bei extrem kleiner Oeffnung keinen konstanten Pulverdurchfluß erlaubt. Beim Uebergang zu höheren Dosierraten wurden die Schwankungen kleiner, und auch die Reproduzierbarkeit der eingestellten Konzentrationswerte war gut. Man kann erwarten, daß die hohen Aerosolkonzentrationen, die für Filterprüfungen erforderlich sind, mit ausreichender Genauigkeit eingestellt werden können.

Eine der wichtigsten Forderungen bei der Erzeugung eines Testaerosols zur Filterprüfung ist die Einhaltung einer bestimmten Teilchengrößenverteilung. Aus diesem Grund wird neben dem Flammenfotometer zur reinen Massenkonzentrationsbestimmung ein Gerät benötigt, mit dem kontinuierliche Teilchengrößenanalysen durchgeführt werden können. Die dafür üblicherweise benutzten Lichtstreuungsfotometer genügten den Spezifikationen nicht, da auch noch Partikel in dem wichtigen Größenbereich

um und vor allem unter $0,3 \mu\text{m}$ nachgewiesen werden sollten. Der von der Firma Sartorius angebotene Szintillationsspektralteilchenzähler (SST) erfüllt diese Forderung. Das Meßverfahren beruht darauf, daß die in einer Flamme aufgeheizten Aerosolteilchen Lichtimpulse einer bestimmten spektralen Verteilung aussenden, deren Intensität einen definierten Zusammenhang mit dem Teilchendurchmesser aufweist. Es können Aerosole in einem Durchmesserbereich von $10^{-2} \mu\text{m}$ bis zu $10^2 \mu\text{m}$ analysiert werden. Bei Versuchen im Filterprüfstand muß gewährleistet sein, daß das Gerät sowohl hohem Druck als auch hoher Temperatur standhält. In Zusammenarbeit mit dem Hersteller wurden Pläne ausgearbeitet, um die Meßkammer des SST so auszurüsten, daß er unter Prüfstandsbedingungen eingesetzt werden kann.

Die Lieferung des Szintillationsspektralteilchenzählers ist erst für Juni 1974 zugesagt, doch konnten mit einem uns kurzfristig überlassenen Leihgerät erste Probemessungen durchgeführt werden.

Technischer Filterprüfstand

Im Filterprüfstand waren ursprünglich zwei Feuchtemeßstellen nach dem Ultrarotabsorptionsprinzip eingebaut. Diese Meßstellen zeigten neben häufigen elektronischen Defekten, die zu Ausfällen führten, unterschiedliche, nichtreproduzierbare Temperatur- und Nullpunktdriften. Dadurch war ein Versuchsbetrieb über längere Zeit bei der geforderten Genauigkeit nicht möglich.

Im Rahmen der Nachbesserung der Anlage durch die Firma Lurgi wurde probeweise ein neuentwickeltes Feuchtemeßgerät in den Prüfstand eingebaut. Dieses Gerät arbeitet nach dem Prinzip der Taupunktmessung und führt die Feuchtemessung auf eine reine Temperaturmessung zurück. Mit diesem Gerät wurde der Bereich bis ca. 130°C bei Luftfeuchten bis 100 % überprüft. Das Gerät ermöglichte es, alle vorgegebenen Sollwerte im Prüfstand einzustellen. Daraufhin wurden von der Firma Lurgi zwei Sonderausführungen dieses Gerätetyps mit fünf sich überlappenden gespreizten Taupunkttemperaturbereichen bestellt, die eine bessere Auflösung ergaben. Die Lieferung erfolgte im Mai dieses Jahres. Nach dem Einbau erfolgt z. Z. eine systematische Ueberprüfung und Eichung.

Aufgrund des Meßprinzipes ist nur eine Genauigkeit von ca. 1° Taupunkttemperatur möglich, bei jedoch wesentlich besserer Reproduzierbarkeit von 0,2° TP. Deshalb wird versucht, für jede Meßstelle eine Eichkurve entsprechend der geforderten Genauigkeit zu erstellen.

Aufgrund der Erfahrungen aus dem ersten Versuchsbetrieb wurde im gleichen Zeitraum die Meßtechnik wesentlich über den Lieferumfang hinaus erweitert. Es wurden zusätzliche Meßstellen für den Druck und Temperaturen eingebaut. Diese Meßwerte werden ebenfalls registriert. Dadurch ist ein besserer Ueberblick über die Betriebszustände möglich.

Eine zusätzliche Taupunkttemperaturmeßstelle dient bei Temperaturen über 80°C und bei höheren Drücken als Vergleichsmeßstelle für die Feuchte-meßeinrichtungen.

Gleichzeitig wurde in der Halle über der Teststrecke, die nur Filterzellen üblicher Bauform aufnehmen kann, eine Stahlbaukonstruktion mit einer fahrbaren Bühne entsprechender Traglast errichtet. Diese Bühne ermöglicht größere und komplette Kesselfilteranlagen an den Kreislauf anzuschließen. Nach Abschluß der Montagearbeiten an der Stahlrohrkonstruktion wurde mit der Montage und dem Anschluß der ersten Prototyp-Störfallumluftfilteranlage an den Prüfstand begonnen.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

In der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe und in der von der KEWA geplanten großen Wiederaufarbeitungsanlage mit einem Jahresdurchsatz von 1500 t soll das Spaltjod, das vorwiegend aus ^{129}J und ^{127}J besteht, direkt hinter dem Säurerückgewinnungsschritt aus der Gasphase auf Jodadsorbentien abgeschieden werden. Außerdem sind die Behälterabgase zu filtern. Zur Sorption der anfallenden Jodmengen wird das Sorptionsmaterial Bayer Sorbens VP AC 6120 (abgekürzt als AC 6120) benutzt. Der Hauptanteil der gasförmigen Jodverbindungen liegt als elementares Jod vor. Durch Verunreinigungen der Salpetersäure mit organischen Verbindungen können primäre, sekundäre und tertiäre Alkyljodide und andere organische Jodverbindungen auftreten, deren Reaktions- und Abscheidungsverhalten zu untersuchen ist. Außerdem sind derartige Jodverbindungen in den Behälterabgasen zu erwarten.

Umsetzung von Alkyljodiden mit dem anorganischen Jod-Sorptionsmaterial AC 6120

Ueber Untersuchungen des Reaktionsverhaltens von primären Alkylhalogeniden wurde bereits in KFK 1908 berichtet.

Um die Reaktionen von sekundären und tertiären Alkylhalogeniden mit dem Silbernitrat des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 aufzuklären, wurden Umsetzungen zwischen AC 6120 und verschiedenen sekundären und tertiären Alkylhalogeniden durchgeführt. Untersucht wurde ebenfalls die Reaktionsgeschwindigkeit von primären, sekundären und tertiären Alkylhalogeniden mit AC 6120 in Abhängigkeit von der Kettenlänge.

Als Modellsubstanzen werden folgende Alkylhalogenide betrachtet:

1. Primäres Butyljodid (1-Jod-butan),
2. sekundäres Butyljodid (2-Jod-butan),
3. tertiäres Butyljodid (2-Jod-2-methylpropan).

Die Umsetzungen wurden in der in KFK 1908, S. 5. Abb. 4112/1, abgebildeten Apparatur durchgeführt. Die Umsetzungsprodukte wurden gaschromatographisch getrennt und untersucht. Die gaschromatographische Trennung wurde wie in KFK 1859 beschrieben durchgeführt.

Ergebnisse

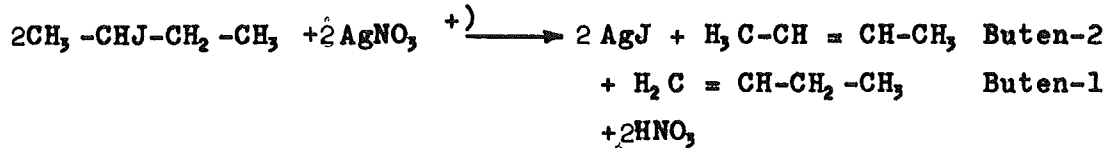
Zu 1: Umsetzung von primären Alkyljodiden mit AC 6120



Die relative Reaktionsgeschwindigkeit der geradkettigen Alkyljodide mit AC 6120, ermittelt durch den Vergleich der Peakflächen des Chromatogrammes, nimmt mit der Kettenlänge der primären Alkyljodide ab; die zur Abscheidung notwendige Bett-Tiefe des Sorptionsmaterials bzw. die Verweilzeit ist entsprechend zu erhöhen.

+) Das anorganische Sorptionsmaterial ist mit AgNO₃ imprägniert.

Zu 2: Umsetzung von sekundären Alkyljodiden mit AC 6120



Als organische Hauptumsetzungsprodukte bilden sich Buten-1 und Buten-2.

Zu 3: Umsetzung von tertiären Alkyljodiden mit AC 6120



Als organisches Hauptumsetzungsprodukt wurde Isobutylene isoliert, das nach Bildung eines Carboniumions durch Eliminierung eines Protons entsteht. In Abb. 4112.1 wird das Chromatogramm der Ausgangsprodukte (Modellsubstanzen) und in Abb. 4112.2 das Chromatogramm der Umsetzungsprodukte wiedergegeben. Der Unterschied in den Reaktionsgeschwindigkeiten wird durch zeitversetzte Probenahme aus statischen Versuchen bestimmt.

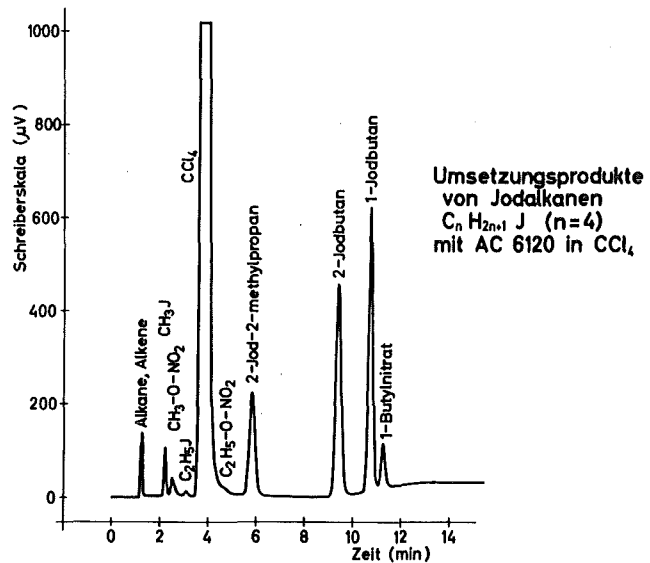
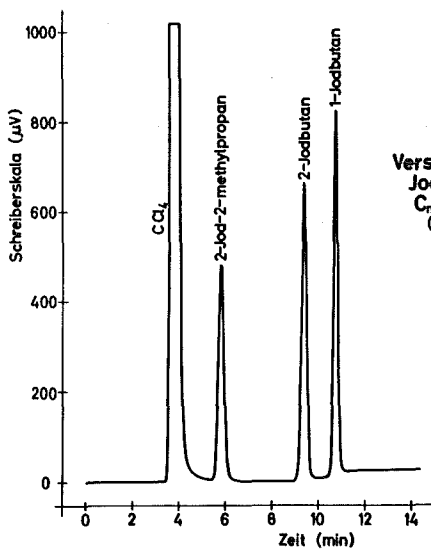


Abb. 4112.1

Abb. 4112.2

+) Das anorganische Sorptionsmaterial ist mit AgNO_3 imprägniert.

Zusammenfassung

Tertiäre Alkyljodide reagieren erheblich schneller mit AC 6120 als primäre und sekundäre Alkyljodide. Die sekundären Alkyljodide bilden bei der Umsetzung mit AC 6120 hauptsächlich Alkene und in geringer Ausbeute Alkane. Während bei der Umsetzung von sekundären Alkyljodiden primäre Alkyljodide nicht nachgewiesen werden konnten, wurde die intermediäre Bildung primärer Alkyljodide bei der Reaktion tertiärer Alkyljodide mit AC 6120 festgestellt. Die primären Alkyljodide setzen sich in Folgereaktionen mit AC 6120 zu primären Alkylnitrat und Silberjodid um.

Wie bei den primären Alkyljodiden nimmt die Reaktionsgeschwindigkeit der sekundären und tertiären Alkyljodide mit AC 6120 mit der Kettenlänge ab.

Mischimprägnierungen zum Einsatz in Wanderbett-Filtern

Die Untersuchungen der Mischimprägnierungen von anorganischem Jod-Sorptionsmaterial auf der Basis von amorpher Kieselsäure wurden weitergeführt. Abscheideuntersuchungen und Standzeitverhalten von Neuimprägnierungen unterschiedlicher Zusammensetzung an KNO_3 - und AgNO_3 -Gehalt wurde geprüft. Das Abscheideverhalten wurde für verschiedene Imprägnierungen bei 30°C und 70 % relativer Luftfeuchte bzw. 150°C und 2,5 % NO_2 -haltiger Luft (WAK-Bedingungen) untersucht. Das Prüfmedium bestand aus CH_3J , das mit $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ getracert wurde. Die Beaufschlagungszeit mit dem Prüfmedium betrug eine Stunde. In Tab. 4112.1 werden die Versuchsergebnisse aufgeführt. Steigender Kaliumnitratgehalt der Imprägnierung bewirkt eine Herabsetzung des Abscheidegrades des Materials bei Zimmertemperatur und 70 % relativer Luftfeuchte. Bei 150°C und einem Trägergas von Luft + 2,5 % NO_2 wird der Abscheidegrad durch den Kaliumnitratgehalt des Materials im Gegensatz zu den Versuchen bei Zimmertemperatur nur wenig reduziert.

Mit steigendem Kaliumnitratgehalt des Sorptionsmaterials wird das Auswachsen von Silbernitrat-Kristallen unterdrückt. Bei längerer Lagerung zeigte die Oberfläche des Sorptionsmaterials bei Mischimprägnierung stärkere Verfärbung als bei reiner AgNO_3 -Imprägnierung.

Tab. 4112.1: Vergleich der integralen Abscheidegrade bei verschiedenen Imprägnierungen

Imprägnierung pro 100 g Basismaterial	Testbett- Temperatur °C	Auswachsrate (nach 5 Mona- ten Lagerzeit)	Trägergas	integr. Abscheidegrade				
	% r. F.	Farbe		Verweilzeit	0,1	0,2	0,3	0,4
				Bett-Tiefe	2,5	5,0	7,5	10,0
8,6 g Ag-5 g K	30/70	gering, grau	Luft		75,6	94	98,7	99,75
8,0 g Ag	30/70	stark, hellgrau	Luft		90,6	99,5	99,97	99,998
6,2 g Ag-1,4 g K	150/<1	stark, grau	Luft + 2,5 % NO ₂		95,5	99,92	99,998	99,999
6,1 g Ag-1,8 g K	150/<1	mittel, grau	Luft + 2,5 % NO ₂		98,4	99,98	99,998	99,999
7,95g Ag-5 g K	150/<1	gering, grau	Luft + 2,5 % NO ₂		98,4	99,98	99,999	99,9995
8,0 g Ag	150/<1	stark, hellgrau	Luft + 2,5 % NO ₂		98,5	99,9971	99,9991	99,9994
8,0 g Ag	30/70	stark, hellgrau	Luft		90,6	99,5	99,97	99,998

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

Alterung von Spaltjod-Sorptionsmaterialien

Das schnelle Absinken der Abscheideleistung von Aktivkohlefiltern in Kernkraftwerken muß durch den Einsatz von Voradsorbern oder geeigneten Jod-Sorptionsmaterialien reduziert werden.

Die Alterungsversuche an Aktivkohlen wurden fortgesetzt (KFK 1365, S. 125 - 134; KFK 1818, S. 101 - 111). Es wird z. Z. untersucht, ob TEDA-imprägnierte Aktivkohlen ein besseres Standzeitverhalten als die z. Z. in der BRD eingesetzten KJ-imprägnierten Aktivkohlen zeigen. Die Aktivkohle, Typ SS 207 b, 5 % TEDA-imprägniert, wurde in der Atmosphäre eines Reaktor Gebäudes (FR 2) der Alterung unterworfen. Die Abscheidungsuntersuchungen nach erfolgter Alterung wurden unter folgenden Bedingungen durchgeführt:

Trägergas: Feuchtluft von 30°C und 98 - 100 % r. F., unter Atmosphärendruck.

Beladung mit Prüfmittel: ca. 75 µg CH₃J pro g Aktivkohle (berechnet für 10 cm Bett-Tiefe).

Der Ausbau der Alterungsproben erfolgte im Zeitintervall von ~ 30 Tagen. In Abb. 4114/1 sind Ergebnisse der bisherigen Untersuchungen wiedergegeben. Das über diese Daten hinaus gewonnene umfangreiche Versuchsmaterial zeigt, daß die Vergiftung der TEDA-imprägnierten Aktivkohle über die Tiefe des Sorptionsbettes offensichtlich langsamer erfolgt als bei KJ-imprägnierter Aktivkohle. So ergaben sich nach einer Betriebszeit von 237 d im nachfolgenden Test unter oben angegebenen Bedingungen folgende differentielle und integrale Abscheidegrade:

Tab. 4114.1: Abscheidegrade von TEDA-imprägnierter Aktivkohle nach 237 d Filterbetrieb

Differenzielle Abscheidegrade für ^{131}J (beaufschlagt in Form von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$) in %					
Bett 1	Bett 2	Bett 3	Bett 4	Bett 5	Bett 6
3,0	68,3	72,2	83,9	86,8	87,4
Integrale Abscheidegrade für ^{131}J (beaufschlagt in Form von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$) in %					
Bett-Tiefe in cm					
2,5	5,0	7,5	10,0	12,5	15,0
Verweilzeit in s					
0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
3,0	69,2	93,0	98,9	99,85	99,98

Alterung von Aktivkohle Typ SS 207 B (5% TEDA imprägniert)

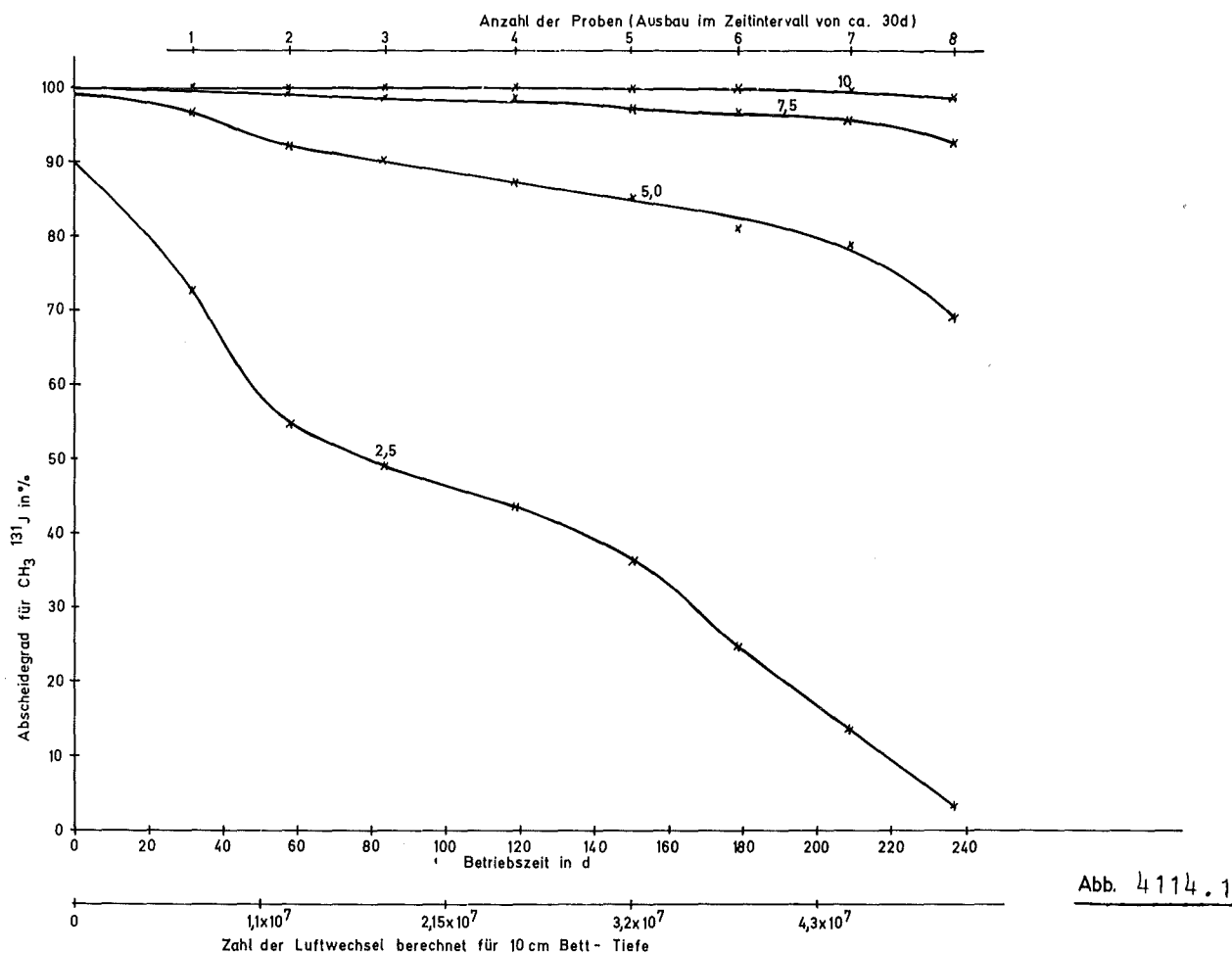


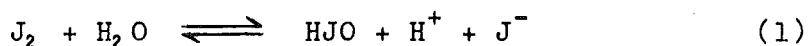
Abb. 4114.1

Flüchtigkeit von hypoiodiger Säure

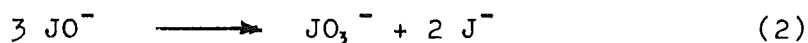
In neueren Veröffentlichungen wurde wiederholt darauf hingewiesen, daß hypoiodige Säure (HJO) gasförmig auftreten und die Abscheidung von Spaltjod aus der Raum- und Abluft kerntechnischer Anlagen wesentlich beeinflussen könnte. Als Beitrag zur Klärung dieser Frage wurden Laboruntersuchungen über die Flüchtigkeit der hypoiodigen Säure durchgeführt. In diesen Versuchen wurde Luft (als Trägergas für hypoiodige Säure) durch eine wässrige Lösung (Verflüchtigungslösung) geleitet, die hypoiodige Säure enthielt. Die eventuell mitgeführte hypoiodige Säure wurde - je nach Konzentration der Verflüchtigungslösung - durch Absorber (Auffanglösungen) oder Adsorber aus dem Luftstrom entfernt.

Eigenschaften der hypoiodigen Säure

Hypoiodige Säure bildet sich in Wasser durch Hydrolyse von elementarem Jod:



Der Hydrolysegrad ist sehr gering (Gleichgewichtskonstante bei 25°C etwa 10^{-13}). Er nimmt mit fallender J_2 -Konzentration und steigender Temperatur zu. Hypoiodige Säure ist eine sehr schwache Säure (Dissoziationskonstante bei 25°C etwa 10^{-11}). Sie zeichnet sich, ebenso ihre Salze, durch geringe Beständigkeit aus:



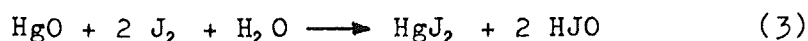
Die Zerfallsgeschwindigkeit steigt mit zunehmender JO^- -Konzentration und Temperatur stark an.

Versuche bei hoher Jod-Konzentration

Es liegt nahe, die Versuche zunächst derart durchzuführen, daß die eventuell mitgeführte hypoiodige Säure chemisch in Auffanglösungen nachzuweisen ist. Das ist, wie aus den genannten Eigenschaften der hypoiodigen Säure hervorgeht, mit Schwierigkeiten verbunden. Die Verflüchtigungslösung muß frei von J_2 sein, denn mitgeführtes J_2 würde nach (1) in der Auffanglösung ebenfalls HJO bzw. JO^- bilden. Bei der relativ hohen Konzentration an J_2 , die zum Ueberschreiten der Nachweisgrenze angewendet werden muß, ist das jedoch in einer neutralen wässrigen Lösung nicht der Fall. Eine Steigerung der Temperatur hat zwar eine Erhöhung des Hydrolysegrades zur Folge, gleichzeitig aber auch eine Erhöhung der Zerfallsgeschwindigkeit der hypoiodigen Säure.

Weitere Möglichkeiten zur Steigerung der Hydrolyse sind pH-Erhöhung und Zugabe von Reagentien, die J^- -Ionen binden. Der Nachteil der pH-Erhöhung ist die Vergrößerung der Dissoziation, d. h. die Umwandlung der hypoiodigen Säure in nichtflüchtiges Hypoiodit. Außerdem ist sie nicht sehr wirkungsvoll: Theoretisch ist in 10^{-2} n J_2 -Lösungen bei 20°C selbst bei pH 12, bei dem HJO zum größten Teil als JO^- vorliegt, noch mit dem Auftreten von J_2 zu rechnen. Dies wurde experimentell bestätigt.

Aussichtsreicher ist die Erhöhung der Hydrolyse durch J^- -bindende Reagentien wie HgO:



In der Tat konnte in 10^{-2} n J_2 -Lösungen, die mit HgO behandelt worden waren, bei $20^\circ C$ und pH 12 kein J_2 mehr nachgewiesen werden. Bei Senken des pH-Wertes auf 10 trat aber wieder J_2 auf, offensichtlich durch Zerfall von HJO .

Die Versuche wurden mit der in Abb. 4114.2 wiedergegebenen Apparatur durchgeführt.

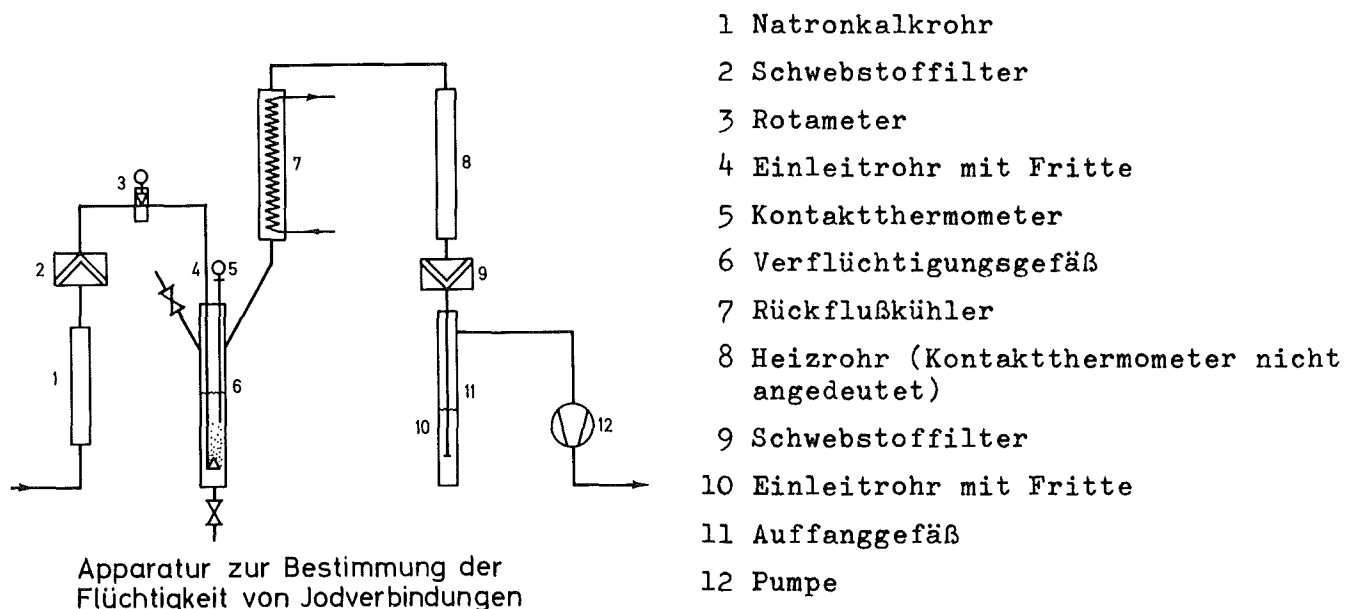
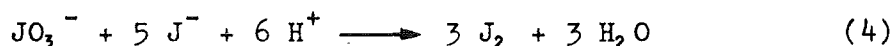


Abb. 4114.2

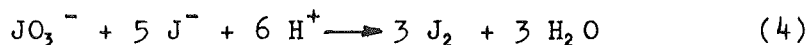
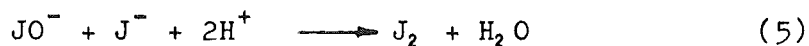
Die Temperatur der Flüssigkeit im Rückflußkühler betrug $0^\circ C$. Die Temperatur des Heizrohres wurde so eingestellt, daß die Luft bei Erreichen des Schwebstofffilters eine Temperatur von $35^\circ C$ hatte. Verflüchtigungs- und Auffanglösung hatten ein Volumen von jeweils 250 ml. Die Verflüchtigungslösungen wurden folgendermaßen hergestellt: J_2 -Lösungen, nach



erzeugt, wurden alkalisch gemacht, mit dem Zehnfachen der stöchiometrischen HgO -Menge versetzt, 1 min geschüttelt und abgesaugt. Sie wurden sofort nach ihrer Herstellung eingesetzt. Die Auffanglösungen bestanden aus 1 n $NaOH$ -Lösungen. Weitere Versuchsdaten:

Konzentration der Verflüchtigungslösung: 10^{-2} n (J_2)
 pH-Wert der Verflüchtigungslösung : 12 (s. o.)
 Temperatur der Verflüchtigungslösung : 20 oder $90^\circ C$
 Luftstrom : 25 l/h
 Versuchsdauer : 1 h

Als Nachweis der gegebenenfalls mitgeführten hypoiodigen Säure diene die Stärke-Reaktion des J_2 , das sich in der Auffanglösung nach J^- -Zugabe und Ansäuern aus JO^- und aus nach (2) entstandenem JO_3^- bilden würde:



Es hätte eine J_2 -Menge von etwa 0,1 % der (in der Verflüchtigungslösung) vorgelegten J_2 -Menge nachgewiesen werden können.

Das Ergebnis der Versuche ist negativ, d. h. es konnte kein JO^- in den Auffanglösungen festgestellt werden. Ein angeblich positives Ergebnis eines in der Literatur erwähnten und anscheinend ähnlich durchgeführten Versuches (J. H. Keller et al., 11th AEC Air Cleaning Conference 467, 1970) konnte also nicht bestätigt werden.

Versuche bei niedriger Jod-Konzentration

Abgesehen von der Schwierigkeit, HJO eindeutig zu identifizieren, sind Versuche, die Flüchtigkeit von HJO nachzuweisen, bei niedriger Jod-Konzentration aussichtsreicher: Der Hydrolysegrad ist größer und die Zerfallsgeschwindigkeit kleiner. Bei einer Konzentration des (vorgelegten) J_2 von 10^{-5} n und 90°C z. B. liegt Jod im Bereich von pH 8 - neben nichtflüchtigem J^- - praktisch vollständig als HJO vor. (Erniedrigung oder Erhöhung des pH-Wertes verursacht Umwandlung des HJO in J_2 bzw. JO^-). Bei Verwendung von radioaktiv markiertem J_2 sollte also die mitgeführte Aktivität Schlüsse auf die Flüchtigkeit von HJO zulassen.

Zur Durchführung der Versuche diene wieder die in Abb. 4114.2 dargestellte Apparatur, in der jedoch das Auffanggefäß durch ein Adsorberrohr und eine Kühlfalle ersetzt sowie eine zweite Luftzuführung oberhalb des Rückflußkühlers geschaffen worden war. Der Adsorber bestand aus 3 Betten aus imprägnierter Aktivkohle von je 25 mm Durchmesser und 25 mm Länge. In der Kühlfalle befand sich ein Aceton-Trockeneis-Gemisch (ca. -70°C). Die Luftzufuhr oberhalb des Rückflußkühlers diene zur Erhöhung des Luftstromes auf 441 l/h (Verweilzeit 0,1 s). Die Verflüchtigungslösung enthielt mit ^{131}J markiertes J_2 , das wieder nach (4) dargestellt wurde. Die Nachweisgrenze (Nettozählrate gleich Standardabweichung der Nettozählrate) lag bei etwa 10^{-3} % der vorgelegten Aktivität.

Tab. 4114.2: Verteilung der mitgeführten Aktivität in Abhängigkeit vom pH-Wert

Konzentration der Verflüchtigungslösung : 10^{-5} n (J_2)
 Temperatur der Verflüchtigungslösung : 90°C
 Luftstrom durch die Verflüchtigungslösung: 10 l/h
 Versuchsdauer : 1 h
 Aktivkohle : Norit CG 0,8, stranggepreßt, Stäbchendurchmesser 0,8 mm, 1 % KJ-imprägniert
 Temperatur der Aktivkohle : 35°C
 Luftfeuchte : 24 % r. F.
 Luftstrom insgesamt : 441 l/h

pH-Wert	Aktivität verflüchtigt (%)	Aktivität (%)			
		Schwebstofffilter	Bett 1	Bett 2	Bett 3
2,1	73,4	9,7	56,0	0,002	0,001
8,0 +)	2,0	0,03	1,9	<0,001 ++)	<0,001 ++)
12,1	7,8	0,02	7,1	<0,001 ++)	<0,001 ++)

+) pH-Einstellung mit $H_2PO_4^-$ - HPO_4^{2-} -Puffer.

++) Nachweisgrenze erreicht.

In Tab. 4114.2 sind einige Ergebnisse zusammengestellt. Es sei betont, daß in keinem der Versuche Aktivität in der Kühlfalle festgestellt werden konnte. Wie ersichtlich, ließ sich bei pH 8 Aktivität verflüchtigen. Das war aber auch bei pH 12 der Fall, bei dem Jod weitgehend als JO^- vorliegt. Die Verflüchtigung der Aktivität bei pH 8 dürfte daher nicht auf einer Verflüchtigung von HJO beruhen. Aus der guten Abscheidbarkeit der Aktivität ist vielmehr zu schließen, daß wie bei pH 2, bei dem Jod weitgehend als J_2 existiert, die Aktivität in Form von J_2 übergeht. Weitere Versuche bei größerer Luftfeuchte und mit anderen Adsorbentien müssen zeigen, ob diese Schlüsse berechtigt sind.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen und deren Reinigung

4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktorkühlmitteln
(I. Michael, G. Bechtold, W. Götzmann, IRB)

Für den Aktivitätsaufbau im Primärkreislauf von Druckwasserreaktoren sind die Metallabgaberrate - d.h. die Menge der Metallionen, die in das Kühlmittel abgegeben werden - und die Löslichkeit dieser Korrosionsprodukte im Kühlmedium wesentliche chemisch-physikalische Stoffwerte, die es niedrig zu halten gilt.

Zur Untersuchung der Metallabgaberrate und der Löslichkeit dieser Stoffe in Druckwasser wurde eine Autoklavenanlage erstellt (Abb. 4123-1), deren Volumen 3,9 Liter und deren maximale Betriebsdaten: Druck 230 bar, Temperatur 480 °C betragen.

Als physikalisch-chemische Analytik zur Konzentrationsbestimmung der Fremdstoffe im Druckwasser wird die Atom-Absorptions-Spektroskopie (AAS) verwendet.

Es wurde im Berichtszeitraum damit begonnen, die Innenwand des Autoklaven selbst auf seine Metallabgaberrate zu untersuchen. Nach diesen Versuchen soll innen eine Schutzschicht aufgebracht werden, die Verfälschungen bei der Bestimmung der Metallabgaberrate von den für den Primärkreislauf von Leichtwasserreaktoren spezifischen Werkstoffen verhindern soll.

Der Autoklav (Werkstoff 1.4541) wurde bei Zwischenwerten der Temperatur bis 300 °C und der Drücke bis 86 bar insgesamt ca. 1000 Stunden betrieben. Das Wasser hatte dabei eine entionisierte Qualität mit dem pH-Wert 5,6.

Bei 300 °C und 86 bar betrug die mittlere Metallabgaberrate der Autoklavenwand

für Eisen : 0,13 mg/dm² · Tag

für Nickel und Chrom: nicht nachweisbar

Unterhalb dieser Betriebszustände des Druckwassers liegen die Metallabgaberaten auch für Eisen nahe an der Nachweisgrenze der AAS für wässrige Lösungen, so daß die Meßfehler groß und die Ergebnisse nicht eindeutig sind.

Zur Zeit wird die Metallabgaberate des Autoklaven bis 345 °C und 160 bar und danach von Incoloy 800 bis zu den gleichen Betriebszuständen bestimmt.

Erprobung einer pH-Hochdrucksonde

Die direkte chemisch-physikalische Überwachung im Kühlkreislauf von Leichtwasserreaktoren bedarf der Vervollkommnung. Dazu sollte eine neuartige pH-Meßtechnik auf der Basis von Emailsonden dienen. In gleicher Weise wäre es erwünscht, eine solche Meßtechnik bei der Untersuchung der Metallabgaberate und der Löslichkeit von Korrosionsprodukten im Autoklaven zur Verfügung zu haben.

Es wurde ein Email-Versuchskörper⁺) etwa der Abmessung künftiger pH-Hochdrucksonden (115 30 Ø mm Hersteller Fa. Pfaudler, Schwetzingen) dem Druckwasser im Autoklaven bei 107 °C und 1,3 bar über 574 Stunden und bei 200 °C und 16 bar über 380 Stunden ausgesetzt.

Dabei zeigte sich, daß der Angriff durch das Druckwasser bei 107 °C noch gering, bei 200 °C jedoch erheblich war. Die Stoffabgabe von der Sonde in das Wasser führte nach 380 Stunden zu einem Anstieg des pH-Wertes von 5,6 auf 12,0, wie außerhalb des Autoklaven durchgeführte pH-Messungen ergaben.

Die offenbar aus dem Na₂O-Gehalt des verwendeten Emails herstammende Natriumabgabe betrug im Mittel

$$130 \text{ mg Na/dm}^2 \cdot \text{Tag.}$$

Mit dieser erheblichen Stoffabgabe an das Druckwasser (Auslaugung des Emails) war visuell feststellbar ein erhebliches Abblättern von der Pt-unterlegten Meßelektrode verbunden.

Damit ergibt sich, daß diese Emailsorte für eine pH-Meßtechnik bei Temperaturen oberhalb 150 °C nicht brauchbar ist. Es wird für diese wichtige

+) chemische Zusammensetzung ist Firmengeheimnis.

Erweiterung der pH-Meßtechnik, die über die Glaselektrodenteknik hinausführt nach geeigneteren Festkörpersubstanzen auf der Basis der einfachen Metalloxide, wie z.B. Zirkonoxid, gesucht werden müssen.

Schutzschicht für Autoklaveninnenwand

Bei Untersuchungen der Metallabgaberate und der Löslichkeit von Fremdstoffen im Druckwasser muß der störende Einfluß chemisch gleichartiger Stoffkomponenten verhindert werden. Dies vermag am besten eine Edelmetallbeschichtung zu leisten. Es wurde deshalb in Verbindung mit dem und im "Institut für Chemie der Treib- und Explosivstoffe (ICT) der Fraunhofergesellschaft", Berghausen, die Explosionsplattierung des Autoklaveninnenraumes vorbereitet.

Dazu erfolgten zunächst, um die richtigen Parameter für die Plattierung von Gold auf CrNi - Stahl, 1.4541, zu finden, Plattierungen von Stahl- und Goldstreifen ebener Geometrie. Die Folienstärken der Goldstreifen betragen 0,050, 0,100 und 0,150 mm. Die Plattierungsgeschwindigkeiten wurden zwischen 200 und 400 m/sec variiert.

Es zeigte sich, daß bezüglich der Bindung zwischen Wirts- und Gast-schicht und der Ebenheit der Gastschicht bei einer Folienstärke von 0,1 mm und Plattierungsgeschwindigkeiten von ~ 200 m/sec gute Ergebnisse erzielt wurden.

Von einem weiteren Sprengplattierungsversuch mit anderer Geometrie wird es abhängen, ob mit einer erfolgreichen Sprengplattierung der Autoklaveninnenwand gerechnet werden kann oder eine galvanische Goldbeschichtung verfolgt werden muß.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

Im 1. Halbjahr 1974 wurde die Tritiumkonzentration von insgesamt 1225 Wasserproben bestimmt. Rund 20 % aller gemessenen Proben waren Niederschlagsproben, deren Untersuchung von besonderem Interesse ist, da sich die dem Boden mit den Niederschlägen zugeführte Tritiumaktivität auf den Tritiumgehalt aller anderen Medien unmittelbar auswirkt.

Standorte der Niederschlags-sammler	1972			1973			1.1. bis 30.6.1974		
	M mm	\bar{a} nCi/l	A_F nCi/m ²	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 Geb. 123 ¹	359	1,63	585	538	0,84	452	219	1,82	398
Meßhütte West	620	0,81	504	661	0,70	466	289	1,13	326
Meßhütte NO	612	1,07	656	632	1,20	760	264	1,40	369
WAK	640	0,84	537	681	0,62	425	277	1,17	324
<u>außerhalb KFZ</u>									
Augustenberg ² (Grötzingen)	632	0,67	426	619	0,41	255	244	0,72	176
Bruchsal ³	429	1,02	438	687	0,35	242	199	0,61	122
Eggenstein ³	424	0,87	369	757	0,47	357	394	0,66	261
WW Tiefgestade (Leopoldshafen)	650	0,55	358	652	0,43	278	235	0,63	147
Raum Philippsburg ⁴ (Mischprobe 3 Stellen)	-	-	-	688	0,46	314	256	0,84	214
Speyer ⁴	-	-	-	453	0,43	196	213	0,69	149
Niederstotzingen	-	-	-	456	0,45	205	234	0,57	133
Buchmühle (bei Gundremmingen)	-	-	-	460	0,42	192	190	0,44	84

¹ ohne März, Oktober und November 1972
² ohne Januar 1972

³ ohne 4. Quartal 1972
⁴ ohne Januar 1973

Tab. 4131-1: Niederschlagsmengen M, mittlere Tritiumkonzentrationen \bar{a} und Tritiumflächenbelastungen A_F für Sammelstellen innerhalb und außerhalb des KFZK für 1972, 1973 und das 1. Halbjahr 1974.

In Tabelle 4131-1 wurden die Meßergebnisse für die Niederschläge in den Jahren 1972, 1973 und im 1. Halbjahr 1974 einander gegenübergestellt. Von den insgesamt 14 Sammelstellen befinden sich 4 auf dem Betriebsgelände des Kernforschungszentrums, 8 in der näheren Umgebung bis zu 24 km Entfernung und 2 in Bayern.

Die Tritiumflächenbelastung an den 4 Stellen innerhalb des KFZ war im 1. Halbjahr 1974 aufgrund der mit der Abluft erfolgenden Tritiumemissionen im Mittel rund doppelt so hoch wie an den anderen Stellen.

Für die 10 außerhalb des Kernforschungszentrums liegenden Sammelstellen ergab sich für das 1. Halbjahr 1974 eine mittlere Tritiumflächenbelastung von rund 160 nCi/m^2 . Dieser Wert entspricht bereits 63 % der Gesamtflächenbelastung des Vorjahres. Die mittlere Tritiumkonzentration an diesen Sammelstellen lag mit $0,65 \text{ nCi/l}$ rund anderthalbmal so hoch wie der entsprechende Jahresmittelwert für 1973.

Für das 1. Halbjahr 1974 wird in Abb. 4131-1 der zeitliche Verlauf der Tritiumkonzentration an 5 verschiedenen Sammelstellen synoptisch dargestellt. An 2 der Sammelstellen werden die Proben arbeitstäglich nach Niederschlag genommen, um wenigstens hier den Konzentrationsverlauf mit besserer zeitlicher Auflösung beobachten zu können, was für eine größere Anzahl von Sammelstellen wegen des damit verbundenen Aufwandes unmöglich ist. Der Vergleich der beiden zugehörigen Diagramme in Abb. 4131-1 zeigt, daß nur ein Teil der gemessenen Konzentrationsspitzenwerte zeitlich zusammenfällt. Da die Sammelstellen "Wasserwerk Tiefgestade" und "Dach Geb. 123" bezüglich der Hauptemittenten von Tritium in verschiedenen Richtungen liegen, ergibt sich somit die Möglichkeit, den Einfluß großräumigen fallouts von jenem der Emissionen des Kernforschungszentrums zu unterscheiden. Die beiden Höchstwerte von rund 30 pCi/ml , die an diesen beiden Sammelstellen übereinstimmend am 5./6. Juni 1974 gefunden wurden, sind offensichtlich fallout-bedingt. Auch die Konzentrationsmittelwerte der Sammelstellen bei Karlsruhe und Gundremmingen, die für längere, den 6. Juni enthaltende Sammelintervalle ermittelt wurden, sind deutlich erhöht.

Hingegen ist das Maximum, das sich im Februar 1974 an den Sammelstellen

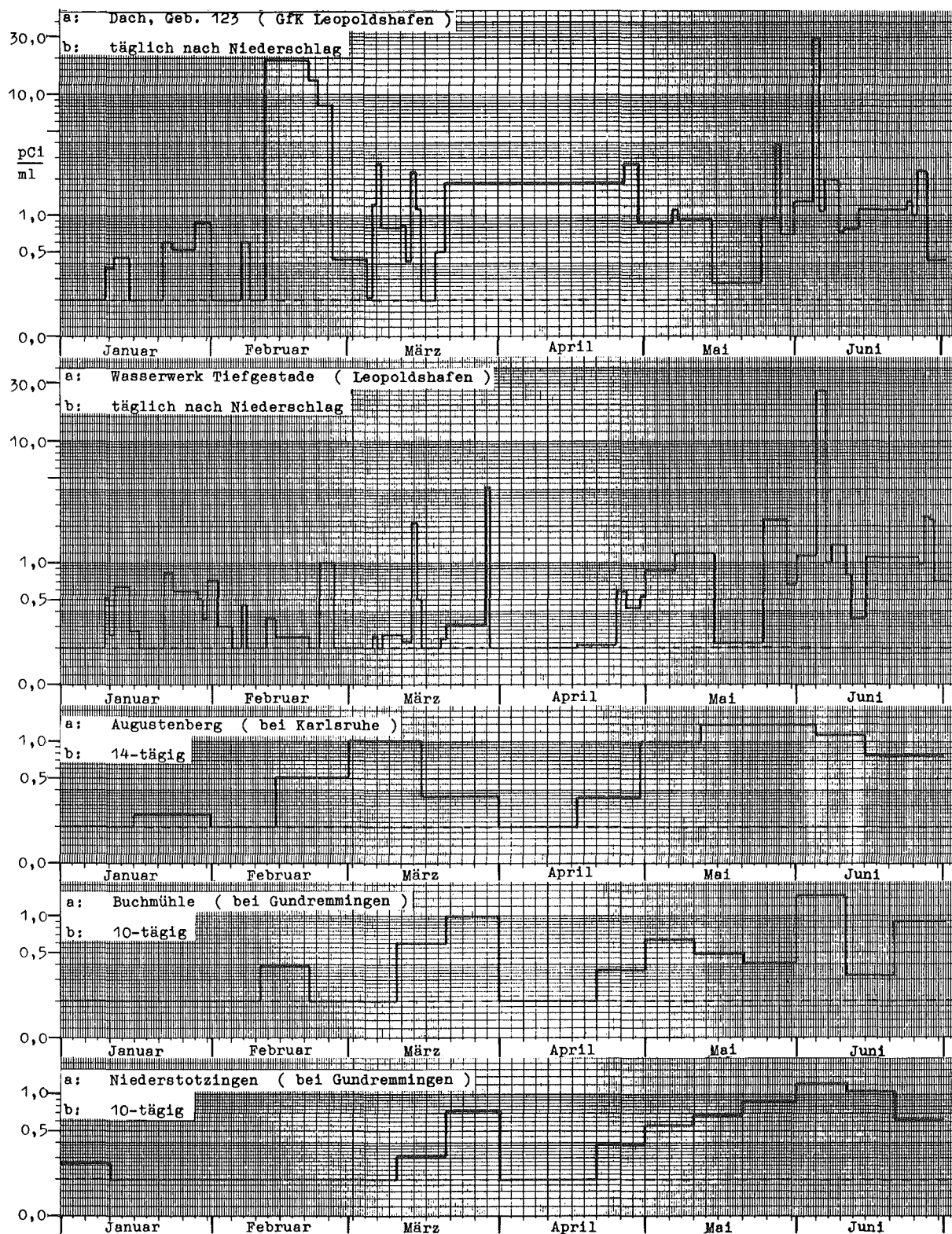


Abb. 4131-1 Zeitlicher Verlauf der Tritiumkonzentration im Niederschlag im 1. Halbjahr 1974.

a: Sammelort, b: Häufigkeit der Probenahme, --- Nachweisgrenze

"Dach Geb. 123" auf dem Betriebsgelände des Kernforschungszentrums er- gab, durch Tritiumemissionen des Kernforschungszentrums verursacht worden.

Die Abb. 4131-2 und 4131-3 zeigen den zeitlichen Gang der Monatsmittel- werte (incl. Fehlerbreite) der Tritiumkonzentration im Rhein bei km 372 und im Grundwasser des nahe dem Rheinufer gelegenen Wasserwerks "Tiefgestade".

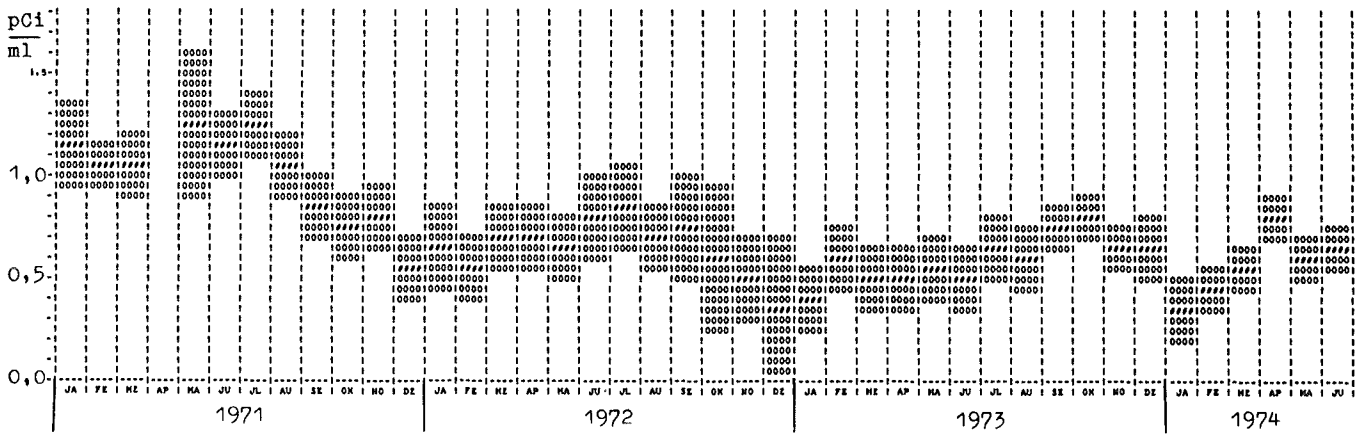


Abb. 4131-2: Tritiumkonzentration des Rheins bei Leopoldshafen

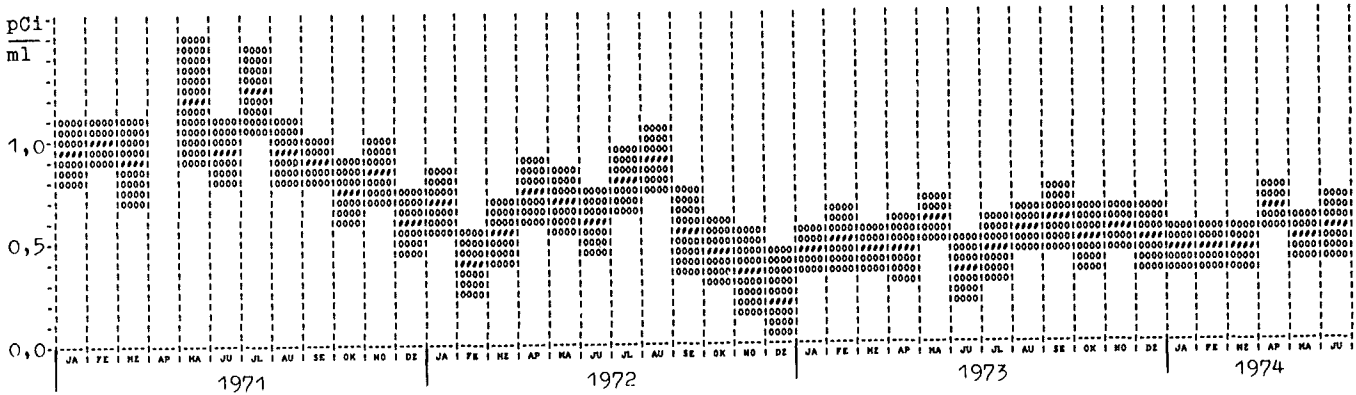


Abb. 4131-3: Tritiumkonzentration des Grundwassers vom Wasserwerk "Tiefgestade" des Kernforschungszentrums

Der in den Jahren 1971 bis 1973 deutliche Trend abnehmender Tritiumkonzentration setzt sich 1974 offenbar nicht fort. Die Jahresmittelwerte der Tritiumkonzentration für 1973 unterscheiden sich nicht von den Mittelwerten für das 1. Halbjahr 1974. Sie betragen für den Rhein bei Leopoldshafen 0,6 pCi/ml und für das Grundwasser 0,5 pCi/ml.

Für dieses Meßprogramm besteht das Research Agreement Nr. 1302/CF mit der IAEA, Wien.

4132 Untersuchung der ^{129}J -Radioökologie
(H. Schüttelkopf, ASS)

1. Vorkommen von ^{129}J

^{129}J ist ein durch spontane Kernspaltung von ^{238}U und durch Reaktion von Xe-Isotopen mit der kosmischen Strahlung gebildetes Radionuklid mit $1,6 \cdot 10^7$ a Halbwertszeit. Die spezifische ^{129}J -Aktivität lag vor den ersten Kernwaffenexperimenten zwischen $2 \cdot 10^{-15}$ g $^{129}\text{J/g}^{127}\text{J}$ (AgJ-Erz) und $2,5 \cdot 10^{-9}$ g $^{129}\text{J/g}^{127}\text{J}$ (Schilddrüsen).

Durch die Kernwaffenexperimente wurde das ^{129}J -Inventar der Biosphäre von 32 Ci auf 44 Ci erhöht. Gleichzeitig wurden in den USA zwischen 1945 und 1959 Schilddrüsenkonzentrationen bis zu 10^{-6} g $^{129}\text{J/g}^{127}\text{J}$ gemessen. Man nahm an, daß die militärischen Wiederaufarbeitungsanlagen in Savannah River, South Carolina und in Richland, Washington, die Ursache dieses Anstieges waren.

In der Kerntechnik ist die aus Leistungsreaktoren abgegebene ^{129}J -Aktivität zu vernachlässigen. Bei der Wiederaufarbeitung des abgebrannten Brennstoffes wird aber ein wesentlicher Teil des ^{129}J -Inventars über Abluft und Abwasser freigesetzt. Seit ca. 1970 erfolgt in den USA eine ^{129}J -Überwachung der Umgebung von Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA), da wegen der langen Halbwertszeit des Radioisotopes Anreicherungen befürchtet wurden. In der Umgebung der Nuclear Fuel Services, New York, wurden Werte bis zu $1,6 \cdot 10^{-3}$ g $^{129}\text{J/g}^{127}\text{J}$ in tierischen Schilddrüsen gemessen. Nach J.L. Russell und P.B. Hahn [1] sollte in der menschlichen Schilddrüse ein Verhältnis von $8,6 \cdot 10^{-3}$ g $^{129}\text{J/g}^{127}\text{J}$ nicht überschritten werden; nach L.A. König [2] soll der Wert $1,6 \cdot 10^{-3}$ g $^{129}\text{J/g}^{127}\text{J}$ eingehalten werden.

2. Die Umgebungsbelastung durch das ^{129}J -Inventar einer Wiederaufarbeitungsanlage für einen Jahresdurchsatz von 1500 t Uran

Die 1966 in Betrieb gegangene Wiederaufarbeitungsanlage Nuclear Fuel Services hat 1971 ca. 20 % des ^{129}J -Inventars im aufgearbeiteten Brennstoff mit dem Abwasser und 5 - 20 % mit der Abluft abgegeben. Ursache dieser hohen Abgaben war einerseits eine wenig wirksame Jodrückhalteanlage im Abluftsystem und andererseits eine Nichtberücksichtigung des Radiojodes wegen der langen Kühlzeit des aufzuarbeitenden Brennstoffes und dem damit verbundenen niedrigen ^{131}J -Inventar. Die für die KEWA geplante lange Kühlzeit von 210 d legt daher nahe, die Strahlenbelastung durch ^{129}J in deren Umgebung zu berechnen, wenn

das ^{129}J entweder über die Abluft oder das Abwasser abgegeben wird [3].

Bei Abgabe des ^{129}J -Inventars an die Umgebung über einen 60 m-Kamin ist für die kritische Bevölkerungsgruppe (Kleinkinder) über den Milchpfad eine Schilddrüsenbelastung von 5,6 rem/a zu erwarten. Fällt eine vorhandene Jodfilteranlage nur an einem Tag aus, erfolgt eine Kontamination der Umgebung, welche zu einer Schilddrüsenbelastung von Kleinkindern bis zu 3,1 rem/a führen kann (Verfütterung des kontaminierten Heus, Milchpfad).

Diese Schilddrüsendosen stehen dem für die BRD empfohlenen oberen Grenzwert von 90 mrem/a für Kleinkinder gegenüber. Die Dosisbelastung Erwachsener überschreitet über den Milchpfad ebenfalls die empfohlenen Grenzwerte für die nicht überwachte Bevölkerung. Nicht zu vernachlässigen sind auch die durch kontaminiertes Trinkwasser, Gemüse und Fleisch akkumulierten Dosisanteile. Weniger wichtig sind die Belastungen durch Atmung und Getreide und Gemüse, welches in der Umgebung geerntet wurde.

Daraus resultiert einerseits die Notwendigkeit, Abluft und Abwasser von ^{129}J zu reinigen, auch dann, wenn das ^{131}J weitgehend zerfallen ist und andererseits die Notwendigkeit der Überwachung einer WAA dieser Größe auf ^{129}J -Kontamination der Umgebung.

3. Anreicherungen des ^{129}J in der Umgebung

Verzichtet man auf eine Rückhaltung des ^{129}J in der WAA, so wird außer der Gefährdung durch direkte ^{129}J -Kontamination auch durch ^{129}J -Anreicherungen eine wachsende Kontamination der Umgebung eintreten. Das $^{129}\text{J}/^{127}\text{J}$ -Verhältnis im Boden befindet sich nach der Einstellung des Gleichgewichtes WAA - Umgebung in allen Pflanzen und in den in und von diesem Raum ernährten Haustieren wieder. Das sich einstellende $^{129}\text{J}/^{127}\text{J}$ -Verhältnis hängt ab von der Depositionsgeschwindigkeit des ^{129}J aus der WAA und von der des stabilen Jodes der Luft. Die Depositionsgeschwindigkeiten hängen wieder von der chemischen Form des ^{129}J und des ^{127}J ab. Die Geschwindigkeit der Einstellung des Gleichgewichtes ist eine Funktion der jährlichen Depositionsmenge des ^{129}J und des ^{127}J und der Wanderungsgeschwindigkeit des Jodes im Boden.

Andere Wege der Anreicherung von ^{129}J sind die Verwendung von ^{129}J -haltigem Flußwasser zur Bewässerung von Kulturpflanzen. Das sich hier einstellende Gleichgewicht ist das Verhältnis von $^{129}\text{J}/^{127}\text{J}$ im Flußwasser. Ebenso sind

Anreicherungen in Algen und damit letztlich in Fischen sowie durch chemische und biologische Sedimentation von ^{129}J in dem zur Abwassereinleitung verwendeten Fluß zu erwarten.

4. Aus der ^{129}J -Kontamination sich ergebende Überwachungs- und radioökologische Probleme

Zur Beurteilung des Verhaltens von ^{129}J in der Umgebung einer WAA müssen folgende Fragen beantwortet werden:

- Wieviel ^{129}J wird über Abluft und Abwasser an die Umgebung abgegeben?
- Welche Konzentrationen werden in der Umgebung gemessen und
- Wie reichert sich ^{129}J in der Umgebung an?

In diesem Zusammenhang sind zu erarbeiten:

Schnelle und billige Meß- und Analysenmethoden für ^{129}J in Abluft, Abwasser und Probenmaterialien der Umgebung; zu messen sind ^{129}J -Konzentrationen in Luft, Gras, Boden, Schilddrüsen und Milch sowie Wasser und Fischen; außerdem sollen gemessen werden die Konzentration und die chemische Form des stabilen Jodes in Luft, deponierte Mengen von ^{129}J und ^{127}J , die Verteilung des ^{129}J im Boden und die Wanderungsgeschwindigkeit des ^{129}J im Boden. Notwendig ist auch die Kenntnis der erreichbaren Dekontaminationsfaktoren für ^{129}J mit verschiedenen Methoden der Abwasseraufbereitung, der biologischen Anreicherungsfaktoren in Fischen und der zeitlichen Veränderung der ^{129}J -Konzentration in Boden, Pflanzen, Fischen und Flußsedimenten.

Ergebnisse sollen ein billiges und wirkungsvolles System der Umgebungsüberwachung einer WAA und die Kenntnis der wesentlichen Wege des ^{129}J und damit des Ausmaßes der Gefährdung der Bevölkerung durch direkte Kontamination und durch Anreicherung des ^{129}J in der Umgebung einer WAA sein.

5. Bisher durchgeführte Arbeiten

Eine Methode zur Messung von ^{129}J durch Neutronenaktivierung und γ -Spektrometrie wurde geprüft. Ein Verfahren zur schnellen ^{129}J -Abtrennung aus Abwasser wurde entwickelt und ca. 45 Abwasserchargen der WAK wurden auf ^{129}J analysiert. Dabei konnte festgestellt werden, daß weniger als 1 % des ^{129}J der WAK über das Abwasser abgegeben wird. Messungen der ^{129}J -Abluftkonzentrationen legen die Annahme nahe, daß der Rest des ^{129}J auf diesem Weg abgegeben wurde (bestehende Unsicherheiten bei Durchflußangaben und Ablufttemperaturen erlauben

keine genaueren Angaben). Methoden der chemischen Abtrennung von ^{127}J und ^{129}J aus Aktivkohle, Aerosolfiltern, Pflanzen-, Boden-, Fleisch-, Fisch-, Milch- und großen Wasserproben wurden geprüft und zum großen Teil neu erarbeitet. Eine Methode der Reinigung des erhaltenen Jodpräparates nach der Neutronenaktivierung wird zur Zeit geprüft.

Für dieses Jahr sind vorgesehen die Messung der vorhandenen ^{127}J - und ^{129}J -Konzentrationen in Proben der Umgebung der WAK und nach deren Inbetriebnahme die Messung des ^{129}J im Abwassersystem (Abwasser, gereinigtes Abwasser, Altrhein- und Rheinwasser, Fisch und Sedimente). Außerdem sollen in einigen Schilddrüsen von Tieren aus der Umgebung der WAK $^{129}\text{J}/^{127}\text{J}$ -Verhältnisse gemessen werden.

Zitierte Literatur:

- [1] Russell, J.L., Hahn, P.B., Public Health Aspects of Iodine-129 from the Nuclear Power Industry, Radiological Health Data and Reports, 12 (1971), p. 189
- [2] König, L.A., Umweltaspekte von ^{129}J , KFK 1543 (1972) und persönliche Mitteilung, betreffend eine Reduktion des hier berechneten Wertes um den Faktor 3 auf Grund neuerer Ergebnisse

Eigene Veröffentlichungen:

- [3] Schüttelkopf, H., Die Umgebungsbelastung durch ^{129}J aus einer Wiederaufarbeitungsanlage mit 1500 t Uran Jahresdurchsatz, KFK 2045 (1974), im Druck

4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung kerntechnischer Anlagen

(A. Bayer, R. Kalckbrenner, T.N. Krishnamurthi, D. Schiesser, M. Schückler, INR)

Die Arbeiten zur Berechnung der radiologischen Belastung der Bevölkerung im Oberrheingebiet durch kerntechnische Anlagen wurden fortgesetzt mit der Erstellung von Programmteilen zu den atmosphärischen und hydrosphärischen Transportvorgängen. Diese wurden soweit fertiggestellt, wie sie zur Beschreibung der Ausbreitungsvorgänge von Tritium, den Edelgasisotopen und den Jodisotopen erforderlich sind. In Tab. 4134-1 sind die kerntechnischen Anlagen zusammengestellt, die nach verschiedenen Publikationen in der betrachteten Region bis etwa 1985 in Betrieb gehen werden.

In Abb. 4134-1 sind als Beispiel die etwa im Jahr 1985 in dieser Region durch kerntechnische Anlagen zu erwartenden Ganzkörperdosen, vornehmlich durch Edelgase, dargestellt. Den Dosisberechnungen um das Kernforschungszentrum Karlsruhe wurden die Freisetzungsraten von 150 000 Ci/a Argon-41 (FR 2)⁺⁾ und 250 000 Ci/a Krypton-85 (WAK) zugrundegelegt, wobei das Argon-41 den Hauptanteil zur Ganzkörperdosis liefert. Unberücksichtigt bleiben mußten die Argon-41 Abgaben des Forschungsreaktors "Diorit" (Kernforschungszentrum Würenlingen - Schweiz, nahe dem Standort Beznau), da in der Schweiz Abgaberraten noch nicht veröffentlicht werden. Doch dürfte die Dosisverteilung dort ähnlich wie um Karlsruhe sein. Unberücksichtigt blieben außerdem die bis zu diesem Zeitpunkt erfolgten Stilllegungen.

In Abbildung 4134-2 sind als weiteres Beispiel die im Rhein zum gleichen Zeitpunkt zu erwartenden J-131 Konzentrationen dargestellt. In der gleichen Abbildung sind außerdem die bei Kleinkindern zu erwartenden jährlichen Schilddrüsen-

⁺⁾ Nach dem neuesten ASS-Jahresbericht 1973 [KFK-1973 (1974)] liegen die tatsächlichen Abgaben des FR 2 bei ca. 100 000 Ci/a.

dosen durch J-131 angegeben unter der Voraussetzung, daß der Trinkwasserbedarf zu 10 % durch aufbereitetes Flußwasser gedeckt wird (S. Clodius, Kommunalwirtschaft 40 (1970)). Der Beitrag des uferfiltrierten Wassers zur Trinkwasserversorgung liegt bei ca. 25 %. Doch ist der J-131-Anteil durch die im Vergleich zur Halbwertszeit ($T_{1/2} = 8 \text{ d}$) relativ lange Fließzeit im Untergrund von 50 - 100 Tagen (M. Bauer, GWF, 110 (1969)) auf einen rechnerisch vernachlässigbaren Anteil abgesunken.

Die Arbeit wird fortgesetzt mit der Ausdehnung auf weitere wichtige Nuklidgruppen und Bestrahlungspfade. Für einige Isotope von Strontium, Ruthenium, Cäsium und Cer wurden bereits anhand veröffentlichter Erfahrungswerte von in Betrieb befindlichen Kernkraftwerken die jährlichen Freisetzungsraten zusammengestellt und ausgewertet.

Weiterhin wurden die bei einer 1500 t/a-Wiederaufarbeitungsanlage bei der Aufarbeitung von LWR-Brennstoff zu erwartenden jährlichen Aktivitätsabgaben unter Zugrundelegung der heute erreichbaren Dekontaminationsfaktoren ($\text{Sr} = 10^5$, $\text{Ru} = 10^4$, $\text{Cs} = 10^5$, $\text{Ce} = 10^6$) abgeschätzt. Wie bei Kernkraftwerken wird der größte Teil dieser Isotopengruppe mit dem Abwasser abgegeben. In Abb. 4134-3 sind die zu erwartenden jährlichen Aktivitätsabgaben mit dem Abwasser in Abhängigkeit von der Kühlzeit der Brennelemente dargestellt.

Aufgrund der Energievorhersagen und des prognostizierten Einsatzes von Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen wurden die bis zum Jahr 2000 global freigesetzten akkumulierten Mengen der genannten Isotope berechnet. In den Abb. 4134-4a und 4134-4b sind diese für die wichtigen Isotope Sr-90 und Cs-137 dargestellt. Außerdem sind jeweils angegeben die Mengen aus natürlicher Produktion (angenommen wurde, daß 1 ‰ der bei der Spontanspaltung erzeugten Isotope durch Verwitterung etc. freigesetzt wird) und die Mengen, die aufgrund der bisherigen oberirdischen Kernwaffenversuche als Fallout niedergingen. Wie ersichtlich, liegen bis zum Jahr 2000 die aus kerntechnischen Anlagen freigesetzten Mengen unter denen, die aus oberirdischen Kernwaffenversuchen bis zu diesem Zeitpunkt noch vorhanden sind.

Veröffentlichungen

D. Faude, A. Bayer, G. Halbritter et al.

"Energie und Umwelt in Baden-Württemberg"

Bericht KFK-1966, (1974)

A. Bayer, T. N. Krishnamurthi, M. Schückler

"Population Dose Considerations for the Release of Tritium, Noble Gases
and Iodine-131 at a Special Region"

IAEA-Seminar Portoroz 1974, IAEA Wien (1974)

F. Porz

"Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Jodisotopen durch Kernreaktoren
und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Be-
lastung bis zum Jahr 2000"

Bericht KFK-1912 (1974)

D. Schiesser

"Erzeugung und Freisetzung von Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135,
Cs-137, Ce-141 und Ce-144 durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen
und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000"

Unveröffentlichter Bericht

Tab. 4134-1 : Standorte kerntechnischer Anlagen im Einzugsgebiet des Oberrheins

No.	Anlage	Fluß	Land	Typ	Inbetrieb- nahme	No.	Anlage	Fluß	Land	Typ	Inbetrieb- nahme
1	Biblis 1 Biblis 2 Biblis 3	Oberrhein	D	PWR 1200 MWe PWR 1300 MWe PWR 1300 MWe	1974 1976	13	Obrigheim 1	Neckar	D	PWR 300 MWe	1969
2	Ludwigshafen 1 BASF 2	Oberrhein	D	PWR 600 MWe PWR 600 MWe	1980	14	Neckarwestheim 1 Neckarwestheim 2	Neckar	D	PWR 800 MWe PWR 1300 MWe	1976
3	Philippsburg 1 Philippsburg 2 Philippsburg 3	Oberrhein	D	BWR 900 MWe BWR 900 MWe BWR 900 MWe	1975 1977	15	Kaiseraugst	Hochrhein	CH	BWR 900 MWe	1979
4	Karlsruhe Kernforschungs- zentrum	Oberrhein	D	FR2 40 MWt MZFR 60 MWe Wiederaufarbeit. WAK 40 t/a KNK 20 MWe	1961 1966 1971 1973	16	Schwörstadt 1 Schwörstadt 2 Schwörstadt 3		D	1200 MWe 1200 MWe 1200 MWe	
5	Neupotz 1 Neupotz 2	Oberrhein	D	1000 MWe 1000 MWe		17	Leibstadt	Hochrhein	CH	BWR 950 MWe	1979
6	Gambsheim 1	Oberrhein	F	1200 MWe		18	Beznau 1 Beznau 2	Aare	CH	PWR 350 MWe PWR 350 MWe	1969 1971
7	Whyll 1 Whyll 2	Oberrhein	D	PWR 1300 MWe PWR 1300 MWe	1979	19	Gösgen-Däniken 1	Aare	CH	PWR 920 MWe	1978
8	Fessenheim 1 Fessenheim 2 Fessenheim 3 Fessenheim 4	Oberrhein	F	PWR 900 MWe PWR 900 MWe PWR 1200 MWe PWR 1200 MWe	1975 1976 1981 1983	20	Graben 1 Graben 2	Aare	CH	BWR 1100 MWe BWR 1100 MWe	1980 1983
9	Kahl 1	Main	D	BWR 15 MWe	1961	21	Mühleberg 1	Aare / Saane	CH	BWR 310 MWe	1972
10	Hörstein 1	Main	D	BWR 1200 MWe	1979	22	Inwil 1 Inwil 2	Reuss	CH	1000 MWe 1000 MWe	
11	Grafenrheinfeld 1 Grafenrheinfeld 2	Main	D	PWR 1200 MWe PWR 1200 MWe	1979	23	Rüthi	Vorder- rhein	CH	PWR 900 MWe	1979
12	Bamberg ⁺⁾	Main	D	1000 MWe		24	Gundremmingen 1 Gundremmingen 2 Gundremmingen 3	Donau	D	BWR 250 MWe BWR 1200 MWe BWR 1200 MWe	1967 1979 1980

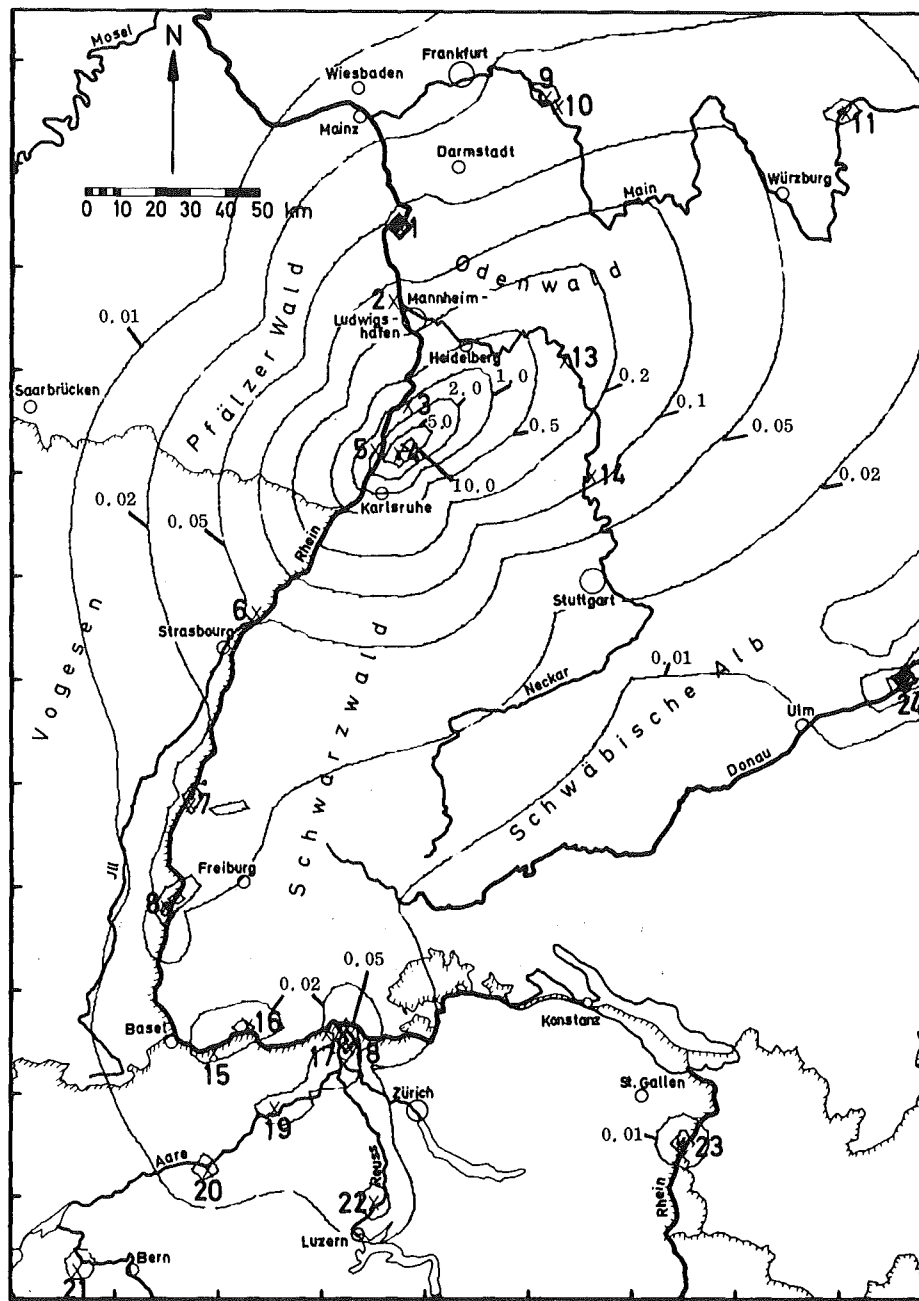


Abb. 4134-1 : Ganzkörperdosen im Jahr "1985" (mrem/a) durch Aktivitätsausfluß in die Atmosphäre (vornehmlich Edelgase) aus regionalen kern-technischen Anlagen

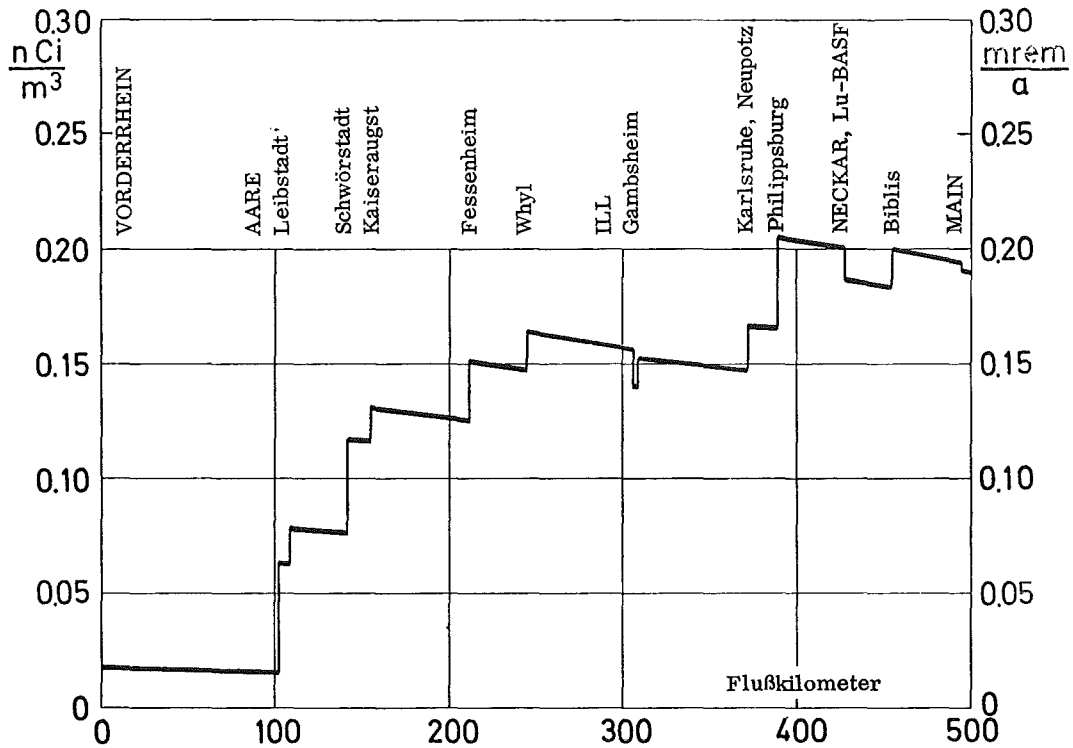


Abb. 4134-2 : J-131-Konzentrationen im Rhein im Jahr "1985" und Kleinkinder-Schilddrüsendosen bei 10%^{er} Deckung des Trinkwasserbedarfs durch aufbereitetes Flußwasser

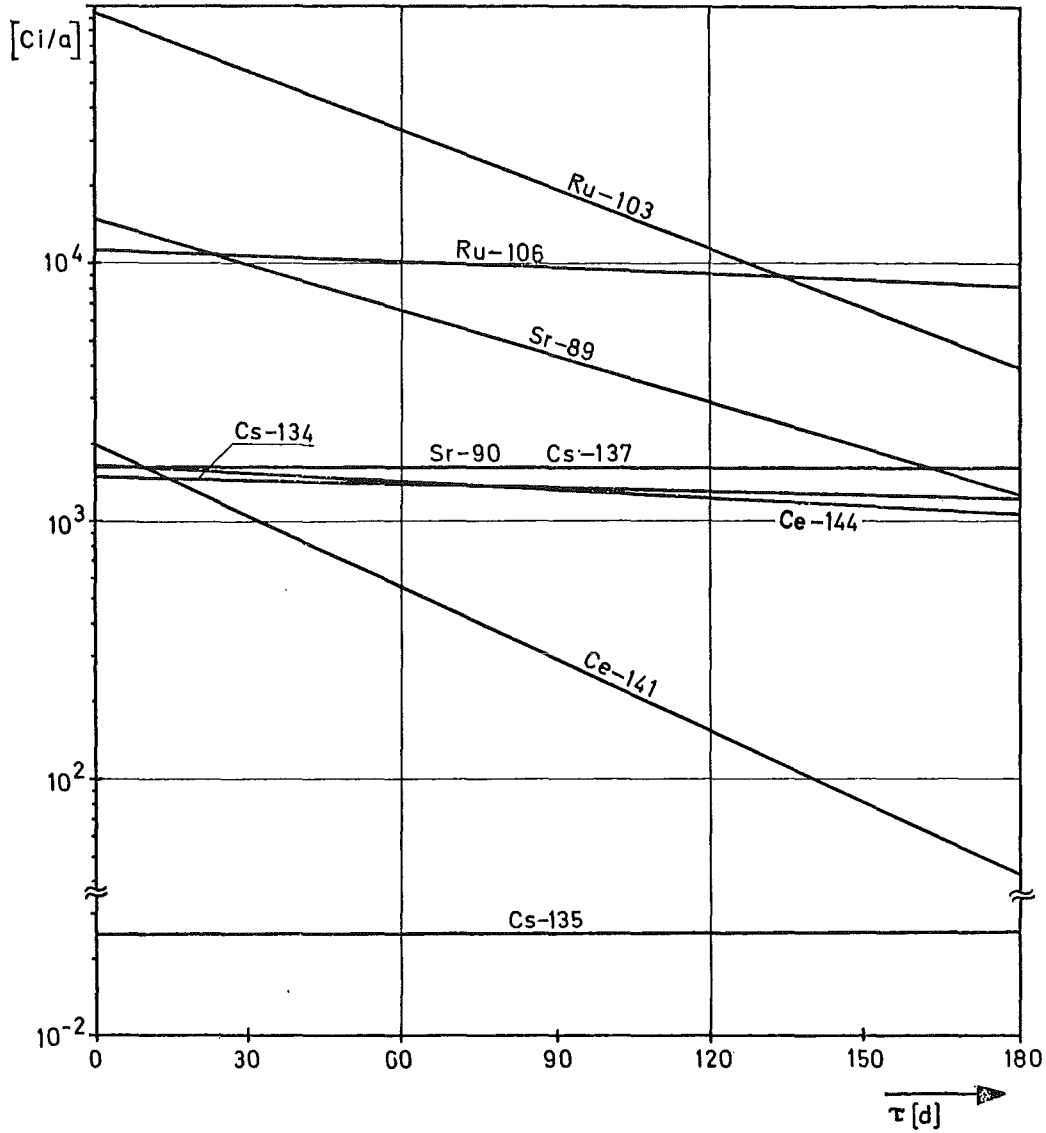


Abb. 4134-3 : Aktivitäts-Abgaberaten mit dem Abwasser einer 1500 t/a-Wiederaufarbeitungsanlage bei verschiedenen Abkühlzeiten

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

Dekontaminationsfaktoren : Sr : 10⁵, Ru : 10⁴, Cs : 10⁵,
 Ce : 10⁶

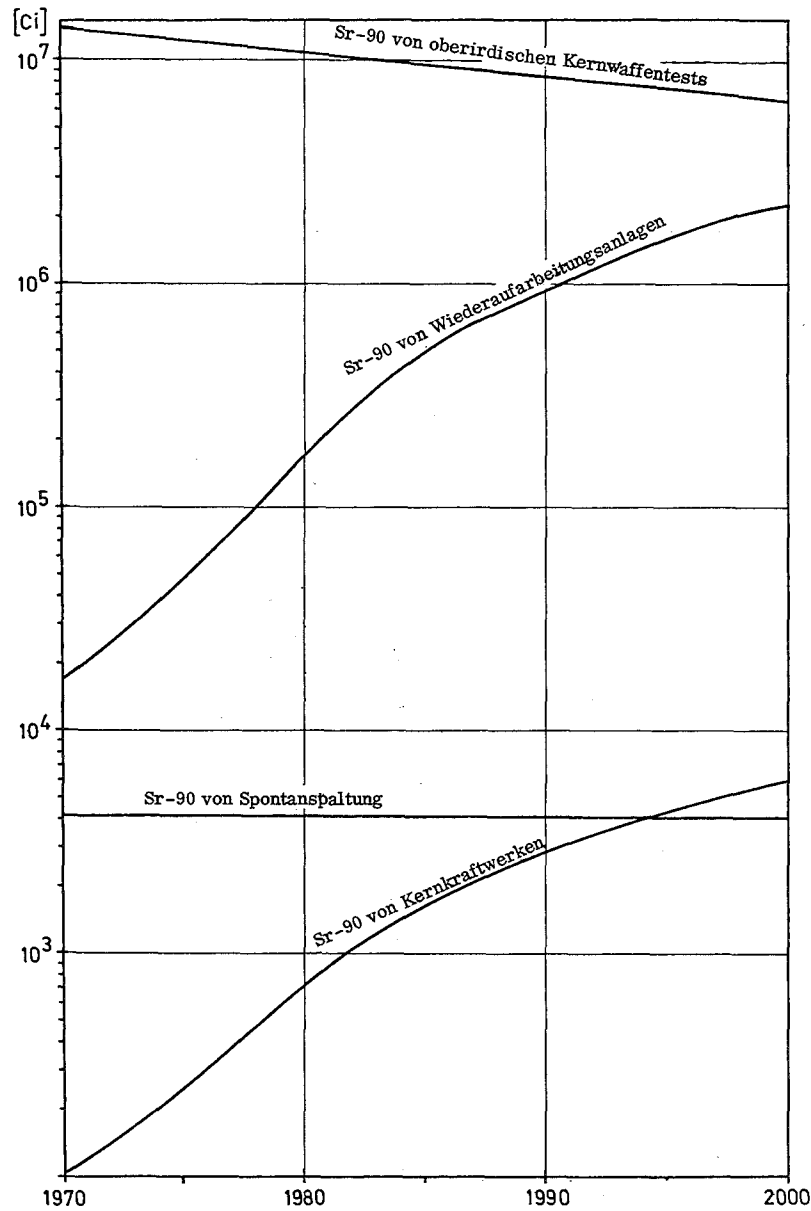


Abb. 4134-4 a : Global freigesetzte akkumulierte Sr-90 Aktivität aus natürlicher Entstehung, oberirdischen Kernwaffentests und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

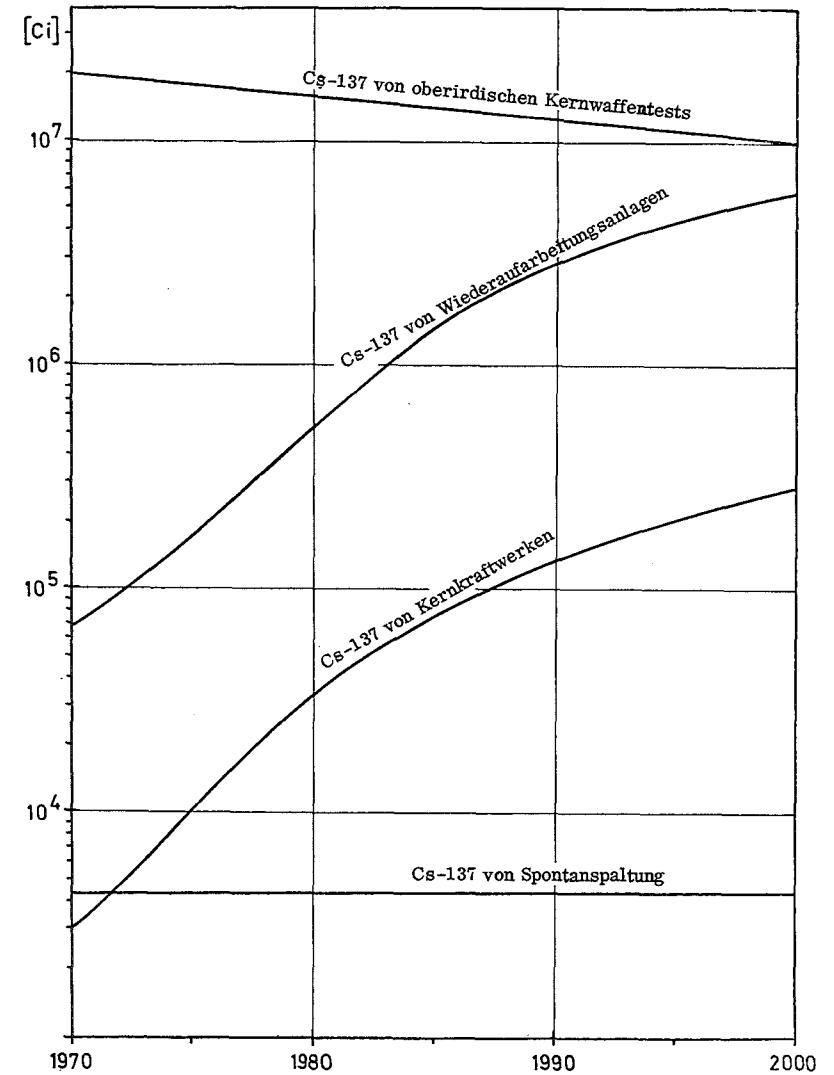


Abb. 4134-4 b : Global freigesetzte akkumulierte Cs-137 Aktivität aus natürlicher Entstehung, oberirdischen Kernwaffentests und aus kerntechnischen Anlagen bis zum Jahr 2000

4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft
kerntechnischer Anlagen
(v. Ammon, IHCH, Hutter, RBT, C.H. Leichsenring, PNS-PL)

Kritischer Vergleich der beiden wichtigsten Verfahren zur Abtrennung radioaktiver Edelgase aus der Abluft kerntechnischer Anlagen:

- Absorption in flüssigem Freon (Frigen 12)
 - Tieftemperatur-Rektifikation
-

Die beiden obigen Verfahren wurden für die Abtrennung der Spalteredelgase Krypton und Xenon aus dem Abgas einer großen WA-Anlage detailliert untersucht.

Für jedes der beiden Verfahren wurden zusammen mit der Industrie Ingenieurprojekte ausgearbeitet, um die Voraussetzungen für die Errichtung einer Versuchsanlage zu schaffen, die kalte und heiße Tests nach dem geeigneteren Verfahren durchzuführen gestattet. Während die Studie zur Freon-Absorption (Fa. Nukem) bereits abgeschlossen wurde, steht die Studie zur Tieftemperatur-Rektifikation (Fa. Linde AG) kurz vor der Fertigstellung (Juli 1974).

Die wesentlichen Merkmale der beiden Methoden sowie die Auslegung der Versuchsanlagen sind in den beiden PNS-Halbjahresberichten 1973, KFK-1859 und KFK-1908 beschrieben worden. Hier sollen die Vor- und Nachteile der beiden Verfahren einander gegenübergestellt werden.

Vergleich der Verfahren

1. Prinzipielle Unterschiede

1.1 Tieftemperatur-Rektifikation (TTR)

Einer aufwendigen Vorreinigung, die sich aus der Notwendigkeit der Abtrennung von Sauerstoff (Ozonbildung), CO₂, der Stickoxide und des

Jods (Katalysatorgift) ergibt, steht eine große Reinheit des Endprodukts gegenüber. Dazu kommt eine hohe Anreicherung der Edelgase im Endprodukt, was die anfallenden Volumina begrenzt und sich damit ebenfalls auf die Endlagerung günstig auswirkt.

In derselben Richtung wirkt die Möglichkeit, das Krypton relativ einfach vom Xenon zu trennen. Falls das (inaktive) Xenon genügend rein erhalten wird, wäre sogar eine kommerzielle Nutzung (Glühlampenfüllung etc.) denkbar.

1.2 Freon-Absorption (FA)

Hier ist zwar die Vorreinigung relativ einfach, da das Verfahren unempfindlich gegenüber NO_2 (<500 ppm) und O_2 ist. Dagegen sammeln sich die Verunreinigungen teilweise im Endprodukt an. Verfahrensbedingt ist die Anreicherung des Kryptons im Endprodukt gering und eine Abtrennung des Xenon nicht möglich. Mit welchem Aufwand eine größere Anreicherung als 20 % (Xe + Kr) zu erzielen ist, ist unbekannt.

2. Entwicklungsstand

2.1 Tieftemperatur-Rektifikation

Die TTR ist ein altbekanntes Verfahren zur Luftzerlegung. Es existieren auch bereits Erfahrungen mit ^{85}Kr -haltigen Gasgemischen, wenn auch in relativ kleinem Maßstab (ICCP, Idaho, USA). Dabei wurde bisher der Sauerstoff nicht entfernt, sondern das bei der Auflösung von metallischem U-Al-Brennstoff als Hauptverunreinigung anfallende N_2O katalytisch gespalten.

Die katalytische Reduktion von O_2 und NO_x mit Wasserstoff ist ein in der Industrie übliches Verfahren, jedoch existieren keine Erfahrungen im Umgang mit großen Wasserstoffmengen unter aktiven Bedingungen (Sicherheit).

Die französische Fa. Air Liquide erhielt vom CEA den Auftrag, in Marcoule eine Krypton-Trennanlage nach demselben Verfahren (Durchsatz $20 \text{ m}^3/\text{h}$) zu erstellen.

2.2 Freon-Absorption

Die Versuchsanlage in Oak Ridge (USA) wurde mit einem Durchsatz von $25 \text{ m}^3/\text{h}$ kalt erprobt. Gegenwärtig wird in der Anlage CO_2 als Absorptionsmedium erprobt, das Berechnungen zufolge dem Freon sehr ähnliche Trennfaktoren für die Edelgase besitzen müßte. Versuchsergebnisse sind uns noch nicht bekannt. Diese Variante ist vor allem für HTGR-Brennstoffe interessant und wird deshalb in Jülich (KFA) verfolgt.

Nach dem Stand von 1972 bietet die amerikanische Fa. Babcock (Lynchburg) Freon-Anlagen für die Abtrennung der Edelgase aus Reaktorabgasen an, ohne daß es bisher zu einer Bestellung gekommen wäre.

3. Endlagerfähigkeit der Produktgases

3.1 Tieftemperatur-Rektifikation

Aus den unter 1.1 genannten Gründen ist die Kr-Konzentration im Produktgas relativ hoch.

Erwartete Zusammensetzung des Produktgases:

N_2	25 Vol.%
Xe	10 Vol.%
Gesamt-Kr	65 Vol.%
^{85}Kr	$3,5 \text{ Vol.} \% \hat{=} 5,5 \cdot 10^4 \text{ Ci/Nm}^3$

Da $5,5 \cdot 10^4$ Ci etwa dem Tagesausstoß einer großen WA-Anlage (KEWA) entsprechen und eine Normstahlflasche (50 l Volumen, max. Druck 150 atü bei 15°C) bei maximaler Füllung und einer Temperaturerhöhung auf 150°C ca. 5 Nm^3 faßt, würden pro Tag 0,2 Flaschen anfallen.

Das Produktgas enthält an möglichen Verunreinigungen außer Spuren von NO_x nur Kohlenwasserstoffe (CH_4), falls diese nicht schon in der Vorreinigung an einem Oxidationskatalysator verbrannt werden. Die letzten Spuren Jod werden im Tieftemperaturschritt ausgefroren.

3.2 Freon-Absorption (FA)

Erwartete Zusammensetzung des Produktgases (siehe 1.2):

$\text{O}_2 + \text{N}_2$	70,7	Vol.%
Xe	24,5	Vol.%
Gesamt-Kr	4,8	Vol.%
^{85}Kr	0,265	Vol.% $\hat{=} 4 \cdot 10^3 \text{ Ci/Nm}^3$

Die in der KEWA-Anlage täglich freigesetzte ^{85}Kr -Menge ist in rund 14 Nm^3 enthalten. Eine Flasche ist bei einer angenommenen Erwärmung auf 100°C mit maximal 6 Nm^3 oder $2,4 \cdot 10^4$ Ci zu füllen. Damit würden 2,3 Flaschen pro Tag anfallen.

Im Produktgas sind beträchtliche Konzentrationen an Verunreinigungen zu erwarten, Tab. 4140-1: während vom Trennprozeß her NO_2 und Frigen-12 in das Produktgas gelangen (dazu kommt noch J-129, falls keine vollständige Abscheidung vor der Edelgasabtrennung erfolgt), dürften sich weiteres NO_2 , O_3 (aus O_2) und Cl_2 (aus Freon) im Strahlenfeld des Kr-85 im gelagerten Endprodukt bilden.

Substanz	Mit Edelgasen abgetrennt	Im Endprodukt erzeugt
NO ₂	20 ppm	} ca. 50 ppm
N ₂ O	7 %	
CO ₂	5 %	
Freon	400 ppm	-
CH ₄	400 ppm	-
Rb ₂ O *)	-	maximal 27.7 g
Cl ₂	Spuren	ca. 10 ppm
O ₃	-	ca. 50 ppm

*) ⁸⁵Rb ist das stabile Tochterisotop des β-Zerfalls von ⁸⁵Kr (t 1/2 = 10.7 a)

Tab. 4140-1: Im Produktgas des FA-Prozesses zu erwartende Verunreinigungen

Die wesentlichen Unterschiede der beiden Verfahren sind in Tab. 4140-2 zusammengestellt.

4. Schlußfolgerungen

Das größere Entwicklungspotential der TTR liegt darin, daß das Endprodukt Krypton konzentriert und verunreinigungsfrei gewonnen werden kann, und daß damit die Endlagerkosten und -Risiken für eine große WA-Anlage mit 1500 t/a wesentlich geringer sein werden.

4.2 Das geringere Entwicklungsrisiko der TTR liegt in folgenden Parallel-Aktivitäten: in Idaho Falls (ICCP), USA wurde eine Anlage zur Gewinnung von ⁸⁵Kr entwickelt und betrieben, allerdings bisher nicht mit dem Ziel eines hohen DF für Kr und ohne Abtrennung von O₂; bei der amerikanischen Fa. Air Products Corp. (Allentown) wird die Entwicklung der TTR für die Anwendung in Kernkraftwerken vorangetrieben; beim CEA wurde ebenfalls eine Präferenz für die TTR festgestellt.

Gegenüberstellung der wesentlichen Merkmale von Tieftemperatur-Rektifikation und Freon-Absorption bei der Krypton-Abscheidung aus Abgasen von Wiederaufarbeitungsanlagen

Kriterien	Tieftemperatur-Rektifikationsanlage	Freon-Absorptionsanlage
Prinzipielle Unterschiede	ja, evtl. kommerzielle Nutzung von Xe	nein
notwendiger Aufwand zur Vorreinigung	groß, wegen Gefahr durch O_3 -Bildung und Verlegungen durch NO_x, CO_2, H_2O, J_2 in der TTR-Säule	geringer, nur NO_x, H_2O und J_2 -Beseitigung
Entwicklung - Risiko	Stand	nur kalt erprobt (ORGDP: Merriman)
	notwendige Entwicklungszeit	wahrscheinlich lang
	parallele Aktivitäten	ORNL: KALC-Prozeß (CO_2) KFA: Akut-Prozeß (CO_2)
Kosten für eine Versuchsanlage	Investitionen	DM ca. 2 Mio ohne Vorreinigung
	Betrieb	DM 1,8 Mio Gesamt
		hoch: 250 kW Gesamtleistung (Kältemaschine)
Platzbedarf für Versuchsanlage	100 m ² , 7 m Höhe (davon 5 m ² , 10 m Höhe für Destillationskolonne)	125 m ² , 8 m Höhe
Sicherheitsprobleme	Handhabung großer Mengen H_2	keine ungewöhnlichen Probleme
Endlagerfähigkeit	0,2 Flaschen/Tag (Großanlage) große Reinheit	2,3 Flaschen/Tag (Großanlage) Verunreinigungen (O_3, NO_2, Cl_2, CH_4)

Demgegenüber wurde die Abtrennung von Spalteredelgasen durch Freon-Absorption bisher lediglich bei der ORGDP (USA) kalt erprobt. Darüberhinausgehende Anlagen sind bisher nicht in Angriff genommen worden.

Auf der Grundlage der Ergebnisse der beiden von PNS durchgeführten Ingenieurprojekte wird nunmehr die Entwicklung der Edelgasabtrennung durch Tieftemperatur-Rektifikation und die dazu notwendige Vorreinigung in Kalt- und Heißtests fortgesetzt. Bis Ende 1974 wird der Auftrag zum Bau der Versuchsanlage erteilt.

4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

4151 Untersuchungen zur thermischen Belastung des Rheines

(G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, IASR)

Die ursprünglich konzipierten Baupläne mußten teilweise noch modifiziert werden. Wegen bestehender VDE-Vorschriften war es nicht möglich, alle notwendigen Verbindungsleitungen von der Computerhütte zum Rheinstrommast in 2 Kabeln zusammenzufassen. Auch mußte wegen Lieferschwierigkeiten teilweise auf gängigere Kabeltypen zurückgegriffen werden, was zu einer Erhöhung der Stückzahl auf 7 führte. Der Wegausgleich zwischen dem festen Dalben und der dem Wasserstand folgenden Schwimmkonstruktion muß 7 m bewältigen können und sollte zuerst durch eine beschwerte und geführte Umlenkrolle ermöglicht werden. Die Kabelvielfalt ließ diese Möglichkeit als sehr schwierig erscheinen. Den Ausweg brachte ein hoher Galgen, der den festen Dalben überragt und von dessen weit ausladendem Ende die Kabel nun frei durchhängen und U-förmig zum Schwimmteil hinübergeführt sind ohne Gefahr, daß die Kabel zwischen Dalben und Schwimmteil geraten können.

Auf zwei über das Rheinprogramm abgehaltenen Arbeitssitzungen wurden keine Einwände von den interessierten Fachleuten zum geplanten Meßkonzept geäußert., insbesondere ergaben sich gute Aussichten im Hinblick auf spätere Korrelationsuntersuchungen zu den Daten dieser Station mit Meßergebnissen von Philippsburg, Meßmast GfK und des Deutschen Wetterdienstes. Zusätzlich konnten noch zwei Wünsche ergänzend berücksichtigt werden: Zur Abrundung des Meßprogrammes wurde eine Sauerstoffmeßsonde 50 cm unter der Wasseroberfläche vorgesehen. Außerdem wurde eine Erhöhung der Ufermeßebeine von 34 m auf 40 m über dem Boden vorgenommen, da diese Höhe zu direkten Vergleichen mit einer Reihe anderer Meßstellen erforderlich ist. Die Aufstockung des Ufermastes war wegen der Verjüngung nur am unteren Ende und auch nur um 4 m möglich. Die restlichen 2 m werden durch einen hochkurbelbaren Sondenträger auf der Spitze des Ufermastes gewonnen.

Mit den Baumaßnahmen wurde im März begonnen. Seit Juni sind sie abgeschlossen, ebenso die elektrischen Installationen. Derzeit ist die Bestückung der Meßebenen mit den Instrumenten im Gange.

Parallel dazu wurden die Mindestanforderungen an die Meßwertabfragerate und die Rechengenauigkeit festgelegt. Die Aufgaben des Prozeßrechners, der zur Verringerung der Daten durch Vorauswertung eingesetzt werden muß, wurden spezifiziert. Es sind dies Abfrage aller Sonden in den geforderten Intervallen, Wahl der notwendigen Meßbereiche der Analog-Digital-Wandler, Steuerung des Ultraschall-Anemometer-Thermometer-Schrittmotors, Ausführung der mathematischen Operationen. Anhand dieser Arbeitsbeschreibung wird zur Zeit die Programmierung vorgenommen.

Nachstehende Tabellen versinnbildlichen die vom Prozeßrechner vorgenommene Datenerfassung, -verarbeitung und -ausgabe. Der Schwerpunkt des Rechnereinsatzes liegt dabei bei der Behandlung der sogenannten "schnellen" Daten, aus denen direkt die latenten und fühlbaren Wärmeflüsse berechnet werden. Kernstück dabei sind die Meßwerte des Ultraschall-Anemometer-Thermometers, die zur Erzielung bestmöglicher Meßgenauigkeit und -sicherheit korrigiert und auf Bereichsüberschreitungen hin überprüft werden. Diese können eintreten, wenn: 1. Regentropfen das Ultraschallsystem an der Aussendung von Impulsen hindern, 2. der Meßbereich, der im Interesse genauer Messung klein gewählt wird, in der Natur überschritten wird (im allgemeinen interessieren Meßdaten bei hohen Windgeschwindigkeiten nicht und spielen bei längerfristigen Bilanzen statistisch keine Rolle), 3. das Gerät elektronisch defekt wird. Die Zahl der Abfragen mit Vollausschlag je 10 Minuten Mittelwertbildungsintervall wird im Protokoll ausgegeben, der Wert selbst zur Mittelwertbildung nicht herangezogen. Gemeinsam mit der Angabe "Minuten Regen pro Intervall" kann zwischen den Arten von Störungen 1 und 3 unterschieden werden, echte Überschreitungen in der Natur werden von den parallel betriebenen "langsamen" Geräten richtig wiedergegeben, so daß keine verfälschten Werte in die Auswertung einfließen.

Eine weitere Maßnahme zur Fehlervermeidung wurde durch rechnergesteuertes intervallweises Verstellen der Ultraschallsonde zur zuletzt vorherrschenden Windrichtung getroffen, wodurch gleichzeitig eine definierte Anströmung des

Tabelle 4151-1:

"langsame" Daten

Meßgröße	Meßgerät	Abfrageintervall	Operation(en)	Ausgabe 10 min Mittelwert
3 x Lufttemperatur langsam	Pt 100 Widerstands-thermometer	1 min	Eichtabelle, Mittelwert	VXX, XX °C
3 x Luftfeuchte langsam	Hygrogeber, Pt 100-Fühler in LiCl-Element	1 min	"	XX,XX Torr
4 x Wassertemperatur	Pt 100-Fühler	10 min	Eichtabelle	XX,XX °C
1 x Gesamtbestrahlungsbilanz	Thermosäule	1 min	Mittelwert	V X,XXX kW/m ²
1 x Luftdruck	Anaeroidbarogebler	10 min	Bereichsanpassung durch Bezugswertaddition	XXX Torr
3 x Windgeschwindigkeit	Schalenkreuzanemometer	2 sec	Mittelwert	XX,XX m/sec
2 x Windrichtung	Windfahne	2 sec	Zeit- und Vektormittel durch Gewichtung mit Windgeschwindigkeit	XXX ° / XXX °
1 x Sichtweite	Transmissionsgeber	1 min	Umformung, Mittelwert	XXXX m
1 x Pegelstand/Durchsatz	Höhengeber am Ponton	1 min	Mittelwert, Eichtabelle, Durchsatz	X,XX m/XXXX $\frac{m^3}{sec}$
1 x Oberflächenströmung	Hitzedrahtanemometer	1 min	Eichtabelle, Mittelwert	X,XX m/sec
1 x Oberflächenrauigkeit	Eintauchkondensator	1 sec	RMS-Berechnung	XX,X cm
1 x Sauerstoffgehalt im Rhein	elektrochem. O ₂ -Sonde	1 min	Mittelwert	XX,X mg/l
1 x Niederschlagsdauer	beheizte Leitfähigkeits- ^{+) meßplatte}	1 min	Zahl der "naß"-Abfragen	XX min Regen pro 10 min

+) abgestimmt auf Schwingfähigkeit der Ultraschallsendeköpfe des Ultraschall-Anemometer-Thermometers bei Beaufschlagung mit Wassertropfen

Tabelle 4151-2 : "schnelle" Daten

Meßgröße	Luftfeuchte/Temperatur	Temperatur	Windgeschwindigkeit Vertikalkomponente
Meßgerät	Miniaturchermistor- psychrometer	Ultraschall-Anemometer-Thermometer	
Abfragerate	2 x 2/sec	15/sec	15/sec
Eingangsdaten	Widerstände der Thermistoren feucht/trocken	Schalltemperatur + 10° vom eingestellten Festwert	Komponente entsprechend Meßbereich
Operationen	Eichtabellenanwendung	Addition Festwert	Meßbereichsfaktor
	Momentanwerte Temperaturen feucht/trocken	Korrekturen Feuchteeinfluß und quadrat. Temperaturen	Korrektur des Schall- temperatureinflusses
	Anwendung der Sprung'schen Formel	Momentanwert Lufttemperatur Mittelwert	Momentanwert vert. Komponente ³⁾
	Momentanwerte der abs. Luftfeuchte	Varianz	Mittelwert, Varianz, Zahl der Vollausschläge
	Mittelwerte	Momentane Abweichungen von den Mittelwerten ¹⁾²⁾	
Ausgaben	Temp. feucht/trocken / abs. Feuchte VXX,XX°C / VXX,XX°C / XX,XX	Temp. Luft / Varianz / Vollausschläge VXX,XX°C / X,XX°C / XXXX	VX,XX m/sec X,XX m/sec XXXX

Berechnung der vertikalen Flüsse von latenter Wärme (Verdunstung) und fühlbarer Wärme (Konvektion) aus den Momentandaten 1) 2) und 3) durch Produktbildung von 1) (geeignet verzögerter Wert), mit 2) bzw. 3) und anschließender Mittelwertbildung.
Ausgabe jeweils VX,XXX kW/m²

Tabelle 4151- 3 : "schnelle" Daten

Meßgröße	Windgeschwindigkeit Horizontalkomponenten				
Meßgerät	Ultraschall-Anemometer-Thermometer				
Abfragerate	2 x 15/sec				
Eingangsdaten	2 Komponenten unter 120°, Orientierung gemäß Stellung Schrittmotor				
Operationen	Meßbereichsfaktor				
	Korrektur des Schalltemperatureinflusses				
	Umrechnung in Kreiskoordinaten				
	Berücksichtigung Orientierung				
	Zeitmittelwert-Richtung				
	Vektormittel-Richtung				
	Betragmittel				
	Varianz				
	Vollausschläge				
	Befehle Schrittmotor				
Ausgaben	XXX°	XXX°	XX.XX m/sec	X,XX m/sec	XXXX

am gleichen Gerät angebrachten Miniaturpsychrometers erzielt wird.

Die jeweils errechneten 10 min-Mittelwerte werden auf Magnetband-cassette gespeichert; wahlweise können sie auch laufend auf Protokoll ausgegeben und von Cassette auf Lochstreifen übertragen werden.

Zur Auswertung der Daten kann der Lochstreifen benutzt werden, oder das Einlesen erfolgt direkt von Cassette über einen on-line an die Großrechenanlage angeschlossenen Prozeßrechner.

4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf ihre Umgebung
(K. Nester, ASS)

Zur Bestimmung der Auswirkungen von Kühltürmen auf ihre Umgebung ist es notwendig, den Aufstieg von Kühlturmfahnen in die Atmosphäre zu berechnen. Während dieser Aufstiegsphase finden die für die hauptsächlichsten Auswirkungen auf die Umgebung wesentlichen Prozesse statt.

Der Aufstieg wird theoretisch durch

- die Navier-Stokes-Gleichungen für den Impulstransport,
- den ersten Hauptsatz der Wärmelehre für den Wärmetransport
und
- einen Feuchteansatz für den Feuchtetransport bestimmt

In der vorliegenden Form des Computer-Programms zur numerischen Berechnung des Aufstiegs von Kühlturmfahnen werden zur Lösung der obigen Gleichungen folgende Annahmen getroffen:

- 1) Stationäre Verhältnisse
- 2) Die Horizontalgeschwindigkeit in der Fahne entspricht in allen Höhen derjenigen des Windes
- 3) Der Druck in der Fahne entspricht dem Umgebungsdruck
- 4) Die in der Fahne entstehenden bzw. mitgerissenen Tröpfchen verbleiben in der Fahne (kein Ausregnen)
- 5) Das Entrainment erfolgt senkrecht zur mittleren Strömungsrichtung
- 6) Die Turbulenzterme der obigen Gleichungen lassen sich in Analogie zur molekularen Diffusion durch einen Gradientansatz parametrisieren.

Das Programm erlaubt die Berechnung der dreidimensionalen Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit der Temperatur und des spezifischen Tröpfchen- bzw. Feuchtegehaltes in der Kühlturmfahne in Abhängigkeit von beliebigen Anfangs- und Randbedingungen.

Die Abbn. 4152-1 bis 4152-3 zeigen das Ergebnis einer derartigen Rechnung mit den folgenden willkürlich gewählten Anfangs- und Randbedingungen.

$$\begin{aligned} \text{Austrittstemperatur } T_A &= 295^\circ\text{K} \\ \text{Austrittsgeschwindigkeit } W_A &= 4.0 \text{ m/s} \\ \text{spezifische Feuchte am} \\ \text{Austritt } q_A &= 16.5 \text{ g/kg} \\ \text{Umgebungstemperatur: } T_u(z) &= T_o + \gamma z; T_o = 281.5^\circ\text{K} \\ &\quad \underline{\gamma = +1^\circ\text{C}/100 \text{ m}} \end{aligned}$$

Relative Feuchte in
der Umgebung

$$\begin{aligned} \text{RF}_u &= 80 \% \\ \text{Luftdruck } p_u(z) &= p_o \left(\frac{T_o}{T_u}\right)^{3.42}; p_o = 1000 \text{ mb} \\ \text{Windgeschwindigkeit } U_u(z) &= F_o z^{0.25} \quad F_o = 1.0 \text{ m}^{0.75}/\text{s} \end{aligned}$$

Die Abb. 4152-1 liefert die Vertikalgeschwindigkeitsverteilung in der Mitte der Kühlturmfahne. Der Auftrieb sorgt für eine Zunahme der Geschwindigkeit, bis das Eindringen von Umgebungsluft den Auftrieb kompensiert. Auffällig ist die asymmetrische Verteilung mit einem starken Gradienten auf der Luv-Seite der Fahne. Die in Abb. 4152-3 dargestellte Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit in einem Querschnitt durch die Fahne (in Abb. 4152-1 mit Q bezeichnet) macht diese Asymmetrie ebenfalls deutlich.

Die Übertemperatur in der Fahne (Abb. 4152-2) nimmt im Gegensatz zur Vertikalgeschwindigkeit aufgrund des Eindringens von Umgebungsluft rasch mit der Höhe ab.

In allen drei Abbildungen ist der sichtbare Schwaden eingezeichnet, der etwa eine Höhe von 350 m erreicht. Die sichtbare Fahne ist deutlich schmaler als die Gesamtfahne, wodurch sich die Asymmetrie der Fahne in den sichtbaren Umrissen weniger bemerkbar macht.

Die Ergebnisse machen deutlich, daß zum Testen eines Rechenprogrammes die Messung der Verteilungen von Temperatur, Vertikalgeschwindigkeit und Feuchte benötigt wird. Aus den Umrissen der sichtbaren Fahne allein läßt sich ein solcher Test nicht zuverlässig durchführen.

Bei der weiteren Entwicklung des Computer-Programms ist vorgesehen, auch die Möglichkeit des Ausregens von Tröpfchen einzubauen. Aus Messungen der DFVLR am Kühlturm Neurath geht hervor, daß die Kühlturmfahne häufig eine Doppelwirbelstruktur aufweist. Es ist deshalb zu prüfen, inwieweit dieser Effekt zur Erfassung der Auswirkungen auf die Umgebung eines Kühlturms Berücksichtigung finden muß.

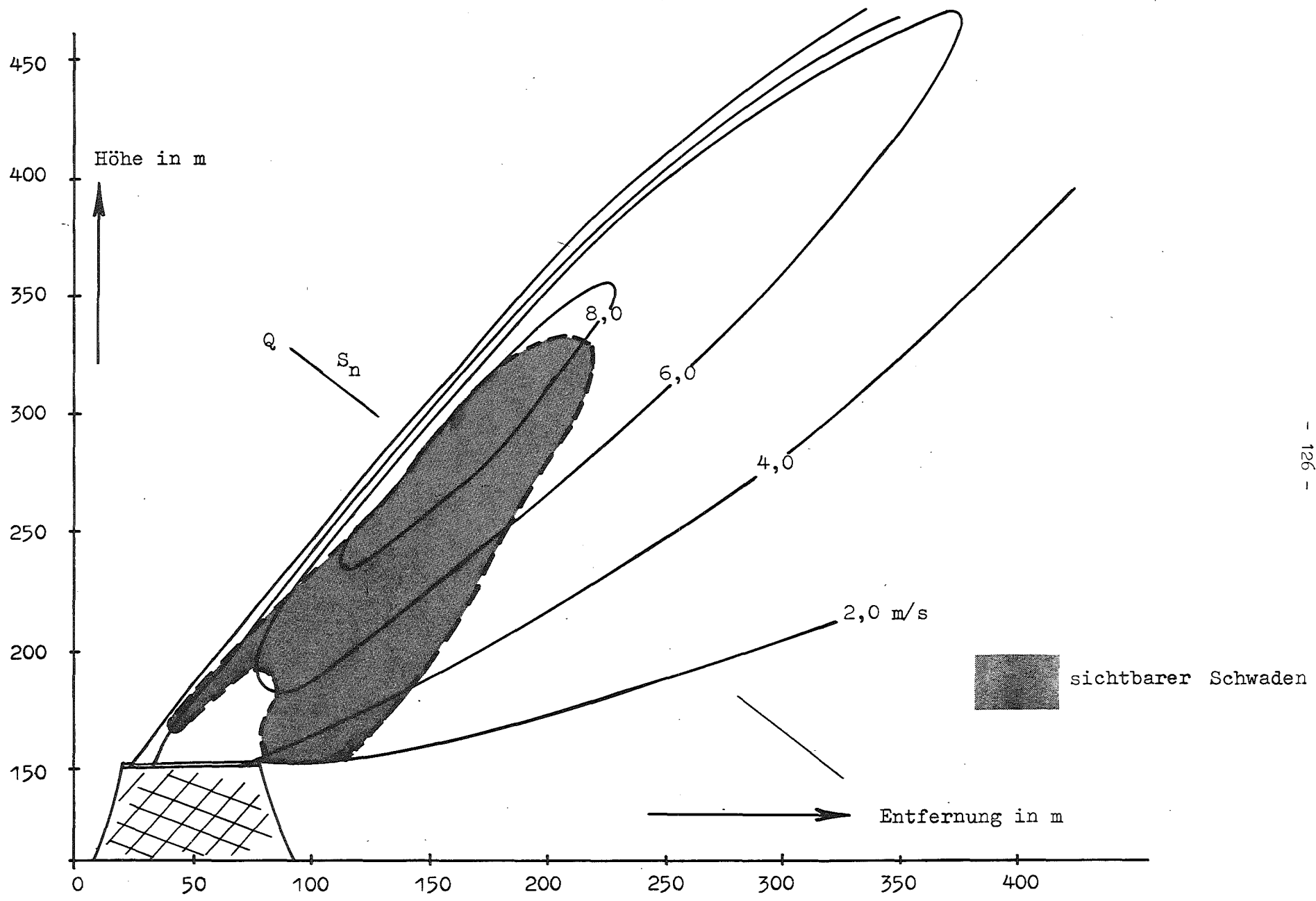


Abb.415 2-1: Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit

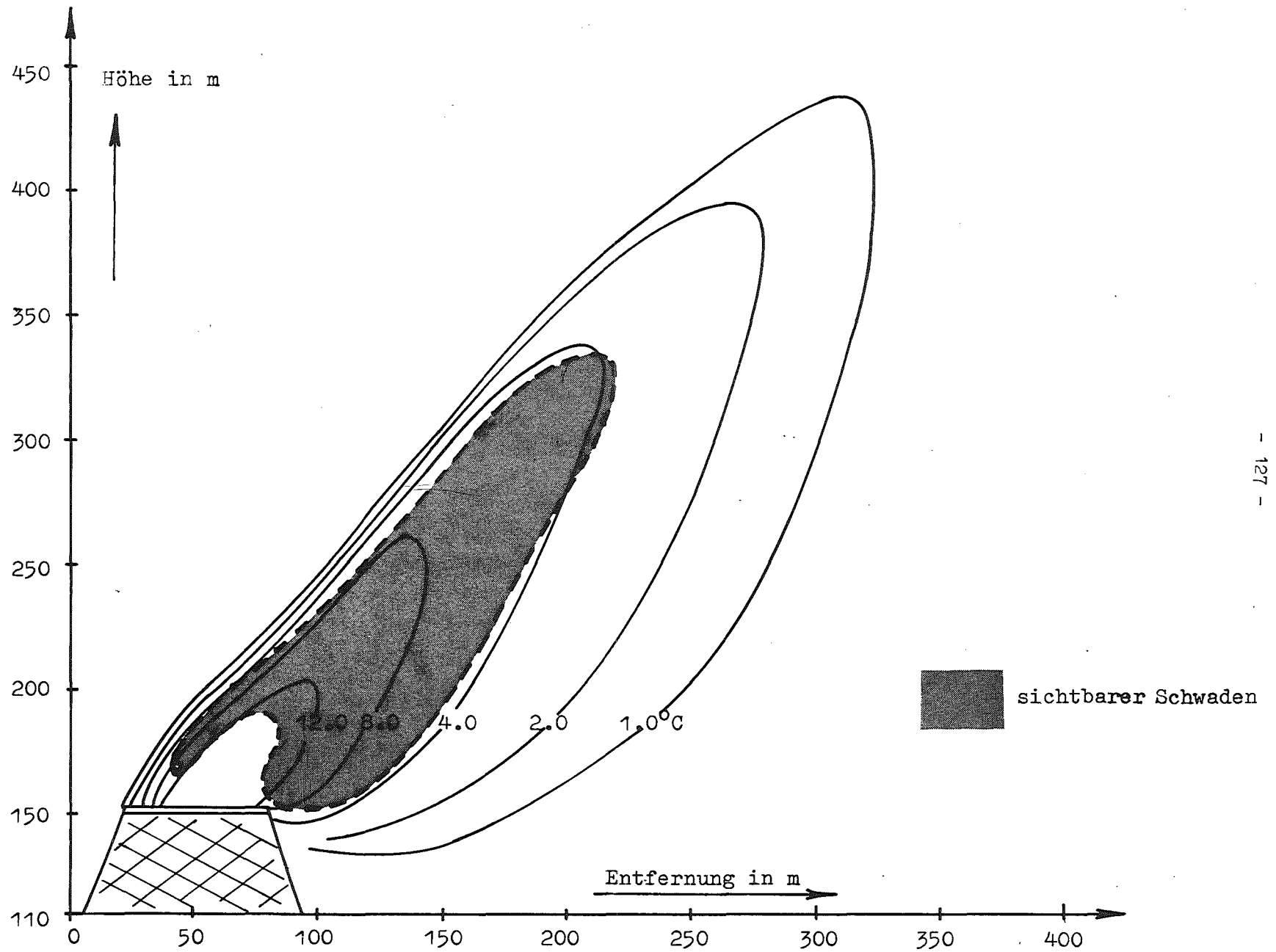


Abb. 4152-2: Übertemperaturverteilung ΔT $\Delta T = T - T_u$

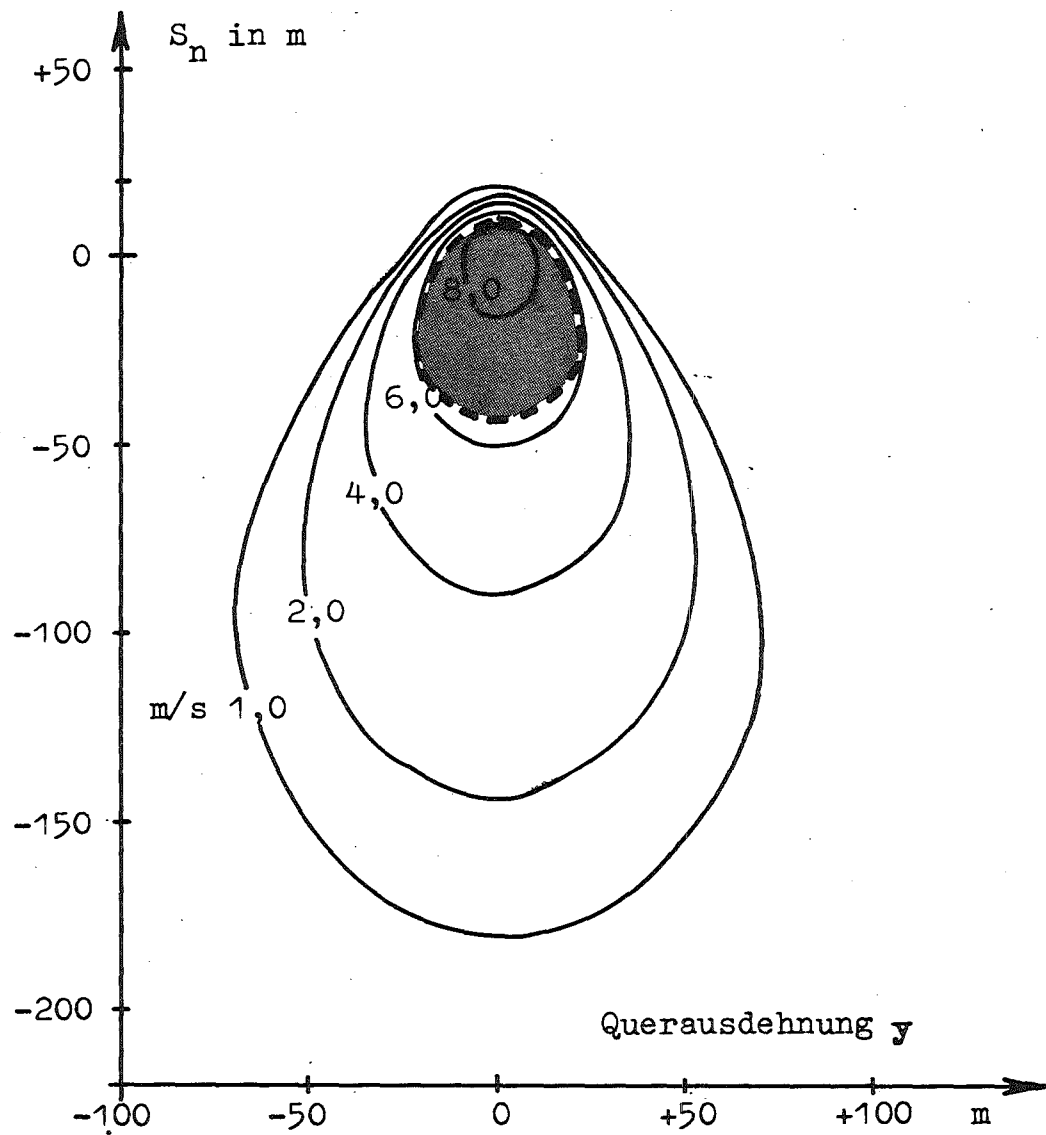


Abb. 4152-3: Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit im Querschnitt Q

- 4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN
- 4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen
- 4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

1. MARVIKEN-Blowdown-Experimente

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

Im 1. Halbjahr 1974 bildeten die Erstellung der MARVIKEN-Reports den Schwerpunkt der Arbeiten. Bisher wurden an die Projektleitung in Schweden Beiträge zu den Berichten MXA-1-110 (Instrumentation I) und MXA-1-111 (Instrumentation II) geliefert. Die Beiträge zum Bericht MXA-1-115 (Auswertemethoden und Fehlerbetrachtungen) sind fertiggestellt und die Berichte MXA-1-221/222/223, die die GfK-Meßergebnisse beinhalten, sind in Arbeit.

Parallel dazu wurde mit der vertieften Auswertung der MARVIKEN-Experimente begonnen, die zum Ziel hat, die im Druckabbausystem der Anlage MARVIKEN aufgetretenen Schwingungen physikalisch zu interpretieren und modelltheoretisch zu erfassen. Von besonderem Interesse sind dabei die Wechselbeziehungen zwischen den Bedingungen der Anströmung (Gemischzusammensetzung und Gasdynamik) und den thermohydraulischen Vorgängen im Wasserbad der Kondensationskammer.

Die bisherigen Betrachtungen haben einen starken Einfluß der im Dampfstrom mitgeführten Luft auf das Geschehen der Druckpulsationen im Wasserbad erkennen lassen. Diese Aussage gilt gleichermaßen auch für die Beanspruchungen (Dehnungen) einer Membranplatte, die zur Simulation des Wandausschnittes eines Reaktorsicherheits-Containments im Wasserbad eingebaut war.

In Abb. 4211-1 sind die Verhältnisse für Blowdown Nr. 16 dargestellt. Aus dem zeitlichen Verlauf der aufgetragenen Dampf- und Luftmassenstromdichten und den Druckpulsationen und Dehnungen ergibt sich für den globalen Zusammenhang während der Kondensationsphase - der Freiblasevorgang (Zeitbereich ca. 0 bis 6 s) wird hier nicht betrachtet - folgendes Bild: [1]

Während die Dampfmassenstromdichte sehr rasch ihre volle Größe erreicht, werden die zu erwartenden Druckpulsationen (Dehnungen) durch den anfangs vorhandenen relativ hohen Luftanteil nahezu unterbunden und nehmen nur langsam mit fallendem Luftanteil zu. Erst nachdem der Luftanteil auf kleine Werte abgefallen ist, erreichen die Amplituden der Druckpulsationen (Dehnungen) ihren Maximalwert und folgen dann etwa dem Verlauf der Dampfmassenstromdichte.

Für differenziertere Aussagen, die das Spektrum der Druckpulsationen betreffen, sind weitere Untersuchungen erforderlich. Dabei werden insbesondere auch die in der Anströmung gemessenen pulsierenden statischen Drücke und Staudrücke in die Betrachtungen einbezogen.

2. Versuche im Kernkraftwerk Brunsbüttel

(K.D.Appelt, M.Cramer, J.Kadlec, IRE)

Im Rahmen der Inbetriebnahme des Kernkraftwerkes Brunsbüttel werden in zwei Etappen (nichtnukleare und nukleare Heißtests) Entlastungsversuche durchgeführt, bei denen der Dampf aus dem Reaktordruckgefäß über die Entlastungsventile und Kondensationsdüsen in die Wasservorlage des Druckabbausystems abblasen wird. Der Sicherheitsbehälter mit dem Druckabbausystem des Kernkraftwerkes Brunsbüttel ist in Abb.: 4211-2 schematisch dargestellt. Während dieser Abblaseversuche (insbesondere in der ersten Etappe) werden die Temperaturen und Drücke in der Wasservorlage und die entsprechenden dynamischen Auslenkungen, Beschleunigungen und relativen Dehnungen an der Kugelschale des Sicherheitsbehälters gemessen. An diesen Großexperimenten wird sich das IRE im Rahmen der PNS-Aufgabe 4211 mit eigener Instrumentierung beteiligen. Ziel der Messungen ist die experimentelle Bestimmung des beim Abblasevorganges induzierten Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage der Kondensationskammer und der entsprechenden dynamischen Antwort des Containments. Die dabei gewonnenen Daten werden für die Überprüfung des Rechenverfahrens für die Berechnung der bei dem Blowdown entstehenden dynamischen Reaktion des Containments benutzt (s. weiter unten).

Ausgehend von den theoretischen Überlegungen und den realen technischen, finanziellen und zeitlichen Möglichkeiten wurde im Berichtszeitraum für

die Messungen in Brunsbüttel ein Instrumentierungsvorschlag ausgearbeitet und die Montage der Aufnehmer weitgehend vorbereitet. Für die Installation an der Kugelschale sind 20 Druckaufnehmer und 37 Beschleunigungsaufnehmer vorgesehen, die in verschiedenen Kombinationen an die entsprechenden Verstärker- und Registrierkanäle angeschlossen werden sollen. Die Registrierung der entsprechenden Meßsignale wird mit Hilfe von drei Magnetbandgeräten (FM-Aufzeichnung) erfolgen. Die Auswertung der registrierten Meßsignale wird an den im IRE zur Verfügung stehenden Datenverarbeitungsanlagen durchgeführt. Die theoretische Untermauerung der Messungen sowie eine detaillierte Beschreibung der vorgeschlagenen Instrumentierung befindet sich in einer internen Notiz.

3. Berechnung dynamischer Containmentbelastungen
(B.Göller, B.Laursen, E.G.Schlechtendahl, IRE)

Im Zusammenhang mit den Abblaseexperimenten am Kernkraftwerk Brunsbüttel stehen auch die Arbeiten zur Berechnung des dynamischen Verhaltens des Containments bei derartigen Belastungen. Es ist vorgesehen, noch vor Durchführung der Versuche die wichtigsten Eigenschwingungsformen und zugehörigen Frequenzen zu berechnen und nach den Versuchen anhand der gemessenen Druckbeaufschlagung des Containments dessen Reaktion nachzurechnen.

In Vorbereitung dieser Aufgabe mußte eine geeignete Software bereitgestellt werden. Wegen der im IRE vorliegenden guten Erfahrungen mit ICES lag es nahe, das System STRUDL zu benutzen. Von insgesamt 4 existierenden Versionen des ICES-STRUDL-Systems wurde nach eingehender Prüfung die (ICES+STRUDL+DYNAL+PLOT) Version McDonnell Douglas Automation Comp., St. Louis, ausgewählt und beschafft. Es wurden statische und dynamische Testrechnungen durchgeführt, wobei sich gegenüber den bisher verfügbaren MIT- und PSU-Versionen eine mindestens vierfache Effektivität und eine unvergleichbar höhere Zuverlässigkeit und Funktionstüchtigkeit zeigte.

Neben der Software für die eigentliche Rechnung muß auch geeignete Software für die Eingabegenerierung und die Nachauswertung bereitgestellt werden. Auf der Eingabeseite wurde in einer Arbeitsgemeinschaft mit der SNI (Shell Nederland Informatieverwerking), Den Haag, und dem CTICM (Centre Technique Industriel de la Construction Metallique), Paris, damit begonnen, das bislang fehlerbehaftete ICES-Subsystem TOPOLOGY voll auszu-

bauen. Zur Nachauswertung wurde der von SNI entwickelte STRUDL-Postprozessor übernommen. Erste Eigenschwingungsrechnungen mit einem vereinfachten Containmentmodell (etwa 1000 finite Elemente) wurden bereits erfolgreich durchgeführt.

Eigene Veröffentlichungen

[1] K.D.Appelt, G.Bönisch, J.Kadlec, E.Wolf:
Untersuchungen des Druckpulsationsfeldes und der in die Kondensationskammer des Druckabbausystems der Reaktoranlage MARVIKEN eingeflossenen Massenströme beim Blowdown. Reaktortagung des Deutschen Atomforums e.V., Berlin, 2.-5.April 74

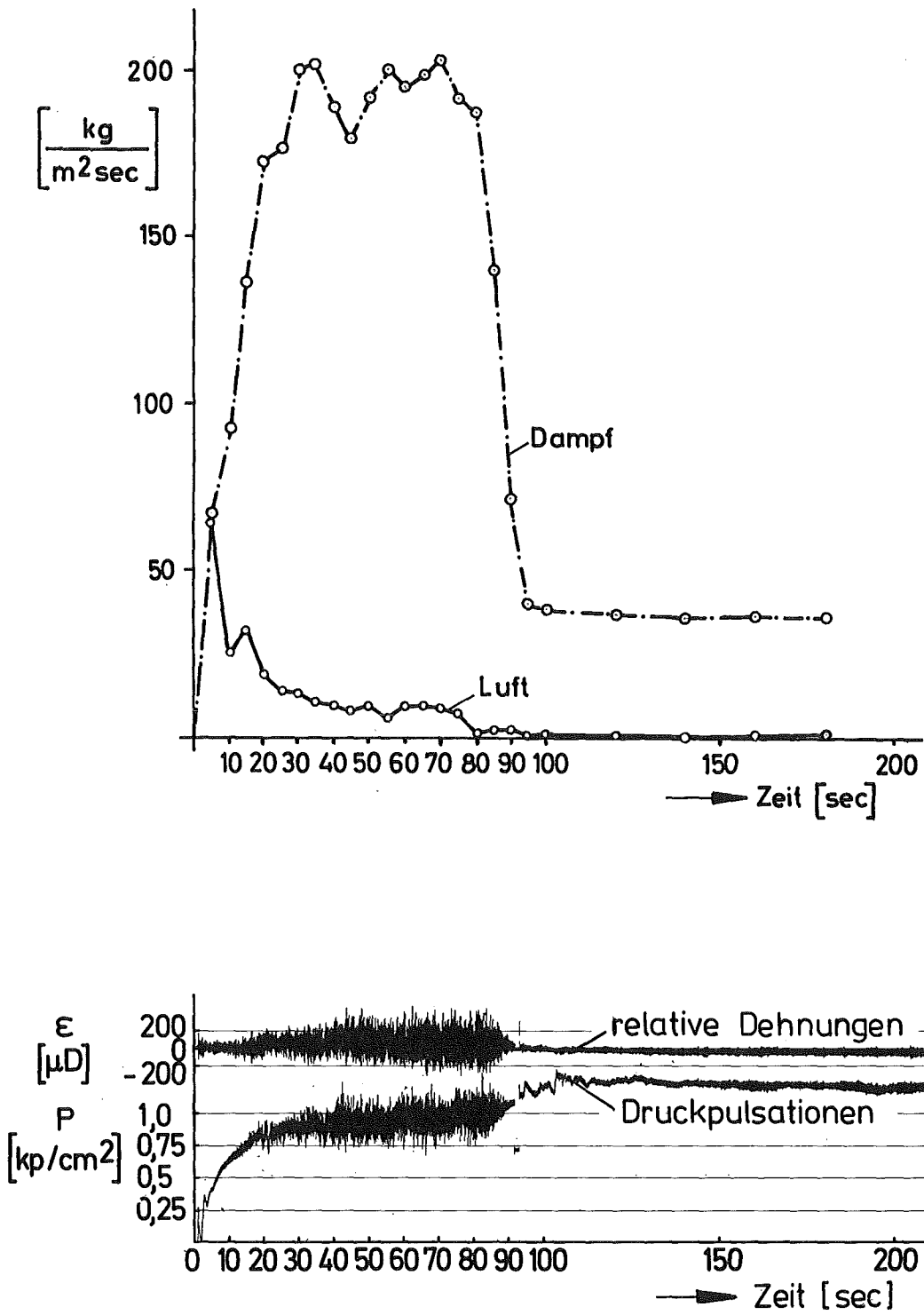


Abb.:4211-1 Zeitverläufe der gemessenen Größen beim Blowdown Nr.16

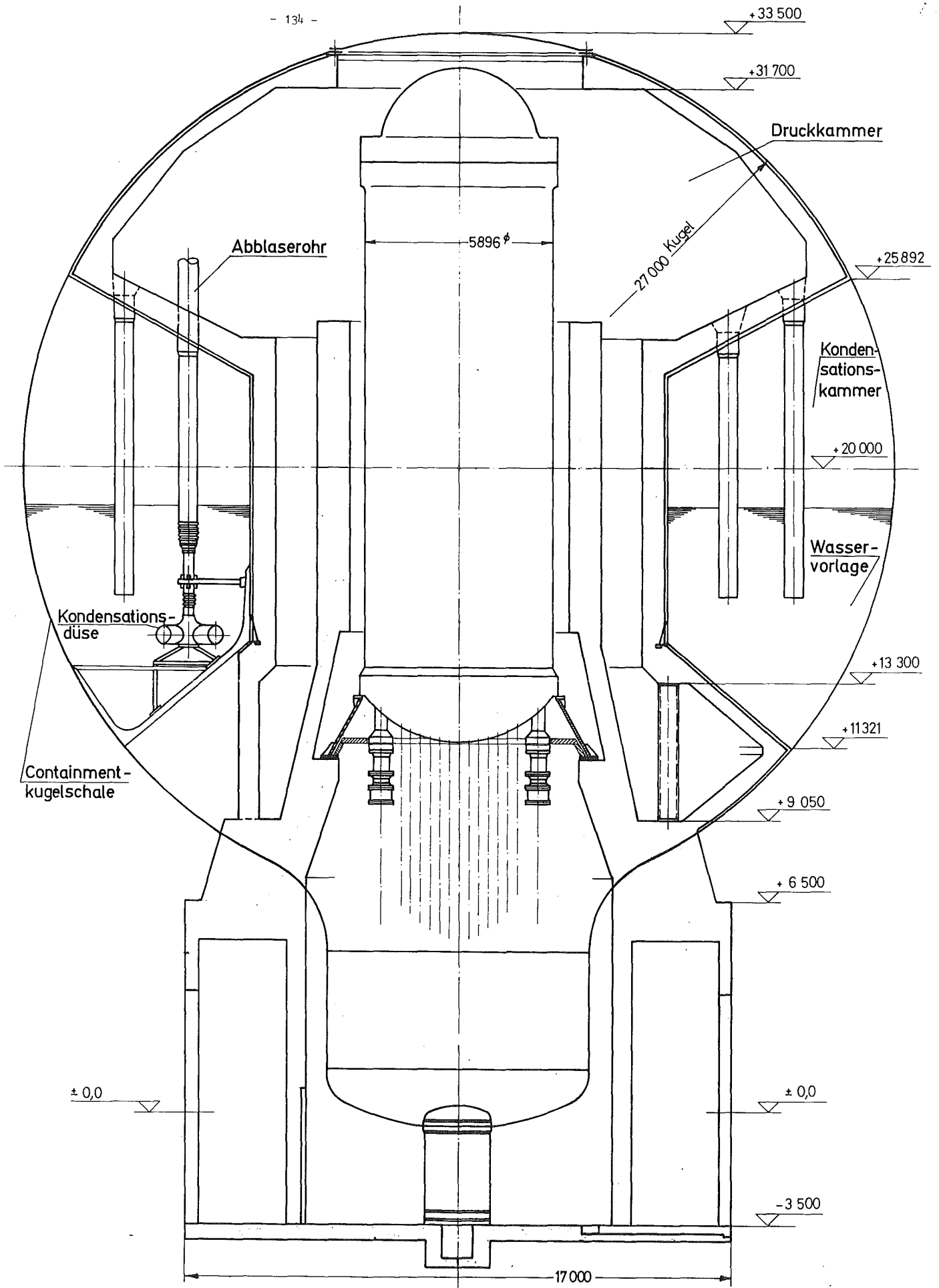


Abb.: 4211-2: KKB- Druckabbausystem

4212 Dynamische Beanspruchung von Druckbehältereinbauten bei
Kühlmittelverlustunfällen von LWR

Sicherheitsexperimente im HDR: Belastungen von RDB-Einbauten
durch Druckentlastung während eines Kühlmittelverlustunfalles
(J.W. Palmowski, PNS-PL)

Im 1971 stillgelegten HDR werden Sicherheitsexperimente durchgeführt.
Im Rahmen dieser Sicherheitsexperimente wurde das Teilprogramm HDR-
Blowdown-Versuche unter Federführung des PNS in Zusammenarbeit mit dem
IRE und LIT der GfK sowie mit Battelle, IRS, KWU und dem LRA spezifiziert
/1/. Für die Erarbeitung der Spezifikation wurde Anfang 1974 vom PNS eine
Arbeitsgruppe bestehend aus Mitarbeitern obiger Institutionen gebildet.

Die Arbeitsgruppe überprüfte die Ende 1973 von verschiedenen Institutionen
gemachten Versuchsvorschläge auf Priorität und Durchführbarkeit.

Als besonders wichtig und nur im HDR mit sehr guten Erfolgsaussichten
durchführbar wurde die folgende Untersuchung spezifiziert:

Theoretische und experimentelle Untersuchung der Belastungen
und Verformungen von RDB-Einbauten durch Druckentlastung
während eines Kühlmittelverlustunfalles.

Für die Durchführung der Sicherheitsexperimente sind einige Voraussetzungen
nötig. U. a. sind folgende Umbau- und Anpassungsarbeiten der Anlage für
eine sinnvolle Versuchsdurchführung erforderlich:

- Schaffung einer neuen Umwälzschleife in gesicherten Räumen
mit der erforderlichen Beheizung und einer ausreichenden
Wärmesenke.
- Bereitstellung von SWR- und DWR-Einbauten zur Untersuchung
der Belastung auf diese Einbauten bei einem Blowdown.
- Schaffung einer Einrichtung zur Erzeugung der erforderlichen
Dampfblasenverteilung.
- Schaffung der erforderlichen Versuchseinrichtungen z. B.
Sollbruchstellen, kurzer und langer Stutzen, Rohrleitungen,
Instrumentierung, Mauerdurchbrüche.

- Bereitstellung der erforderlichen Meßwerterfassung und
-aufzeichnung.

Die spezifizierten Untersuchungen werden von den Gutachtern, den Betreibern und den Herstellern als so wichtig angesehen, daß ihnen eine hohe Priorität eingeräumt werden sollte, zumal die HDR-Anlage wohl eine einmalige Gelegenheit für die Durchführung derartiger Sicherheitsexperimente darstellt und die Versuchsergebnisse wesentlich zur Klärung von Fragen beitragen könnten, die im Genehmigungsverfahren eine wesentliche Rolle spielen. Eine ähnlich günstige Gelegenheit für solche Blowdown-Experimente in einem relativ großen RDB mit entsprechenden Stützenfeldern und Nennweiten sowie einer relativ niedrigen Aktivierung wird sich in überschaubarer Zeit nicht wieder anbieten.

Die erarbeitete Spezifikation geht aus Zeitgründen bewußt nicht auf die Problematik der einzelnen Experimente im Detail ein. Manche Probleme wurden nur aufgezeigt. In einer Detaillierungsphase sollen daher die offenen Probleme genau untersucht, die erforderlichen Vorausberechnungen durchgeführt und die durchzuführenden Experimente sorgfältig vorbereitet werden.

Die durchgeführte Kostenuntersuchung dieser Experimente kann daher nur als vorläufig angesehen werden.

Die Detaillierungsphase sollte zur Vermeidung von Verzögerungen sofort im Anschluß an die Spezifizierungsphase durchgeführt werden, d. h. ab Oktober 1974. Insbesondere wird vorgeschlagen, daß die Aktivitäten, die auf dem kritischen Terminpfad liegen, wie z. B. Auslegung und Bestellung der RDB-Einbauten, Umbau der Umwälzschleife, Bestellung der Meßwertaufzeichnung ohne Verzögerung durchgeführt werden.

Der Terminplan für das gesamte HDR-Blowdown-Projekt geht von einer Vorbereitungszeit von ca. 12 bis 15 Monaten, einer Versuchszeit für die Experimente "Belastungen auf die RDB-Einbauten" von ca. 21 bis 22 Monaten, bei einer Mindestversuchszahl von ca. 10 DWR- und 10 SWR-Versuchen aus.

Eine Verkopplung der Blowdown-Versuche mit anderen Sicherheitsuntersuchungen am HDR wurde bisher nicht vorgenommen.

Literatur

- /1/ Spezifikation der Sicherheitsuntersuchungen am HDR-Blowdown-Versuche,
PNS-Arbeitsbericht Nr. 30/74, Juni 1974

4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen

(R. Löffel, LIT)

Zur Prüfung und Verbesserung der Rechenmodelle zur Sicherheitsauslegung von Leichtwasserreaktoren ist die Kenntnis des Massenstromes instationärer Zweiphasenströmungen beim Kühlmittelverlustunfall notwendig. Es gibt bis heute kein Meßverfahren, mit dem sich der Massenstrom instationärer Zweiphasenströmungen (Wasser/Dampf) bei einem Reaktor-Blow-down gut bestimmen läßt. So ist die Durchsatzmessung mittels Blenden nur im Einphasenbereich oder jeweils nahe dem Einphasenbereich mit guter Genauigkeit möglich. Andere Meßverfahren, wie z.B. Messung mit Hitzdrahtanemometer, Messung mit Ionisations-Flowmeter, Messung mit Venturirohr und Messung über elektrische Leitfähigkeit, sind für instationäre Zweiphasenströmungen ebenfalls nicht geeignet, da durch auftretenden Schlupf zwischen Flüssig- und Gasphase sowie durch Druck- und Temperaturänderungen sich große Meßfehler ergeben.

Vom Sachverständigenkreis Notkühlung des BMFT wurde daher eine Arbeitsgruppe mit dem Ziel gebildet, die Einsatzmöglichkeiten verschiedener Massendurchsatzmeßmethoden zu diskutieren. Entsprechend dem Ergebnis dieser Arbeitsgruppensitzungen hat der Sachverständigenkreis Notkühlung mittlerweile die Förderung folgender vier Meßverfahren empfohlen:

Drag-body-Messung (Battelle)

Laufzeitmessung mittels Temperatursignalen (TU Berlin)

Radionuklidverfahren (LIT)

Messung mittels magnetischer Kernspinresonanz (KWU)

Für die Erprobung dieser Verfahren ist die Errichtung eines gemeinsamen Versuchsstandes im IRB vorgesehen.

Das Radionuklidverfahren (RNV) des LIT soll nun im Rahmen des PNS entwickelt und bei verschiedenen Reaktorsicherheitsexperimenten eingesetzt werden:

Marvikennachfolgeprogramm

RS 50 Battelle Frankfurt

HDR-Versuche

RS 109 Blowdown mit Einfluß der Umwälzschleifen (Ispra).

Die Bestimmung des Massenstromes instationärer Zweiphasenströmungen erfolgt dabei durch Messung der

Geschwindigkeit der Gasphase (W_G)

Geschwindigkeit der Flüssigphase (W_L)

Dichte des Zweiphasengemisches (ρ).

Eine gleichzeitige, aber dennoch getrennte Messung der Geschwindigkeiten beider Phasen mittels zweier verschiedener Radiotracer soll erreicht werden. Zusätzlich erfolgt eine Kopplung mit einer γ -Absorptionsdichtemessung. Das Verfahren soll eine möglichst hohe Zeitauflösung (besser als 100 ms) besitzen und vor allem auch bei Drücken von 1 bis 160 bar und bei Temperaturen von 20 bis 350 °C einsatzfähig sein. Außerdem müssen möglichst kurze Meßstrecken angestrebt werden, um das Verfahren auch an kurzen Rohren und Stutzen anwenden zu können.

Das LIT besitzt bereits Erfahrungen in Radiotracergeschwindigkeitsmessungen vor allem durch die Beteiligung an den Marviken-Blowdown-Experimenten [1]. Durch periodische Injektion eines Tracergases (Ar-41) wurde dort die mittlere Strömungsgeschwindigkeit der Gasphase des Zweiphasengemisches (Luft, Wasserdampf, Wasser) in Abhängigkeit von der Zeit gemessen. Weitere Entwicklungs- und Verbesserungsmöglichkeiten sind aus den in Marviken gemachten Erfahrungen abzuleiten. So ist beispielsweise eine höhere Zeitauflösung durch Änderung der Injektionsfrequenz und Verbesserung der Injektionstechnik mög-

lich. Durch Errichtung mehrerer Meßstellen können mit dem Radiotracer-geschwindigkeitsmeßverfahren außer der Bestimmung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Zeit auch noch Informationen über Strömungsform und Strömungsprofil gewonnen werden [2].

Die Entwicklung des Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrombestimmung soll in 4 Stufen erfolgen:

- 1) Entwicklung des Geschwindigkeitsmeßverfahrens für die Gasphase (W_G)
- 2) Entwicklung des Geschwindigkeitsmeßverfahrens für die Flüssigphase (W_L)
- 3) Entwicklung des Gamma-Dichtemeßverfahrens (ρ)
- 4) Kombination und Anpassung dieser 3 Grundmeßverfahren zum Massenstrommeßverfahren (\dot{m}).

Die anstehenden experimentellen Aufgaben lassen sich in 4 Bereiche einteilen:

Markierungstechnik
Injektionstechnik
Meßtechnik
Auswertetechnik.

Die Anpassung des Verfahrens an die geometrischen und strömungstechnischen Bedingungen der verschiedenen Reaktorsicherheitsprojekte muß an speziell darauf hin ausgelegten Teststrecken erfolgen.

Die wesentlichen Parameter und Randbedingungen für die Zweiphasenmassenstrommessungen bei den anstehenden Reaktorsicherheitsprojekten sind in Tabelle 4214-1 aufgeführt.

Tabelle 4214-1: Wesentliche Parameter und Randbedingungen für Massenstrommessung

	Marviken I ⁺)	Marviken II ⁺⁺⁾	RS 50(Battelle) ⁺⁺⁾	HDR ⁺⁺⁾	RS 109(Ispra) ⁺⁺⁾
Rohrdurchmesser [mm]	1200	1200	150	150;350;450	50;80
Rohrlänge [m]	12	12	12	1 bis 4	1 bis 4
Systemdruck [bar]	1→2,8	1→2,8	140→5	90 → 5	160 → 5
Dampfgehalt x [-]	0,2→0,7	0,2→0,7	0 → 1	0 → 1	0 → 1
Temperatur [°C]	20→140	20→140	290→20	320 → 20	350 → 20
Meßgröße	w_G	w_G, w_L	w_G, w_L	w_G, w_L, ρ	w_G, w_L, ρ

+) bereits durchgeführt

++) vorgesehen

Die technischen Randbedingungen der Reaktorsicherheitsexperimente stellen besondere Ansprüche. Insbesondere muß das Radionuklidverfahren im hohen Druck- und Temperaturbereich und unter stationären und instationären Bedingungen entwickelt und getestet werden. Wegen der erforderlichen hohen Zeitauflösung sind an die Injektionstechnik besonders große Anforderungen zu stellen. Die Injektionstechnik muß eine Injektion von flüssigen und gasförmigen Radiotraceren in ein mit hohem Druck und hohen Temperaturen strömendes Wasser/Dampf-Gemisch mit hoher Injektionsfrequenz ermöglichen.

Seit der Durchführung der Marviken I-Experimente [1] besteht im LIT zur Weiterentwicklung des Radionuklidmeßverfahrens eine Arbeitsgruppe, die inzwischen durch die Mitarbeit von RBT verstärkt wurde.

Zur Vorbereitung der Radiotracergeschwindigkeitsmessungen im Rahmen des Marviken-Nachfolgeprogramms sowie für die Battelle-Blowdown-Experimente RS 50 wurde mit der Planung einer Teststrecke für das System gas/flüssig und mit dem Aufbau einer 12-Sonden-Geschwindigkeitsmeßeinrichtung begonnen. Einzelheiten dieser Arbeiten werden im nächsten Berichtszeitraum beschrieben werden.

Die bei der Abteilung Reaktorbetrieb und Technik (RBT) erstellte Argon-Aktivierungseinrichtung wird voraussichtlich ab August 1974 betriebsbereit sein.

Literatur

[1] R. Löffel

Entwicklung und Anwendung eines Geschwindigkeitsmeß-
verfahrens mit Radiotracern

Projekt Nukleare Sicherheit, 1. Halbjahresbericht
1/1973 KFK 1859, Kernforschungszentrum Karlsruhe,
August 1973

[2] R. Löffel

Anwendungsmöglichkeiten der Radionuklidtechnik zur
Untersuchung von instationären Mehrphasenströmungen
Reaktortagung 1974 des Deutschen Atomforums,
2. - 5. April 1974 in Berlin

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 Zielsetzung der theoretischen Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall von Leichtwasserreaktoren ist im 2. Halbjahresbericht 1972 des PNS (KFK 1787) beschrieben. Diese Untersuchungen werden in enger Zusammenarbeit mit dem Institut für Kernenergetik (IKE), Universität Stuttgart, durchgeführt. Schwerpunkte der Arbeiten im Berichtszeitraum lagen bei der Bereitstellung vorhandener Codes als Hilfsmittel für die notwendigen analytischen Arbeiten zur Auslegung der geplanten Experimente und als Moduln für das geplante Codesystem, bei der Konzipierung und Erstellung neuer Moduln für dieses Codesystem zur Beschreibung des LWR-Brennstabverhaltens beim Kühlmittelverlustunfall und bei Auslegungsrechnungen für geplante Versuche. Im einzelnen wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

1. Bereitstellung vorhandener Rechenprogramme

1.1 THETA 1B (L. Ehnis, S. Raff)

Das Rechenprogramm THETA 1 B /1/, das zur transienten thermischen Berechnung von LWR-Brennstäben dient, wurde inzwischen in Stuttgart in das Programmsystem SSYST integriert. Dazu mußte das Programm so zerlegt werden, daß die einzelnen Teile (Geometrieberechnungen, Einlesen und Aufbereiten der Eingabedaten, Berechnung der Wärmeübergangszahlen, Lösung der Strömungs- und Wärmeleitgleichungen, Datenausgabe, Steuer- und Interpolationsprogramme sowie Datentabellen) in einer "Overlay"-Struktur dargestellt werden können. Als Modul von SSYST hat THETA 1B Zugriff auf die von anderen Moduln erzeugten Daten, kann also etwa die Eingabedaten Druck, Massenstrom, Einlaßenthalpie und Leistungsdichte als Zeitfunktionen von den Ergebnissen der Rechnungen mit RELAP 3 /2/ übernehmen.

THETA 1B ist inzwischen auch in Karlsruhe als separates Rechenprogramm bereitgestellt. Die Integrierung in SSYST ist zunächst zurückgestellt worden, da inzwischen das Programm RELAP 4 /3/ zur Verfügung steht, das gegenüber RELAP 3 wesentlich verbessert ist und gleichzeitig die Aufgaben des Programms THETA 1B in ebenfalls verbesserter Form erfüllen kann.

1.2 RIBD (L. Ehnis)

Zur Berechnung der stationären Spaltproduktkonzentration im Brennstab zu Beginn des Kühlmittelverlustunfalles wurde das Programm RIBD /4/ als Modul von SSYST integriert. RIBD berechnet u.a. die Gesamtmenge der während der Betriebszeit entstandenen Spaltgase in Abhängigkeit vom zeitlichen Leistungsverlauf des Reaktors und der örtlichen Leistungsverteilung. Die freigesetzten Spaltgase bilden zusammen mit eingefülltem Helium die Gasmenge, die für den auf der Innenseite der Brennstabhüllrohre herrschenden Gasdruck maßgebend ist.

2. Modulentwicklung

2.1 Deformationsmodul (S. Dagbjartsson, M. Schindler, H.J. Elzmann)

Der als erster Schritt zur Erfassung der Hüllrohrdeformationen erstellte eindimensionale Deformationsmodul HRODE1 wurde weiterentwickelt durch die Berücksichtigung zeitabhängiger Kriechvorgänge (Nortonsches Kriechgesetz) zum Modul HRODE2. Dieser Modul ist bereits fertig programmiert und läuft unter SSYST. Für die angestrebte Entwicklung eines Moduls zur zweidimensionalen (rotationssymmetrischen) Beschreibung der Hüllrohrdeformation wird zur Zeit vom Institut für Reaktortechnik der TH Darmstadt (Gruppe Dr. Laßmann) eine Studie durchgeführt, um zu klären, wie sich dort vorhandene Programme und Methoden zur Beschreibung des Hüllrohrblähens nutzbar machen und ggf. im SSYST einbauen lassen. Folgende Bedingungen sollten von einem "idealen" Rechenverfahren erfüllt werden:

- (a) Keine Beschränkung auf eine räumliche Dimension; auch bei Beibehalten der Rotationssymmetrie sollte mindestens eine befriedigende r, z-Abhängigkeit erfaßt werden.

(b) Vom Ansatz her sollen große Dehnungen zugelassen sein. Das bedeutet, daß im Gegensatz zu den üblichen Methoden der Festigkeitsrechnung die quadratischen Terme der Dehnungs- Verschiebungsbeziehungen mit berücksichtigt werden müssen.

(c) Es sollen beliebige Materialgesetze zugelassen sein.

Diskutiert werden die folgenden Methoden:

- Analytische Methoden; diese lassen von vornherein eine vollständige Erfüllung der Bedingung (a) nicht zu; man kann jedoch zu einer quasi-zweidimensionalen Beschreibung gelangen durch axiale Unterteilung in aufeinander geschichtete Rohrsegmente und Koppelung der Segmente an den Schnittflächen durch fiktive Scherspannungen.
- Methoden unter Verwendung von finiten Elementen; diese Methoden lassen grundsätzlich die Erfüllung aller drei Bedingungen zu, sind aber sehr aufwendig; als Sonderfall zu betrachten sind Schalen-Elemente als spezielle finite Elemente (Anwendung der Schalentheorie).

Aus der Diskussion der beiden Lösungswege kann man die Folgerung ziehen, daß beide Möglichkeiten in einem Programmsystem zur Verfügung stehen sollten.

Bei Parameterstudien genügen unter Umständen die Aussagen, die mit einem quasi-zweidimensionalen Verfahren gewonnen werden. Auf die rechenintensive Finit-Element-Methode braucht dann nur zur Eichung in wenigen Fällen zurückgegriffen werden. Es ist denkbar, daß ein - gegenüber dem heutigen Stand wesentlich verbessertes - quasi-zweidimensionales Verfahren auch hinsichtlich der Genauigkeit mehr Vorteile bringt, als wenn bei der Finit-Element-Methode nur grob diskretisiert wird.

Umgekehrt kann anhand eines streng eindimensionalen Referenzfalls die Genauigkeit der Finit-Element-Rechnung mit der analytischen Methode abgesichert werden.

Auf lange Sicht könnte ein wesentlicher Fortschritt dadurch erzielt werden, daß im Rahmen der Finit-Element-Methode spezielle, am Problem

orientierte Elemente entwickelt werden (Schalenelemente, die große Verformungen zulassen).

Um bereits während der Entwicklung der Programme zur zweidimensionalen Beschreibung der Hüllrohrdeformation erste Rechnungen mit HRODE2 durchführen zu können, sind als Stoffdaten von Zircaloy die Parameter des Nortonschen Kriechgesetzes bereitzustellen. Dies geschieht durch eine Berechnung der Parameter aus Meßergebnissen von Emmerich /5/ und insbesondere Hardy /6/ unter Verwendung der Methode der kleinsten Fehlerquadrate. Die Arbeiten hierzu sind noch nicht abgeschlossen.

2.2 Innendruckmodul (W. Gulden, A. Schneider)

Die Ermittlung des Spaltgasdruckes erfolgt innerhalb SSYST in 3 Stufen.

Der Modul RIBD, der aus dem gleichnamigen Programm /4/ entstand, liefert die Konzentrationen aller Spaltprodukte abhängig vom Abbrandzustand des Brennstabes.

Aus den Konzentrationen der gasförmigen Spaltprodukte und der Heliumkonzentration ermittelt der Modul SPAGDR den Gesamtdruck im Spalt unter Berücksichtigung der Geometrie- und Temperaturverteilung im Brennstab. Der so berechnete Spaltdruck ist ortsunabhängig.

Diese vereinfachende Annahme eines ortsunabhängigen Spaltdrucks ist jedoch während des Ausbeulvorgangs nicht erfüllt. Um Druckänderungen im Spalt als Folge des Ausbeulens ortsabhängig berücksichtigen zu können, wurde der Modul ODRUSPA (ortsabhängiger Druck im Spalt) konzipiert.

Für den Modul besteht der Brennstab aus Brennstoff, Spalt, Hüllrohr, einem oberen und einem unteren Plenum. Während des Ausbeulvorgangs werden zwei Vorgänge berücksichtigt:

1. Der Druck in der Beule verringert sich als Folge der Vergrößerung der Beule.

2. Aus dem oberen und unteren Plenum kann Gas nachströmen. Dieser Effekt wirkt dem Druckabfall in der Beule entgegen.

Der Druck in der Beule wird örtlich konstant angenommen. Die zeitliche Änderung des Druckes in der Beule wird unter Annahme der Gültigkeit des idealen Gasgesetzes und einer laminaren Zuströmung im Spalt aus oberem und unterem Plenum berechnet, wobei die Daten der sich zeitlich ändernden Geometrie und Temperatur aus anderen Moduln (HRODE2 und ZET-1D) bereitgestellt werden.

2.3 Wärmeübergangszahl im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle (L. Ehnis, E. Mederer)

Eine exakte Beschreibung der Wärmetransportvorgänge im Spalt (Strahlung, Leitung und Konvektion) ist schon wegen der unsicheren und im Detail unbekanntem Spaltgeometrie nicht möglich. Deshalb wurde zur Berechnung eines Näherungswertes für die Wärmeübergangszahl im Spalt ein auf /7/ basierendes Rechenmodell entwickelt, das auf folgenden Voraussetzungen und Vernachlässigungen beruht:

- kein Festkörperkontakt Brennstoff-Hülle, keine Asymmetrien, kein axialer Wärmetransport (also an sich nur für stationäre, normale Betriebszustände gültig);
- Wärmeaustausch durch Strahlung nur in radialer Richtung wie zwischen koaxialen Zylindern;
- Berechnung der Wärmeleitfähigkeit im Spalt aus den Wärmeleitfähigkeiten der einzelnen Spaltgase, diese abhängig von Temperatur und Druck (vgl. /7/);
- Berechnung der Wärmeübergangszahl für Konvektion, näherungsweise unter Annahme freier Konvektion zwischen vertikalen, parallelen Platten.

Der dem Rechenmodell entsprechende SSYST-Modul WUEZ ist programmiert, ausgetestet und in das Programmsystem integriert.

2.4 Lösung der Strömungsgleichungen im Kühlkanal

(L. Ehnis)

Die Blowdown-Rechnungen mit den Programmen RELAP und THETA 1B haben gezeigt, daß die Auflösung eines Brennstabes durch die maximal möglichen axialen Maschen in diesen Programmen nicht immer ausreichend ist. Zum Beispiel bei Rechnungen zur Bestimmung von lokalen Heißstellen an Brennstäben, an denen das Ausbeulen am frühesten stattfindet, muß eine entsprechende axiale Diskretisierung möglich sein. Auch bei der Durchrechnung von Experimenten muß die axiale örtliche Diskretisierung gut sein, da aus Rechenergebnissen die Installation von Meßstellen bestimmt wird.

Ein weiterer Grund für die Erstellung des Moduls ist die Tatsache, daß bei bisherigen Blowdown-Rechnungen mit dem Programmsystem SSYST keine Rückkopplung zwischen dem Wärmeleitmodul ZET-1D und dem Kühlmittel möglich war. Die Randbedingungen für ZET-1D wurden einseitig aus einer RELAP-Rechnung übernommen.

Die Konzeption eines entsprechenden Moduls lehnt sich an die der beiden Rechenprogramme THETA 1B und RELAP an. Sie besteht aus den folgenden beiden Kernstücken:

1. Lösung der Strömungsgleichungen für eine homogene Flüssigkeit. Wasser und Wasserdampf werden über die Zustandsgleichungen (Dampftafel) definiert.
2. Berechnung von Wärmeübergangszahlen mit entsprechenden Wärmeübergangsmodellen.

Vom Wärmeleitmodul wird die Wärmestromdichte und Temperatur am Hüllrohr übernommen. Daraus folgt ein neuer Kühlmittelzustand. Aus damit neu berechneten Wärmeübergangszahlen und Kühlmitteltemperaturen werden neue Randbedingungen für den Wärmeleitmodul gebildet. Der Datentransfer geht über die SSYST-Datenbibliothek.

Ansätze und Methoden zur Realisierung dieses Moduls werden z.Z. untersucht.

2.5 Steuermoduln (J. Brestrich, L. Ehnis, W. Gulden)

Zur Steuerung des Rechenablaufs bei Zugriff von Moduln auf die von anderen Moduln vorher erzeugten Daten und zur Bereitstellung und Aufbereitung von Daten, die in den Bibliotheken gespeichert sind, waren verschiedene Moduln neu zu erstellen:

- GENT: Umwandlung analytischer Funktionen in Tabellen;
- WERBL: Erzeugung von Stoffwertblöcken zur Rechnung mit den Wärmeleitmoduln ZET-1D und STT-2D;
- RAND: Aufbereitung der RELAP-Ergebnisse als Randbedingungen für die Moduln ZET-1D und HRODE2; Aufbau des hierzu "kondensierten" Zeitvektors als Datenblock;
- STEP: Berechnung einer Zeitschranke als Endzeit von Makrozeitschritten, an denen der Modul ZET-1D die Zeitintegration unterbricht, um anderen Moduln die Möglichkeit zur Rechnung zu geben.

3. Anwendung des Programmsystems

3.1 Erste Rechnungen zur Hüllrohrdeformation eines Kühlmittelverlustunfalles (S. Dagbjartsson, L. Ehnis, W. Gulden)

Nach der Fertigstellung des RAND-Moduls, der RELAP-Ergebnisse für ZET-1D und HRODE2 aufarbeitet, konnte mit einer ersten Simulation eines Kühlmittelverlustunfalls begonnen werden. Zunächst wurde eine RELAP-Rechnung für eine moderne 4-Loop-DWR-Anlage durchgeführt und die Ergebnisse mit dem Modul REL-BIB auf die SSYST-Bibliothek gebracht. Parallel dazu mußten die weiteren benötigten Daten, wie Geometriebeschreibung, Stoffwerte, Wärmequellichten usw., ebenfalls auf der SSYST-Bibliothek bereitgestellt werden. Mit dem Modul STT-2D wird dann das stationäre Temperaturfeld berechnet und auf der Bibliothek gespeichert.

Für die Thermal- und Dehnungsanalyse kann z.Z. die Frequenz der Modulfolge durch zwei Kriterien bestimmt werden. Entweder kann man die maximale Anzahl der RELAP-Ausgabeschritte, nach denen die Regie von ZET-1D abgegeben wird, vorgeben oder die maximale Zunahme der Temperatur.

Der Modul RAND arbeitet die zum Zeitpunkt der Regieabgabe aktuellen RELAP-Ergebnisse für die Moduln ZET-1D und HRODE2 auf. So werden z.B. aus den Wärmeübergangszahlen an der Hüllrohroberfläche und der zugehörigen Kühlmitteltemperatur Randbedingungen für das Wärmeleitproblem im Stab bereitgestellt.

In der RELAP-Rechnung wurde der gesamte Reaktorkern von etwa 4,80 m in vier gleich lange Zonen unterteilt, wodurch nur eine sehr grobe Annäherung einer mehr oder weniger stark profilierten Leistungsverteilung möglich ist. Dies gilt auch für die Auflösung der Wärmeübergangsbedingung an der Hüllrohroberfläche. Da neben der Druckdifferenz die Temperatur der Hüllrohre für deren Aufblähen maßgebend ist, wäre eine bessere Auflösung wünschenswert (vgl. 2.4). Für ZET-1D und HRODE2 wurde schon bei dieser Rechnung mit wesentlich mehr axialen Stützstellen (125) gearbeitet, obwohl die Kopplung an das Kühlmittel so natürlich unbefriedigend ist.

Die Festigkeitseigenschaften des Hüllrohres werden in Form einer zweidimensionalen Tabelle $E(\sigma, T)$ vorgegeben, die mit Hilfe der Meßergebnisse von Hardy /6/ für das hier verwendete nichtlinear-plastische Materialverhalten ermittelt wurde. Als Innendruck im Brennstab wurde $p_i = 130$ bar orts- und zeitunabhängig angenommen.

Die Ergebnisse dieser Rechnung waren insofern befriedigend, als sich ein sehr gutes Zusammenspiel der einzelnen Moduln zeigte und sich eine qualitativ den Erwartungen entsprechende Beschreibung der Hüllrohrdeformation bis zum "Aufblähen" ergab. Es erscheint jedoch nicht sinnvoll, bereits quantitative Ergebnisse in diesem frühen Stadium anzugeben (fehlender Innendruckmodul, unbefriedigende Kopplung des Stabes an das Kühlmittel, eindimensionale Beschreibung der Hüllrohrdeformation). Ziel der ersten Rechnungen war vielmehr, von Anfang an das Zusammenspiel bereits vorhandener Moduln zu testen.

3.2 Parameterstudie zur Bestimmung des höchstbelasteten Brennstabes (J. Esche, R.Schützle)

Die Parameterstudie soll dazu dienen, den kritischen Brennstab unter pessimistischen Annahmen für Experimente auszulegen.

Hierzu können 2 Grenzfälle angenommen werden:

1. Frischer Brennstab:

- hohe Leistungsspitze
- Hüllrohre noch nicht spröde
- geringer Innendruck

2. Abgebrannter Brennstab:

- Flache Leistungsverteilung
- Hüllrohre sind relativ spröde
- hoher Innendruck

Für diese Fälle wird im IKE mit RELAP 3 die Thermohydraulik während des Blowdown simuliert. Mit ZET-1D und HRODE2 wird das Hüllrohrverhalten unter den von RELAP berechneten Verhältnissen ermittelt.

Der kritische Brennstab für die Wiederauffüllphase soll bestimmt werden, wenn hierfür ein geeignetes Rechenmodell verfügbar ist.

Ergebnisse zu diesen Berechnungen liegen noch nicht vor.

3.3 Vergleichsrechnungen mit den Blowdown-Rechenprogrammen RELAP 3 und BRUCH-D (R. Schützle)

Zur Absicherung von Blowdown-Rechnungen wurde von der Projektleitung des PNS eine Vergleichsrechnung mit den Programmen BRUCH-D des LRA /8/ und RELAP 3 /2/ vereinbart. Diese Vergleichsrechnungen konnten im Berichtszeitraum abgeschlossen werden.

Die Rechenvergleiche wurden für einen Referenzreaktor mit $3.540 \text{ MW}_{\text{th}}$ durchgeführt. Das hierfür verwendete Anlagemodell wurde mit den nötigen Eingabedaten von LRA zur Verfügung gestellt. Unter der Annahme eines 2 F-Bruches wurde jeweils ein Bruch im kalten Strang zwischen Pumpe und Reaktordruckbehälter und im heißen Strang zwischen oberem Plenum und Dampferzeuger betrachtet.

Über diese Vergleichsrechnungen wird ein gemeinsamer Bericht von LRA (K.J. Liesch), IKE (R. Schützle) und PNS-PL/IRE (D. Kirsch) erscheinen, so daß hier nicht auf Einzelergebnisse eingegangen wird. Doch kann gesagt

werden, daß sich fast immer qualitativ, meist auch quantitativ recht gut übereinstimmende Ergebnisse ergaben. Der Vergleich wurde unter weitgehender Anpassung der Eingabedaten beider Programme durchgeführt, so daß die noch auftretenden Unterschiede durch Modellunterschiede beider Programme verursacht wurden.

4. Auslegungsrechnungen für geplante Versuche (L. Ehnis, R. Schützle, W. Sengpiel, D. Steiner)

Für die Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverlustunfalles (PNS 4236), für die in-pile-Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Aufheizphase (PNS 4237) und für die Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung in der Niederdruckphase (PNS 4238) wurden Auslegungsrechnungen mit verschiedenen Programmen durchgeführt. Wesentliche Ergebnisse sind in den Berichten zu den entsprechenden Vorhaben angegeben. Diese Arbeiten werden weiter fortgesetzt.

Zitierte Literatur:

- | | |
|--|--|
| /1/ C.H. Hocevar et al.:
THETA 1B, IN-1445, Febr. 1971 | /7/ D.W. Carpenter:
RSU-X1201 |
| /2/ W.H. Rettig et al.:
RELAP 3, IN 1321, June 1970 | /8/ H. Karwat, H. Wolfert:
BRUCH-D, Nucl. Eng. Des. 11 (1970)
S. 241-254 |
| /3/ K.V. Moore, W.H. Rettig:
RELAP 4, ANCR-1127, Dec. 1973 | |
| /4/ R.P. Gumprecht:
RIBD, BNWL-962, 1969 | |
| /5/ K.H. Emmerich et al.:
ASTM-STP-458, 1969 | |
| /6/ D.G. Hardy:
ANS-Meeting on Water Reactor Safety, Salt Lake City, March 1973 | |

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlustunfall

(M. Boček, C. Petersen, IMF)

1. Texturänderung und plastisches Verhalten bei höheren Temperaturen

Das im vergangenen Halbjahresbericht (KFK 1908) dargestellte Versuchsprogramm zur Untersuchung der Texturänderung wurde weiter fortgesetzt.

Im einzelnen wurde die Änderung der Textur und deren Einfluß auf das plastische Verhalten unter folgenden Bedingungen untersucht:

- konstante Glüh Temperatur von 1260°C
- konstante Aufheizgeschwindigkeit von 720°C auf 1260°C mit $35^{\circ}\text{C}/\text{sec}$.
- Haltezeiten von wenigen Sekunden bis 3 Minuten.

Die bei 1260°C stattfindende Texturänderung vollzieht sich bereits in den ersten 10 Sekunden. Der Kippwinkel γ der kristallographischen $\{0002\}$ Basispole in Axial-Radialrichtung (AR-RR) des Rohres ändert sich von 34° Ausgangszustand auf ca. 10° . (Abb. 4235-1).

Dieser Winkel bleibt im Haltezeitbereich von $t_a = 10 - 120$ sec nahezu konstant und scheint für längere Haltezeiten wieder anzusteigen. Zur Klärung dieses Sachverhaltes sind weitere Untersuchungen vorgesehen.

Der Einfluß der Texturänderung auf das plastische Verhalten von Zircaloy-4 wurde in Zugversuchen an Hüllrohrsegmenten vorgenommen. Nach der oben beschriebenen Wärmebehandlung wurden die Proben bis zum Bruch bei 400°C unter Argonatmosphäre verformt (Verformungsgeschwindigkeit $5 \cdot 10^{-4} \text{sec}^{-1}$). In Abb. 4235-2 ist die Gleichmaßdehnung ϵ_{gl} über der Haltezeit (bei $t_a = 1260^{\circ}\text{C}$) aufgetragen. Der Kurvenverlauf ist ähnlich dem der Änderung des Kippwinkels mit t_a .

Auch der Verlauf der Bruchspannung σ_B (Abb. 4235-3) mit t_a zeigt für Haltezeiten bei 10 sec einen stärkeren Abfall, doch ist die Zunahme der Bruchspannung für Haltezeiten bis $t_a = 180$ sec dann geringer.

2. Metallographische Untersuchungen von aufgeschweißten Thermoelementen auf Zircaloy-4-Hüllrohr

Für die Messung der Hüllrohrtemperatur bei LOCA-Experimenten ist es notwendig, ein Befestigungsverfahren für Thermoelemente (TE) zu finden, das die Hülle möglichst wenig schädigt und in oxidierender Atmosphäre auch bei hohen Temperaturen eine einwandfreie Verbindung von TE und Zry-Hülle gewährleistet.

Es wurden Zircaloy-4-Hüllrohre, die mit gemantelten und ungemantelten Thermoelementen (TE) verschweißt waren, untersucht. Die Mantel- bzw. TE-Materialien waren PtRh und Edelstahl. Als Schweißverfahren wurden elektrische Punktschweißung, Laserschweißung und Plasmaschweißung verwendet. Nach der Schweißung wurden die Proben teilweise einer Wärmebehandlung im Vakuum (bzw. inerte Atmosphäre) oder Dampf unterzogen. Die Schweißungen und Glühungen wurden von RBT/PC geplant und durchgeführt (Vgl. 4237.1, P. 5).

Die makroskopische und mikroskopische Untersuchung der Proben, die z.Z. in einem PNS-Arbeitsbericht dokumentiert wird, führte zu folgendem Befund:

- Die Punktschweißung eignet sich von den untersuchten Verfahren für das Anbringen von TE durch Schweißen am besten.
Die aufgetretenen Schwierigkeiten liegen bei der Auswahl der TE-Materialien und der geeigneten Schweißparameter.
- Das Laserschweißen und das Plasmaschweißen erbrachten minderwertige Schweißungen bei starker Schädigung des Hüllrohres.

3. Inbetriebnahme einer elektronisch gesteuerten dynamischen Zugprüfmaschine mit Hochvakuumofen zur Durchführung von Kriechversuchen bei verschiedenen Last-Zeit-Funktionen

Im Berichtszeitraum wurde die elektronisch gesteuerte dynamische Zugprüfmaschine in Betrieb genommen und einem sorgfältigen Funktionstest unterzogen. Der für die Hochtemperaturversuche vorgesehene Hochvakuumofen wurde in die Zugprüfmaschine eingebaut.

Aufheizexperimente zeigten, daß die gelieferten Heizstäbe den Versuchsanforderungen nicht gewachsen sind.

Das Testprogramm für die möglichen Aufheizgeschwindigkeiten und die Regelgüte des Ofens muß daher bis zur Lieferung besserer Heizelemente unterbrochen werden.

An Stelle der zeitplanmäßig vorgesehenen Kriechversuche an Zircaloy-4-Material im Temperaturbereich oberhalb 800 °C werden daher zunächst Untersuchungen zum plastischen Verhalten von oxidierten Proben bei Temperaturen unterhalb 900 °C mit Hilfe verfügbarer Apparaturen durchgeführt.

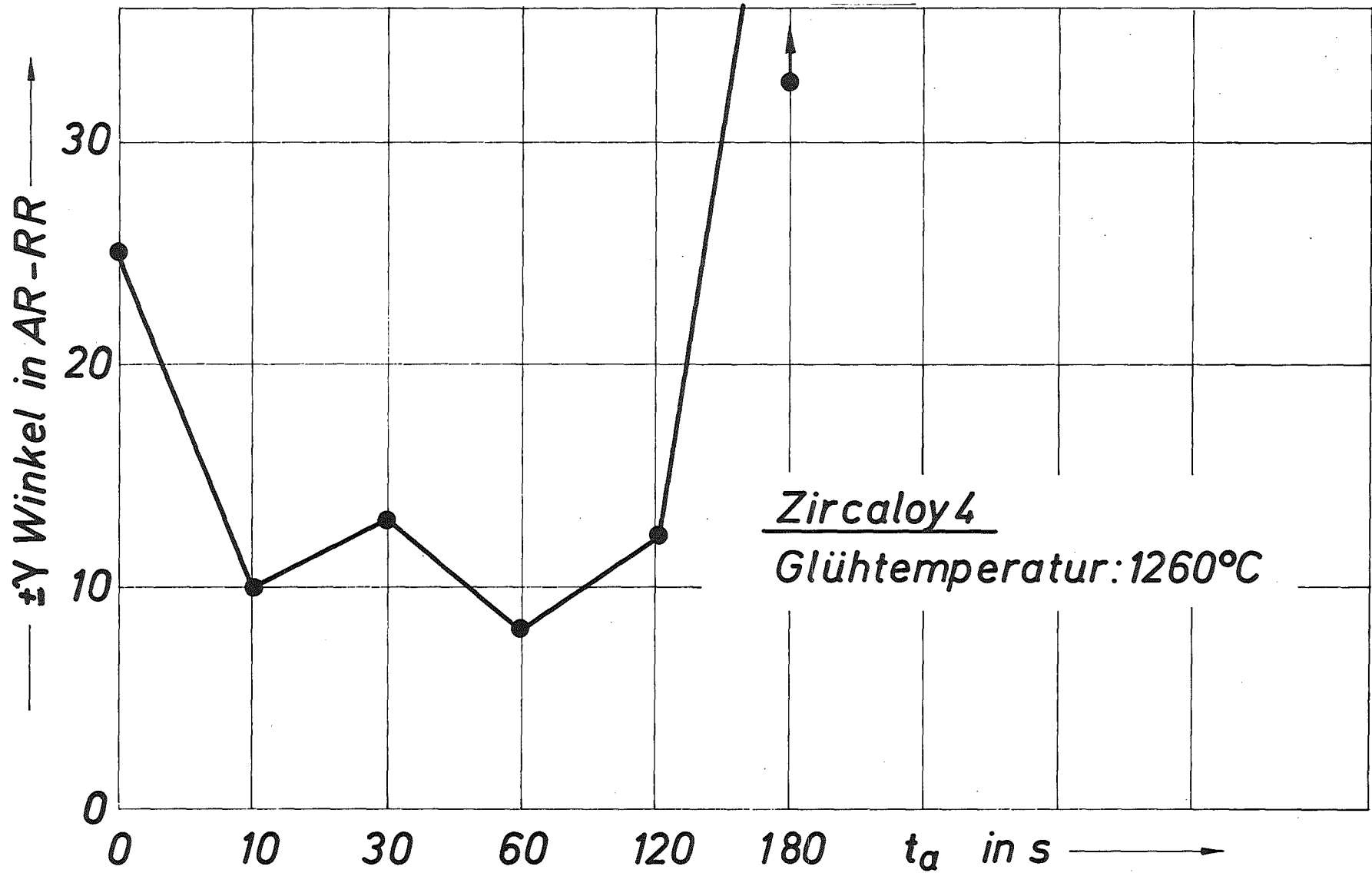


Abb: 4235-1 Winkelabhängigkeit der Belegungsmaxima der $\langle 0002 \rangle$ Basispole in der $\{0002\}$ Polfigur, von der Haltezeit

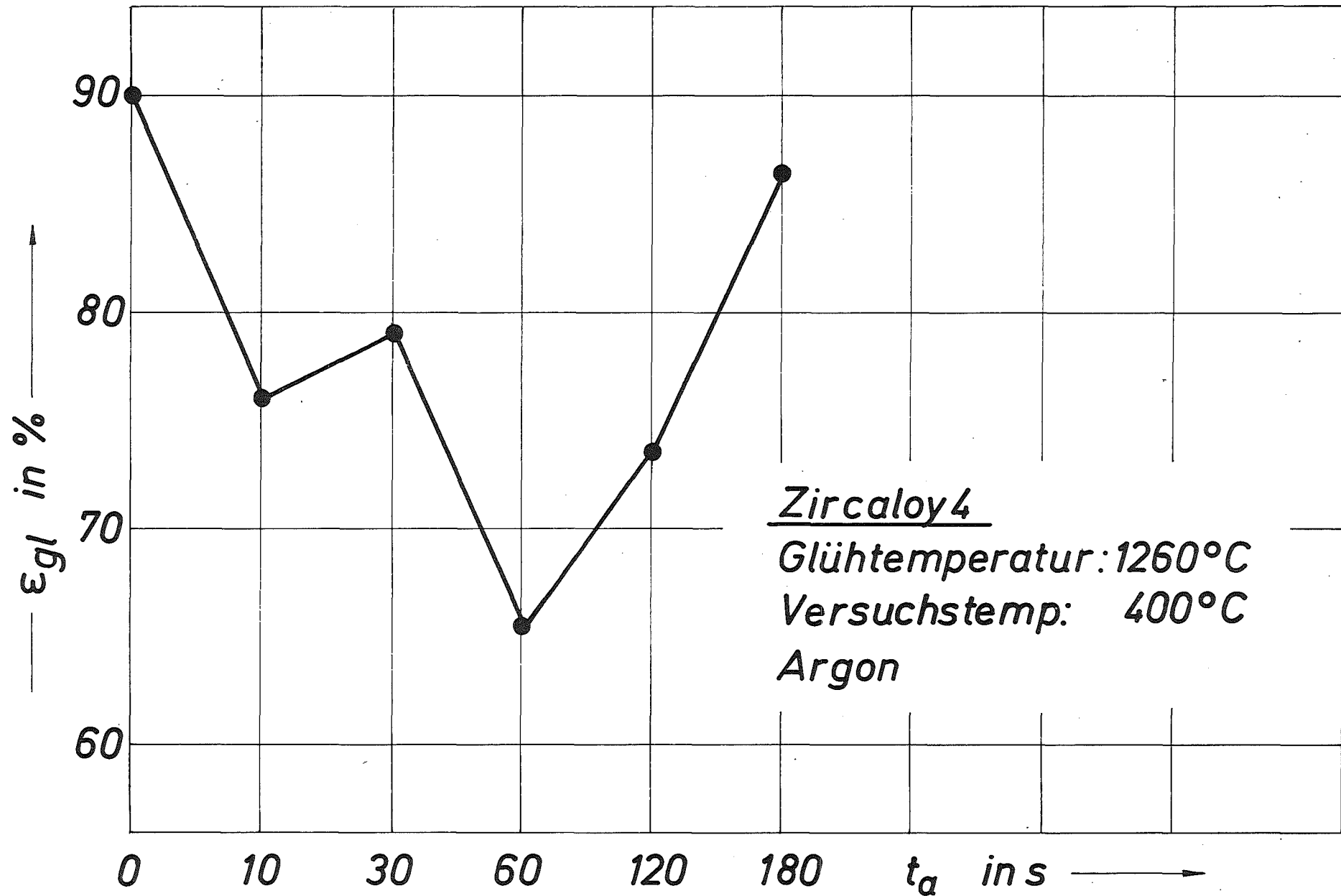


Abb:4235-2 Gleichmaßdehnung als Funktion der Haltezeit

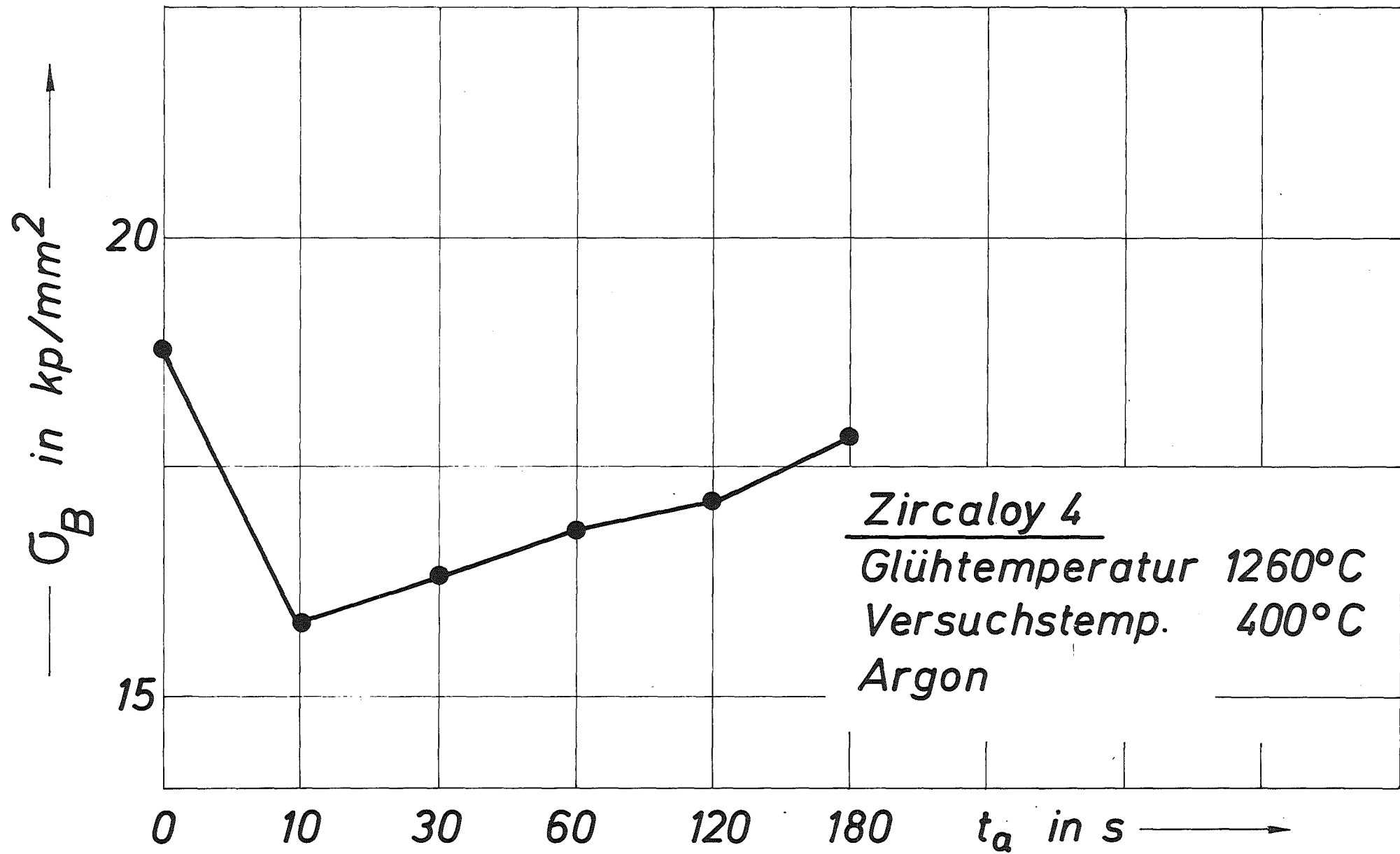


Abb: 4235-3 Bruchspannung als Funktion der Haltezeit

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall (S. Leistikow, H. v. Berg, D. Jennert, IMF)

1. Untersuchungen zur Zircaloy 4/Wasserdampf-Hochtemperatur-Oxidation

Die Abb. 4235.4 gibt einen Überblick über die unter Benutzung von geheizten Rohrabschnitten begonnenen verschiedenen Reaktionsarten, die sich gemäß den angewandten Zeit-bei-Temperaturverläufen folgendermaßen unterscheiden:

- Aufheizversuche mit Abkühlung der Proben im stagnierenden Dampf des unbeheizten Teiles des Rezipienten,
- temperaturtransiente Versuche mit Abkühlung der Proben im Dampf des unbeheizten Teiles des Rezipienten bzw. Abschrecken mit Wasser,
- isotherme Versuche mit Abschrecken der Proben in Wasser und
- dem Kühlmittelverlustunfall (LOCA) maßstäbliche temperaturtransiente Versuche mit Abschrecken der Proben in Wasser.

Die genannten Versuche wurden in der in KFK-1908, S. 112 dargestellten Versuchsanordnung durchgeführt, bei der ein auf einem Quarzschlitten in der unbeheizten Zone bereitgestellter Zircaloy-Rohrabschnitt mit berührendem Thermoelement in die beheizte Zone des dampfdurchspülten Rezipienten eines Rohrofens geschoben wird. Nach Abschluß der Reaktion kann dann die Probe entweder im unbeheizten Rezipienten erkalten oder in einer Wasservorlage schlagartig abgeschreckt werden.

Die Auswertung der Versuche erfolgt durch gravimetrische Bestimmung der aufgenommenen Sauerstoffmenge sowie durch metallographisch-planimetrische Bestimmung der Dicken der ZrO_2 -Schicht, O_2 -stab. α -Phase und der α -Phasen-Einwachsungen in die rücktransformierte β -Phase. Diese sowie eine mikroanalytische Kontrolle des Oxidationszustandes verfolgt das langfristige Ziel, die Sauerstoffverteilung über die Rohrwandung in Abhängigkeit der gewählten Versuchsbedingungen zu identifizieren und mit dem Zug- und Druckversuch zu messenden mechanischen Eigenschaften in Beziehung zu setzen.

1.1 Die temperaturtransienten Versuche

Hierbei wurden die Proben zügig in den beheizten Rezipienten eingeschoben. Die auftretende Reaktionswärme wurde zum schnellen Aufheizen mitbenutzt, d.h. der Temperaturanstieg auf die gewünschte Maximaltemperatur begrenzt.

In Abb. 4235.4-8 sind die bei doppelseitiger Oxidation von Einzelproben erzielten Ergebnisse wiedergegeben. Sie beziehen sich bei Angabe von ZrO_2 oder Zr (korrodiert) auf die Berechnung eines vollständigen Umsatzes von O_2 zu ZrO_2 , bei ZrO_2 (metallographisch) auf die tatsächlich gemessene reine ZrO_2 -Schichtdicke. Die Schichtdickenberechnungen basieren auf der theoretischen Dichte des ZrO_2 . Die Abb. 4235.5 zeigt die im temperaturtransienten Versuch gebildete Oberflächenschichtenfolge im zeitlichen Fortschritt:

- Zirkoniumdioxid (ZrO_2)
- O_2 -stabilisierte α -Phase im homogenen und heterogenen, in die rücktransformierte β -Phase eingewachsenen Anteil,
- sowie die rücktransformierte β -Phase.

Die Sauerstoffaufnahme (Abb. 4235.6) der Proben verläuft nach einer kurzen Übergangsperiode in linearer Zeitabhängigkeit: $W = W_0 + k_L \cdot t$

W_0 = Ordinaten Schnittpunkt

W = Korrodierte Wandstärke

k_L = lin. Reaktionsgeschwindigkeitskonstante

t = Zeit

Temp. (°C)	k_L ($\mu\text{m Zr/min}$)	W_0 (μm)
900	0,5	1
1100	1,7	16
1200	2,5	25
1300	2,7	63

Die sauerstoffhaltigen Phasen in der Rohroberfläche wachsen linear gegen die Menge des aufgenommenen Sauerstoffs (Abb. 4235-7 bis 8). Sie erreichen

Ausmaße, die eine fast vollständige oxidative Durchdringung nach 15 Minuten bei 1200°C erkennen lassen (4235.5). Die Art der Abkühlung bleibt ohne Einfluß auf die Gewichtszunahme der Proben.

Die Ergebnisse der transienten Versuche erreichen nicht ganz die nach Baker-Just zu erwartenden Werte.

1.2 Die isothermen Versuche

Im Fall der sogenannten isothermen Versuche, bei denen die Zircaloy-Rohrproben im beheizten Rezipienten zuerst in Argon auf Temperatur gebracht, sodann durch Dampfeinlass korrodiert wurden, trat durch Reaktionswärme (ΔH 1300° K = > 210 kcal/Mol) bei Temperaturen von 1200-1300°C eine sprunghafte Temperaturerhöhung um 240-280°C auf. Als Folge wurden in vergleichbaren Zeiten spürbar höhere Gewichtszunahmen (Abb. 4235.4) als bei den transienten Versuchen gemessen. Dieser Effekt vermindert sich bei Oxidation in Zuständen schrittweise verstärkter Voroxidation.

1.3 Die maßstäblichen Versuche

Bei den einem Kühlmittelerlustunfall (LOCA) ähnlichen Zeit-bei-Temperatur-Verläufen hing die Gewichtszunahme stark von den gewählten Bedingungen, d.h. der Höhe des 1. und 2. Temperaturmaximums, der Tiefe des Minimums sowie den Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeiten und der Zeit bei Maximaltemperatur ab. Diese Untersuchungen werden systematisch fortgesetzt und im weiteren Programmverlauf einer genauen Bewertung unterzogen werden.

2. Versuche zur Temperaturmessung mit Pt-Pt/Rh-Thermoelementen

2.1 Direkter Kontakt zur Probe

Qualitative Versuche zeigten, daß bei Temperaturen von 1200°C eine lokale Zerstörung von ungeschütztem Thermoelement- und Zircaloy-Rohrmaterial bei metallischem Kontakt durch Bildung eines niedriger schmelzenden Eutektikums eintrat. Diese Tatsache schließt isotherme Versuche bei anliegendem Thermoelement aus. Jedoch zeigen transiente Versuche, daß die im Reaktionsablauf unterhalb der Schmelztemperatur gebildeten Oxidschichten die Eutektikumbildung behindern. Transiente Versuche können also mit anliegendem ungeschütztem Pt-Pt/RH-Thermoelement gefahren werden.

2.2 Indirekter Kontakt zur Probe

Dünne, den Kontakt der metallischen Phasen behindernde, oxidbedeckte Zr-Folien kleben nach Versuchsende am Probenmaterial und erschweren die gravimetrische Auswertung.

3. Weitere Vorhaben

3.1 Induktive Beheizung


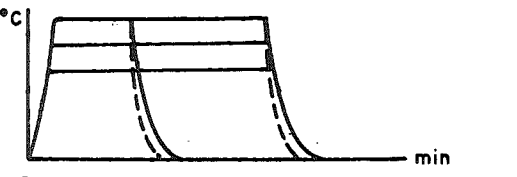
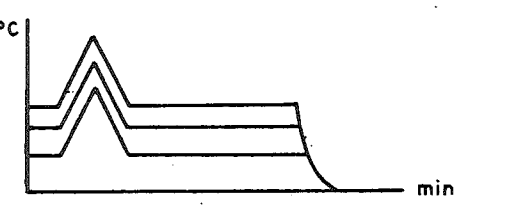
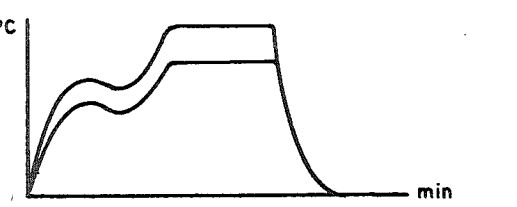
Im weiteren Verlauf der Arbeit ist beabsichtigt, einen Prüfstand mit induktiver LOCA-spezifisch gesteuerter Probenheizung einzusetzen, dessen Aufbau praktisch fertiggestellt ist.

3.2 Transiente Oxidationsversuche mit nachgeordneter mechanischer Prüfung

Dazu wurden Flachzerreißproben unter Beigabe von kleinen Blechstücken, die im korrodierten Zustand der metallographischen Untersuchung dienen, bei 900-1200°C in wechselnden Zeiten dampfkorrodiert und sollen in der nächsten Zeit der mechanischen Prüfung auf Festigkeit und Duktilität in der Zerreißmaschine bei 370 und 900°C unterliegen.

Abb.4235-4

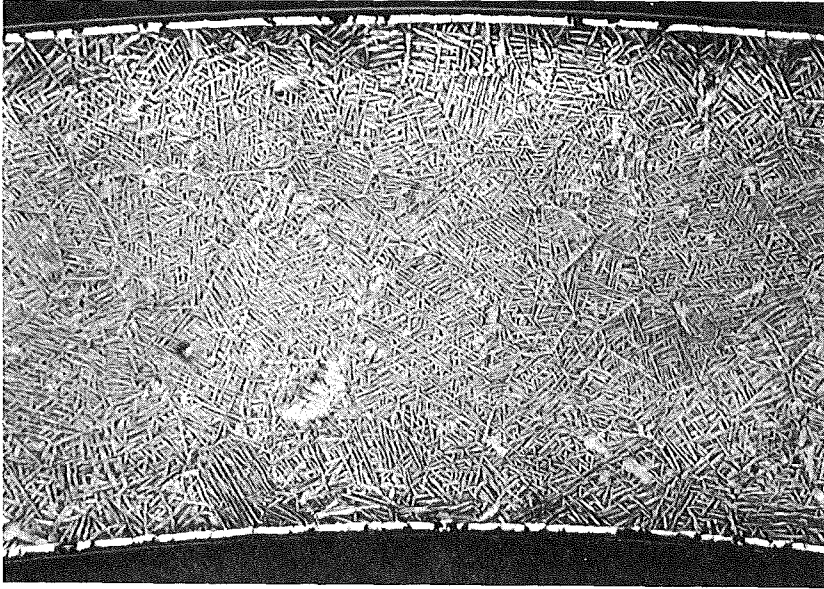
Zircaloy 4/Wasserdampf - HT - Oxidationsversuche

Temperatur-Zeit-Verläufe	Zeit (min)	max. Temp. (°C)	korr. Schichtdicke (µm)		Bezug auf Baker-Just	
			ZrO ₂	Zr		
 <p>Aufheizversuche, Abkühl. in Dampf</p>	< 1	1070	9,9	6,4	Werte kleiner	
	< 1	1160	12,5	8,1		
	< 1	1295	29,1	18,8		
 <p>Transiente Versuche, Abkühlung in Dampf resp. Abschreckg. in Wasser</p>	5	1100	38,9	24,9	Werte kleiner	
	15	1100	66,6	42,5		
	5	1200	59,8	38,1		
	15	1200	104,9	67		
	5	1300	118,4	75,8		
 <p>"Isotherm." Versuche, Abschr. in H₂O</p>	5	900	13,4	8,7	Werte gleich	
	5	1000	25,3	16,4		
	5	1100	65	42,1		
	5	1200	97,1	63		
	5	1300	167	108		
		+ Reaktionswärme				
 <p>Loca-ähnliche Versuche Abschr., H₂O</p>	5	1. max 712	min 429	2. max 890		
	< 4	719	437	904		
	2	717	430	937		
	5	738	512	884	7,1	4,6
	5	812	439	883	5,1	3,3
	5	833	571	984	15,1	9,8
	5	750	700	1010	23	16,5
15	755	680	1010	36,5	27	

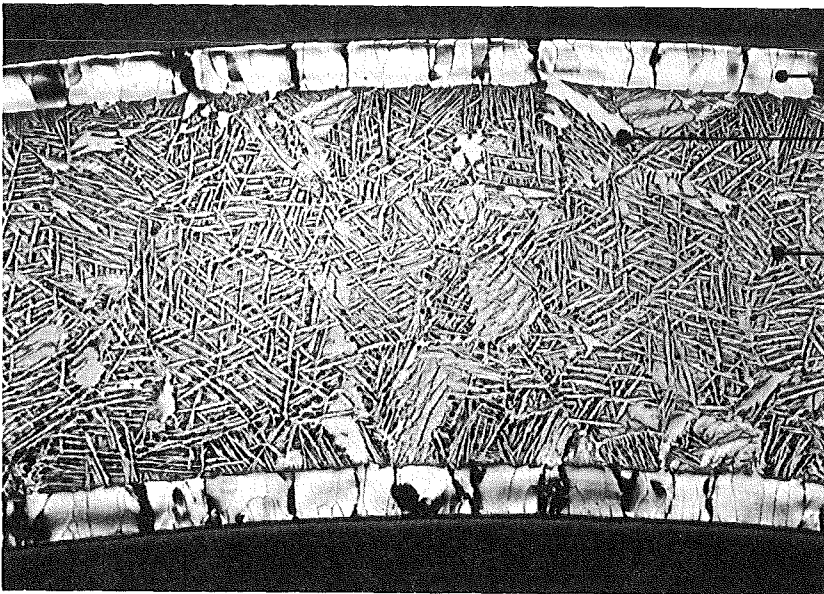
HEISSDAMPF-KORROSION VON ZIRCALOY-4 ROHRMATERIAL

UNTER TRANSIENTEN BEDINGUNGEN (1200°C, 1at, 100 cm/sec)

<1 min

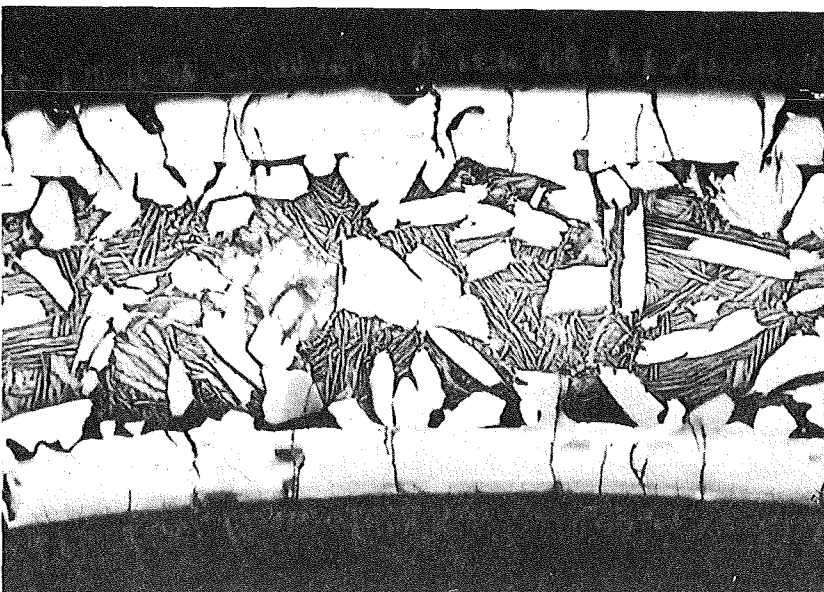


5 min



ZrO₂
O₂-stab. α-Phase
O₂-stab. α-Phase-
Einwachsungen
von β transf. α-Phase

15 min

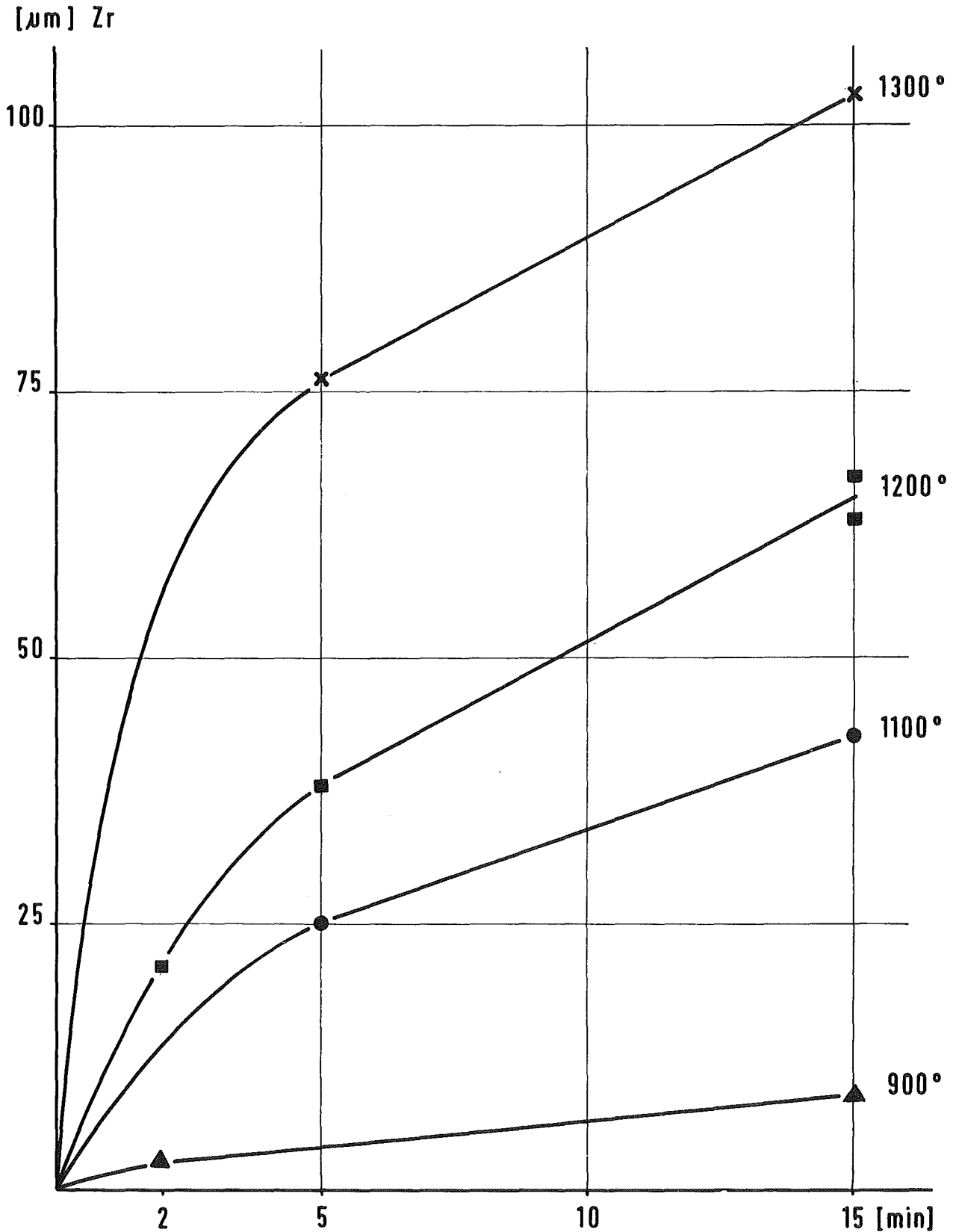


geätzt, 100 x

Abb. 4235-6

TRANSIENTE ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

BERECHNETE KORRODIERTE METALLSCHICHTDICKE IN ABHÄNGIGKEIT VON DER REAKTIONSZEIT (2-15 min, 900-1300°C, 1at)



TRANSIENTE ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

ZrO₂-SCHICHTDICKE ALS FUNKTION DER AUFGEN. O₂-MENGE (5 und 15 min, 1100-1300°C, 1at)

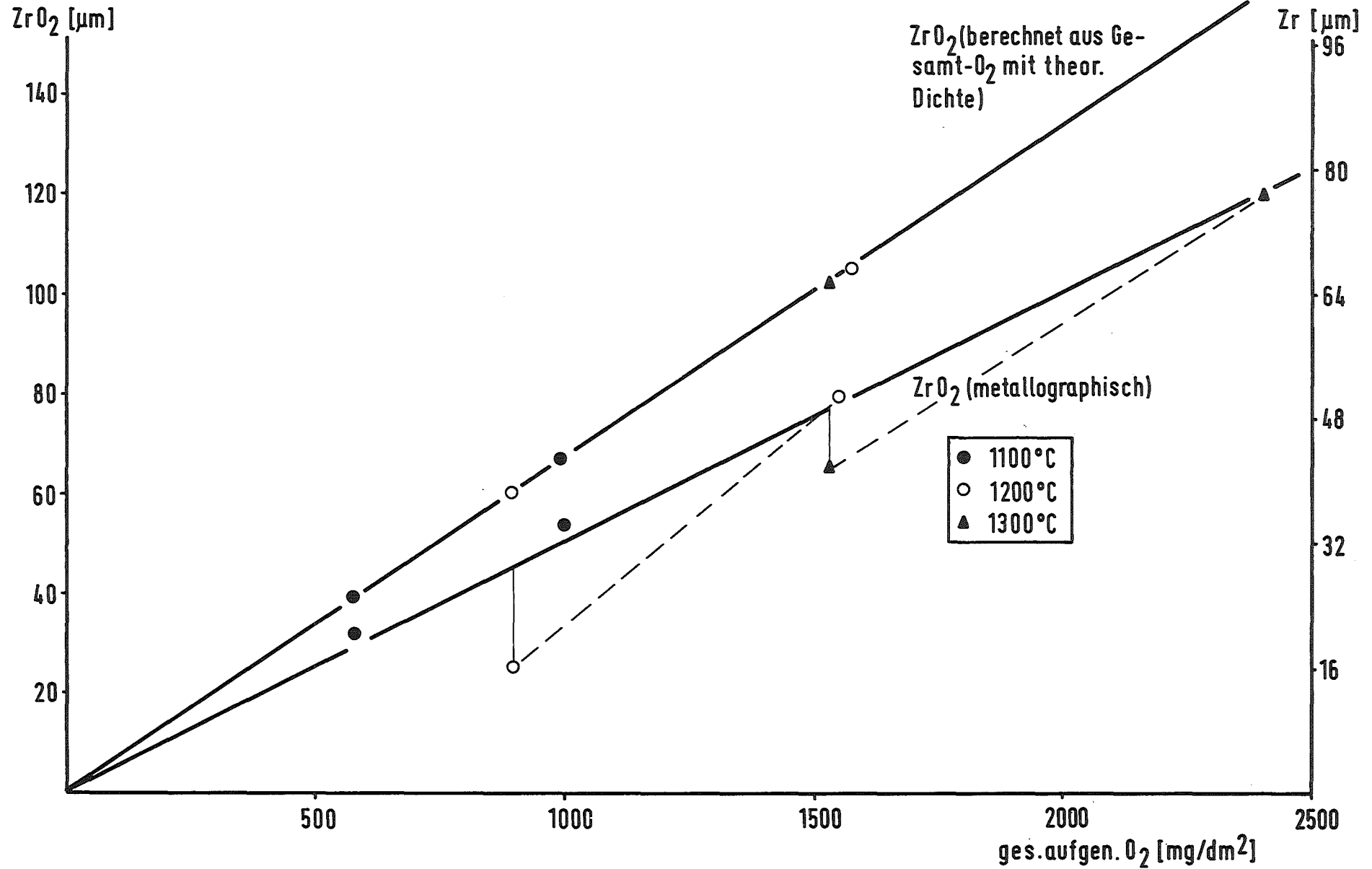
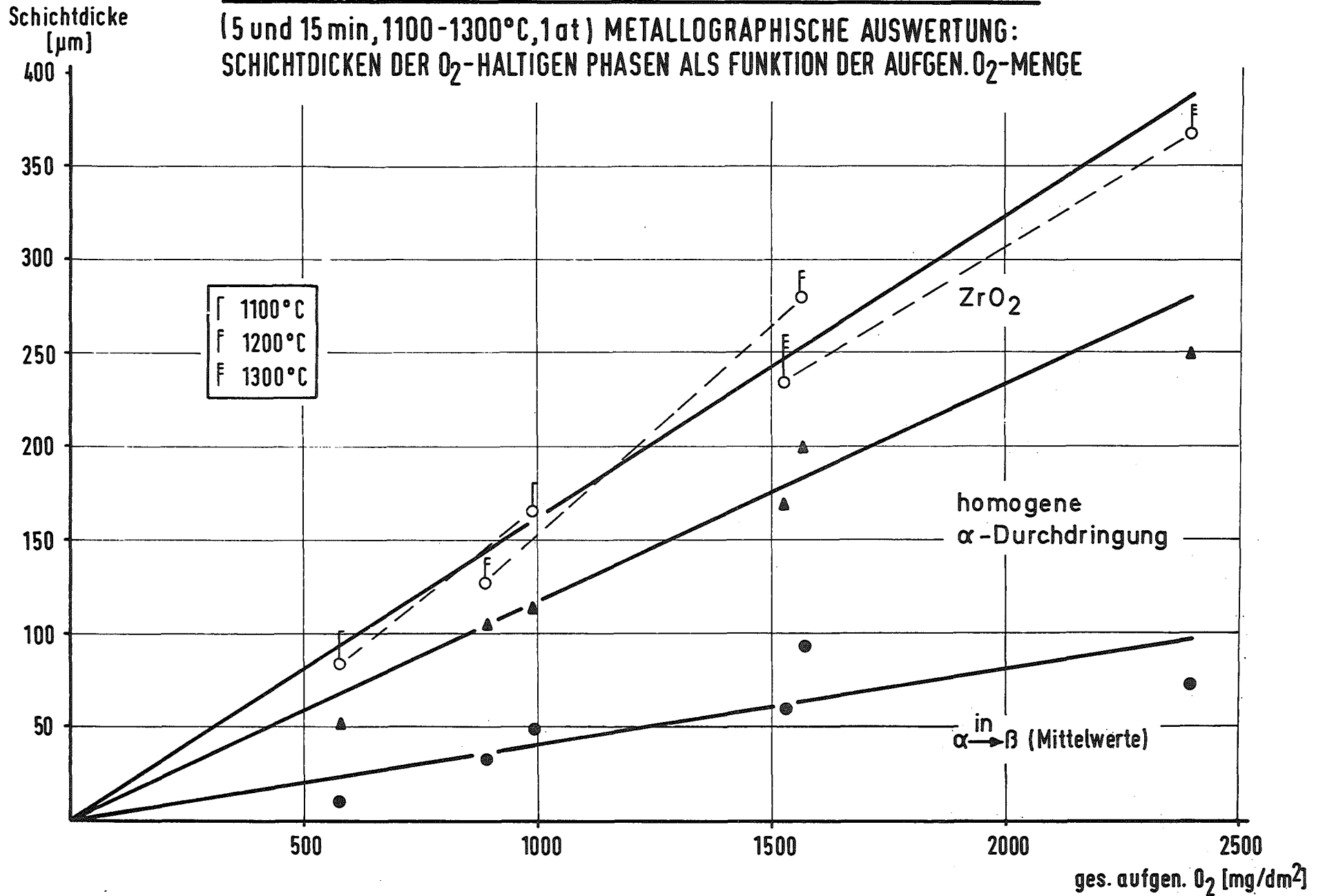


Abb. 4235-8

TRANSIENTE ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

(5 und 15 min, 1100-1300°C, 1at) METALLOGRAPHISCHE AUSWERTUNG:
SCHICHTDICKEN DER O₂-HALTIGEN PHASEN ALS FUNKTION DER AUFGEN. O₂-MENGE



4235.3 Experimentelle Untersuchungen zur chemischen Wechselwirkung Brennstoff/Zry-Hülle
(P. Hofmann, O. Götzmann, IMF)

Während eines Kühlmittelverlustunfalles finden neben den chemischen Wechselwirkungen zwischen dem Wasserdampf und dem Zry-4-Hüllrohr auch solche zwischen dem abgebrannten Oxidbrennstoff und dem Zircaloy statt, besonders bei höheren Hüllmaterialtemperaturen. In dem neu aufgenommenen Versuchsprogramm soll deshalb das Reaktionsverhalten von Zry-Hüllrohren gegenüber Oxidbrennstoff und Spaltprodukten out-of-pile untersucht werden. Das Ziel dieser Experimente ist es, festzustellen, wie die mechanischen Eigenschaften des Hüllmaterials (Duktilität, Festigkeit) durch chemische Wechselwirkungen mit dem Brennstoff und den Spaltprodukten verändert werden.

Das Ausmaß der Innenkorrosion der Zry-Hülle während eines Kühlmittelverlustunfalles wird außer von Temperatur und Zeit stark vom Abbrandzustand des Brennelementes abhängen, da der Abbrand das Sauerstoff- und Spaltproduktangebot im Brennelement bestimmt. Durch die Kernspaltung der Uran- bzw. Plutoniumatome entstehen Spaltprodukte, außerdem wird Sauerstoff freigesetzt. Ein Teil der Spaltprodukte und des Sauerstoffs reagiert mit dem Zry-Hüllmaterial. Es findet daher eine Versprödung der Zircaloy-Hülle durch die Sauerstoffaufnahme statt, die in Abhängigkeit von der Temperatur, der Zeit und des Abbrandgrades des Brennstoffes ermittelt werden soll. Die Experimente werden sowohl unter isothermen als auch transienten Temperaturbedingungen durchgeführt.

1. Korrosionsversuche unter isothermen Temperaturbedingungen

Vorgesehen ist die Durchführung von isothermen Verträglichkeitsuntersuchungen mit Zry-4-Hüllrohren und simuliertem abgebranntem Oxidbrennstoff bei Temperaturen bis 1300 °C und Glühzeiten bis 2 h. Der simulierte Abbrand soll zwischen 0 und 10 At.% und das O/M-Verhältnis des Brennstoffes zwischen 2,00 und 2,08 variiert werden. Die Experimente sollen hauptsächlich unter Argon, aber auch unter Wasserdampf durchgeführt werden. An Versuchsproben

Mit einem definierten Defekt (Loch) soll außerdem untersucht werden, in welchem Maße Wasserdampf in die Brennelementproben eindringt und die Innenkorrosion der Zry-Hülle beeinflusst.

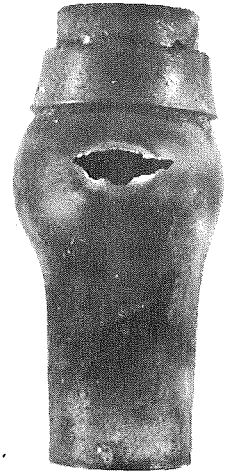
2. Korrosionsversuche unter transienten Temperaturbedingungen

Zunächst soll das Ausmaß der Innenkorrosion der Zry-Hülle durch den Brennstoff und die Spaltprodukte in Abhängigkeit des Temperatur-Zeit-Verlaufes ermittelt werden. Versuchsparameter sind neben den unter 1. genannten noch die Aufheiz-, Halte- und Abkühlzeit. Außerdem sollen bereits korrodierte Proben LOCA-Temperaturtransienten unterworfen werden.

Das Ziel dieser Untersuchungen ist, die Reaktionsprodukte zu identifizieren und die Kinetik des Hüllangriffs zu ermitteln.

Der Reaktionsumfang zwischen dem simulierten abgebrannten Oxidbrennstoff und dem Zircaloy soll metallographisch durch Ausmessen der Reaktionszone sowie der sauerstoffstabilisierten α -Phase und der umgewandelten β -Phase ermittelt werden. Die Reaktionsprodukte sollen röntgenographisch und mit der Mikrosonde untersucht werden.

Erste Versuche mit kurzen Zry-Hüllrohrproben und spaltprodukt-dotiertem Oxidbrennstoff wurden bereits durchgeführt. Der simulierte Abbrand betrug 10 At.%, das O/U-Verhältnis des UO_2 ca. 2.08. Es wurden die Spaltprodukte Cäsium, Jod und Tellur simuliert, die sich aufgrund thermodynamischer Abschätzungen als reaktiv gegenüber dem Zry-4 erwiesen. Die Aufheizgeschwindigkeit der Hüllrohrproben betrug etwa $6^\circ/s$. Zwischen 850 und 900 $^\circ C$ kam es zum Bersten der Hüllrohre infolge des Innendruckes (Druckaufbau durch das Füllgas und die flüchtigen Spaltprodukte). Den Aufnahmen kann man entnehmen (siehe Abb. 4235-9 und 4235-10), dass die Versuchsprobe mit Cs, J und Te erheblich stärker ausgebeult war als die ohne Cs. An der inneren Oberfläche des Hüllrohres ist eine durch die Sauerstoffaufnahme veränderte Gefügestruktur des Zry zu erkennen. Mikrohärteuntersuchungen ergaben, daß diese Phase etwa doppelt so hart ist wie das übrige Hüllmaterial.



x2

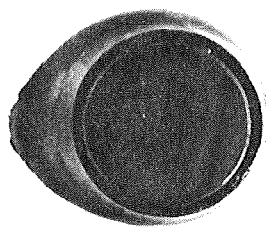
Abb. 4235 - 9

Zry-4/UO_{2.08}+Cs+J+Te

Simul. Abbrand 10 At. %

Aufheizgeschw.: 6°/s

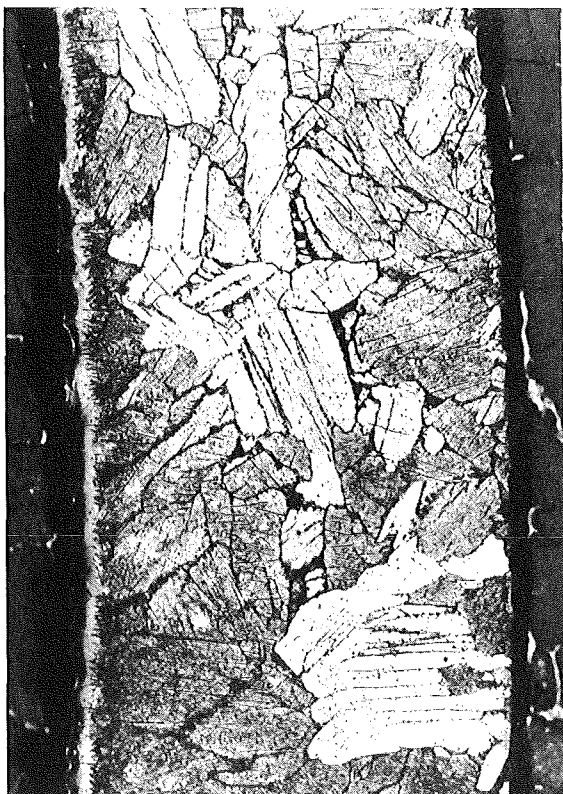
max. Temp.: ≈ 900°C



x2



x2



x100 (geätzt)

Abb. 4235-10

Zry-4/UO_{2.08}+J+Te

Simul. Abbrand 10 At. %

Aufheizgeschw.: 6°/s

max. Temp.: ≈ 900°C

Querschliff des Zry-4-Hüllrohres
in der Ebene der max. Ausbeulung.
Bildung einer neuen Phase an der
inneren Oberfläche (links) des
Hüllrohres.

4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverlustunfalles

Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben
(G. Class, D. Fömpe, IRE; K. Hain, T. Vollmer, F. Brüderle, K. Wagner, RBT)

1. Brennstabsimulator

Die Arbeiten zur Entwicklung des elektrisch beheizten Brennstabsimulators brachten Teilergebnisse, die den weiter einzuschlagenden Weg deutlich machen.

Die bereits im letzten Quartal des vergangenen Jahres begonnenen Versuche über die Verträglichkeit der UO_2 -Brennstoffpellets mit dem Graphitheizstab bei Temperaturen oberhalb $2500\text{ }^\circ\text{C}$ wurden positiv abgeschlossen. Durch Aufdampfen einer etwa $10\text{ }\mu\text{m}$ dicken Tantalkarbidsschicht auf der Heizstaboberfläche konnte, bei einer erreichten Temperatur von $2900\text{ }^\circ\text{C}$ an der Trennstelle Heizstab/Ringpelletinnenwand und einmaligem Aufheißvorgang, eine für die vorgesehenen Versuchsziele mit Sicherheit ausreichend lange reaktionslose Heizzeit erzielt werden.

Messungen des spezifischen elektrischen Widerstandes von UO_2 -Ringpellets aus einer Vorserie ergaben, daß diese Größe extrem niedrig liegen kann, so daß eine elektrisch nichtleitende Sperrschicht zwischen Ringpellet und Hüllrohr notwendig wird. Diese Schicht muß ausreichend dick sein, so daß auch durch den Gasspalt in Rissen oder Poren kein elektrischer Durchschlag erfolgen kann. Im Betriebszustand liegt zwischen dem zentralen Heizleiter und dem Hüllrohr eine elektrische Spannungsdifferenz an, so daß über die Ringpellets ein radial gerichteter Nebenschlußstrom fließt, der mit steigender Temperatur exponentiell anwächst. Dieser Nebenschlußstrom bewirkt eine unerwünschte Beheizung des UO_2 vor allem in der Berührungszone zum Hüllrohr, wobei die freigesetzte Wärmeleistung ebenfalls exponentiell mit der Temperatur anwächst. Daher existiert eine Grenztemperatur, die u.a. von der Wärme- und elektrischen Leitfähigkeit des UO_2 abhängt, oberhalb der die Wärmeerzeugung durch diesen Nebenschlußstrom schneller mit der örtlich herrschenden Temperatur anwächst als die Wärmeabfuhr an

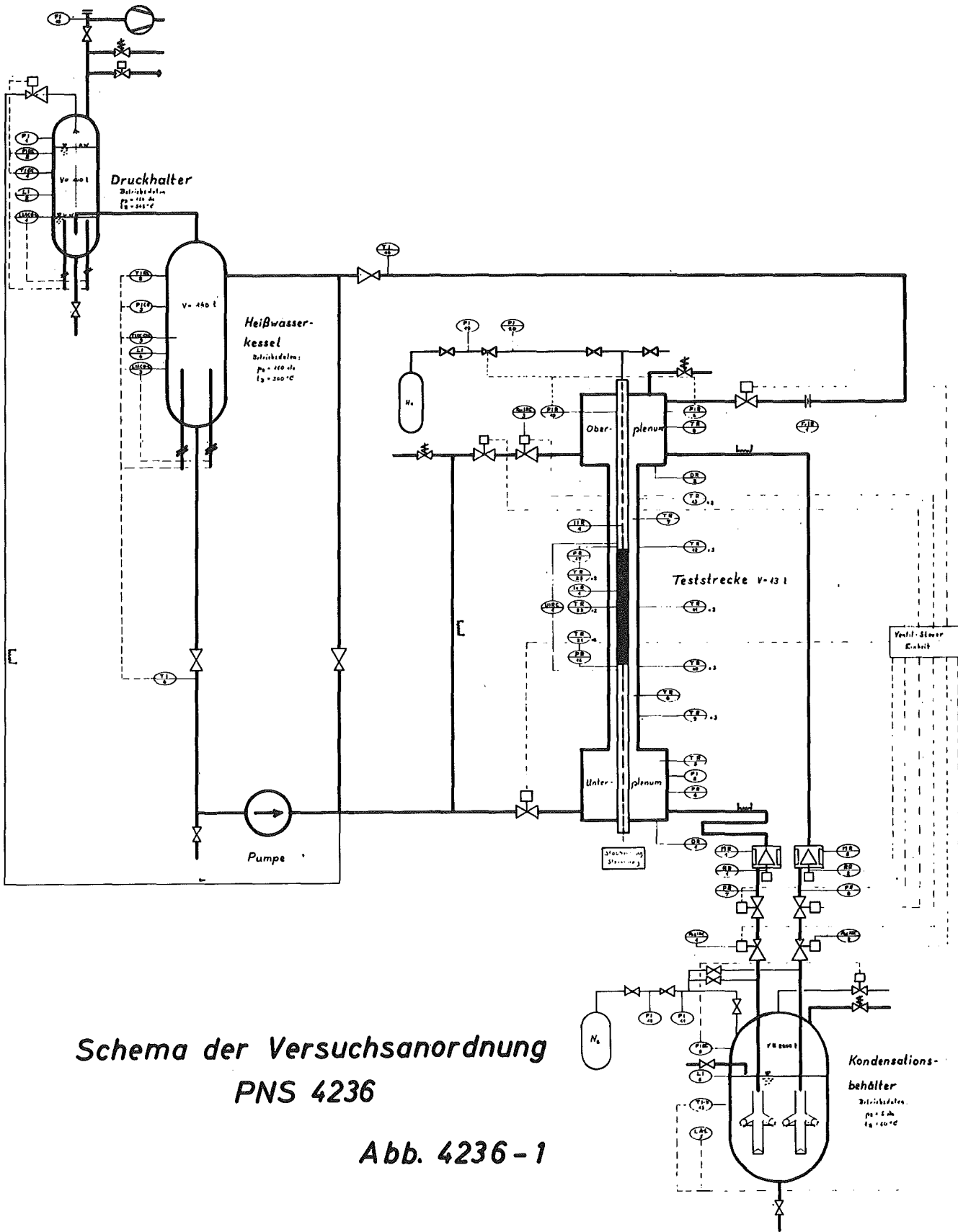
die Umgebung; dann wird das System instabil, und ein elektrischer Durchschlag durch das UO_2 erfolgt. Erste Versuche in einer Testanordnung mit einem kompletten Stabaufbau Graphitheizer/ UO_2 -Pellet/Zircaloy-Hüllrohr bestätigten diese aufgrund der Meßdaten zu erwartenden Effekte. Untersuchungen zur Lösung des Problems durch Aufbringung einer elektrisch nicht leitenden Sperrschicht sind inzwischen angelaufen.

Parallel zu der thermisch/elektrischen Heizstabentwicklung wurde die konstruktive Ausführung der Stabanordnung in Angriff genommen. In einem ersten ins Detail gehenden Entwurf wurden Vorschläge für die Herausführung der Kapillaren zur Messung des Spaltgasdruckverlaufes im beheizten Stabteil, der Spannungsabgriffleitungen und der Stromzuführungen sowie der Stabkopfausführung in bezug auf leichte Montierbarkeit des Simulationsstabes in der Teststrecke ausgearbeitet. Sobald die endgültigen Randbedingungen für die Stabanordnung festliegen, kann aufbauend auf diesem Simulationsstabkonzept die eigentliche Teststrecke konstruktiv angegangen werden.

2. Versuchsapparatur

Zwei unterschiedliche Prinzipien für die Ausführung der Versuchsapparatur, einmal mit einem offenen Druckwasserversorgungssystem in Einwegfahrweise, zum anderen mit einem geschlossenen Druckwasserkreislauf, wurden abwägend gegenübergestellt und letztlich aus Gründen der experimentellen Durchführung und wegen des kleineren apparativen Aufwandes eine Entscheidung zugunsten des Kreislaufkonzeptes getroffen (siehe Abb. 4236-1).

Die technischen Spezifikationen für die Herstellung der Hauptkreislaufteile, wie z.B. Druckhalter, Heißwasserbehälter, Umwälzpumpe, Absperr- und Steuerventile und Kondensationsbehälter, wurden ausgearbeitet. Mittlerweile sind alle größeren Komponenten im mehr oder weniger fortgeschrittenen Anfragestadium. Zum Teil liegen die Angebote schon vor, die Umwälzpumpe als wahrscheinlich terminbestimmendes Bauteil dieser Gruppe wurde bereits bestellt.



Schema der Versuchsanordnung
PNS 4236

Abb. 4236-1

3. Instrumentierung und Regelung der Versuchsanlage

Anhand des Kreislaufschemas wurden die einzelnen Meßstellen aus versuchsbetrieblicher und experimenteller Sicht festgelegt und die technischen Anforderungen an die Meßgeräte spezifiziert. Auch hier sind die Anfragen angelaufen.

Für die instationäre Dichtemessung in den Kühlmittelplena wurde die Gamma-durchstrahlungsmethode in Betracht gezogen. Die durchgeführten Untersuchungen zeigen, daß durch die schwankende Streustrahlung und vor allem infolge der zu erwartenden inhomogenen Phasenverteilung eine Meßunsicherheit von etwa 5 % zu erwarten ist. Die sich ohne Berücksichtigung dieser Einflüsse ergebende Meßunsicherheit wird durch Temperaturschwankungen der Meßeinrichtung und durch die Statistik des radioaktiven Zerfalls hervorgerufen. Ihre Größe ist abhängig von der eingesetzten Quellaktivität und der Ausbildung der eigentlichen Meßstrecke. Für letztere kommen zwei Ausführungen in Betracht:

- direkte Durchstrahlung des Stahlbehälters bei Verwendung von Cs-137 als Quelle,
 - Stahlbehälter mit Beryllium-Fenster und Einsatz einer Am-241-Quelle.
- Letzteres Verfahren hat die Vorteile einer höheren Meßempfindlichkeit und aufgrund der wesentlich geringeren Abschirmung einer besseren Handhabung der Anordnung. Um eine Meßunsicherheit von nur 2 % zu erreichen, ist im ersten Fall eine Aktivität von 15 Ci erforderlich, während bei Verwendung von Be-Fenstern bereits 200 mCi ausreichend wären. Gegen die zweite Lösung könnten allerdings fertigungs- und abnahmetechnische Gründe sprechen.

Erste Ergebnisse von RELAP 3-Rechnungen (vgl. PNS 4231) zeigen, daß das Konzept der Versuchseinrichtung durchführbar ist. Die technisch ausgeführten maximalen Verstellgeschwindigkeiten für Regelventile in den Ausblaseleitungen sind ausreichend, um die Simulation des Einflusses der Primärkreisschleifen auf den Kernmassendurchsatz in der Versuchsanlage zu verifizieren. Quantitative Aussagen über die benötigten maximalen Ventilquerschnitte wurden anhand der RELAP 3-Rechnungen gewonnen.

Bei der theoretischen Vorhersage der kritischen Ausströmraten aus den mit Regelventilen bestückten Ausblaseleitungen bestehen erhebliche Unsicherheiten, so daß eine möglichst genaue versuchstechnische Erfassung des

instationären Zweiphasenmassenstromes in diesen Leitungen während des Blowdown-Vorganges unumgänglich ist. Als neue Möglichkeit zeichnet sich hierfür das bereits im letzten Halbjahresbericht erwähnte sogenannte "true mass flow meter" ab, mit dem prinzipiell der Zweiphasenmassenstrom ohne Rücksicht auf die Phasenanteile und die Strömungs-, Druck- und Temperaturzustände gemessen werden kann.

Im Prinzip stellt das "true mass flow meter" eine Strömungsmaschine dar, bei der der Strömung beispielsweise in einem Laufrad ein definierter Drall aufgeprägt wird, der in einem Leitrad wieder vernichtet wird. Hierbei greift am Leitrad ein Drehmoment an, das (bei konstanter Laufraddrehzahl) dem gesuchten Zweiphasenmassenstrom direkt proportional ist.

Ein erstes Versuchsmodell eines "true mass flow meter" für isotherme Zweiphasenströmung wurde gebaut. In Vorversuchen konnte die Funktionsfähigkeit des Meßprinzips an Wasser/Luft-Strömungen demonstriert werden. Einige offenbar gewordene Schwächen des ersten Modells führten zu einem verbesserten Entwurf, für den die Fertigung in Kürze abgeschlossen sein wird.

Zur Messung des Massenstromes beim Blowdown mit Hilfe eines modifizierten Meßgerätes wurden alternativ zwei Konstruktionsprinzipien näher betrachtet. Eine Entscheidung über die nun weiter zu verfolgende Richtung in der Entwicklung zu einem für die vorliegenden, hinsichtlich der mechanischen und thermischen Beanspruchungen schwierigen Verhältnisse brauchbaren Meßgerät steht unmittelbar bevor.

- 4237.1 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)

Das Ziel der in-pile-Versuche im DK-Loop wurde bereits in den Halbjahresberichten II/72 und I/73 ausführlich dargestellt.

1. Vorversuche im DK-Loop des FR2

Der Schwerpunkt der Arbeiten im Berichtszeitraum lag auf der Vorbereitung und Durchführung von Vorversuchen im DK-Loop mit Brennstabprüflingen. Hauptziel dieser z.Z. noch laufenden Vorversuche ist die Ermittlung derjenigen Stabileistung, die den Referenztemperaturverlauf - insbesondere der Hülle - während der Aufheizphase eines LOCA am besten wiedergibt (Temperaturanstieg).

Die Stäbe waren geometrisch so ausgeführt, wie sie auch für die Hauptversuche vorgesehen sind. Die Radialgeometrie des Brennstabes und der umgebauten Dampfrohre war zuvor festgelegt worden. Die Brennstäbe sind nach der Spezifikation deutscher Druckwasserreaktoren hergestellt worden.

Abweichungen im Aufbau gegenüber den DWR-Stäben waren:

- die Länge der Stäbe (Gesamtlänge rund 700 mm, aktive Länge rund 500 mm),
- die Ausführung der Endstopfen (dem Versuchseinsatz angepaßt),
- kein unteres Plenum,
- verkürztes oberes Plenum (100 mm),
- kein Vordruck: Innendruck 1 ata Helium

Die U-235-Anreicherung des Brennstoffs betrug 3,1 %. Mit Hilfe der Reaktorleistung konnte die Leistung des Brennstabes variiert werden.

Die Aufheizung des Brennstabes (Transiente) wird durch Absperren der Dampfkühlung erreicht, wie es auch bei den Hauptversuchen vorgesehen

ist. Beendet wird die Transiente durch die Rücknahme der Reaktorleistung. Mit jedem Stab werden mehrere Transienten durchgeführt (bei den Hauptversuchen jeweils nur eine).

Die Versuche mit zwei Brennstabprüflingen fanden im Juni statt. Sie werden zur Zeit ausgewertet. Ein dritter Versuchseinsatz befindet sich in der Montage und kann voraussichtlich noch im Juli in den FR2 eingesetzt werden. Einige konstruktive Änderungen, insbesondere bezüglich der Thermoelementführung, erwiesen sich als notwendig.

Die Vorversuche mit Brennstabprüflingen werden zur Kontrolle und Unterstützung der Auslegungsrechnungen sowie zur Früherkennung von Schwierigkeiten im Versuchsablauf durchgeführt.

2. Auslegungsrechnungen mit den Programmen RELAP 3 und RELAX

Die neu berechneten Temperaturverläufe der Reaktorhersteller für einen Kühlmittelverlustunfall liegen vor. Die neuen Hülltemperaturverläufe zeigen gerade in der 2. Aufheizphase gravierende Unterschiede zu den älteren Rechnungen: Der Temperaturanstieg ist um mehr als eine Größenordnung flacher (ca. 10 K/s statt rund 160 K/s), die Temperatur zu Beginn liegt mit 700 bis 800 °C wesentlich über der des Normalbetriebes. Die neuen Rechnungen werden als Referenztemperaturverläufe zugrunde gelegt.

Bei der Durchführung der Auslegungsrechnungen mit Programmen ergaben sich Verzögerungen. Jedoch konnten die Vorausberechnungen mit dem RELAP-3 Programm vom IKE Stuttgart im Juni fertiggestellt werden. Dieses Programm, in dem der Versuchskreislauf zwischen Absperrventil über Reaktoreinsatz und Entspannventile bis zur Ausströmzone (Enthitzer) durch eine Reihenschaltung von Zonen wiedergegeben wird, erfaßt nur die Hydraulik des DK-Loops. Für die Transiente werden Massenstrom, Druck und Wärmeübergangszahl als Zeitfunktion berechnet. Die Temperaturen des Brennstoffs, der Hülle, des Kühlmittels in den Zonen des Brennstabes müssen mit Hilfe eines anderen Programmes berechnet werden. Ein im IKE Stuttgart vorhandenes Wärmeleitprogramm soll durch Einbeziehung der Wärmestrahlung so modifiziert werden, daß es als "Fortsetzung" des RELAP-Programms benutzt werden kann. Es steht zur Zeit noch nicht zur Verfügung, da noch Fehler im System zu beseitigen sind.

Neben der Nachrechnung der Vorversuche und evtl. Anpassung des RELAP-Programms an die Meßdaten sollen ggf. Parameterstudien durchgeführt werden.

Mit dem GfK-internen Programm RELAX des IRB wurden radiale Temperaturverläufe in einer Ebene des Reaktoreinsatzes ermittelt.

Dabei wurde der Massenstromabfall einmal als Sprungfunktion, zum anderen als Exponentialabfall ($\dot{m} = \dot{m}_0 \cdot e^{-t/\tau}$ mit $\tau = 5$ s) eingegeben. Die Temperaturverläufe liegen für mehrere Brennstableistungen vor.

Dieses Wärmeleitprogramm erfaßt nicht den Fluidbereich, insbesondere die Strömungsumkehr am Fuß des Reaktoreinsatzes, so daß mit zusätzlichen Annahmen gerechnet werden muß. Als nächstes soll dem RELAX-Programm der Massenstromverlauf, wie er sich aus RELAP ergibt, eingegeben werden. Einige Parameterstudien werden sich anschließen.

3. Anpassung des DK-Loops an die geplanten transienten Experimente

Erste Änderungen am Kreislauf sind vorgenommen worden:

- Änderungen zur Erzielung einer schnelleren Entspannung während der Transiente;
- zusätzliche Druck- und Temperaturmeßstellen sind eingebaut worden, um die RELAP-Rechnung in mehreren Zonen kontrollieren zu können;
- vor den Entspannventilen wurde ein Ventil eingebaut, das den Druckabfall begrenzen soll.

Zur Erprobung dieses Ventils sowie zur Aufnahme der Entspanndaten bei dem abgeänderten Kreislauf wurden Versuche mit einer Attrappe (keine Spaltleistung) durchgeführt. Die Messungen werden zur Zeit ausgewertet. Die Ergebnisse werden zeigen, ob weitere Änderungen am Kreislauf notwendig sind.

4. Konstruktion von Vorbestrahlungs- und Versuchseinsätzen

Die Konstruktion des Vorbestrahlungseinsatzes für die Brennstäbe wurde begonnen. Der Entwurf befindet sich in der Endphase. Die Konstruktion soll im nächsten Halbjahr abgeschlossen werden, ebenso der Reaktor-(Versuchs)einsatz.

Die Konstruktion für den Vorversuchseinsatz wich in einigen wesentlichen Einzelheiten, z.B. fehlendes Innendruckmeßsystem, vom Versuchseinsatz für die Hauptversuche ab.

Die Prototypen zur Verbindung des Druckmeßsystems am Prüfling (Endstopfen) sowie am Kopf des Einsatzes (Druckaufnehmer) sind fertig. Die Erprobung hat begonnen.

5. Thermoelementapplikation auf Zry-Hüllrohren

Zur Hülltemperaturmessung mit Thermoelementen wurden im Berichtszeitraum die in Frage kommenden TE-Materialien sowie Anschweißverfahren zusammengestellt.

Eine Reihe von Versuchen mit Einzeladern sowie ummantelten Thermoelementen aus PtRh, NiCr-Ni, Edelstahl wurde mit mehreren Schweißverfahren an Zry-Hüllrohrproben durchgeführt. Die Schwierigkeit besteht darin, TE-Materialien zu finden, die sowohl mit dem Hüllwerkstoff (Eutektika-Bildung mit Zry) als auch im Dampf (Versprödung bei hoher Temperatur) verträglich sind. Bis jetzt erscheint Pt-Rh als am ehesten geeignetes TE-Material bei einer Temperaturbegrenzung von etwa 1100 °C. Als Anschweißverfahren hat sich bisher die Widerstands-Punktschweißung am besten bewährt. Versuche mit Zircaloy als TE-Material sollen folgen.

4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Brennstäben mit Zircaloy-Hülle und einsetzender Kernnotkühlung

(K. Wiehr, S. Barth, W. Hame, U. Harten, St. Müller, H.J. Neitzel, He. Schmidt, IRB)

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

Im Berichtszeitraum sind folgende Aktivitäten zu verzeichnen:

1. Abschluss der Kühlkreislaufrechnungen

Die im 2. PNS-Halbjahresbericht 1973 erwähnten Kühlkreislaufrechnungen haben ergeben, dass die ursprünglich geplanten thermischen Startbedingungen für die Versuche - stationäre Wärmeabfuhr einer relativ hohen Wärmeerzeugung durch strömenden Wasserdampf - nicht durchführbar sind, weil durch die axiale Aufheizung des Kühlmediums das axiale Temperaturmaximum um ca. 1 m aus der axialen Mitte zu liegen kommt, was dem zu simulierenden Fall zu wenig entspricht. Der Anfahrprozess wurde dahingehend abgeändert, dass, ausgehend von einem isothermen Zustand (radial und axial gleiche Temperatur in Simulator und Kühlkanal, ca. 350 °C), der Simulator ungekühlt mit relativ hoher Leistung hochgeheizt und bei Erreichen einer vorzugebenden Hüllrohrtemperatur (z.B. 500 °C) auf die relevante niedrigere Leistung umgeschaltet wird. Durch das Anfahren mit hoher Leistung wird im Stab eine radiale Temperaturverteilung erreicht, die dem Beginn der Heat-up-Phase entspricht.

Dieses neue Konzept machte eine erneute rechnerische Überprüfung der Simulationsqualität des Simulators erforderlich.

2. Änderung des Wärmeleit-Codes

Bei der Anwendung des nach dem expliziten Verfahren arbeitenden Wärmeleit-Codes auf den relativ aufwendigen Simu-

lator mit seinen vielen dünnen Schichten stellte es sich heraus, dass zum Erreichen einer genügenden Genauigkeit ein so kleiner Zeitschritt, gekoppelt mit kleinen geometrischen Schritten, verwendet werden muss, dass das Verfahren bei der Vielzahl der Rechnungen zu kostspielig wird. Das Rechenprogramm wurde deshalb auf das für den vorliegenden Fall günstigere Verfahren nach Crank-Nicholson umgestellt. Die Umstellung ist abgeschlossen, und der neue Code wurde erfolgreich eingesetzt.

3. Simulator-Versionen

Es sind drei Versionen für den Brennstabsimulator mit folgendem radialen Aufbau (von innen nach aussen) erarbeitet worden:

Simulator 1:

verdichtetes MgO-Pulver
Heizleiter aus Inconel
verdichtetes BN-Pulver
Heizleiterhülle aus Inconel
Helium-Spalt
Ringpellet aus UO_2
Helium-Spalt
Zircaloy 4-Hülle

Simulator 2:

gleicher radialer Aufbau wie Simulator 1, lediglich statt Ringpellets aus UO_2 solche aus Al_2O_3 .

Simulator 3:

verdichtetes MgO-Pulver
Heizleiter aus Inconel
verdichtetes MgO-Pulver
Hülle aus Inconel

Vergleichsrechnungen haben gezeigt, dass diese drei Simulatoren den Brennstab thermodynamisch genügend genau zu simulieren vermögen. Eine geringe Abweichung in ihrem Verhalten gegenüber dem Brennstab ergibt sich daraus, dass die Simulatoren wegen der beteiligten Metalle eine etwas zu hohe Wärmekapazität besitzen, die jedoch aus fertigungstechnischen Gründen nicht zu senken ist. Die zu hohe Wärmekapazität macht sich in den Vergleichsrechnungen in einem zu geringen Wert des in der adiabaten Aufheizphase sich einstellenden zeitlichen Gradienten der Temperaturen, speziell der Hüllrohrtemperatur bemerkbar. Bei Anwesenheit von Kühlung, die im wirklichen Fall vorhanden ist, wird die Abweichung im zeitlichen Gradienten geringer, so dass die Abweichungen in jedem Fall vertretbar sind.

Zu dem Ersetzen der UO_2 -Ringpellets des Simulators 1 durch Al_2O_3 -Ringpellets beim Simulator 2 ist folgendes zu sagen: UO_2 -Ringpellets wurden deshalb gewählt, um im äusseren Bereich des Stabes (Zircaloy-Hülle - Spalt - UO_2 -Pellet) möglichst repräsentative Bedingungen zu haben, insbesondere bezüglich der Wärmedehnungen und der Wärmestrahlung. Durch Rechnungen wurde nachgewiesen, dass eine breite Variation des Strahlungskoeffizienten sich auf den Verlauf der Temperaturen nur in ganz geringem Masse bemerkbar macht. Eine Abweichung des Strahlungskoeffizienten von Al_2O_3 von dem von UO_2 ist demnach vernachlässigbar. Der Wärmeausdehnungskoeffizient von Al_2O_3 ist nahezu gleich dem von UO_2 .

Im Gegensatz zu dem Simulator 3 sind die Simulatoren 1 und 2 "aufblähfähig", da ihre Hüllen mit einem inneren Überdruck versehen werden. Diese Simulatoren sind in der Lage, den Ballooning-Vorgang repräsentativ zu vollziehen. Der Simulator 3 ist einfacher aufgebaut, seine Hülle bleibt ohne inneren Überdruck und ist deshalb nicht in der Lage zu blähen.

Der Einsatz der drei Simulator-Versionen ist aus dem nachfolgenden Abschnitt ersichtlich.

4. Versuchsprogramm

Das Versuchsprogramm unterteilt sich in 4 Hauptabschnitte:

- a) Untersuchungen zum Brennstabversagen in stagnierender Dampfatosphäre, die dazu dienen, den Simulator in seinem thermischen und gasdynamischen Verhalten kennenzulernen. Im Übrigen stellen diese Versuche die Anknüpfungspunkte zu den aus der Literatur her bekannten Experimenten dar.
Es handelt sich hier um Einzelstabversuche bei Verwendung des Simulatortyps 2.
- b) Untersuchungen zum Brennstabversagen mit Fluten.
Diese Versuche bringen den wesentlichen Unterschied zu den bisher bekannten Experimenten, denn hier sollen sich die Hüllrohrtemperaturen und der Ablauf des Aufblähvorganges zwangsläufig als Folge der Fluteinflüsse einstellen. Es entsteht eine Wechselwirkung der sich aufblähenden Zircaloy-Hülle und der einsetzenden Notkühlung. Der Zentralstab ist ein aufblähfähiger Simulator vom Typ 2, umgeben von instrumentierten Brennstabsimulatoren des Typs 3 in einem 25er Bündel.
- c) Der dritte Versuchsabschnitt stellt einen Übergang zu den Bündelversuchen dar. Ein gut instrumentierter Zentralstab vom Typ 3 ist umgeben von 8 aufblähfähigen Brennstabsimulatoren vom Typ 2. Es findet hier eine starke Beeinflussung des zentralen Unterkanals durch die Umgebung statt, und es wird erwartet, Aussagen über eine mögliche Versagensfortpflanzung zu erhalten.
- d) Bündelversuche in einem 25er Bündel mit im Zentrum 9 aufblähfähigen Simulatoren vom Typ 2 bzw. 1. Hier besteht die Möglichkeit, dass sich die aufblähenden Stäbe auch selbst gegenseitig beeinflussen.

5. Versuchsstand

Die konstruktive Planung des Versuchsstandes ist abgeschlossen und vom TÜV abgenommen.

Das Schaltbild der Versuchsanlage ist in Abb. 4238-1 wiedergegeben. Über das Heissdampfdruckreduzierventil (1) wird die gesamte Anlage mit Heissdampf vom Anfahrkessel mit elektrischem Endüberhitzer vorgewärmt. Das vordruckgeregelte Dampfdruckreduzierventil (3.1) stellt den gewünschten Containmentdruck ein. Über die Leitung (6) und das motorgesteuerte Wasserregelventil (6.1) sowie den Wärmeaustauscher (6.2) wird Wasser der für den Flutvorgang gewünschten Menge und Temperatur in den Testbehälter (2) eingespeist. Über einen Überlauf und Leitung (7) wird ein konstanter Wasserspiegel im Testbehälter eingestellt. Wird zusätzlich oder nur Heisseinspeisung gewünscht, so lässt sich Menge, Vordruck und Temperatur des Sprühwassers über Leitung (8) und (9) mit den Aggregaten (8.1), (8.2) und (9.1) einstellen. Ist der gewünschte isotherme Zustand der Meßstrecke erreicht, wird Ventil (1.1) geschlossen und der Endüberhitzer abgeschaltet, so dass der Anfahrkessel im weiteren Verlauf Sattedampf liefert und die Druckhaltung in der Anlage über eine Umgehungsleitung 1.2 zum Containmentbehälter übernimmt. Die Stromversorgung wird zugeschaltet und je nach gewähltem Flutbeginn Ventil (7.1) geschlossen bzw. für die Heisseinspeisung (8.3) geöffnet und (9.1) geschlossen. Behälter (4) simuliert das Containment und dient gleichzeitig als Auffang- und Messbehälter für das möglicherweise durch Oszillationen der Flüssigkeitssäulen durch den Ringraum (11) ins Containment ausgeworfene Notkühlwasser. Behälter (5) enthält einen Wasserabscheidezyklon und dient als Auffang- und Messbehälter für das durch das Bündel transportierte und ausgeworfene Wasser. Leitung (10) führt das im Ringraum des Bündelkopfes anfallende Wasser in Behälter (5); den mit dem Dampf ausgetragenen Wasseranteil am Kopf der Teststrecke soll der Zyklon abscheiden.

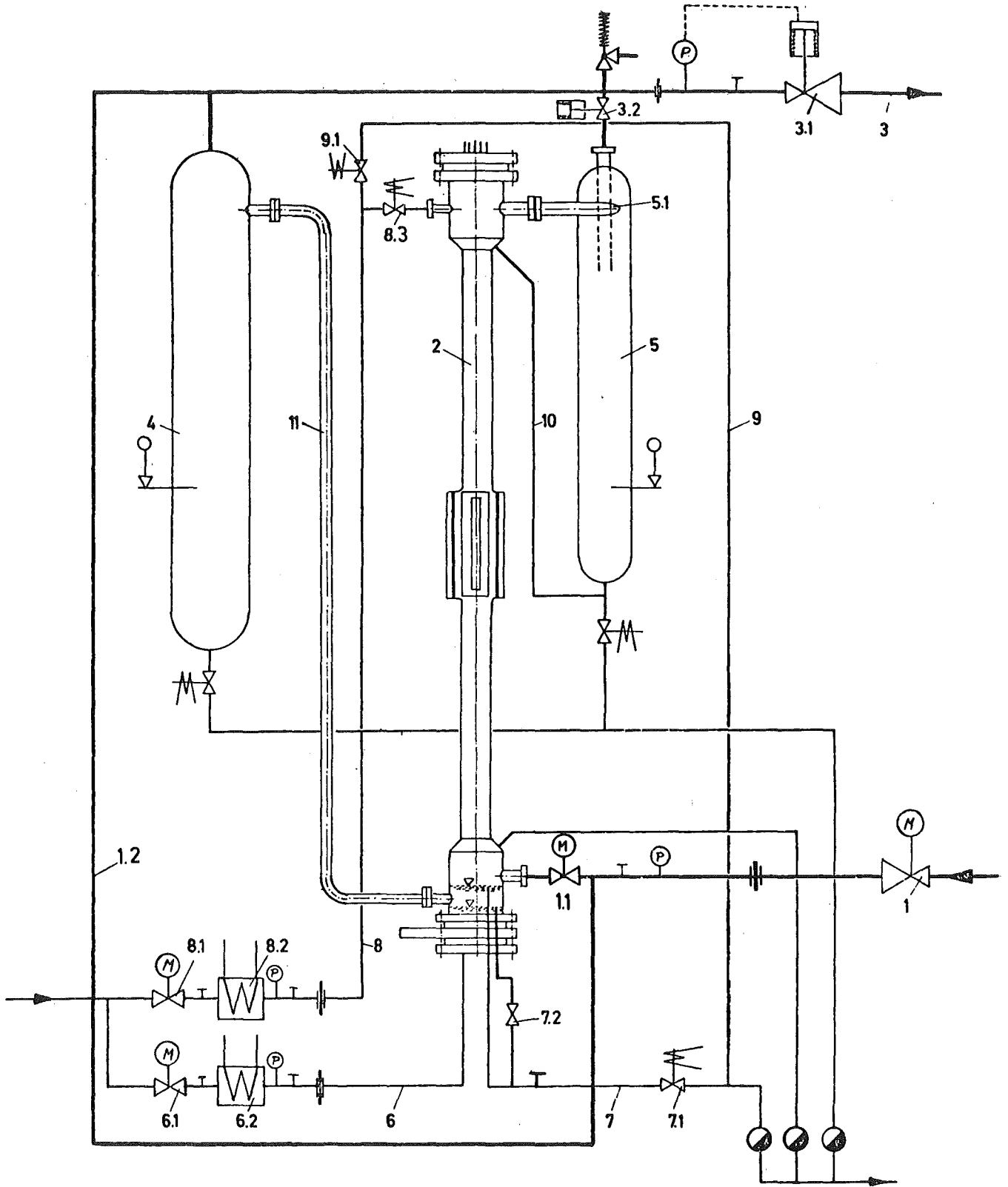


Abb. 4238-1 Schaltbild der Teststrecke

6. Datenerfassung

Die Vielzahl der im Versuch anfallenden Messdaten in verhältnismässig kurzer Zeit erfordert ein zentrales Datenerfassungssystem. Es ist vorgesehen, das bei der GfK vorhandene System CALAS einzusetzen.

Geeignete Messwertgeber wurden ausgewählt. Das Übertragungssystem über Verstärker, Multiplexer, ADU und Ausgangsverstärker wurde festgelegt. Der Datenweg zwischen dem Ort des Experimentes und CALAS wurde installiert. Das Erstellen der Auswerteprogramme ist in Angriff genommen worden.

7. Messtechnische Erfassung des Aufblähvorganges

Für das direkte Beobachten bzw. filmtechnische Erfassen der Hüllrohrerweiterungen durch Aufblähen wurde die Röntgendurchleuchtung als aussichtsreiches Verfahren ermittelt. Innerhalb der Röntgendurchleuchtungstechnik wiederum wurden verschiedene auf dem Markt befindliche Methoden auf deren Brauchbarkeit untersucht. Hierzu wurden Beobachtungen und Probeaufnahmen an einem die Aufblähbewegung eines Rohres im Bündel simulierenden Modell durchgeführt. Die besten und zufriedenstellendsten Ergebnisse brachte die Kombination: Gleichstromröntgenröhre - Röntgenbildverstärker - Filmkamera, wobei gleichzeitiges Verfolgen des Vorganges über Fernseh-Monitor möglich ist. Die bewegten Konturen waren am Bildverstärker scharf gezeichnet und das Nachleuchten der Bildwandlerschicht (bei 50 Bilder/s) sehr gering und nicht störend.

Mit einer solchen Anlage wäre dann noch die optimale Röntgenspannung und Filmempfindlichkeit in einigen Versuchen zu ermitteln.

8. Berührungslose Temperaturmessung

Um eine Verfälschung des Aufblähvorganges weitgehend auszuschalten, muss die Temperaturmessung an der aufblähenden Stelle berührungslos durchgeführt werden. Es kommt daher nur eine Temperaturmessung mittels Pyrometer in Betracht. Da für den interessierenden Temperaturbereich zwischen 400 °C und 1200 °C auf dem Markt kein ausreichend genaues Pyrometer zu finden ist, wird ein neueres Quotientenpyrometer durch einen Umbau den Versuchsanforderungen angepasst.

- 4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von definierten Kühlkanalblockagen auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles
(G.Hofmann, P. Ihle, IRB)

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

Zur Vorbereitung der Experimente werden 5 Teilaufgaben verfolgt:

1. Entwurf, Konstruktion und Aufbau eines Versuchskreislaufes

Der Versuchskreislauf wurde ausgelegt für das Fluten von bis zu 25 Simulatoren mit DWR-Brennstababmessungen (bis 3,90 m beheizter Länge). Als vorgebbare Parameter sind variierbar:

- Die Anfangstemperatur der Brennstabsimulatoren bis 800°C
- die elektrisch simulierte Nachwärme bis 27 W/cm
- der Systemdruck in der Teststrecke bis 6 bar
- die Temperatur des Flutwassers zwischen 20 °C und Sättigungstemperatur
- die Flutgeschwindigkeit, d.h. die Steiggeschwindigkeit des Flutwassers im kalten Bündel von 1,3 cm/sec bis 20 cm/sec für Bündelanordnungen bis zu 25 Stäben.

In Abb. 4239.1 ist das Kreislaufschema dargestellt. Eine Pumpe entnimmt das Wasser aus einem Vorratsbehälter, der mit Dampf beheizt werden kann, bringt es auf 20 bar und speist es über Drosselventil und Wärmetauscher in den Behälter zurück. Die Menge, die für die Teststrecke gebraucht wird, wird abgezweigt, ebenfalls auf Testreckendruck gedrosselt, gemessen und strömt in das untere Plenum ein. Durch die Drosselung soll eine weitgehende Unabhängigkeit der Flutrate von Druckschwankungen in der Teststrecke erreicht werden. Aus dem Wasser-Dampfgemisch am oberen Teststreckenende werden die größeren Wasserteilchen abgeschieden und gemessen. Der Dampf strömt über eine einstellbare Drosselstelle, einen Pufferbehälter und die Überströmventile ins Freie. Da bei Versuchsbeginn eine Dampfatmosfera in der Teststrecke vorhanden und der Systemdruck wäh-

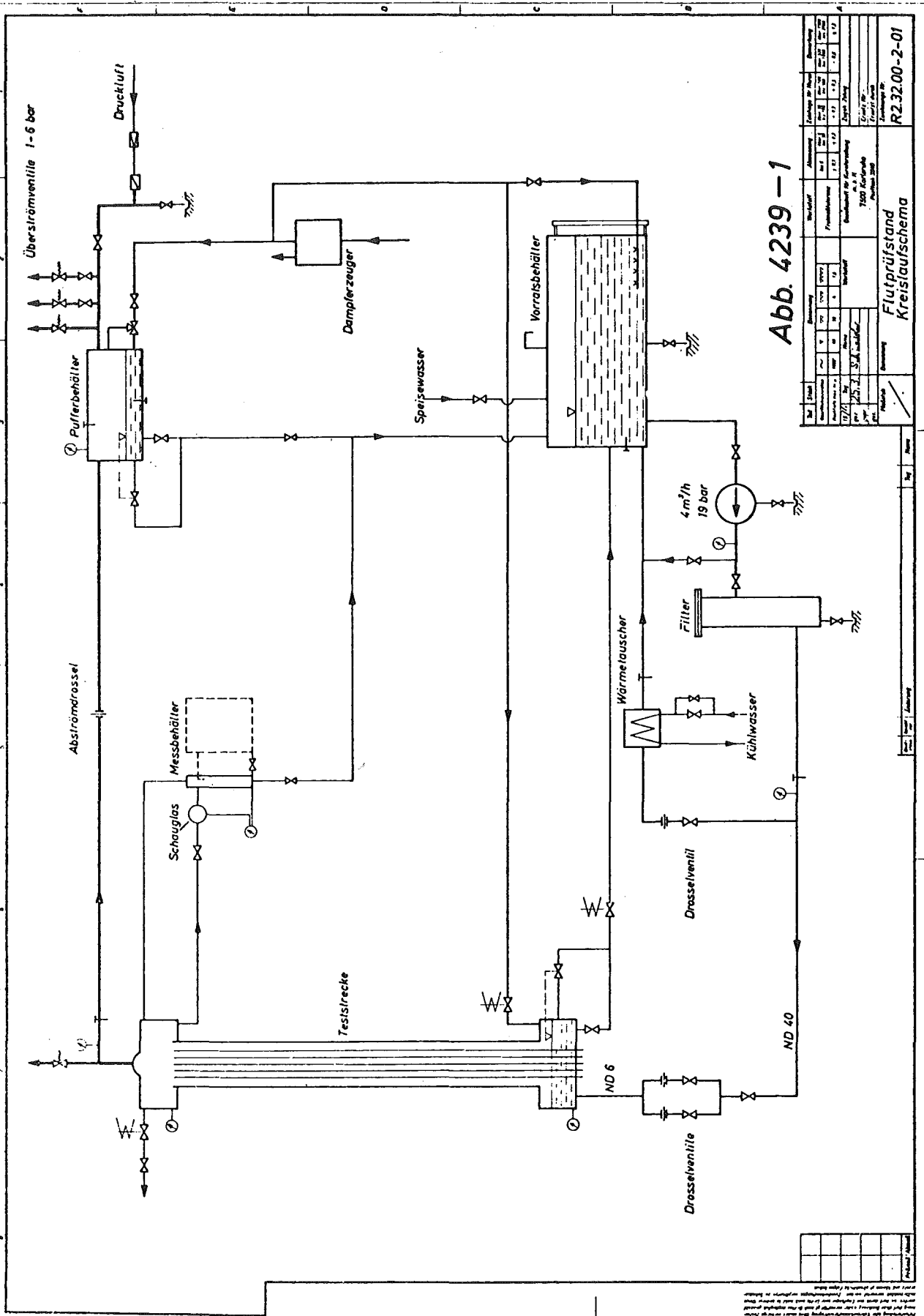


Abb. 4239-1

Bestandteile		Menge		Anmerkungen	
Pos.	Bezeichnung	Stück	Einheit		
1	Abschirmröhrsel	1	Stk		
2	Dampfzeuger	1	Stk		
3	Vorratsbehälter	1	Stk		
4	Messbehälter	1	Stk		
5	Schauglas	1	Stk		
6	Teststrecke	1	Stk		
7	Wärmetauscher	1	Stk		
8	Filter	1	Stk		
9	Kühlwasser	1	Stk		
10	Drosselventil	1	Stk		
11	Drosselventile	2	Stk		
12	Pufferbehälter	1	Stk		
13	Druckluft	1	Stk		
14	Speisewasser	1	Stk		
15	4 m³/h 19 bar	1	Stk		
16	ND 6	1	Stk		
17	ND 40	1	Stk		
Zeichnung Nr. R2.32.00-2-01 Projektant: ... Geprüft: ... Freigegeben: ... Maßstab: ... Blatt: ... Gesamt: ...					

Seite 1 von 1

Alle Maße sind in mm anzugeben. Alle Winkel sind in Grad anzugeben. Alle Abstände sind in mm anzugeben. Alle Durchmesser sind in mm anzugeben. Alle Höhen sind in mm anzugeben. Alle Gewinde sind in mm anzugeben. Alle Nennweiten sind in mm anzugeben. Alle Temperaturen sind in Grad Celsius anzugeben. Alle Drücke sind in bar anzugeben. Alle Leistungen sind in kW anzugeben. Alle Durchflüsse sind in m³/h anzugeben. Alle Zeiten sind in min anzugeben. Alle Abstände sind in mm anzugeben. Alle Höhen sind in mm anzugeben. Alle Gewinde sind in mm anzugeben. Alle Nennweiten sind in mm anzugeben. Alle Temperaturen sind in Grad Celsius anzugeben. Alle Drücke sind in bar anzugeben. Alle Leistungen sind in kW anzugeben. Alle Durchflüsse sind in m³/h anzugeben. Alle Zeiten sind in min anzugeben.

rend des Versuchs möglichst konstant bleiben soll, ist ein Dampferzeuger vorgesehen. Während des Versuchs stellt der Dampferzeuger den größten Teil der Dampfmenge, die durch die Überströmventile nach außen strömt, so daß der Teststreckendampf nur zugemischt wird und bei ungleichmäßigem Entstehen nur sehr kleine Druckschwankungen hervorruft. Wenn der Dampf des Dampferzeugers nicht ausreicht, kann noch Druckluft zugespeist werden.

Vorgesehen, aber nicht ausgelegt, sind eine Heißeinspeisung durch Einsprühen von Flutwasser auf das obere Bündelende und eine Pulsation der Flutrate im Bündel durch periodische Bewegung eines Kolbens mit Hub und einstellbarer Frequenz.

Die Konstruktion des Kreislaufes wurde begonnen, ein Teil der Komponenten ist vorhanden, ein Teil wird bestellt.

2. Entwurf, Konstruktion und Herstellung der Teststrecken

Unter Verwendung der Erfahrungen mit der Teststrecke eines Vorversuches, der im Berichtszeitraum aufgebaut wurde, wird im 2. Halbjahr die Teststrecke für die erste Versuchsanordnung konstruiert.

3. Auswahl, Beschaffung und Instrumentierung geeigneter Heizstäbe und Blockagekonfigurationen

Ein von der Firma Siemens, Bad Soden, hergestellter Heizstab mit 2,9 m beheizter Länge und einer durch Stufen angenähert cosinusförmigen axialen Leistungsverteilung wurde einem Test unterzogen. Das Ziel dieses Vorversuchs war die Bestimmung der Wärmedurchgangszahl zwischen Stromleiter und Hülle. Aus dieser Größe ergibt sich für vorgegebene Werte von Hüllrohrtemperatur und Leistungsdichte die Stromleitertemperatur und damit die zu erwartende Lebensdauer der Heizstäbe.

Für die Versuche wurden Stababschnitte verwendet, mit denen zuvor schon Flutversuche durchgeführt worden waren. In das Zentrum und die Hülle der Stäbe wurde je ein Thermoelement eingebaut. Der Stab wurde elektrisch beheizt und mit Druckluft gekühlt.

Zur Bestimmung der Wärmedurchgangszahl wurden in stationären Versuchen bei verschiedenen Hüllentemperaturen und Leistungsdichten und bei konstanter Kühlung die Temperaturunterschiede zwischen Stromleiter und Hülle gemessen. In diesen stationären Versuchen misst das Zentralthermoelement die Stromleitertemperatur, weil das Temperaturprofil innerhalb des Stromleiters eben ist. Verzerrungen des Profils, die durch die Wendelform des Stromleiters verursacht werden könnten, wurden durch die Verwendung von gut leitendem Bornitrid als Isolator im Bereich der Thermoelementspitze weitgehend vermieden. Wie aus Abb. 4239-2, in die alle an zwei Versuchsstäben gewonnenen Meßpunkte eingetragen wurden, hervorgeht, liegt die Wärmedurchgangszahl bei leichter Temperaturabhängigkeit im unteren Temperaturbereich in der Größenordnung von $K = 0,03 \text{ W/cm}^\circ\text{C}$. Mit einem Wert von $K = 0,025 \text{ W/cm}^\circ\text{C}$ für hohe Temperaturen ergibt sich für eine maximale Leistungsdichte des Heizleiters von etwa 8 W/cm^2 entsprechend einer Stableistung $\chi = 27 \text{ W/cm}$ ein Temperaturunterschied $\theta_S - \theta_H$ zwischen Stromleiter und Hülle von

$$\theta_S - \theta_H = \frac{\chi}{2 \pi \cdot K} = 172^\circ\text{C}$$

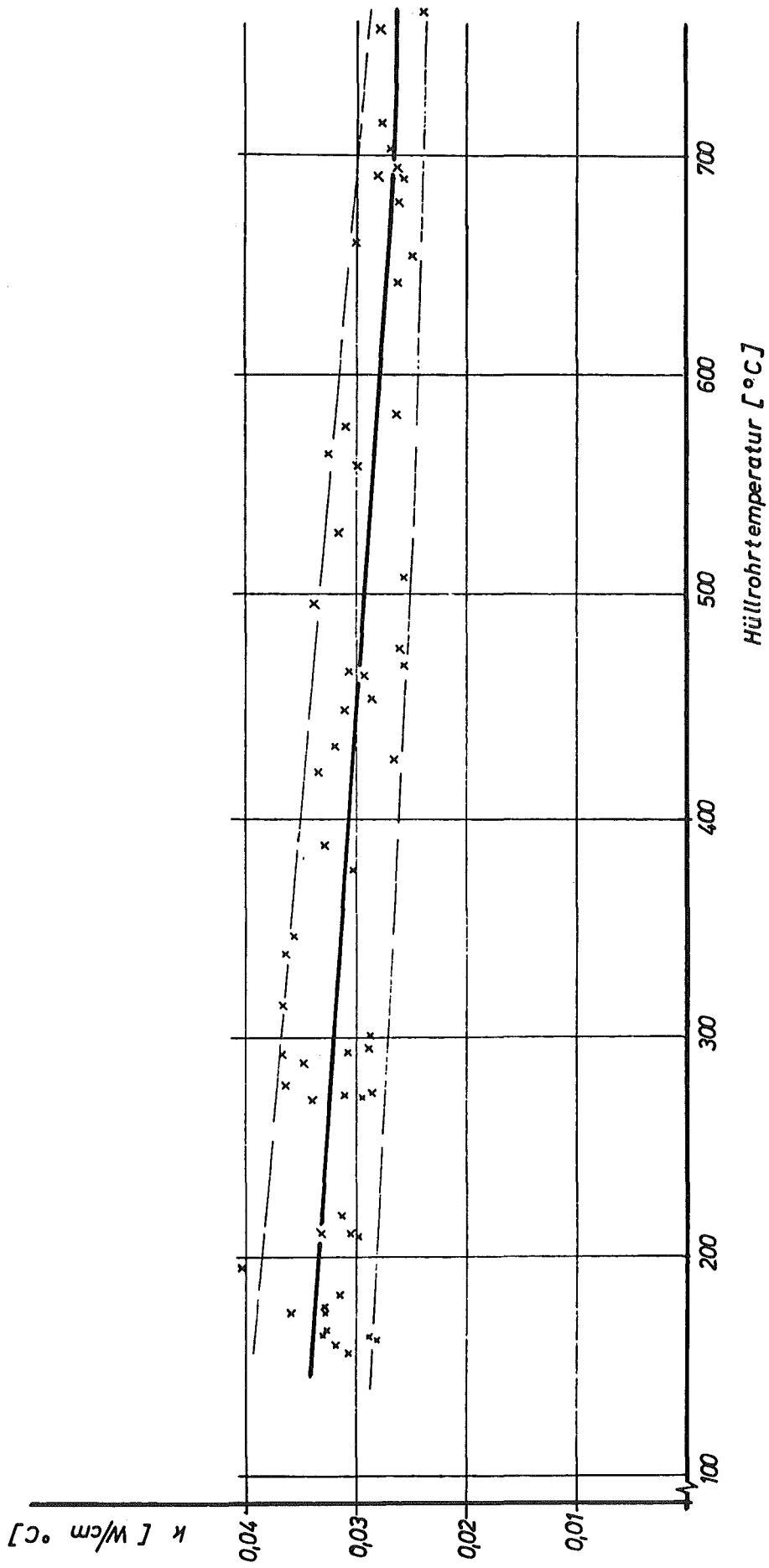
Da nach Angaben des Heizstabherstellers bei einer Betriebsdauer von weniger als 300 Stunden eine Stromleitertemperatur von 1100°C zulässig ist, kann aus dem Versuchsergebnis geschlossen werden, daß im Flutversuch Hüllrohrtemperaturen von 950°C und kurzzeitig von 1000°C bei ausreichender Standzeit erreicht werden dürfen.

Für die erste Versuchsanordnung wurden 20 Heizstäbe bestellt, die baugleich sind mit den Heizstäben des Vorhabens RS 36/1 der KWU, Erlangen. Für die Blockagekonfigurationen erfolgte eine Vorauswahl und ein Konstruktionsentwurf für die Befestigung auf den Stäben. Es wird die Anfertigung eines Musters und die Prüfung des thermischen Kontaktes zwischen Brennstab und Blockage und des Betriebsverhaltens der Verbindung in einem Vorversuch folgen.

4. Auswahl und Vorprüfung geeigneter Meß- und Beobachtungsverfahren

Es wurde eine Anordnung aus zwei Heizstäben in einem rechteckigen Kanal, mit Wasserzulauf am unteren Ende und freier Dampfabströmung oben, aufgebaut. In die Kanalwand wurden an gegenüberliegenden Positionen zwei

Abb. 4239-2 Wärmedurchgangszahl zwischen Stromleiter u. Hülle
des Flutheizstabes WR 110



Fenster eingebaut, so daß die Beobachtung der Zweiphasenströmung mit Photo- und Hochgeschwindigkeitskamera, mit Auflicht und Durchlicht, geprüft werden kann. Diese Vorversuche, die im Juli beginnen, sollen auch Auskunft über die chemische und Temperaturwechsel-Beständigkeit der verwendeten Gläser geben.

Es wurde eine Anzahl von Temperaturmeßstellen mit dünnen Mantelthermoelementen vorgesehen, die in die Kühlmittelströmung ragen und an deren Signal geprüft werden soll, ob durch Kreuzkorrelation auf die Kühlmittelgeschwindigkeit geschlossen werden kann.

5. Bereitstellung von Rechenverfahren für die Auslegung und für die Auswertung der Meßergebnisse

Mit dem Programm RELAX wurde eine Reihe von instationären Rechnungen durchgeführt, um die Verläufe der Hüllrohrtemperaturen von Brennstab und Heizstab während der Flutphase zu vergleichen. Dabei wurden die Unterschiede im thermischen Verhalten qualitativ deutlich, es zeigte sich aber, daß eine allgemeingültige Aussage über die Temperaturunterschiede, die sich an den Hüllen von Brennstab und Heizstab ergeben, nicht möglich ist, so daß keine allgemeine Aussage über die Simulationsqualität gemacht werden kann. Es wird vielmehr erforderlich sein, mit den Randbedingungen typischer Versuchsverläufe Brennstabrechnungen durchzuführen, um so durch einen Vergleich mit den gemessenen oder auch berechneten Heizstabtemperaturen zu einer vergleichenden Aussage im Einzelfall zu kommen.

- 4240 Coreschmelzen von LWR.
- 4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO_2 -Zirkaloy-Brennstäben bei versagender Notkühlung
(S.Hagen, A.Grünhagen, A.Mack, H.Malaushek, K.Wallenfels, RBT)

Das Ziel der durchzuführenden Experimente ist die Untersuchung des Abschmelzverhaltens der Brennelemente von Leichtwasserreaktoren in Wasserdampf Atmosphäre. Im ersten Untersuchungsabschnitt sollen die dort vorliegenden Verhältnisse durch das Aufheizen eines in Wasserdampf voroxidierten Einzelstabes in Schutzgas simuliert werden. Zur Durchführung dieser Aufgabe wurden im 1. Halbjahr 1974 folgende Arbeiten durchgeführt:

1. Aufbau eines Versuchskessels
2. Aufbau des Brennstabsimulators
3. Rechnungen zum Verhalten des Brennstabsimulators
4. Durchführung erster Versuche

1. Aufbau des Versuchskessels

Um möglichst schnell mit den Experimenten zum Abschmelzverhalten beginnen zu können, erfolgt der Aufbau des Versuchskessels in 2 Stufen. Die erste Ausbaustufe stellt den Umbau eines vorhandenen Kessels dar, in dem die Versuche an voroxidierten Einzelstäben unter Schutzgas durchgeführt werden können. Parallel zu diesen Arbeiten wurde mit der Konstruktion eines Druckkessels begonnen, der es erlaubt, Versuche an Brennstabbündeln unter Wasserdampf durchzuführen. Der erste Kessel, auf den sich die folgenden Ausführungen beziehen, konnte im Berichtszeitraum aufgebaut, an die Versorgungsaggregate (Strom, Vakuum, Schutzgas, Kühlung) angeschlossen und erfolgreich auf seine Funktionsfähigkeit erprobt werden.

Der experimentelle Aufbau ist in den Abbildungen 1A - 1F wiedergegeben. Der zylinderförmige Kessel (1A, 1B) hat einen Innendurchmesser von 50 cm und eine Höhe von 70 cm. Alle Versorgungsleitungen befinden sich im unteren Teil des Kessels, so daß das Oberteil abgehoben werden kann (1D) und die Einspannvorrichtung des Brennstabsimulators gut zugänglich wird. In der Einspannvorrichtung (1E, 1F, 1G) können Brennstabsimulatoren bis zu einer Länge von 50 cm gehalten werden. Beide Kupferelektroden sowie der senkrechte zylinderförmige Kupferstab für die Variation der Höhe der oberen Elektrode können ebenso wie die Stromdurchführungen (2 für den Stab, 2 für den Strahlenschirm) und Wandungen an ein Kühlwassersystem angeschlossen werden. Die untere Elektrode ist in axialer Richtung elastisch verschiebbar angeordnet und kann so die Ausdehnung des Stabes beim Erwärmen aufnehmen.

Für die Spannungsversorgung steht ein Hochstromtransformator zur Verfügung, der Ströme bis zu 1500 Amp bei 80 Volt liefern kann. (Hintergrund Abb. 1A). Der Kessel ist bei den Abschmelzversuchen gegen die Umgebung durch ein Absolutfilter (1B) getrennt.

Zwei um 90° gegeneinander versetzte Fenster ermöglichen die Verwendung eines Pyrometers und einer Filmkamera für die Temperaturmessung bzw. für die kinematographische Registrierung des Abschmelzvorganges. Die Abb. 1A und 1B zeigen die Verwendung eines Pyrometers der Firma Schmidt mit Lichtleiter und einer 16 mm-Kamera bei der Untersuchung eines verhältnismäßig kurzen Stabes. (Das Leuchten tritt nur im unteren Bereich der Fenster auf).

2. Aufbau des Brennstabsimulators

Nach den im vorigen Halbjahresbericht getroffenen Überlegungen und Rechnungen hat der Brennstabsimulator die radialen Dimensionen eines Druckwasserbrennstabes. Die UO_2 -Pellets sind Ringpellets die von einem zentralen Wolframstab

von 6 mm Durchmesser beheizt werden. Wolframstäbe, Ringpellets und Zirkaloy-4-Hüllrohre sind im Berichtszeitraum bestellt worden. Die Wolframstäbe und die Hüllrohre sind bereits geliefert. Die Lieferung der Ringpellets erfolgt im Monat Juli.

Aus einer Vorlieferung konnte mit dem Aufbau eines kürzeren Probestabes begonnen werden. Der Abschmelzversuch mit diesem Stab ist in Abschnitt 4 besprochen.

Die Abb. 6A und 6B zeigen die Einzelteile des Brennstabsimulators. Auf der Abb. 6A sieht man außer dem Wolframstab, den aufgeschobenen Ringpellets und der Zirkaloyhülle noch die Endstücke aus Kupfer und Isolierstücke aus Bornitrid. Die Isolierstücke sollen gleichzeitig den Endverschluß zwischen Heizstab und Hülle bilden.

Die Endstücke aus Kupfer haben die Aufgabe, den Temperaturanstieg am Ende des Stabes im Bereich der Isolierschicht geringer zu halten, da an einem reinen Wolframstab der Temperaturanstieg über wenige Zentimeter erfolgt. Den Einfluß von Kupferendstücken zeigt die Abb. 2.

Diese Rechnungen wurden mit Hilfe des RELAX-Programmes durchgeführt. Der experimentell bestätigte flache Verlauf im mittleren Bereich und der steile Abfall an den Enden wird durch die hier vorliegenden Kühlverhältnisse bewirkt, bei denen der Hauptanteil der Wärme durch Strahlung und nur ein geringer Anteil durch Leitung über die Stabenden abgeführt wird.

3. Rechnungen zum Verhalten des Brennstabsimulators

Der im vorigen Abschnitt erwähnte hohe Anteil an abgestrahlter Energie bewirkt bei einem freistehenden Einzelstab, bei dem diese Abstrahlungsverluste nicht durch Einstrahlungsgewinne von umgebenden Stäben kompensiert werden, einen relativ steilen radialen Temperaturgradienten. Dieser ist notwendig, um die abgestrahlte Energie vom Erzeugungsort im Wolframheizer zur abstrahlenden Zirkaloyhülle zu transportieren.

In Abb. 5 zeigen die punktierten Kurven den radialen Temperaturverlauf für einen freistehenden Brennstabsimulator, der mit zunehmender Hülltemperatur stetig steiler wird. Die Abstrahlungsverluste des Stabes können durch die Verwendung von Strahlenschirmen verkleinert werden. Die gestrichelte Linien in Abb. 5 stellen die Temperaturverläufe mit einem Strahlenschirm dar und die dünn ausgezogenen Linien geben den Verlauf bei Verwendung von 4 Strahlenschirmen wieder. Die Form der zu verwendenden Strahlenschirme ist aus Abb. 10 zu ersehen.

Die Rechnungen machen deutlich, daß durch Verwendung der Strahlenschirme der Temperaturgradient um so kleiner wird, je besser die Strahlungsverluste kompensiert werden können. Aber auch mit vier Strahlenschirmen treten bei den uns interessierenden Hülltemperaturen noch radiale Temperaturdifferenzen um 500°C auf.

Um die Temperaturdifferenz weiter zu erniedrigen und damit den Verhältnissen im Reaktor anzupassen, muß die rückgestrahlte Energie weiter erhöht werden. Dazu kann der Strahlenschirm geheizt werden. Die stark ausgezogenen Temperaturverläufe sind bei unterschiedlicher Verteilung der Heizleistung berechnet worden. Wie die Kurven zeigen, kann der Temperaturverlauf bis zum verschwindenden Gradienten beeinflusst werden und ermöglicht so die Einstellung des gewünschten Temperaturprofils.

Einen wesentlichen Einfluß auf das Abschmelzverhalten des Stabes im Wasserdampf wird der Verlauf der Zirkon-Wasserdampf-Reaktion haben, da das entstehende Zirkonoxid den Stab in einer festen Schicht umgibt. Die Reaktionstiefe hängt hierbei nicht nur von der Zeit und Temperatur, sondern auch vom Zeitverhalten der Temperatur ab. Es wurde daher nach der Baker-Just-Beziehung / 1 / die Dicke der reagierten Schicht für verschiedene Temperaturanstiegsraten von $0,5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ bis $10^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ berechnet.

Die Abb. 3 und 9 zeigen die Abhängigkeit der reagierten Zirkonmenge von der Zeit und von der Temperatur.

Der geringe Abstand der Kurven in Abb. 4 zeigt, daß der wesentliche Faktor die erreichte Temperatur ist. Auf der anderen Seite sieht man aber auch aus Abb. 4, daß die Anstiegsgeschwindigkeit der Temperatur einen wesentlichen Einfluß auf die Stärke der Oxidschicht beim Erreichen der Schmelztemperatur hat. Bei 0,5 C/sec ist die Hülle vollkommen durchoxidiert, während bei 10 C/sec die Hülle nur ca. 20 % oxidiert ist.

4. Durchführung der ersten Versuche

Der erste Abschmelzversuch in dem oben beschriebenen Kessel wurde an einem Stab mit einer Pelletsäule von 22 cm durchgeführt. Die Einzelteile des Stabes vor dem Zusammenbau zeigen die Abb. 6A und 6B. Für diesen Versuch wurde ein nichtoxidiertes Hüllrohr verwendet. Die Leistung im Stab wurde so gesteigert daß die Temperatur mit 0.5 C/sec anstieg. Beim Abschmelzen, das bei einer Temperaturanzeige des Pyrometers von 1870°C für die Oberfläche des Zirkalloys erfolgte, betrug die Heizleistung ca. 300 W/cm.

Den abgeschmolzenen Stab zeigen die Abb. 6C und 6D. Bemerkenswert ist die Tatsache, daß bei der herrschenden Hülltemperatur nicht nur die Zirkaloy-Hülle, sondern auch schon die UO₂-Pellets abgeschmolzen sind. Der sichtbare Abschmelzvorgang erfolgte innerhalb sehr kurzer Zeit (ca. 1 sec). Da die metallurgische Untersuchung des Stabes noch nicht abgeschlossen ist, kann über die Wechselwirkung der Komponenten keine Aussage getroffen werden. Es ist aber zu vermuten, daß eine starke Eutektikabildung der beiden Komponenten die Versagenstemperatur des UO₂ so stark gesenkt hat. Die hautähnliche Struktur im oberen Bereich des Stabes zeigt die Neigung des Zirkalloys zur Bildung eines festen Zirkonoxidmantels. Bei diesem Versuch stand der Sauerstoff in der Restverunreinigung zur Verfügung.

Die Neigung des Systems UO_2 -Zirkaloy zu starker Wechselwirkung haben wir auch schon bei Vorversuchen gefunden, bei denen beide Materialien noch im festen Zustand vorlagen (Hülltemperatur 1600°C). Die Abb. 7A bis 7C zeigen das Schliffbild dieses Stabes (7A) und Vergrößerungen der Hülle (7B) und des UO_2 (7C) in der Nähe des Wolframheizstabes (2 mm Durchmesser). Man findet Einschlüsse von UO_2 in der Hülle (graue Verästlungen im weißen Bereich) und Einschlüsse von Zirkaloy im UO_2 (weiße Flächen im grauen Untergrund), wie Mikrosondenuntersuchungen dieser Bereiche zeigten. Diese Vermischung der Materialien durch Verdampfen und Diffusion wird mit zunehmender Temperatur stark ansteigen.

Literatur

- / 1 / Baker L.; Just, L.C.: Studies of Metal-Water Reactions at High Temperatures. ANL 6548 (1962).

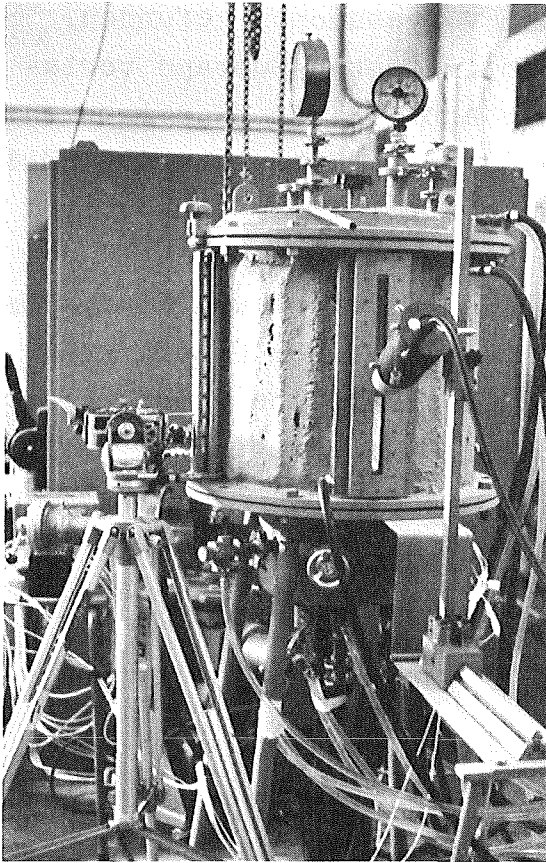


Abb. 4241 - 1A

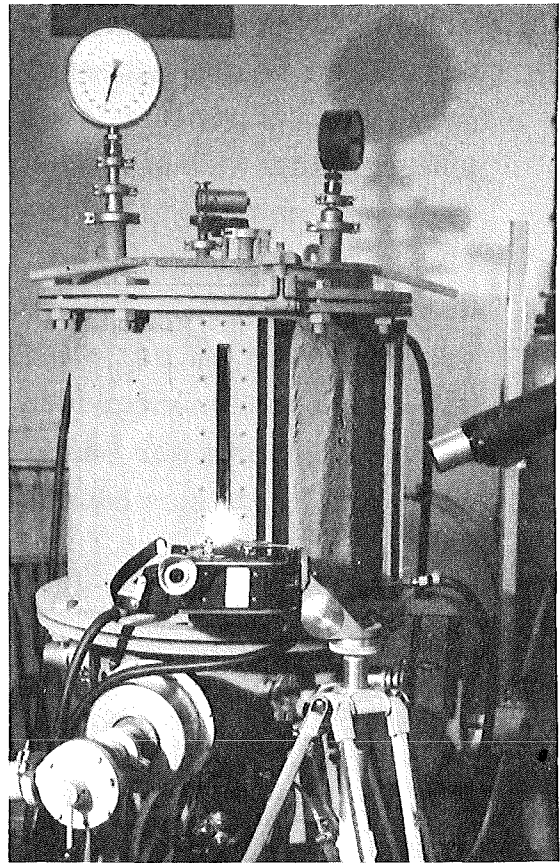


Abb. 4241 - 1B

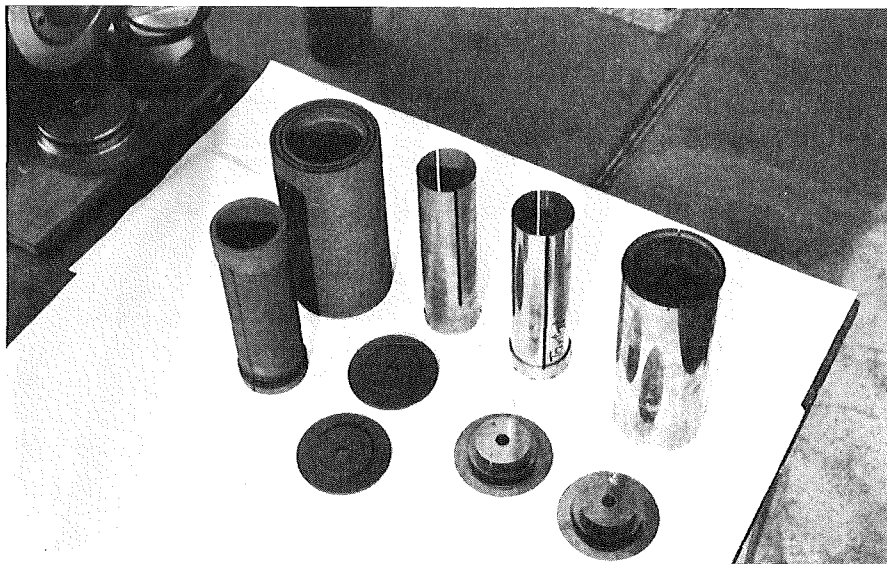


Abb. 4241 - 1C

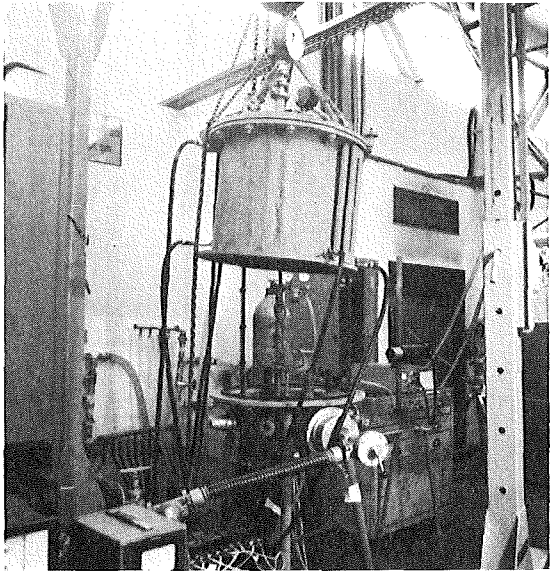


Abb. 4241 - 1D

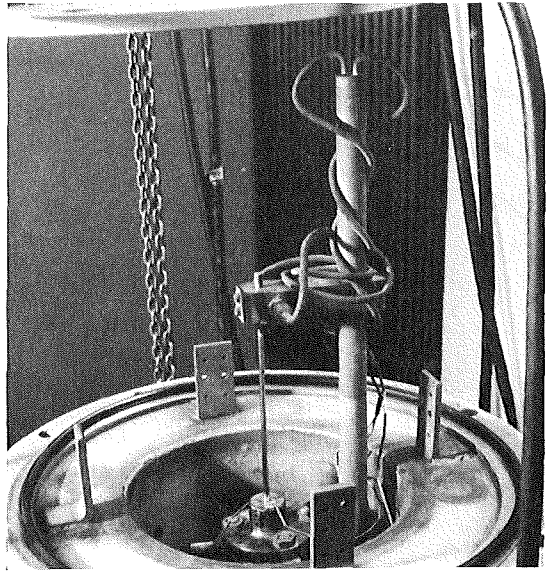


Abb: 4241 - 1E

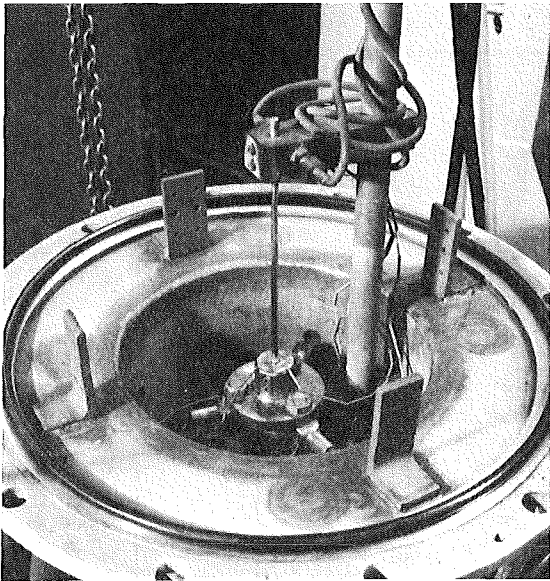


Abb. 4241 - 1F

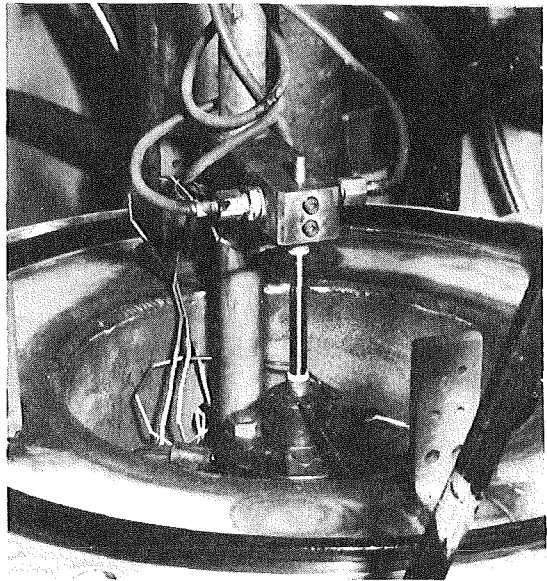


Abb. 4241 - 1G

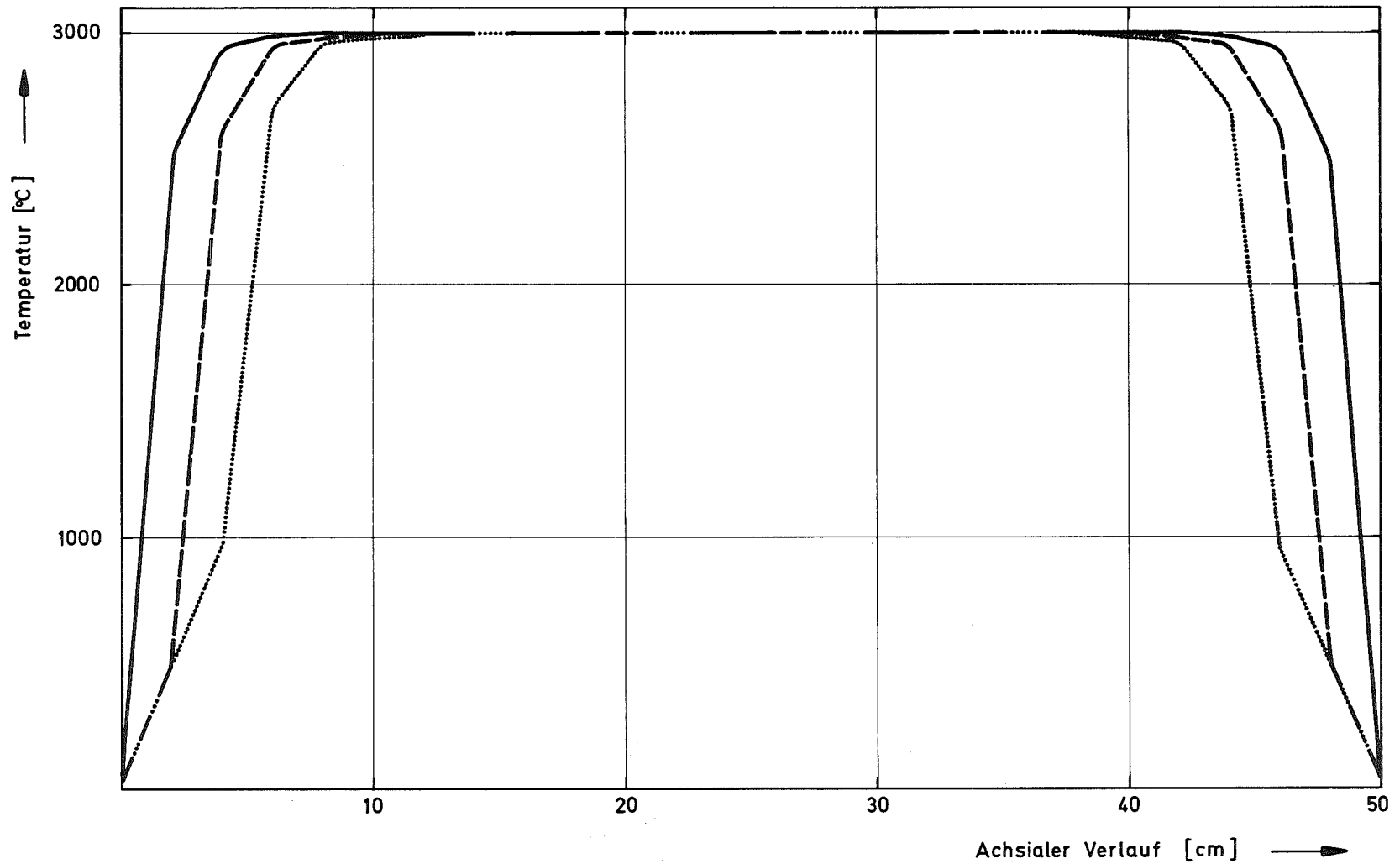


Abb. 4241 - 2

Axialer Temperaturverlauf 1) in einem 50 cm langen Wolframstab von 6 cm Durchmesser (———) ;
 2) an beiden Enden sind 2 cm Wolfram durch einen Kupferstab von 8 cm Durchmesser ersetzt (- - - -) ;
 3) an beiden Enden sind 4 cm Wolfram durch einen Kupferstab von 8 cm Durchmesser ersetzt (. . .) ;
 Die Temperatur der Einspannvorrichtung wird zu 20⁰ C angenommen.

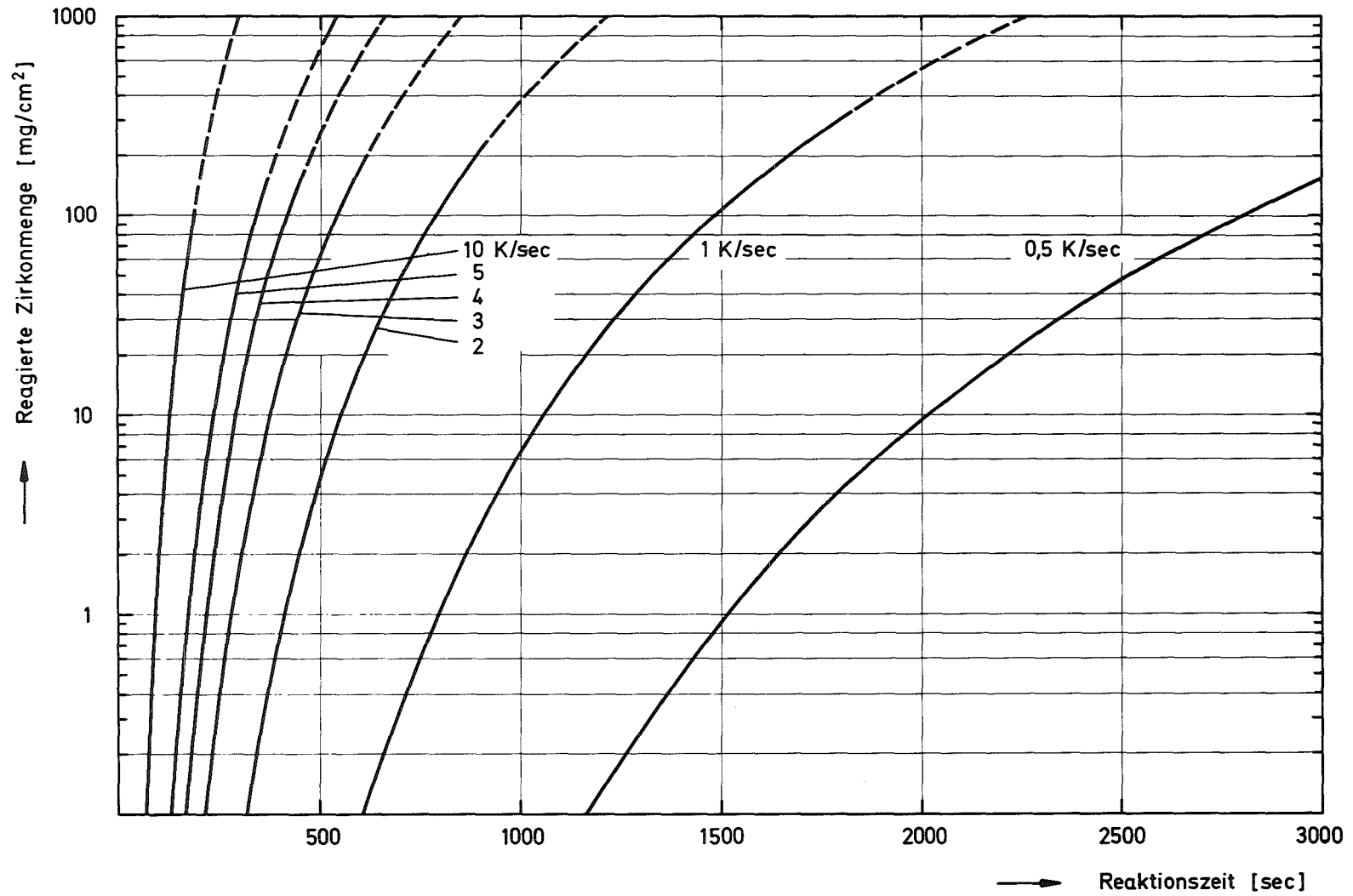


Abb. 4241 - 3

Verlauf der Zirkon-Wasserdampfreaktion in Abhängigkeit von der Zeit bei verschiedenen Anstiegsgeschwindigkeiten der Temperatur. Anfangstemperatur = 293° K. (—) : Verlauf im festem Zirkon. (- - -) : Fortsetzung des Reaktionsverlaufs unter der Annahme, daß die Baker-Just-Beziehung auch über der Schmelztemperatur noch gültig ist.

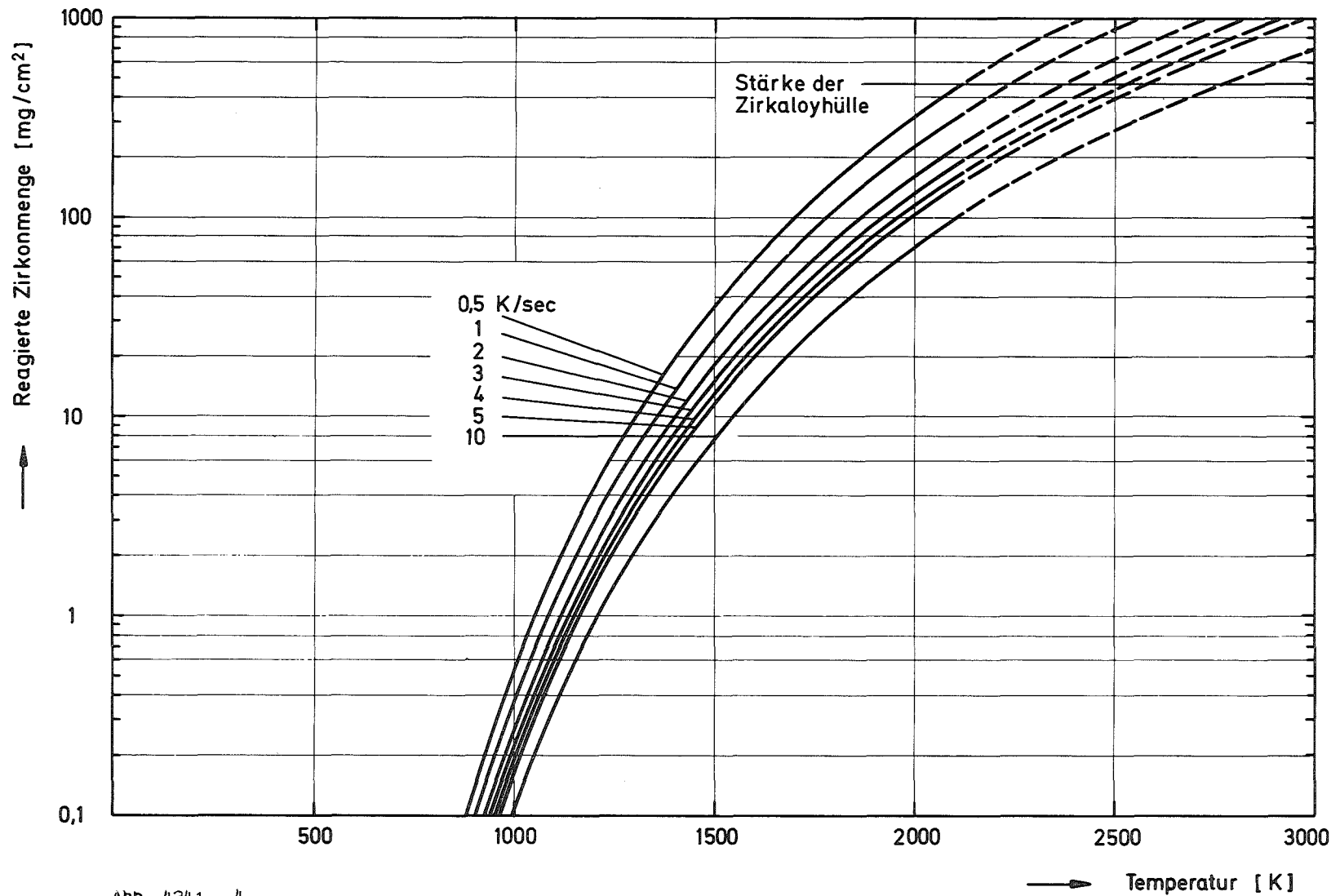
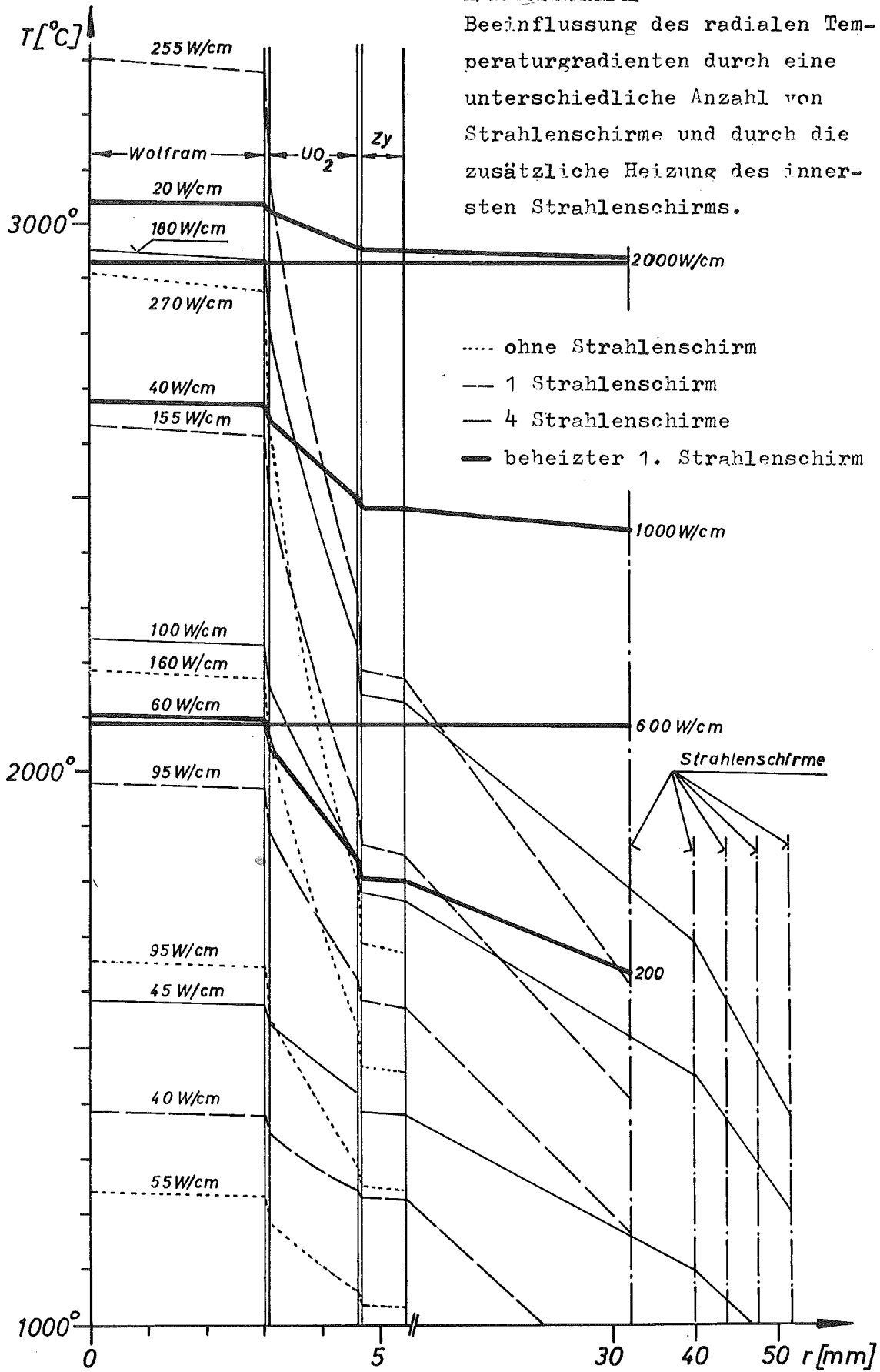


Abb. 4241 - 4

Verlauf der Zirkon-Wasserdampfreaktion in Abhängigkeit von der Temperatur bei verschiedenen Anstiegs-
geschwindigkeiten der Temperatur. (—) : Verlauf im festen Zirkon. (- - -) : Fortsetzung des Reak-
tionsverlaufs unter der Annahme, daß die Baker-Just-Beziehung auch oberhalb der Schmelztemperatur noch
gültig ist.

Abb. 4241 - 5

Beeinflussung des radialen Temperaturgradienten durch eine unterschiedliche Anzahl von Strahlenschirme und durch die zusätzliche Heizung des innersten Strahlenschirms.



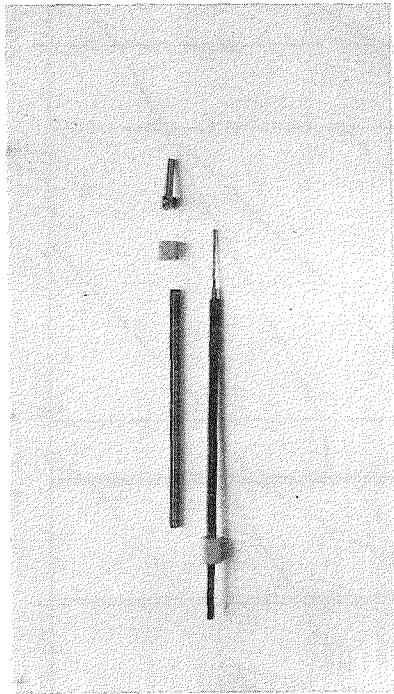


Abb. 4241 - 6A

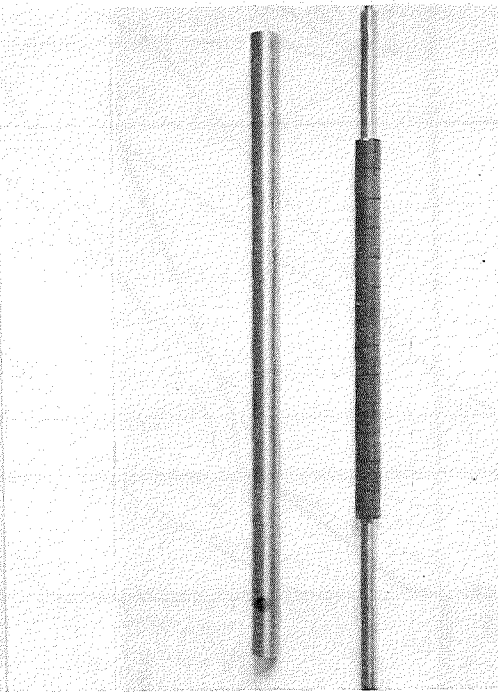


Abb. 4241 - 6B

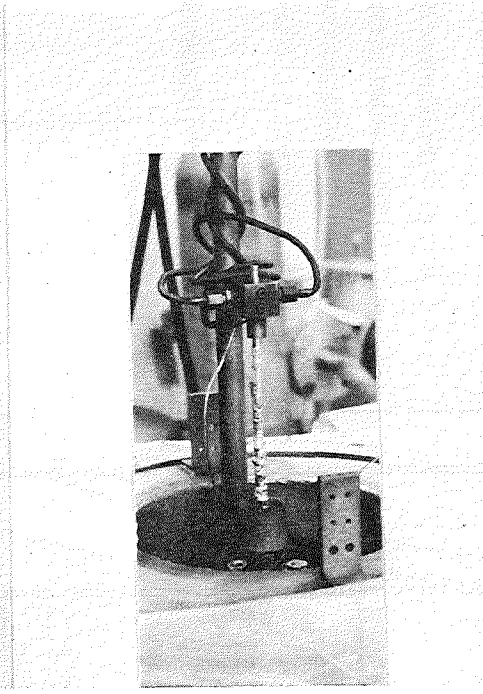


Abb. 4241 - 6C

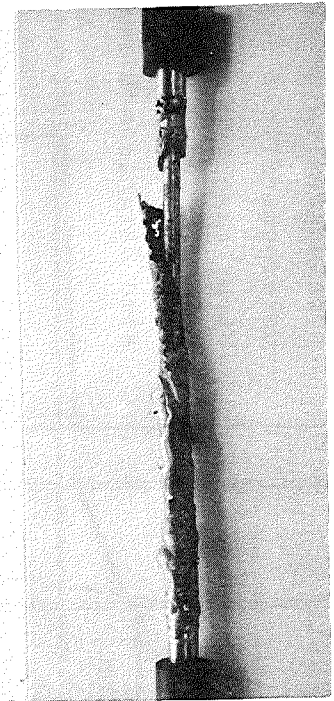


Abb. 4241 - 6D

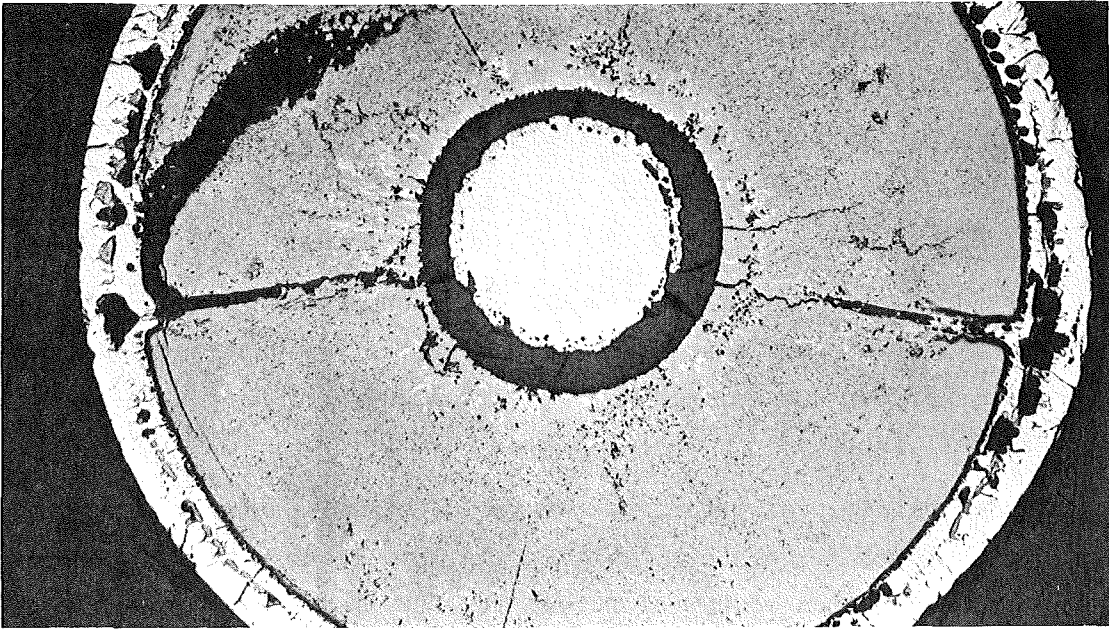


Abb. 4241 - 7A

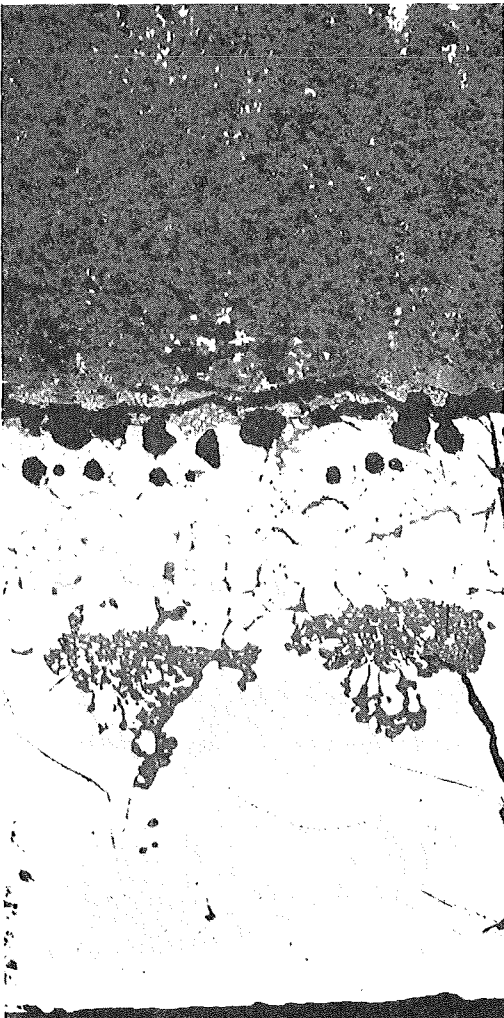


Abb. 4241 - 7B

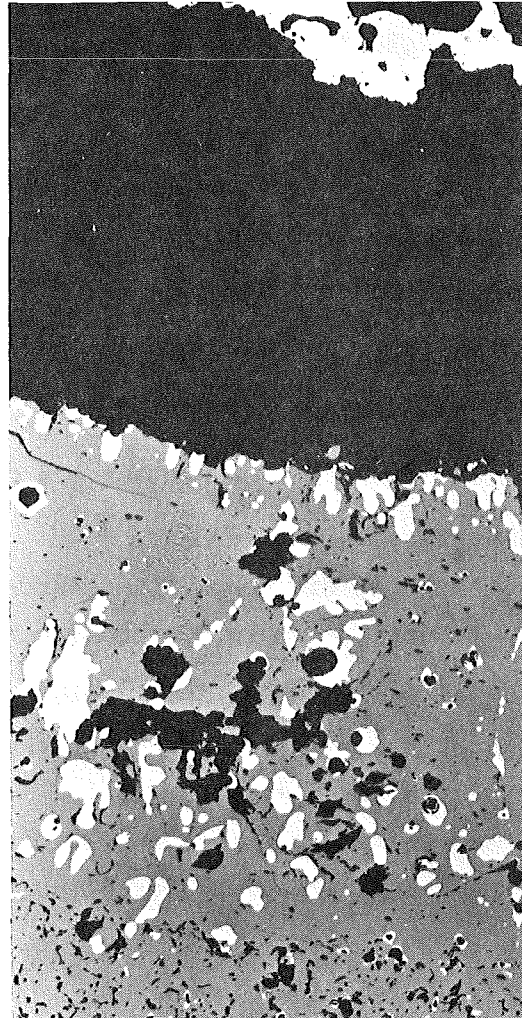


Abb. 4241 - 7C

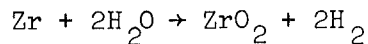
4242 Untersuchungen zur Wasserstoffbildung und -Rekombination
beim LWR-Coreschmelzen
(S. Dorner, K. Schretzmann, INR)

1. Einleitung

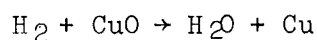
Es wurde gezeigt, daß neben der Inertisierung der Räume innerhalb der Sicherheitshülle auch die Rekombination des Wasserstoffs ein möglicher Weg zur Vermeidung eines Knallgasgemisches nach einem Störfall ist.

Kupfer bildet zwei Oxide, das Kupfer-I-Oxid (Kupferoxydul) und das Kupfer-II-Oxid. Beim Erhitzen von metallischem Kupfer an der Luft bildet sich schwarzes Pulver von CuO. Bei Anwesenheit reduzierender Substanzen gibt es seinen Sauerstoff schon unterhalb 250°C leicht ab und geht in metallisches Kupfer über. Der Sauerstoffanteil bei CuO beträgt 22,6 %. Er ist höher als der von Cu₂O (12,58 %). Daher eignet sich CuO besser für eine Rekombination von H₂.

Bei der Rekombination des beim LWR-Störfall freigesetzten Wasserstoffs über Kupferoxid geht man von der Vorstellung eines Kreisprozesses aus. D. h. der durch die Reaktion



entstehende Wasserstoff soll durch Reduktion des Kupferoxids nach



rekombiniert werden.

Um über die Rekombinationsmöglichkeit eine Aussage machen zu können, müssen folgende Punkte diskutiert werden:

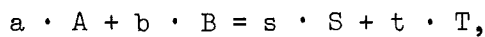
- a) Das chemische Gleichgewicht im System H₂ und CuO,
- b) Die Reaktionsgeschwindigkeit in diesem System in Abhängigkeit von
 - der Temperatur
 - dem Druck und
 - dem Mischungsverhältnis.

2. Das chemische Gleichgewicht im System H₂ und CuO

Das chemische Gleichgewicht ist durch die Gleichgewichtskonstante K der Reduktionsgleichung gegeben. Die Gleichgewichtskonstante K_p (bei konstantem Druck) läßt sich aus der freien Bildungsenthalpie bestimmen. Andererseits läßt sich aus der experimentell ermittelten Gleichgewichtskonstanten die freie Bildungsenthalpie ΔG bestimmen.

$$\Delta G = \Delta G^{\circ} + R \cdot T \cdot \ln \left[\frac{S^s \cdot T^t}{A^a \cdot B^b} \right]$$

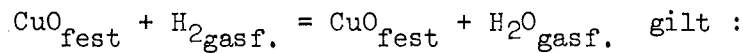
Darin bedeuten A, B, S, T die reagierenden Stoffe und a, b, s, t deren Konzentrationen. Im Gleichgewicht einer Reaktion



deren Stoffe im Normalzustand vorliegen, wird ΔG = 0. Daraus folgt im Gleichgewicht

$$\Delta G^{\circ} = -RT \cdot \ln \left[\frac{S^s \cdot T^t}{A^a \cdot B^b} \right]$$

Im Falle der CuO-Reduktion



$$\Delta G^{\circ} = \Delta G_{\text{H}_2\text{O}} - \Delta G_{\text{CuO}} = -RT \cdot \ln \frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{p_{\text{H}_2}}$$

Darin wurden die molaren Konzentrationen der Komponenten durch ihre Partialdrucke ersetzt.

In der folgenden Tabelle sind die errechneten Gleichgewichtskonstanten für den Temperaturbereich von Raumtemperatur bis 1.327°C aufgenommen. Daraus ist zu ersehen, daß in der Gasphase beim Gleichgewicht der H₂O-Dampfanteil um mehrere Zehnerpotenzen höher ist als der Anteil des Wasserstoffs. Daraus folgt, daß die Reduktionsgleichung vollständig von links nach rechts abläuft. Diese Feststellung wird auch durch Korrosionsversuche an Kupfer in Wasserdampf bestätigt.

3. Kinetik der Reduktion von CuO mit Wasserstoff

Um das CuO als Wasserstoffrekombinationsmittel verwenden zu können, muß die Reduktion des CuO schnell verlaufen. Der durch die Metall-

Berechnetes Verhältnis p_{H_2O}/p_{H_2} im System $CuO = Cu + H_2O$

Temperatur		ΔG_{H_2O}	ΔG_{CuO}	$\Delta G_{H_2O} - \Delta G_{CuO}$	$\frac{\Delta G_{H_2O} - \Delta G_{CuO}}{1,9869 \cdot T}$	$\frac{p_{H_2O}}{p_{H_2}} = K$
$^{\circ}K$	$^{\circ}C$	kcal/Mol	kcal/Mol		$= \ln \frac{p_{H_2O}}{p_{H_2}}$	
298	25	-56,720	-30,850	-25,870	43,69	$9,45 \cdot 10^{18}$
400	127	-53,350	-28,600	24,750	31,14	$3,35 \cdot 10^{13}$
500	227	-52,150	-26,450	25,700	25,87	$1,72 \cdot 10^{11}$
700	427	-49,600	-22,200	27,400	19,70	$3,56 \cdot 10^8$
900	627	-46,800	-18,100	28,700	16,05	$9,34 \cdot 10^6$
1000	727	-45,800	-16,050	29,750	14,97	$3,18 \cdot 10^6$
1200	927	-42,900	-12,150	30,750	12,90	$3,99 \cdot 10^5$
1400	1127	-40,000	- 8,500	31,500	11,32	$8,28 \cdot 10^4$
1600	1327	-37,350	- 4,300	33,050	10,40	$3,27 \cdot 10^4$

Wasser-Reaktion im Core-Bereich erzeugte Wasserstoff muß möglichst schnell wieder rekombinieren, so daß eine Wasserstoff-Luft-Explosion in Räumen innerhalb der Sicherheitshülle nicht möglich ist. Der sichtbare Reduktionsbeginn von CuO durch H₂ in Abhängigkeit von der Temperatur hängt von der Vorgeschichte der Darstellung des CuO ab. So ist festgestellt, daß gefälltes und bei 130°C getrocknetes CuO bereits bei 85°C - dagegen geglühtes CuO erst bei 175°C - reduziert wird. Im Handel erhältliches Kupferoxid-Pulver wird erst bei 194°C reduziert. Die Reduktion kann zuweilen sogar erst bei noch höheren Temperaturen erfolgen, so z. B. in Anwesenheit von N₂. Mahlen, Säurebehandlung und schnelle Abkühlung aktivieren das CuO, dagegen bewirken UV-Licht und langsame Kühlung eine Alterung. Die Reduktion wird sehr beschleunigt und ist schon bei Raumtemperatur zu beobachten, wenn das gebildete H₂O durch geeignete Mittel absorbiert wird (z. B. BaO, Ca Cl₂, P₂O₅).

Manche Autoren halten es für möglich, daß bei der Reduktion von CuO ein autokatalytischer Effekt auftritt. Danach soll bei der Reduktion von CuO das zuerst reduzierte metallische Kupfer den Reduktionsablauf beschleunigen. Die Zeit bis zur Bildung der roten Flecken von metallischem Kupfer, die als Katalysator wirken, nennt man Inkubationszeit. Sie ist sehr stark temperaturabhängig und beruht teilweise auf der Wasserdampfadsorption. Bei 200°C ist diese praktisch nicht mehr vorhanden.

J. S. Lewis [1] zeigt aber, daß die Reduktion von CuO im geschlossenen System ohne Inkubation einsetzt, wenn die Oberfläche des Oxids frei von adsorbierten Gasen ist. Die Reduktion tritt sofort mit maximaler Geschwindigkeit auf.

4. Transport des Wasserstoffs und Sauerstoffs in Kupfer

Bereits früher wurde vorgeschlagen, das CuO als Aerosol beim Störfall in das Containment freizusetzen, um dem H₂ eine möglichst große Reaktionsfläche anzubieten [2]. Die noch zulässige Partikelgröße kann mit Hilfe der Diffusionsgeschwindigkeit des H₂ in Cu abgeschätzt werden.

Geht man von dem Diffusionskoeffizienten für Wasserstoff in Kupfer

$$D = 1,06 \cdot 10^{-2} \cdot \exp \left[-9180 \text{ cal} \cdot \text{mol}^{-1} / RT \right] \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$$

und

$$x^2 = 2 \cdot D \cdot t$$

aus, so errechnet sich die Zeit für eine Eindringtiefe x von $5 \mu\text{m}$ bei 300°C zu $t = 0,0367 \text{ s}$.

Bei 150°C würde die Zeit $t = 0,653 \text{ s}$ betragen.

Es ist zu prüfen, ob die Herausdiffusion des Sauerstoffs aus den CuO-Partikeln nicht schneller erfolgt als das Hineindiffundieren des Wasserstoffs. Die Rekombination würde dabei an der Oberfläche des CuO erfolgen. Der Diffusionskoeffizient des Sauerstoffs in Kupfer beträgt im Temperaturbereich $800^\circ\text{C} - 1.030^\circ\text{C}$:

$$D = 1,7 \cdot 10^{-2} \exp \left[-1600 / RT \right] \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$$

Daraus errechnet sich für 800°C

$$D_{800^\circ\text{C}} = 9,36 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$$

Der Diffusionskoeffizient für O in Cu-Einkristallen im Bereich von $800^\circ\text{C} - 1000^\circ\text{C}$ beträgt $D_{800^\circ\text{C}} = 5,139 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$.

Bei tieferen Temperaturen ist die Diffusion und Löslichkeit von Sauerstoff in Cu-Einkristallen entsprechend geringer.

5. Vorläufige Schlußfolgerung

Es wurde gezeigt, daß die Rekombination von H_2 mit CuO grundsätzlich möglich ist. Das zeigen die Untersuchungen des chemischen Gleichgewichtes und der Reaktionskinetik. Die Rekombinationsgeschwindigkeit wird durch die Diffusion des H_2 in CuO bestimmt.

Die Betrachtungen zur Diffusionsgeschwindigkeit zeigen, daß die CuO-Partikel zur Rekombination eine technisch realisierbare (Pulverisierung) Größe besitzen dürfen, z. B. $10 \mu\text{m}$.

Die hier angestellten Überlegungen setzen voraus, daß der Wasserstoff mit der Oberfläche der CuO-Partikeln bereits in Kontakt ist. Inwieweit hierfür durch technische Maßnahmen gesorgt werden kann, hängt von vielen Parametern ab und muß Gegenstand weiterer Untersuchungen sein.

Literatur

1. J. S. Lewis

The Reduction of Copper Oxide by Hydrogen, Journ. of the Chem. Society 1932, S. 820/6

2. S. Dorner, G. Schumacher

2. Halbjahresbericht 1973, Projekt Nukleare Sicherheit, KFK 1908, S. 138

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen (H. Albrecht, C. Keller, R. Schroerschwarz, U. Wichmann, IRCH; D. Perinic, B. Stuka, A. Mack, H. Knauß, RBT; P. Hofmann, IMF)

1. Schmelzanlage

Im vorhergehenden Halbjahresbericht (1) wurde ein bei der Industrie in Auftrag gegebener Induktionsofen beschrieben, in dem ca. 1 kg schwach vorbestrahltes Corium (UO_2 + Zircaloy + Edelstahl) sowohl unter oxidierender Atmosphäre (Luft bzw. Wasserdampf) als auch unter Schutzgas (Ar) geschmolzen werden kann. In der Zwischenzeit waren mit dem Hersteller noch zahlreiche konstruktive Details zu klären, die vor allem die sicherheitstechnischen Aspekte der Anlage (Schutz gegen Fehlbedienung und unzulässige Betriebszustände) betrafen.

Erste Abnahmeversuche mit der Schmelzanlage sind nun für Ende Juli 1974 bei der Herstellerfirma vorgesehen.

Der Einsatz von schwach aktiven Brennstoffproben und von ThO_2 -Tiegeln bringt es möglicherweise mit sich, daß beim Öffnen des Ofens nach den Schmelzversuchen eine Freisetzung von radioaktiven Stoffen in die Raumluft erfolgt. Daher wurde für den Deckelbereich des Ofens eine Handschuhbox entworfen, die an einen speziell dafür vorgesehenen Ofenflansch dicht angeschlossen wird. Sie erfüllt zugleich den Zweck, eine Personenkontamination bei den Ein- und Ausbaumanipulationen der Schmelzproben zu vermeiden.

Ferner wurden alle konventionellen und radiologischen Aspekte des Anlagenbetriebes in einer ausführlichen Sicherheitsbetrachtung dargestellt und dem Ministerium für Arbeit, Gesundheit und Sozialordnung in Stuttgart zur Genehmigung vorgelegt.

2. Temperatur-Meßtechnik

Zur Temperaturmessung wird ein Quotienten-Pyrometer mit einem strahlungsresistenten Lichtleiter (Typ R1 von Schott) verwendet. Messungen der Fa. G. Schmidt/Hamburg führten zu der Empfehlung, bei diesem Lichtleiter die Werte $\lambda = 557 \text{ nm}$ und $\lambda = 626 \text{ nm}$ als Standard-Wellenlänge zu benutzen.

Die Pyrometeranzeige wird beeinflusst durch selektives Absorptions- und Reflexionsverhalten der Fenstermaterialien im Strahlengang. Kleinere Meßabweichungen werden auch durch die Apertur des Strahlengangs und den Abstand zwischen Objekt und Bild verursacht.

Mit einer Eichmeßstrecke sollen diese Einflüsse erfaßt und simuliert werden. Als Temperaturstrahler dienen dabei 2 geeichte Wolframbandlampen für verschiedene Temperaturbereiche, die mit einer Konstant-Gleichstromquelle betrieben werden. Zum Nachfahren der Eichkurve ist eine empfindliche Strommessung erforderlich. Die Wolframbandlampen können mit Lochblenden, Festermaterialien und Pyrometeroptik auf einer Schiene in der erforderlichen Anordnung zusammengestellt werden.

Bei längeren Messungen mit dem System Bandlampe-Quotientenpyrometer stellten sich Abweichungen von der Langzeitkonstanz heraus, deren Ursache noch nicht zu ermitteln war.

Auch bei der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig zeigten sich Drifterscheinungen des Pyrometers, die jetzt vom Herstellerwerk untersucht werden.

Zur Erleichterung der Temperaturmessung an der Corium-Schmelzanlage wird z.Z. eine Abbildungsoptik entwickelt, die in die Handschuhbox integriert werden kann. Die Optik soll eine Abbildung der Schmelzenoberfläche etwa im Maßstab 1:1 gestatten.

Die Versuche zum Ankopplungsverhalten von Mantelthermoelementen im Induktionsfeld wurden mit folgenden Ergebnissen abgeschlossen;

- a) Thermoelemente, die zwischen dem Schmelztiegel und einem äußeren Schutztiegel angebracht werden (z.B. zur Messung der Außenwandtemperatur des Schmelztiegels, vgl. Abb. 4243-4) erwärmen sich durch die Ankopplung an das HF-Feld so stark, daß im Temperaturbereich von 1500°C eine Meßwertverfälschung von ca. 20 % auftritt.
- b) Thermoelemente, die innerhalb des Schmelztiegels in die Coriumschmelze eintauchen bzw. sich innerhalb eines abschirmenden Metallmantels befinden, werden vom Induktionsfeld nicht beeinflusst und zeigen insofern keine Meßwertverfälschung.

3. Tiegelmaterialuntersuchungen

Zur Untersuchung des Verhaltens verschiedener ThO_2 -Tiegel gegenüber flüssigem Corium wurden Versuche in einem Mittelfrequenz-Induktionsofen unter Schutzgas (600 Torr Argon) durchgeführt. Dabei kamen sowohl hochdichte (ca. 90 % TD) als auch poröse (ca. 75 % TD) ThO_2 -Tiegel der Firma Zircoa zum Einsatz. Der Durchmesser dieser Tiegel betrug 25 mm, die Höhe ca. 50 mm.

Die Aufheizung erfolgte über einen äußeren Grafittiegel, der an die Induktionsspule ankoppelte. Das als Schmelzgut eingesetzte Corium E (2) hatte ein Gewicht von jeweils ca. 30 g.

Beide Tiegelausführungen erwiesen sich als geeignet, flüssiges Corium bei Temperaturen $\approx 2500^{\circ}\text{C}$ zu halten, ohne daß chemische Wechselwirkungen mit dem Tiegelmaterial auftraten.

Beim Abkühlen des erstarrten Coriums kam es bei den dichten Tiegeln jedoch stets zum Bruch, während die porösen Tiegel den Abkühlvorgang ohne Schaden überstanden. Offenbar werden die dichteren Tiegel wegen des unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten des erstarrten Coriums und des ThO_2 zerstört. Wichtig ist aber die Feststellung, daß kein flüssiges Corium aus den zerstörten Tiegeln ausläuft, weil es zunächst zur

Erstarrung der Schmelze kommt.

Das poröse ThO_2 ist anscheinend in der Lage, die beim Abkühlen auftretenden mechanischen Spannungen durch Kriechvorgänge abzubauen. Bei diesen Tiegeln ist allerdings nicht zu vermeiden, daß ein kleiner Teil des flüssigen Coriums in das ThO_2 eindringt (Abb. 4243-1/2); beim dichten ThO_2 ist das nicht der Fall.

Die metallographischen Næchuntersuchungen von Schmelze und Tiegel lassen keine Unverträglichkeitsreaktionen zwischen Corium und ThO_2 erkennen (Abb. 4243-2).

Beim Hochheizen der Coriumproben konnten in allen Fällen folgende Beobachtungen gemacht werden:

- a) Bei ca. 1350°C tritt die erste flüssige Phase auf (Reaktion zwischen Zry-4 und Stahl).
- b) Zwischen 1850° und 1900°C beginnt eine Abdampfung von Corium-Komponenten, hauptsächlich von UO_2 , die mit der Temperatur stark zunimmt. Etwa 30 % (!) des Corium-Gewichtes geht während des Schmelzvorganges durch Abdampfung verloren. Eine exakte pyrometrische Temperaturmessung des Schmelzgutes ist wegen der Bildung von Rauchschwaden nicht möglich.
- c) Oberhalb von 2500°C ist das Corium stets vollständig geschmolzen.
- d) Wird einmal geschmolzenes Corium erneut aufgeheizt, so wird der Schmelzpunkt bereits bei Temperaturen zwischen 1900° und 2000°C erreicht.

Werden die einzelnen Komponenten des Coriums in oxidischer Form eingesetzt (als ZrO_2 , Fe_2O_3 , NiO , Cr_2O_3 , was einem zu 100 % oxidierten Corium entspricht), so bilden sich bei ca. 1400°C die ersten flüssigen Phasen. Bei etwa 1800°C ist das oxidierte Corium vollständig flüssig.

Die Abdampfung ist bei diesen Temperaturen im Vergleich zum Corium-E relativ gering; die chemische Verträglichkeit mit dem ThO_2 -Tiegel ist ebenfalls gut.

Somit hat sich ThO_2 als sehr geeigneter Tiegelwerkstoff für

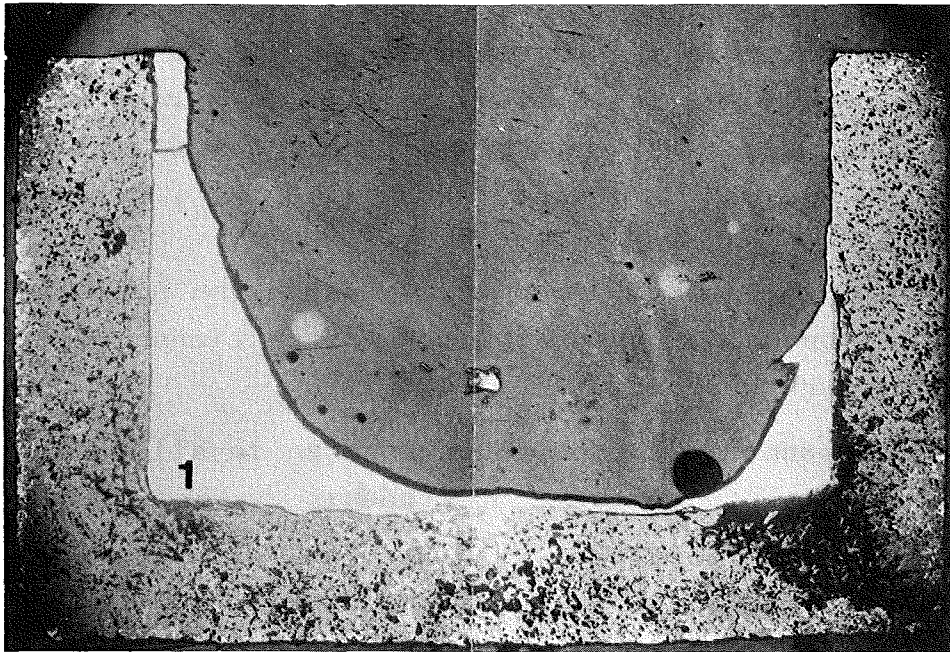


Abb. 4243-1: Längsschliff eines porösen ThO_2 -Tiegels nach einem Schmelzversuch mit Corium E bei ca. 2700°C und einer Haltezeit von 5 min. Etwas flüssiges Corium dringt in das ThO_2 ein. Unverträglichkeitsreaktionen zwischen Tiegel und Schmelzgut finden nicht statt. Der größte Teil des UO_2 ist abgedampft.

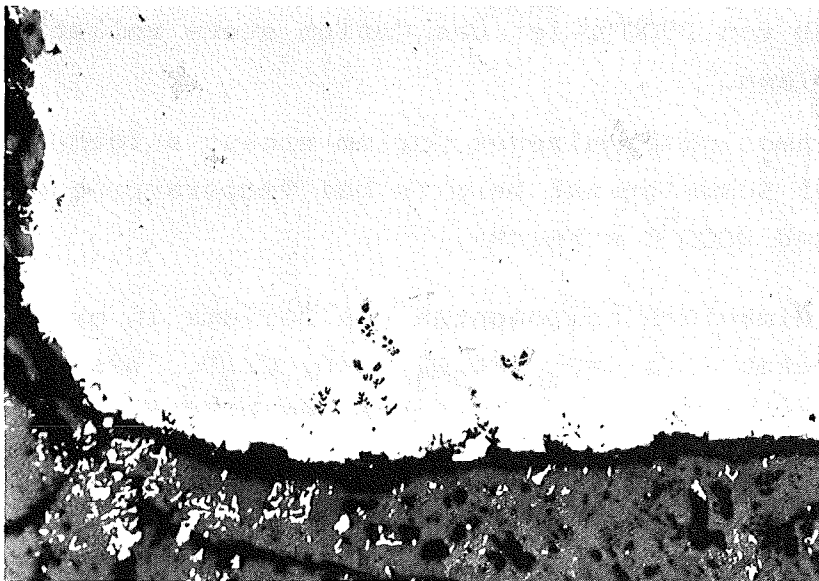


Abb. 4243-2: Detail der Position 1 in der oberen Abbildung. Das erstarrte Corium sieht metallisch aus und enthält verschiedene oxidische Einschlüsse.

das Schmelzen von Corium erwiesen, und zwar - wie die in Abschnitt 4 beschriebenen Versuche zeigen - sowohl für inerte als auch für oxidierende Atmosphäre.

Für die Zukunft sind weitere Experimente mit ThO_2 -Tiegeln und größeren Corium-Einwaagen geplant. Dabei soll auch untersucht werden, ob die starke UO_2 -Verdampfung durch eine andere Tiegelgeometrie beeinflusst werden kann. Die bei den Schmelzvorgängen in flüssigem Corium entstehenden Phasen werden im Rahmen des PNS-Vorhabens 4244 untersucht.

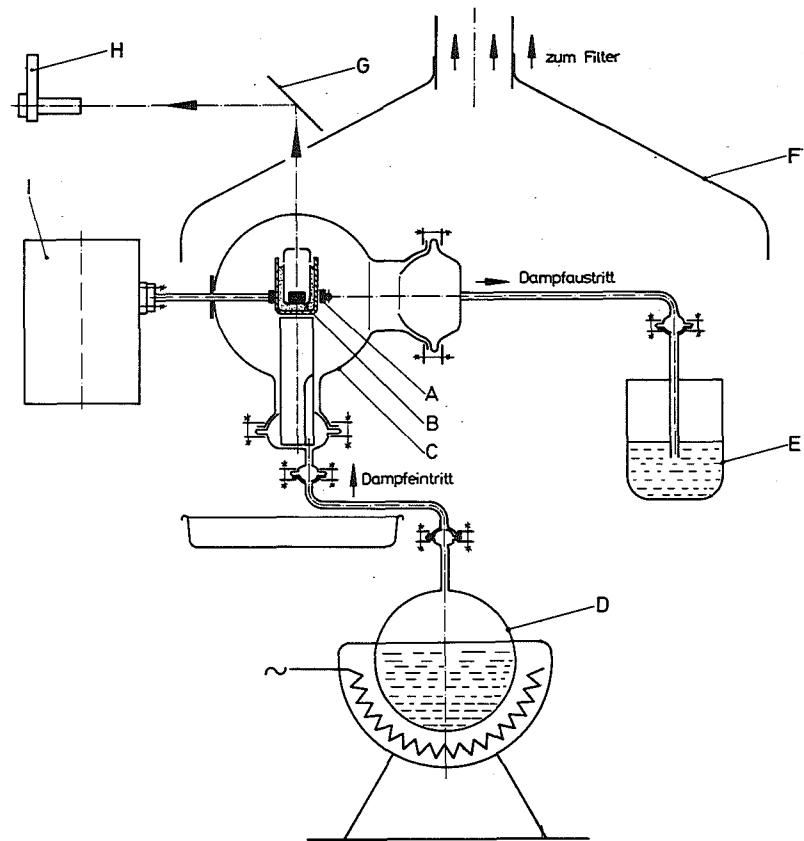
4. Schmelzversuche mit Corium unter Wasserdampf

Um erste Erfahrungen beim induktiven Schmelzen von Corium unter einer Wasserdampf-Atmosphäre zu sammeln, wurden Vorversuche mit einer einfachen Glasapparatur durchgeführt (vgl. Abb. 4243-3).

Im Inneren eines großen wärmeisolierten Kolbens aus Duran-glas befand sich eine auf einen Keramikzylinder aufgesetzte Tiegelkonstruktion, die aus einem äußeren Schutz-tiegel aus Al_2O_3 und einem in ThO_2 -Pulver eingebetteten Schmelztiegel aus ThO_2 bestand (Abb. 4243-4). Zur Ver-ringerung der Wärmeabstrahlung nach oben wurde auf den Schmelztiegel eine tiegelförmige Abdeckung (ebenfalls aus ThO_2) aufgesetzt, in deren Boden sich eine Einblicköffnung zum Schmelzgut befand.

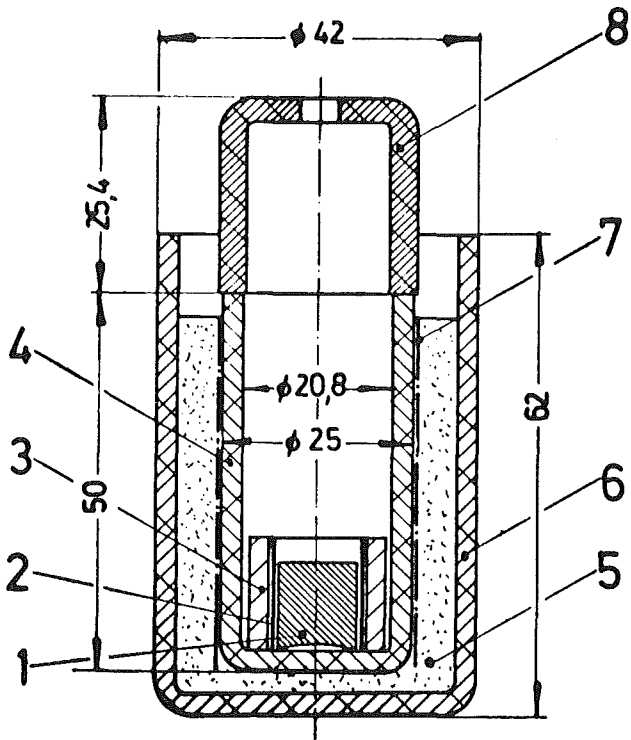
Der äußere Schutztiegel wurde von einer einwindigen, wasser-gekühlten Spule und einem Konzentratoren-Ring umschlossen. Als HF-Generator stand ein Gerät der Fa. Hüttinger mit 35 kW Leistung und einer Frequenz von 400 kHz zur Verfügung. Es war über einen Glühüberträger mit der Induktionsspule ver-bunden.

Zur Herstellung der Wasserdampf-Atmosphäre diente ein unterhalb des Glaskolbens angebrachter Dampferzeuger. Die Tempe-raturmessung wurde mit einem Teilstrahlungs-pyrometer vorge-nommen, mit dem man über einen Umlenkspiegel einen senk-rechten Einblick in den Schmelztiegel hatte.



- A Induktor
- B Schmelzanordnung
- C Glaskolben
- D Dampferzeuger
- E Wasservorlage
- F Arbeitsplatzabsaugung
- G Umlenkspiegel
- H Teilstrahlungs-pyrometer
- I Glühübertrager

Abb. 4243-2: Schema der Apparatur für induktive Schmelzversuche mit Corium unter Wasserdampf



- 1 UO₂-Pellet
- 2 Zircaloy-2
- 3 Stahl, Werkstoff Nr.: 4550
- 4 Schmelztiegel, Th O₂
- 5 Pulver, Th O₂, Korngröße 100 µm
- 6 Schutztiegel, Al₂ O₃
- 7 Graphitfolie, "Sigraflex F1", 0,15mm
- 8 Deckel

Abb. 4243-4: Anordnung von Tiegel und Schmelzgut

Die Schmelzgutkomponenten (jeweils ca. 30 g Corium) bestanden aus einem UO₂-Pellet und zwei konzentrisch dazu angeordneten Rohrstücken aus Zircaloy-2 bzw. Stahl W.-Nr. 1.4550.

Um der Rißanfälligkeit der Schmelztiegel beim Aufheizen vorzubeugen, wurden sie mit einer 0,15 mm dicken Grafit-Folie ("Sigraflex") umwickelt. Diese Folie koppelt selbst an das Induktionsfeld an und überträgt dabei die in ihr entbundene Wärme von außen an den Tiegel. Bei etwa 1000°C verbrennt die Grafit-Folie; dann übernimmt das Schmelzgut die Ankopplung an das HF-Feld.

Aus Sicherheitsgründen war unterhalb des Glaskolbens eine Auffangwanne aufgebaut; außerdem wurde die Schmelzapparatur mit einem über Filter abgesaugten Plastikzelt umgeben.

Ergebnisse:

Der wichtigste Zweck der Versuchsreihe, nämlich in einer

Wasserdampf-Atmosphäre die Aufheizung des Coriums mittels HF-Induktion und die Verwendbarkeit von ThO_2 -Tiegeln nachzuweisen, wurde in mehreren Versuchen voll erfüllt. Daneben wurden weitere Erfahrungen gesammelt, die für die demnächst durchzuführenden Versuche zur Ermittlung der Spaltprodukt-Freisetzung nützlich sein werden:

- a) Nichts deutet bisher darauf hin, daß eine Wasserdampf-Atmosphäre gegenüber einer Luftatmosphäre eine Erschwerung der experimentellen Bedingungen darstellt, vor allem wurden keine elektrischen Überschläge an der Tiegel- bzw. Spulenkonstruktion beobachtet.
- b) Die jetzt angewandte Versuchstechnik (Umwickeln des Schmelztiegels mit Grafitfolie und sehr langsame Steigerung der Heizleistung) führt im Gegensatz zu früheren Versuchen (1) nicht mehr zur Zerstörung der Tiegel infolge der großen Wärmespannungsempfindlichkeit des ThO_2 .
- c) Im Temperaturbereich zwischen 1000° und 1100°C kommt es zu einer Verzögerung in der Aufheizung des Schmelzgutes, die wahrscheinlich mit der Verbrennung der Grafitfolie und dem Übergang der Ankopplung an die Stahlteile des Coriums zusammenhängt.
- d) Die pyrometrische Temperaturmessung des Schmelzgutes ist mit erheblichen Unsicherheiten verbunden, da die Schmelzenoberfläche starke Helligkeitsschwankungen aufweist. Die Ursachen dafür liegen sowohl in Bewegungen des Schmelzgutes innerhalb des Tiegels als auch in der Bildung von Rauchschwaden infolge von Oxidations- und Abdampfungsvorgängen.
Während die maximal gemessene Temperatur 2320°C betrug, lag die Innentemperatur der Schmelze vermutlich wesentlich höher.

5. Spaltprodukt-Transport- und Filterstrecke

Nach der Auslegung einer Transport- und Filterstrecke (1) für die beim Schmelzen freigesetzten Produkte wurde mit der Beschaffung der Einzelkomponenten begonnen. Dazu gehörte auch die Bestellung einer weiteren Handschuhbox, in die die Transportstrecke einschließlich der Meßfilter eingebaut werden soll (Undichtigkeiten an Ventilen, Manometeranschlüssen etc. sind nicht auszuschließen). Außerdem sollen in dieser Box die mit Spaltprodukten beaufschlagten Filter demontiert und für die nachträgliche gamma-spektroskopische Auswertung in Plastikfolien eingeschweißt werden.

Bevor die Transportstrecke an die Schmelzanlage angeschlossen wird, soll eine Reihe von Vorversuchen mit Testaerosolen durchgeführt werden. Folgende Fragen sind dabei von besonderem Interesse:

- a) Welcher Anteil der Aerosole lagert sich beim Transport zu den Filtern bereits im Rohrsystem ab?
- b) Auf welche Weise und wie genau lassen sich die abgelagerten Aerosole bestimmen?
- c) Welche Eigenschaften weisen die zur Abscheidung vorgesehenen Filter unter den verschiedenen Betriebsbedingungen auf (Rückhaltevermögen, Druckverlust, Temperatur- und Feuchtigkeitsverhalten etc.)?

Für diese Versuche wird ein Aerosolgenerator eingesetzt, der es gestattet, auch Aerosole von schwerflüchtigen Metalloxiden mit relativ geringem Aufwand herzustellen. Er arbeitet nach folgendem Prinzip (3,4):

Eine homogene, wäßrige Lösung, die das als Chelatkomplex vorliegende Metall enthält, wird mit einem Vernebler in ein flüssiges Aerosol überführt. Dieses wird durch Zumischung von trockener Luft vorgetrocknet und dann durch ein auf ca. 1100°C erhitztes Rohr geleitet, wobei sich der Chelatkomplex über mehrere Zwischenstufen zum Oxid zersetzt. Der Durchmesser der erhaltenen Teilchen liegt im Bereich 0,1 bis 5 µm.

Bei den ersten Versuchen sollen schwach radioaktiv markierte Aerosole von

Zr, Fe, Mn, Ba, Sr, Ce, La, U

hergestellt werden. Die Metalle werden dabei eingesetzt als Chelatkomplexe von Oxalat, Lactat, Citrat oder AeDTA in wäßriger Lösung in einer Konzentration von ca. 0,05 Mol/Liter.

Der Nachweis der auf den Filtern abgeschiedenen Aerosole erfolgt - wie später bei den Spaltprodukt-Aerosolen - gamma-spektrometrisch mit Hilfe eines Ge(Li)-Detektors und eines Vielkanal-Analysators.

6. Rechenprogramme

Bei den Freisetzungsversuchen mit schwach aktivem Corium ist vorgesehen, Schmelzproben mit einer Aktivität von ca. 1 mCi einzusetzen. Um diesen Aktivitätswert mit einer Sicherheit von etwa $\pm 50\%$ einhalten zu können, sind Berechnungen sowohl für den Aktivitätsaufbau während der Vorbestrahlung als auch für das Abklingen der Aktivität zwischen Bestrahlungsende und dem Zeitpunkt der Schmelzversuche erforderlich.

Neben der Kenntnis der gesamten Probenaktivität ist es für den Nachweis der verschiedenen Spalt- und Aktivierungsprodukte auch wichtig, den zeitlichen Aktivitätsverlauf der einzelnen Nuklide und die Intensitäten ihrer γ -Linien zu kennen. Damit lassen sich nämlich die Bestrahlungs- und Kühlzeiten⁺⁾ der Proben so wählen, daß der Nachweis der jeweils interessierenden Nuklide möglichst wenig durch die γ -Linien anderer Nuklide gestört wird (1).

Ausgehend von vorhandenen Rechenprogrammen wurde daher mit der Entwicklung eines Computer-Codes SPALT begonnen, der im wesentlichen aus folgenden Schritten besteht:

⁺⁾ Unter Kühlzeit ist hier die Zeit zwischen Bestrahlungsende und dem Beginn der Freisetzung aus der im Schmelzofen erhitzten Proben zu verstehen.

- a) Ermittlung der zum Versuchszeitpunkt vorhandenen Nuklid-Aktivitäten als Funktion des Abbrandes und der Kühlzeit (Inventarbestimmung).
- b) Berechnung der entsprechenden Intensitäten der γ -Linien als Funktion der γ -Energie.
- c) Auswertung der Vielkanalspektren bzgl. der gemessenen γ -Intensitäten.
- d) Zuordnung und Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Daten.

Bisher wurden die neuesten Zerfallsdaten (5-8) von über 300 Spätnukliden sowie von 15 Aktivierungsprodukten (z.B. Np-239, Cr-51, Mn-56, Co-58, Fe-59) in das Programm aufgenommen und die Schritte a) und b) weitgehend fertiggestellt.

Literatur

- (1) 2. Halbjahresbericht 1973 des PNS, KFK 1908, S. 141-147
- (2) 1. Halbjahresbericht 1973 des PNS, KFK 1859, S. 135-141
- (3) G.M. Kanapilly, O.G. Raabe, G.J. Newton, *Aerosol Science* 1, 313 (1970)
- (4) T.T. Mercer, M.I. Tillery, A.Y. Chow, *Am.Ind.Hyg.I.* 29, 166 (1968)
- (5) M.E. Meek, B.F. Rider, NEDO-12154-1 (1974)
- (6) W.H. Walker, AECL-4704 (1974)
- (7) S.F. Mughabghab, D.I. Garber, BNL-325, 3rd Ed. (1973)
- (8) G. Erdmann, W. Soyka, Jül-1003-AC (1973)

4244 Versuche zur Erstellung von Zustandsdiagrammen und zum Reaktionsverhalten von Corekomponenten sowie phasenanalytische Charakterisierung von Abschmelzexperimenten

(H. Holleck, C. Politis, A. Skokan, IMF)

Ziel der Untersuchungen ist die Bereitstellung experimenteller Daten über mögliche Phasen-Neubildungen und Reaktionen der Corekomponenten untereinander beim Abschmelzvorgang. Hierzu werden Versuche unter angenäherten Gleichgewichtsbedingungen durchgeführt, um zunächst unter Ausschaltung kinetischer Effekte die in den beteiligten chemischen Systemen potentiell auftretenden Phasen und ihre Stabilitätsbedingungen zu ermitteln. Eine wichtige Fragestellung in diesem Zusammenhang ist: Welche niedrig schmelzenden Phasen und/oder Eutektika existieren im Gesamtsystem oder in Teilsystemen, und welches sind ihre Schmelztemperaturen?

Neben diesen Gleichgewichtsuntersuchungen werden phasenanalytische Untersuchungen an Proben von Abschmelzexperimenten und Verträglichkeitstests anderer Arbeitsgruppen durchgeführt, um einerseits zur Deutung der Abschmelzexperimente beizutragen und andererseits zu einer Einengung der chemischen und thermodynamischen Parameter bei den Systemuntersuchungen zu gelangen.

Den chemischen Zusammensetzungen der hauptsächlichlichen Kernmaterialien UO_2 , Zircaloy und Edelstahl entsprechend bewegen sich die Untersuchungen im polynären System U-Zr-Fe-Cr-Ni-O. Ein wichtiges Teilsystem dieses Gesamtsystems ist das System U-Zr-O, dessen binärer Schnitt UO_2 -Zr die Reaktionsmöglichkeiten zwischen Brennstab und Hülle in nichtoxidierender Umgebung aufzeigt. Über die ersten Untersuchungen an diesem Teilsystem soll nun kurz berichtet werden.

An im Lichtbogen erschmolzenen und bei verschiedenen Temperaturen homogenisierten Proben des Systems U-Zr-O wurden röntgenographische Untersuchungen sowie Schmelzpunktsbestimmungen durchgeführt. Über die Ergebnisse wird später im Zusammenhang berichtet. Besondere Bedeutung kommt den Schmelzpunktuntersuchungen zu, da sie für die Klärung der Kinetik des Abschmelzvorganges wichtige Daten liefern.

Die Schmelzpunktsbestimmung erfolgt in einem speziellen Hochtemperaturofen (Abb.1) bei welchem unter max. 20 bar Schutzgas gearbeitet werden kann. Die Geometrie der Proben wird so gewählt, daß der Schmelzbeginn beobachtet werden kann.

Die Temperatur wird sowohl mit einem Zweifarben-Mikropyrometer (550 nm u. 650 nm) als auch mit einem automatischen Teilstrahlungs-pyrometer gemessen. Die Versuchsanordnung wurde durch die Schmelztemperatur von Al_2O_3 (2050°C) und Mo (2610°C) geeicht. Die Genauigkeit beträgt je nach Emissionsverhältnis und Zusammensetzung $\pm 10^\circ\text{C}$ bei 1800°C bzw. $\pm 25^\circ\text{C} - 40^\circ\text{C}$ bei 2840°C (Schmelzpunkt von UO_2).

Abb.2 zeigt das Gefüge einer Probe der Zusammensetzung UO_2 -Zr 50/50 (Mol %) nach dem Schmelzen bei 2500°C . Es wurden folgende 3 Phasen beobachtet: Primär ausgeschiedenes UO_2 (dunkel), sekundär ausgeschiedenes α -(Zr,O) (hell) und ein niedrig schmelzender U,Zr-Mischkristall (hellgrau).

Dieses ist ein erster Hinweis, daß auf dem Schnitt UO_2 -Zr ein Dreiphasenfeld (mit einer offensichtlich niedrig schmelzenden Phase) auftritt.

Erste Erfahrung bei der Präparation von Proben aus einem Abschmelzexperiment (PNS 4241) wurden an einem niedergeschmolzenen Stab gewonnen.

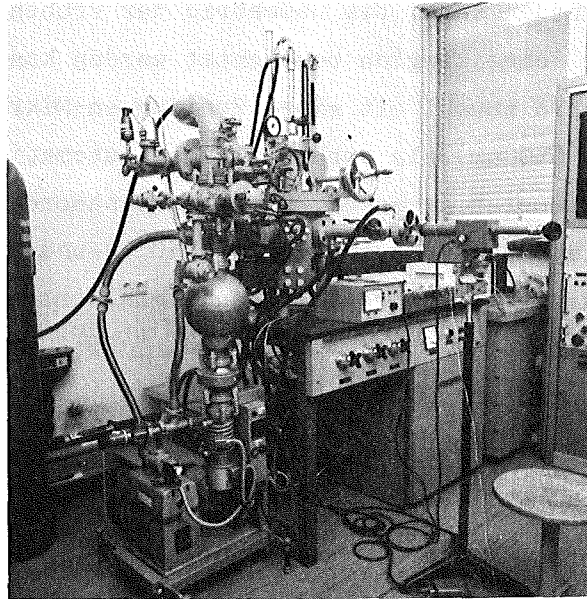


Abb. 4244-1: Schmelzpunktsbestimmungs-
apparatur

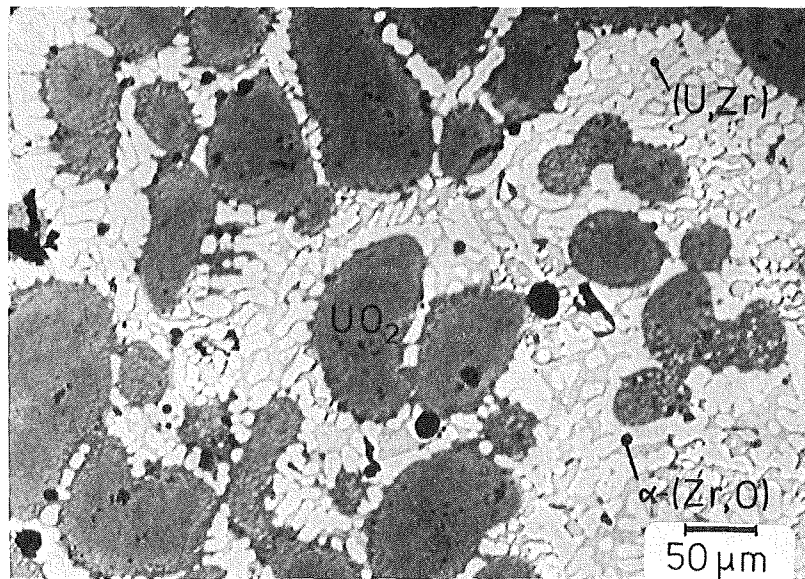


Abb. 4244-2: Gefüge einer $\text{UO}_2\text{-Zr,50/}^{50}$ (Mol %) Probe
nach dem Schmelzen bei 2500°C

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

4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung
 radioaktiver Gase

Die im folgenden beschriebenen Einzeluntersuchungen dienen im Rahmen des übergeordneten Zieles der Entwicklung von Modellen und Anlagen zur Berechnung der Kurzzeitdosen nach einem angenommenen Störfall, der Entwicklung von Kriterien für die Erfassung der herrschenden Ausbreitungskategorien und -parameter (Abschnitt 1, 2, 4, 6), dem Aufbau der on-line Erfassung der meteorologischen Daten (Abschnitt 3), sowie der Überprüfung der modellmäßig errechneten Dosiswerte mit Feldmessungen (Abschnitt 5).

1. Statistische Auswertungen der am meteorologischen Mast erfaßten Daten
(S. Vogt)

Ende Oktober 1973 wurde mit Inbetriebnahme der Feuchtemeßstellen die Instrumentierung des meteorologischen Mastes im wesentlichen abgeschlossen. Erste Auswertungen der Feuchteprofile bis 200 m zeigen, daß im vierteljährlichen Mittel der Wald den Erdboden als Wasserdampfquelle übertrifft.

Weitere meteorologische Elemente wie Wind und Temperatur konnten über den Zeitraum eines vollen Jahres ausgewertet werden. Wie in den vorangegangenen Jahren wurde die richtungs- und höhenabhängige Windgeschwindigkeitsverteilung für 1973 erstellt. Die Temperaturverhältnisse in Abhängigkeit von der Höhe, die neben dem Element Wind einen wichtigen Parameter für das Ausbreitungsverhalten der Atmosphäre darstellen, wurden mit Hilfe von mittleren Tagesgängen der Absoluttemperaturen und verschiedenen Häufigkeitsstatistiken der Temperaturgradienten eingehend untersucht. Als Beispiel einer solchen Statistik ist in Abb. 4312-1 die Summenhäufigkeit des Temperaturgradienten in Abhängigkeit von der Höhe dargestellt. Zu erwähnen ist der relativ große Anteil von sehr instabilen Temperaturgradienten in den untersten Schichten.

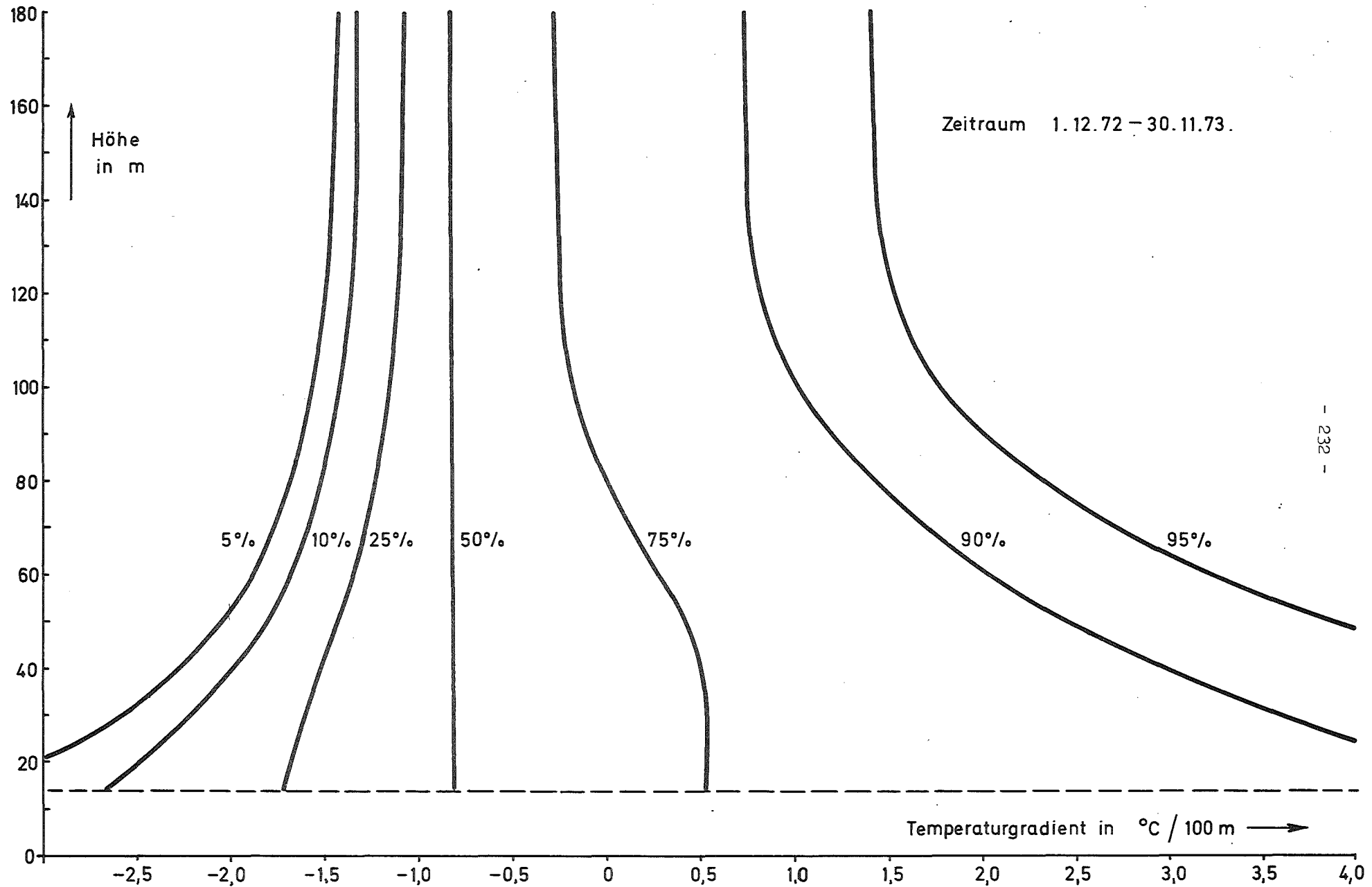


Abb.4312-1: SUMMENHÄUFIGKEIT DES TEMPERATURGRADIENTEN

In 50 m Höhe z.B. liegen noch 5 % aller Gradienten unter $-2.0 \text{ }^{\circ}\text{C}/100 \text{ m}$.

2. Ausbreitungsklimatologischer Standortvergleich

(S. Vogt)

Die Untersuchung der Frage, inwieweit die im Kernforschungszentrum Karlsruhe gemessenen meteorologischen Daten repräsentativ sind für die Rheinebene hinsichtlich der Ausbreitung von Schadstoffen wurde fortgesetzt. Durch die Unterstützung des Deutschen Wetterdienstes und des Geophysikalischen Beratungsdienstes der Bundeswehr gelang es, weitere synoptische Daten bereitzustellen. Hiermit konnten die Ausbreitungsverhältnisse von sieben Stationen, die etwa gleichmäßig im Oberrheingebiet zwischen Freiburg und Frankfurt verteilt sind, für einen Zeitraum über mindestens vier Jahre statistisch erfaßt werden.

In Abb. 4312-2 sind die Häufigkeiten der Ausbreitungskategorien (Schema nach KLUG) dargestellt. Gewisse Unterschiede sind erkennbar, doch muß dabei die Lage der Stationen berücksichtigt werden. Z.B. liegt in Freiburg die Station im Stadtgebiet; geringere Windgeschwindigkeiten ($\bar{v} = 2,2 \text{ m/s}$) und damit eine stärkere Besetzung der stabilen und labilen Kategorien auf Kosten der neutralen Kategorie sind die Folge. In Frankfurt dagegen erfolgen die Beobachtungen auf dem Rhein-Main-Flughafen; höhere Windgeschwindigkeiten ($\bar{v} = 3,0 \text{ m/s}$) bedingen ein Anwachsen der neutralen Kategorie bei gleichzeitigem Rückgang der stabilen und labilen Kategorien.

3. On-line Bestimmung der Konzentrationsverteilung und Darstellung auf einem Sichtgerät

(H. Dilger, P. Thomas)

Die am Mast gemessenen meteorologischen Daten werden als 10 -min-Mittelwerte zur TR86 in die ADI übertragen. Die TR86 speichert die Daten auf Magnetband und 72 Stunden lang auf Platte. Die auf der Platte stehenden Daten können in aufbereiteter, übersichtlicher Form auf Sichtgeräten dargestellt werden.

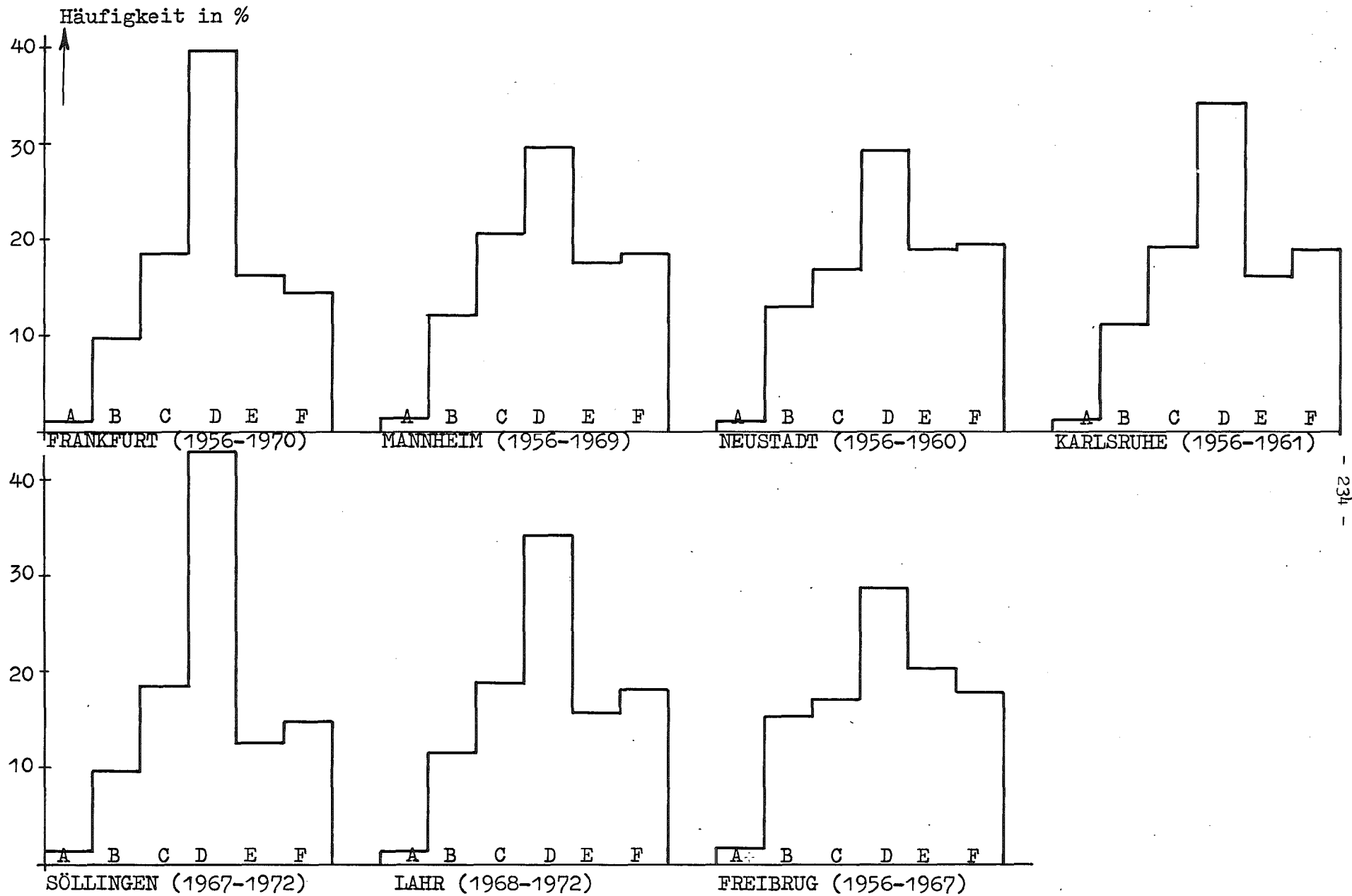


Abb. 4312-2: Häufigkeit der Ausbreitungskategorien

Unter anderem ist ein Programm verfügbar /1/, das die Größe und Lage des Konzentrationsmaximums und der 10 %-Isolinie bei der Emission von 1 Ci/s graphisch auf dem Bildschirm darstellt (Abb. 4312-3). Der Programmaufruf erfolgt über die Tastatur des Sichtgerätes unter Eingabe von Tag, Uhrzeit, Emissionshöhe (60 m, 100 m) und Ausbreitungsklasse (A, B, C, D, E, F, X).

Entsprechend den Kombinationsmöglichkeiten von Emissionshöhe und Ausbreitungsklasse (A-F) sind 12 Maximalwerte und Kurven fest gespeichert. Zur Berechnung diente das Diffusionsmodell (doppelte Gaußfunktion) mit Ausbreitungsparametern nach Pasquill/Gifford.

Mit den auf Platte gespeicherten Werten von vertikaler Windrichtungsfluktuation (σ_ϕ der Vektorfahne in 100 m Höhe), Windrichtung und Windgeschwindigkeit werden die Ausbreitungsklasse gewählt und die Lage und Größe der Konzentrationsverteilung ermittelt und auf das Sichtgerät übertragen. Bei den benutzten meteorologischen Daten handelt es sich um Mittelwerte der halben Stunden, die vor dem über die Tastatur eingegebenen Zeitpunkt liegt. Bei der Emissionshöhe von 60 m bzw. 100 m wird die in 40 m bzw. 60 m Höhe gemessene Windrichtung und -geschwindigkeit verwendet.

Die Auswahl der Ausbreitungsklasse entsprechend der vertikalen Windrichtungsfluktuation erfolgt nur bei Eingabe des Buchstabens X. Beim Anschlag der Buchstaben A-F wird die dazugehörige Ausbreitungsklasse gewählt. Das dient einmal zu Demonstrationszwecken, zum anderen kann das Programm auch bei ausgefallener Vektorfahne benutzt werden. Die Klasse muß dann auf andere Weise bestimmt werden.

Die Fluktuation der vertikalen Windrichtung σ_ϕ in 100 m Höhe wird entsprechend folgendem Schema der Ausbreitungsklasse zugeordnet.

Kategorie	σ_ϕ
A	$25^\circ \geq \sigma > 13^\circ$
B	$13^\circ \geq \sigma > 10^\circ$
C	$10^\circ \geq \sigma > 8^\circ$
D	$8^\circ \geq \sigma > 3,5^\circ$
E	$3,5^\circ \geq \sigma > 1,5^\circ$
F	$1,5^\circ \geq \sigma \geq 0^\circ$

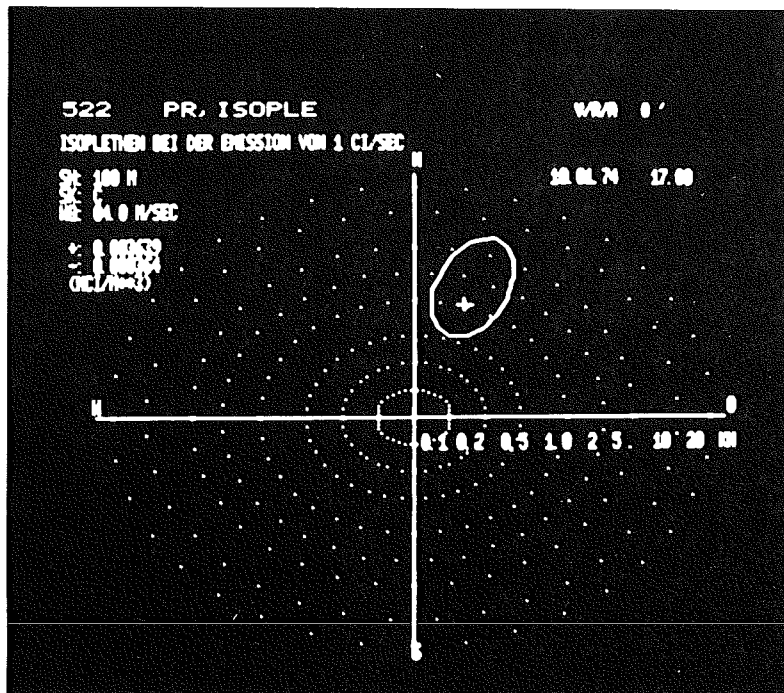


Abb. 4312-3: Schirmbild der Isoplethen

Durch Tastendruck kann bei unveränderter Emissionshöhe das Konzentrationsschema für eine um jeweils 10 min frühere oder spätere Zeit dargestellt werden.

4. Bestimmung der atmosphärischen Diffusionskategorien nach den Vertikalfluktuationen der Vektor-Fahne bzw. dem Temperaturgradienten und der Windgeschwindigkeit
(H. Dilger)

Für die Ausbreitungsrechnung ist die Bestimmung der Diffusionskategorie notwendig. Im KFZK wurden seither zur Einteilung der Wettersituationen in Diffusionskategorien bei Kurzzeitausbreitung zwei Schemata verwendet:

- 1) Schema nach POLSTER /2/, das auf dem Temperaturgradienten und der horizontalen Windgeschwindigkeit basiert; es wurde für unseren Standort und unsere Meßanordnung modifiziert.
- 2) Einteilung aufgrund der Breite und Struktur des horizontalen Windrichtungsschriebs. In Anlehnung an PASQUILL werden 6 Diffusionskategorien verwendet: A (labil) ... F (stabil).

Beide Methoden haben jedoch Nachteile: Das Diffusionsverhalten der Atmosphäre ist durch den Temperaturgradienten und die horizontale Windgeschwindigkeit nur indirekt bestimmbar; die Festlegung der Diffusionskategorie aufgrund des Windrichtungsschriebs ist in gewissen Grenzen subjektiv. Eine Vektorfahne gestattet dagegen eine direkte und objektive Bestimmung des Vertikalaustausches. Die aus den Fluktuationen der vertikalen Windrichtung gewonnene mittlere quadratische Abweichung, der Sigma-wert σ_{ver} , ist proportional der atmosphärischen Diffusionskonstanten. Seit der Montierung unserer Vektorfahnen in 40 m und 100 m Höhe besitzen wir die Möglichkeit, σ_{ver} direkt zu bestimmen.

Die Abgrenzung der einzelnen Diffusionskategorien wurde an Hand der Häufigkeitsverteilung der σ_{ver} -Werte der Vektorfahne in 100 m und der horizontalen Windgeschwindigkeit in 40 m Höhe vorgenommen. Dabei wurden 10-min-Mittelwerte verwendet. Bei Windgeschwindigkeiten ≥ 7 m/s tritt nur noch die neutrale Diffusionskategorie D auf; σ_{ver} schwankt um einen Mittelwert. Dieser Wertebereich von σ_{ver} wurde der Kategorie D zugeordnet. Die weitere Einteilung größerer und kleinerer σ_{ver} wurde

aufgrund der Häufigkeitsverteilung der σ_{ver} so vorgenommen, daß die prozentuale Verteilung auf die einzelnen Kategorien zur labilen und stabilen Seite hin abnimmt. Tab. 4312-1 gibt die Kategorienbereiche und die prozentualen Anteile für das Jahr 1973 an:

Kategorie	σ_{ver}	Prozentualer Anteil 1973
A	$\sigma > 13^{\circ}$	4,7
B	$13^{\circ} \geq \sigma > 10^{\circ}$	8,7
C	$10^{\circ} \geq \sigma > 8^{\circ}$	10,6
D	$8^{\circ} \geq \sigma > 3,5^{\circ}$	39,0
E	$3,5^{\circ} \geq \sigma > 1,5^{\circ}$	23,8
F	$1,5^{\circ} \geq \sigma$	13,2

Tab. 4312-1: Einteilung der Kategorien nach σ -Werten und die prozentuale Verteilung für das meteorologische Jahr 1973.

Dieses Schema wird seit 1974 in der ASS verwendet.

Bei Ausfall der Vektorfahne wird auf das Temperaturgradienten-Windgeschwindigkeitsschema zurückgegriffen. Die seither verwendete Einteilung wurde überprüft und verbessert. In jeder Windgeschwindigkeitsgruppe (Gruppenbreite von 1 m/s) wurde der Temperaturgradient zwischen 30 m und 100 m so in Kategorienbereiche eingeteilt, daß deren prozentualer Anteil derselbe ist, wie bei der Einteilung nach σ_{ver} . In Tab. 4312-2 ist das Korrelationsschema der beiden oben beschriebenen Systeme aufgeführt. Die Unterschiede der Spalten gegenüber der Summenzeile ergeben sich dadurch, daß im Temperaturgradientenschema die Interpolation der Geschwindigkeit in 1/4 m/s-Schritten vorgenommen wurde.

$\sigma_{\text{ver}} \backslash \text{TGD}_{\text{WG}}$	A	B	C	D	E	F	Summen
A	1,8	1,1	1,2	0,6	0,0	0,0	4,7
B	1,5	2,2	3,1	1,8	0,1	0,0	8,7
C	0,6	1,8	3,3	4,7	0,2	0,0	10,6
D	0,3	1,0	4,5	27,3	4,8	1,1	39,0
E	0,0	0,0	0,1	6,9	11,1	5,6	23,7
F	0,0	0,0	0,0	0,8	4,6	7,7	13,1
Summen	4,2	6,1	12,2	42,1	20,8	14,4	99,8
W	43	36	27	64	53	54	

Alle Angaben in Prozenten

Beispiel: $W_A = 1,8/4,2 = 43 \%$

Tab. 4312-2: Korrelationsschema zwischen der Vertikalfluktuation in 100 m und Temperaturgradient 30-100 m/Windgeschwindigkeit 40 m. In der Zeile W sind die Häufigkeiten für das Übereinstimmen der betreffenden Kategorien aufgeführt.

Die Korrelation für die Kategorien A, B und C ist nicht besonders gut. Insgesamt ergibt sich in 53 % der Fälle eine Übereinstimmung der Kategorie, in 39 % eine Abweichung um ± 1 Kategorie, in 7 % eine Abweichung um ± 2 Kategorien und in 1 % eine Abweichung um ± 3 Kategorien. Abb. 4312-4 zeigt die graphische Darstellung des Einteilungsschemas nach Temperaturgradient und Windgeschwindigkeit.

Die ausgezogenen Linien geben die Bereiche der einzelnen Kategorien an. Diese Linien entstanden durch Interpolation zwischen den ursprünglich rechteckigen Windgeschwindigkeits/Temperaturgradient-Bereichen. Die Kombination von Temperaturgradient und mittlerer Windgeschwindigkeit außerhalb der gestrichelten Linien trat im Jahr 1973 nicht auf.

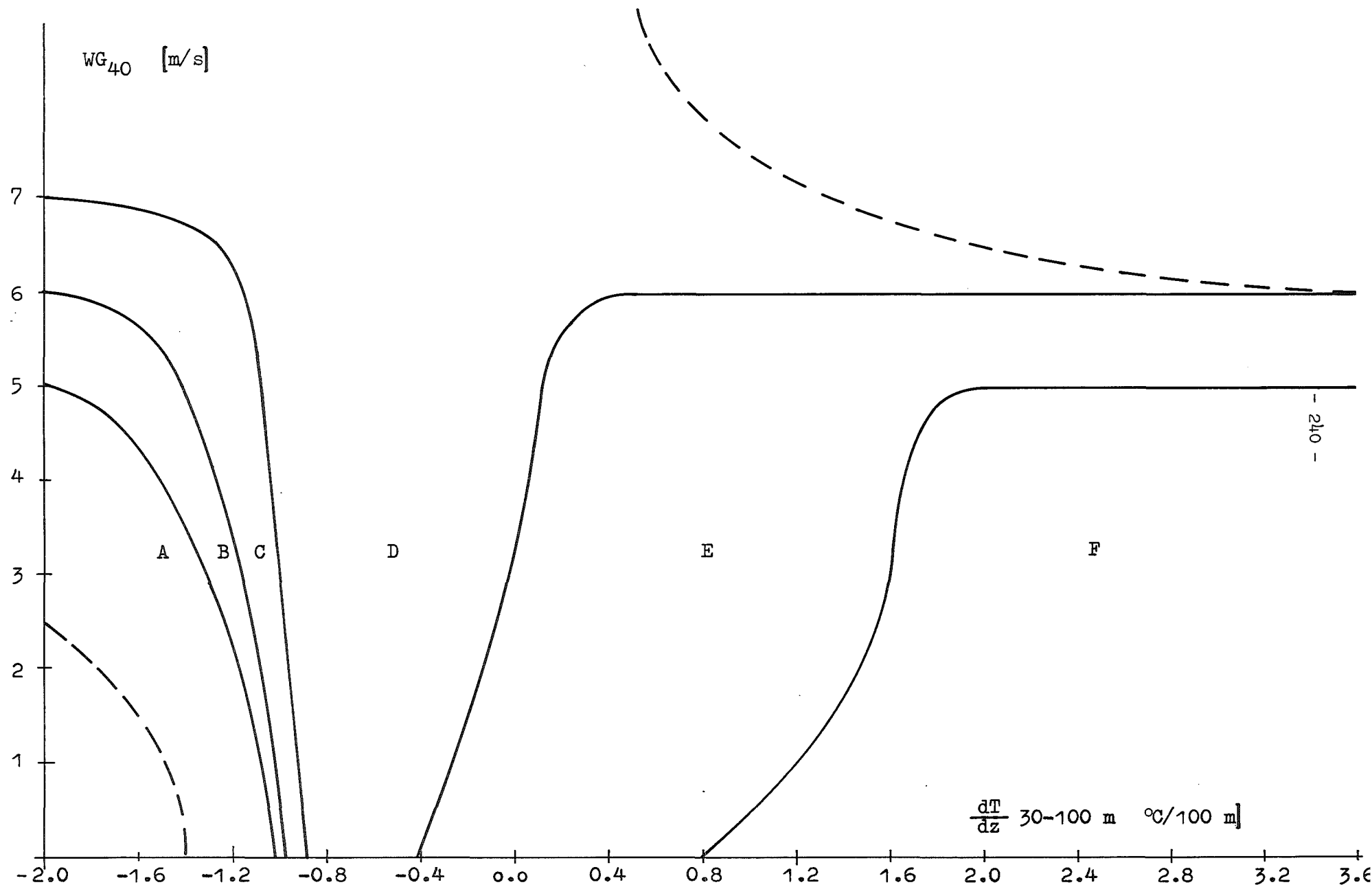


Abb. 4312-4: Einteilung in Kategorien nach Temperaturgradient (abgeleitet aus Meßgrößen in 30 - 100 m) und der mittleren Geschwindigkeit in 40 m.

5. Messung der Gammadosisleistung der FR2-Abluftfahne in der
Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe
(W. Hübschmann, D. Papadopoulos)

Durch die Entwicklung der Szintillations-Dosimeter ist es möglich geworden, Gammadosisleistungen in der Größenordnung des natürlichen Strahlenpegels direkt zu messen. Somit kann die Gammastrahlung des Ar-41 in der Abluft des FR2 am Erdboden mit genügender Genauigkeit gemessen werden, um die Berechnungsmethoden der Gammadosis aus der Abluftfahne überprüfen zu können.

Um die Aussagekraft solcher Messungen zu prüfen, wurden einzelne Messungen in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe in Entfernungen bis zu ca. 4 km und bei Wetterlagen D-C, C und B nach PASQUILL durchgeführt. Als Meßgerät wurde das Szintillations-Dosimeter H 7201 der Fa. Ing. Eberhard Halle, VDI, benutzt. Die Windmeßwerte wurden aus der meteorologischen Meßwarte des KFZK per Funkgerät übertragen, um möglichst in der Nähe der Abluftfahne messen zu können.

Für den Vergleich der Messungen mit der Berechnung wurden die gemessenen Dosisleistungen als Funktion der Entfernung Y der Meßstellen i ($i=1, \dots, 13$) von der Projektion der Achse der Abluftfahne auf den Boden aufgetragen, s. Abb. 4312-5. Die berechnete Dosisleistung ist als ausgezogene Linie eingetragen.

Die Resultate der Messungen können folgendermassen zusammengefaßt werden: In kurzer Entfernung vom Kamin lassen sich die seitlichen Abstände der Meßpunkte von der Abluftfahnenachse aus der Windrichtungsregistrierung und der Uhrzeit genügend genau bestimmen. Das gilt selbst bei instabiler Lage (Kategorie B). In größerer Entfernung (> 2 km) dagegen ist eine genügend genaue Zuordnung der Meßorte zur Abluftfahnenachse nicht mehr möglich. Bei Kategorie D-C stimmen die Meßwerte in Entfernungen um 2 km gut mit der theoretischen Verteilung überein. Bei Kategorie B dagegen sind deutliche Abweichungen vorhanden: Die Dosisleistung scheint mit wachsendem Abstand von der Abluftfahnenachse schneller abzufallen als nach der Theorie zu erwarten. Dieser Befund und die Tatsache, daß in der Nähe der Achse in Einzelfällen höhere Werte als berechnet gemessen wurden, spricht dafür, daß die Höhe der Abluftfahnenachse über dem Erdboden nicht

mit 100 m angenommen werden kann. Dies zeigt, daß bei instabiler Wetterlage die Auswertung der Messung erschwert ist. Weitere Meßfahrten sollen daher zunächst bei stabiler Luftschichtung durchgeführt werden, da dabei die Höhe der Abluftfahnenachse über dem Boden mit größerer Sicherheit bestimmt werden kann. Durch Verwendung mehrerer Meßgeräte soll sichergestellt werden, daß jeweils das Maximum der Dosisleistung unter der Abluftfahnenachse erfaßt wird.

6. Ausbreitungsexperimente

(H. Schüttelkopf)

Im 1. Halbjahr 1974 wurden zwei Ausbreitungsexperimente mit HTO und CF_2Br_2 als Leitsubstanzen durchgeführt. Bei diesen wurden 28 Probenahmestellen für HTO und 51 Probenahmestellen für CF_2Br_2 wie üblich in Hauptwindrichtung angeordnet. Die Übereinstimmung der mit beiden Leitsubstanzen gemessenen Ausbreitungsfaktoren ist befriedigend.

Die Ursache für die bei den letzten Ausbreitungsexperimenten im vergangenen Jahr mit halogenierten Leitsubstanzen gemessenen Abweichungen vom Untergrund in Proben, welche weitab von der Hauptwindrichtung gewonnen wurden, konnte mit drei Ausbreitungsexperimenten mit den Leitsubstanzen CCl_4 , CFCl_3 und CF_2Br_2 gefunden und beseitigt werden. Eine für möglich gehaltene Verzögerung der halogenierten Verbindungen im Kiefernwald konnte durch Labor- und Feldexperiment ausgeschlossen werden.

Der in der Umwelt vorhandene CCl_4 - und CFCl_3 -Untergrund bestimmt die Nachweisgrenzen dieser Leitsubstanzen. Diese liegen bei ca. 2 % der Maximalmeßwerte. Die niedrigen Preise von CCl_4 und CFCl_3 erlauben eine Erhöhung der Emissionsrate und damit des Abstandes Maximalwert zu Nachweisgrenze. Ein Emissionstank für die Emission von 60 kg/h wurde gebaut und wird zur Zeit geprüft.

Die Lieferung der ersten 10 automatischen Probenahmegeräte für halogenierte Verbindungen erfolgt im Juli 1974.

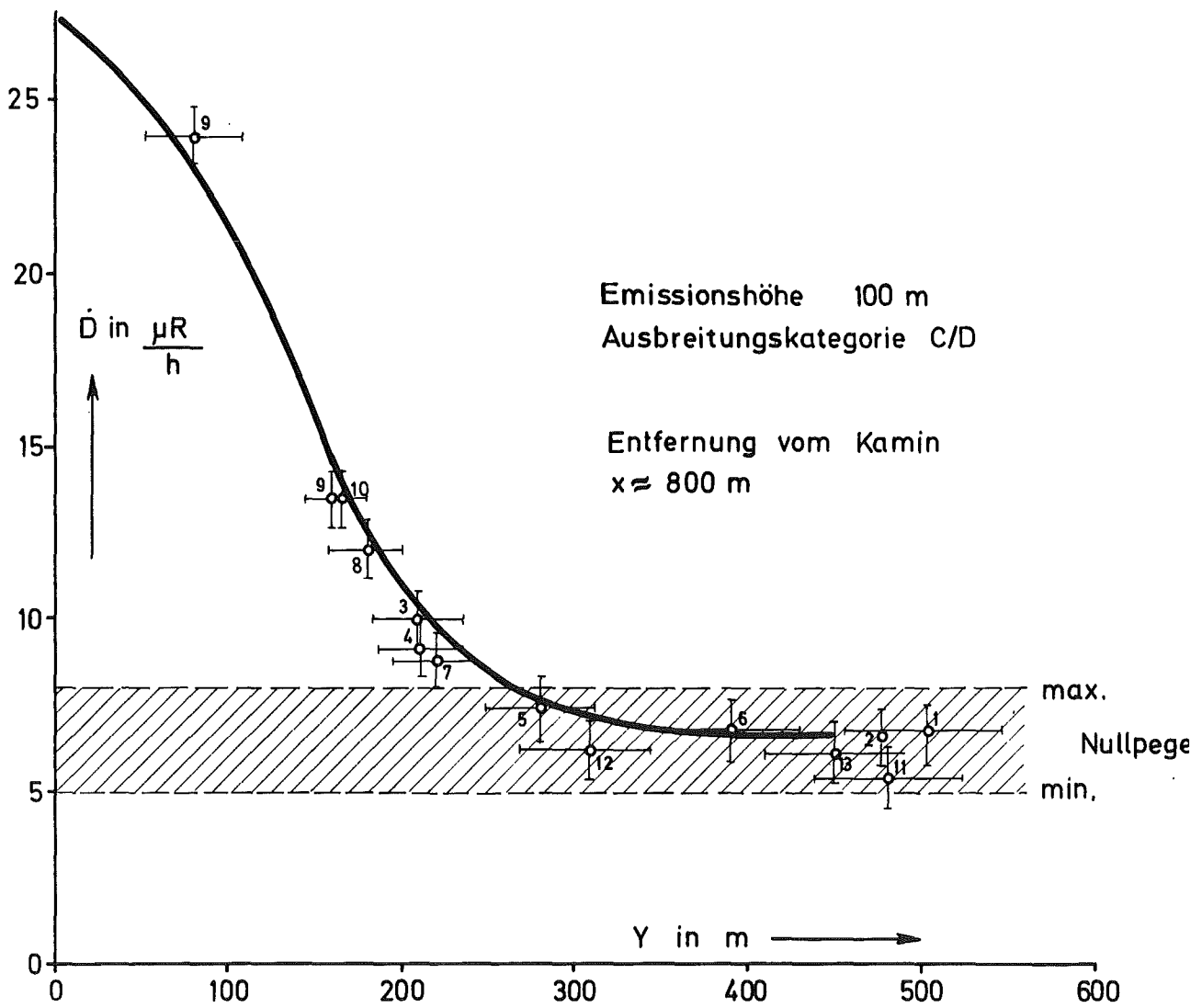


Abb. 4312-5: DOSISLEISTUNG \dot{D} IN ZONE I, MESSFAHRT AM 27.9.73.

Eigene Veröffentlichung:

/1/ F. Süss, P. Thomas,

On-line Datenerfassung und Datenaufbereitung in einer Kopplung
meteorologischer Turm - PDP-8/I - CALAS-System

KFK 1934 (April 1974)

Zitierte Literatur:

/2/ G. Polster,

Erfahrungen mit Strahlungs-, Temperaturgradient- und Wind-
messungen als Bestimmungsgrößen der Diffusionskategorien,

Met. Rundschau 22 (1969), 170-175

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen
(T. Dippel, ADB)

Um neue und detailliertere Informationen über die Wirksamkeit von Dekontaminationsmitteln und die Dekontaminierbarkeit von Materialien, wie sie in kerntechnischen Anlagen eingesetzt werden, zu gewinnen, wird ein Versuchsprogramm durchgeführt. Die Schwerpunkte liegen dabei in der Untersuchung der Dekontaminationswirkung von Salzschmelzen, insbesondere bei α -kontaminierten Metallflächen und auf der Entwicklung eines pastenförmigen Dekontaminationsmittels. Damit einher geht die Erarbeitung eines Meßverfahrens, das die Bestimmung der nuklidspezifischen Dekontaminationswirkung gestattet. Die Dekontaminierbarkeit von Oberflächenbelägen ist Gegenstand weiterer, intensiver Experimente. Zusammen mit den Ergebnissen aus vielfältigen Dekontaminationsgutachten bilden die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen die Basis für wichtige Normungen.

In direktem Zusammenhang mit der Beurteilung von Unfallfolgen und Standortproblemen nuklearer Anlagen stehen Untersuchungen, die sich mit dem Verhalten der Transurane, insbesondere Pu und Am, in natürlichen Böden und geologischen Formationen befassen. Mit dem Ziel eine Beziehung zu erarbeiten, die eine Abschätzung der Ausbreitungsgeschwindigkeit eines Transurans im Boden gestattet, wurde ein Statusbericht erstellt und ein Versuchsprogramm spezifiziert. Die dabei auftretenden Fragestellungen entsprechen teilweise denen, die beim Betrachten des Verhaltens von Tritium im Boden auftreten. Da die bei den geplanten Experimenten eingesetzten Präparations- und Meßtechniken sehr ähnlich sind, werden die experimentellen Arbeiten zunächst mit Tritium beginnen. Diese Ergebnisse gehen dann in die Formulierung einer Aufgabe ein, die die Abschätzung des Umfangs der in der Bundesrepublik vorhandenen, für die Tieflagerung von Tritium geeigneter, geologischer Formationen zum Thema hat.

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren
(D. Hentschel, S. Kunze, ADB)

1. Dekontamination von Edeltählen und Nickel-Basislegierungen

Die im 2. Halbjahresbericht 1972 /1/ angesprochenen Prüfungen der Dekontaminationswirkung an Edelstahl mit häufig in der Reaktortechnik verwendeten Dekontaminationsmitteln konnten aus Gründen der Materialbeschaffung und Aufbringen der Kontamination erst jetzt abgeschlossen werden.

An 11 im Autoklaven kontaminierten Reaktormaterialien wurde die Dekontaminationswirkung von 5 netzmittelhaltigen Dekontaminationslösungen verglichen.

Material und Vorbehandlung der Proben

Als Versuchsmaterial dienten quadratische (25 x 25 x 1,5 mm) oder kreisrunde (Durchmesser 28 mm, 0,6 - 1,0 mm starke) Plättchen, die entweder gebeizt oder mit dem dazugehörigen Material geschweißt wurden.

Gebeizte Proben (b) wurden nach 20 Minuten langem Eintauchen bei 80 °C in eine Beizlösung bestehend aus HNO₃, HF, H₂SO₄ und H₂O und anschließendes Spülen in Wasser erhalten.

Geschweißte Proben (s) wurden in der Mitte mit einer Schweißnaht versehen und lediglich mit Aceton entfettet.

Kontaminationsmittel und -verfahren

Als Kontaminationsmittel diente eine trägerhaltige Nuklidlösung bestehend aus ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr/⁹⁰Y, ¹⁴⁴Ce, ⁶⁰Co, ⁵⁹Fe und ⁵¹Cr annähernd gleicher Konzentration in salz- bzw. salpetersaurer Lösung mit einem pH-Wert von annähernd 4 und einer Gesamtaktivität von ca. 10 µCi/ml. Das Aufbringen auf die Proben erfolgte in einem 2 l-Hochdruckautoklaven bei 300 °C und dem entsprechenden Dampfdruck von 88 atü über 500 Stunden. Anschließend wurden die Plättchen 2 Stunden bei 200 °C getrocknet. Diese Bedingungen entsprechen ungefähr denen eines Leichtwasserreaktors.

Dekontamination

Die Dekontamination erfolgte in 5 wäßrigen Lösungen unter Zusatz von Fluorcarbonnetzmitteln (je 100 ppm FC 126 + FC 134; Produkt der 3M-Company) unter folgenden Bedingungen:

Dekontaminationslösung

Anwendungsmodus

Ia: 3 % KMnO_4 + 10 % NaOH

2 h bei 100 °C

Spülung mit 3 % Oxalsäure

15 min bei 60 °C

Ib: 0,3 % KMnO_4 + 1 % NaOH

2 h bei 100 °C

Spülung mit 0,3 % Oxalsäure

15 min bei 60 °C

II: 0,5 % Zitronensäure +
0,05 % EDTA- Na_2 ; pH = 4,2

2 h bei 100 °C

III: 2 n HNO_3

2 h bei 60 °C

IV: 3 - 20 - Reagenz
(3 % Flußsäure + 20 % HNO_3)

15 min bei 20 °C

Um den Anfall an radioaktiven Rückständen zu reduzieren, wurde die Konzentration der alkalischen Permanganatlösung im Versuch Ib auf 1/10 gesenkt.

Dekontaminationsergebnisse

Aus der Gegenüberstellung der mittleren Dekontaminationsfaktoren in der Tabelle 4411-1 ergibt sich das Folgende:

a) Die Wirksamkeit der Dekontaminationsmittel nimmt wie folgt ab:

alkalische Permanganatlösungen > 3 - 20 - Reagenz > Komplexbildner (II),
Salpetersäure

b) Inconel 600 / 625 ist besser alle andere Materialien dekontaminierbar.

c) Mit den Lösungen II, III und IV lassen sich gebeizte Oberflächen geringfügig besser dekontaminieren als geschweißte.

Bei Anwendung von alkalischen Permanganatlösungen (Ia, b) hingegen lassen sich - mit Ausnahme von Inconel 600 / 625 - geschweißte Proben geringfügig besser dekontaminieren als gebeizte Proben. Die Ursache dafür könnte in einer um die Schweißnaht aufgebauten Oxidschicht liegen, die von den alkalischen Permanganatlösungen leichter abgelöst wird.

2. Entwicklung einer Dekontaminationspaste

Es soll zur Oberflächendekontamination insbesondere von Edelstählen eine Paste entwickelt werden, die das Material von der Oberfläche gleichmäßig abträgt, wobei weder Lochfraß noch intergranulare Korrosion auftreten dürfen. Solche viskosen Mittel sind aufgrund der pastösen Konsistenz örtlich abgegrenzt auftragbar und deshalb zur Beseitigung lokaler Kontaminationen besonders gut geeignet. Der Anfall an radioaktiven Abfall wird stark reduziert. Als Nachteil des Verfahrens ist der Schlamm sowie nach dem derzeitigen Stand der Technik das hohe Maß an Handarbeit zu nennen. Die Pasten bestehen aus beizend wirkenden Stoffen, aus Träger- und Füllstoffen sowie aus adsorbierenden Substanzen.

Als beizend bzw. dekontaminationsfördernde Stoffe kommen insbesondere Mineralsäuren, in geringem Umfang organische Säuren, in Betracht. Als Adsorptionsmittel werden Tonerde, Kaolin, Kieselgur bzw. - wenn nötig - flußsäurebeständige Substanzen verwendet. Dieselben lassen sich zu einer gleichmäßig quellenden Paste anteigen. Als Netz- und Dispergiermittel werden waschaktive Substanzen sowie die Oberflächenspannung-herabsetzende Stoffe zugesetzt. Kunststoffpulver verschiedener Feinheit dienen als Trägermaterial. In der Ausführung wird die Paste auf die kontaminierten Flächen aufgetragen. In Abhängigkeit vom gewünschten Dekontaminationsgrad läßt man sie einwirken. Anschließend wird die Paste mit den aufgenommenen, abgelösten Materialabtragungen einschließlich der Radionuklide durch Abspritzen, z.B. mit einem Wasserstrahl, entfernt. War die Dekontamination nicht ausreichend, so wird der Vorgang wiederholt.

Die bisherigen Versuchsergebnisse mit flußsäurebeständigen Adsorptionsmitteln, chlorfreien Trägermaterialien, Netzmitteln und Mineralsäuremischungen ergaben an unter Reaktorbedingungen (300 °C, 88 atü, 500 h) kontaminierten Edelstahlproben nur mäßige Dekontaminationswerte im Vergleich zu den auf dem Markt verbreiteten salzsäurehaltigen Beizpasten.

Gleichwertige Resultate erzielt man, wenn zur entwickelten chlorfreien Dekontaminationspaste 1/4 bis 1/5 der Menge an Salzsäure zugesetzt wird, die in den handelsüblichen, salzsäurehaltigen Beizpasten enthalten ist.

3. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzsäuremelzen

Die im 2. PNS-Halbjahresbericht 1973 /2/ beschriebenen Dekontaminationsversuche mit Hilfe von Salzsäuremelzen wurden fortgeführt. Die Untersuchungen erstreckten sich auf weitere Melzen, auf die Abhängigkeit der Dekontaminationswirkung von der Einwirkzeit und auf den Materialabtrag durch die Melzen. Die Vorversuche mit 21 Melzen an Edelstahlplättchen, auf die radioaktive Substanzen entweder aufgetropft und eine Stunde lang bis 400 ° gehalten wurden oder in Autoklaven aufgebracht wurden, sind abgeschlossen.

Auswahl der Salzsäuremelzen

Die für Dekontaminationszwecke einsetzbaren Salzsäuremelzen sollten folgende Bedingungen erfüllen:

- Sie sollten möglichst niedrige Schmelzpunkte haben, da sie dann leichter zu handhaben sind und die Materialien schonen.
- Zersetzungen der Melzen bei den Arbeitstemperaturen müssen ausgeschlossen werden, da sonst die Reaktionen der Melzen unkontrollierbar werden.
- Hygroskopische Substanzen sind schwer zu handhaben und sind deswegen nur begrenzt verwendbar.
- Es empfiehlt sich, wasserlösliche Substanzen einzusetzen, da die Entfernung der erstarrten Melzen von den behandelten Oberflächen mit Wasser am einfachsten ist.
- Die Melzen sollten möglichst geringe Korrosionswirkung auf die Materialien haben.
- Die Ausgangs- und Abfallprodukte müssen mit den angewandten Fixierungsmethoden und -medien (Bitumen, Glas) für radioaktive Abfälle verträglich sein.

- Die Salzgemische sollen aus gängigen und billigen Substanzen bestehen.

Anhand der Literatur wurden Salzschnmelzen ausgewählt /3, 4/, die diese Anforderungen - unter Umständen mit geringen Einschränkungen - erfüllen. Es handelt sich mit wenigen Ausnahmen um eutektische Gemische, denen teilweise andere Substanzen beigegeben wurden. Die untersuchten Schmelzen sind der Tabelle 4411-2 zu entnehmen. Es sei darauf hingewiesen, daß nicht die tabellierten Temperaturen, sondern die Arbeitstemperaturen eingetragen sind.

Versuchsmaterial und Kontamination

Als Versuchsmaterial dienten Edelstahlplättchen, Werkstoff 1.4541, der Größe 25 x 25 x 1,5 mm. Diese wurden vor der Kontamination 20 Minuten lang in einer sauren Beizlösung bis 80 ° getaucht, mit Wasser abgespült und getrocknet. Kontaminiert wurde mit einer trägerarmen (Trägerkonzentration = 10^{-5} mol/ml), salz- oder salpetersauren Lösung (pH = 4), zu der je ca. 0,2 - 2 µCi/ml der Nuklide ^{45}Ca bzw. ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{137}Cs und ^{144}Ce gegeben wurde. Das Aufbringen der Aktivität auf die Plättchen erfolgte nach zwei Verfahren

- Auf einen Teil der Plättchen wurde die angegebene Nuklidlösung aufgetropft und eine Stunde bei 400 ° in einem Ofen nachbehandelt.
- Andere Plättchen wurden 500 Stunden lang in einem 2 l-Hochdruckautoklaven bis 88 atü und 300 ° (Bedingungen ähnlich einem Druckwasserreaktor) mit einer Nuklidlösung behandelt. Nach Trocknung gelangten sie dann zur Dekontamination

Dekontamination

Vor der Dekontamination wurde die β -Aktivität auf den Proben mit Hilfe eines digitalen Meßplatzes und Methandurchflußzähler gemessen und zur Bestimmung des Materialabtrages die Plättchen gewogen.

Die Dekontamination selbst erfolgt in mehreren Schritten. Die Probe wurde 15 Minuten lang in die vorher auf ca. 20 - 50 ° über den eigentlichen Schmelzpunkt erwärmte Schmelze getaucht. Anschließend wurde die Probe zur Entfernung der anhaftenden Salze 10 Minuten lang in 100 ml Wasser bei Zimmer-

temperatur ohne Rühren gelegt und nach der Trocknung wiederum die Aktivität und das Gewicht bestimmt. Diese Arbeiten wurden für jedes Plättchen in gleichen Zeiträumen in der gleichen Schmelze jeweils viermal durchgeführt, so daß sich eine Verweilzeit im Salzbad von 60 Minuten ergibt.

Durch Diversion der Aktivitäten nach jedem Dekontaminationsschritt durch die Ausgangsaktivität erhält man die jeweilige Restaktivität. Der Abtrag ergibt sich aus der Gewichts Differenz dividiert durch die Plättchenfläche und Umrechnung auf eine Stunde.

Versuchsergebnisse

In der Tabelle 4411-2 sind die niedrigsten Restaktivitäten eingetragen, die innerhalb der vier Dekontaminationsschritte erzielt wurden. Bei den Phosphaten konnten die geringen Restaktivitäten nach dem 2. bzw. 3. Schritt erhalten werden, während bei anderen Schmelzen Rückkontamination erfolgte, so daß die niedrigste Restaktivität vor der Zeit von 60 Minuten erhalten wurde.

Als Ergebnisse sind zu nennen:

- Im Autoklaven kontaminierte Plättchen sind schwerer dekontaminierbar als Proben, auf die die Aktivität aufgetropft wurde. Schmelzen, die bei den Auftropf-Proben gute Resultate ergaben, bringen auch für Autoklaven-Plättchen gute Dekontaminationswerte.
- Basische und saure Schmelzen eignen sich besser zur Dekontamination als oxidierende; im Fall NaOH/KOH wird die Wirkung durch geringfügigen Zusatz von Na_2O_2 erhöht.
- Nitrathaltige Schmelzen sind ungeeignet. Dies mag darauf zurückzuführen sein, daß auf den Oberflächen Oxidschichten aufgebaut werden, die die Kontamination schützen.
- Je mehr Material abgetragen wird, desto besser ist das Dekontaminationsvermögen; ausgenommen davon sind die sulfathaltigen Schmelzen.

- Aus den Zeitabhängigkeitsversuchen ergibt sich, daß der erste Dekontaminationsschritt der wirksamste ist. Die Wirkung nimmt im allgemeinen von Schritt zu Schritt ab. Auf die Rückkontamination wurde bereits hingewiesen.

Für dekontaminationszwecke geeignete Schmelzen sind:

Saure Phosphate

Saure Sulfate

Alkalihydroxide

Aluminium-/Alkalichloride

Die beschriebenen Arbeiten werden unter folgenden Gesichtspunkten fortgesetzt:

- Tests an weiteren Schmelzen und Rezepturen.
- Erarbeitung einer Auftragechnik, so daß kontaminierte Teile nicht mehr ins Tauchbad eingebracht werden brauchen.
- Entwicklung einer entsprechenden Abtragechnik.
- Prüfung der Selektivität der Schmelzen auf bestimmte Nuklide.

Zitierte Literatur

/1/ 2. Halbjahresbericht 1972 des Projekts Nukleare Sicherheit
KFK 1787

/2/ 2. Halbjahresbericht 1973 des Projekts Nukleare Sicherheit
KFK 1908

/3/ Landolt-Börnstein
Zahlenwerte und Funktionen II/3
Springer-Verlag, 1956

/4/ Janz, G.J.
Molten Salt Handbook
Academic Press, 1967

$$DF = \frac{\text{Imp/min vor der Behandlung}}{\text{Imp/min nach der Behandlung}}$$

Edelstähle mit gebeizten (b) bzw. geschweißten (s) Oberflächen	D e k o n t a m i n a t i o n s l ö s u n g e n				
	Ia	Ib	II	III	IV
1.4301 b	10	4	1,8	1,6	2,3
s	12	7	1,6	1,3	2,1
1.4541 b	11	4	1,4	1,4	1,8
s	12	5	1,4	1,3	2,2
1.4571 b	12	5	1,5	1,4	1,9
s	13	6	1,3	1,3	1,5
1.4580 b	12	3	1,6	1,6	2,3
s	14	6	1,3	1,3	1,9
1.4961 b	13	3	1,5	1,6	2,9
s	14	5	1,4	1,3	2,3
1.4981 b	13	4	1,6	1,6	2,6
s	15	5	1,4	1,3	1,5
1.4988 b	12	3	1,5	1,5	2,1
s	14	5	1,4	1,3	1,8
Inconel 600 b	38	12	1,8	1,3	3,6
s	33	7	1,6	1,4	3,8
Inconel 625 b	22	8	1,6	1,7	3,0
s	19	6	1,6	1,4	2,8
Incoloy 800 b	10	4	1,7	1,6	2,2
s	13	6	1,4	1,3	1,6
Hastelloy X b	10	4	1,9	1,4	2,0
s	13	5	1,5	1,4	1,9

Tabelle 4411 - 2 Dekontaminationsergebnisse mit Salzschnmelzen

(Werte in Klammern vor der angegebenen Zeit erhalten)

Schnmelze	Mengenverhältnis (g)	Arb. temp. (°C)	Restakti- vität Auftropf. (o/o)	Abtrag ($\frac{\text{mg}}{\text{cm}^2 \cdot \text{h}}$)	Zeit min	Restakti- vität Autoklav (o/o)	Abtrag ($\frac{\text{mg}}{\text{cm}^2 \cdot \text{h}}$)	Zeit min
$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$	-	220	0,2	9,2	30	0,1	8,3	45
$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4/\text{KH}_2\text{PO}_4$	51,8/6,8	300	0	27,1	15	0,1	27,5	30
$\text{NH}_2\text{H}_2\text{PO}_4/\text{KCl}$	38,3/24,9	200	0,6	17,2	30	0,6	18,9	30
AlCl_3/KCl	27,0/7,0	180	1,7	0,7	60	3,2	1,0	60
$\text{AlCl}_3/\text{KCl}/\text{NaCl}$	26,6/14,9/11,7	130	0,6	1,0	60	6,1	1,1	60
$\text{NaHSO}_4/\text{KHSO}_4$	21,1/21,4	170	0,9	(0,4)	45	1,4	0	60
$\text{KHSO}_4/\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_7$	2,7/46,2	240	3,4	0	60	19,6	0	60
$\text{NaOH}/\text{K}_2\text{SO}_4$	39,0/4,4	320	10,5	0	60	49,0	0	60
NaOH/KOH	24,0/22,4	230	8,3	(0,3)	60	11,9	(0,3)	60
$\text{NaOH}/\text{KOH}/\text{Na}_2\text{O}_2$	24,0/22,4/0,5	260	0,4	0,3	45	1,0	14,3	30
$\text{NaOH}/\text{Na}_2\text{CO}_3$	36,0/10,6	320	8,8	0	60	17,5	0	15
$\text{NaOH}/\text{Na}_2\text{CO}_3/\text{Na}_2\text{O}_2$	36,0/10,6/0,5	310	8,5	0	60	25,2	0	45

Tabelle 4411 - 2 Dekontaminationsergebnisse mit Salzschnmelzen (Fortsetzung)
 (Werte in Klammern vor der angegebenen Zeit erhalten)

Schnmelze	Mengenverhältnis (g)	Arb. temp. (°C)	Restakti- vität Auftropf. (o/o)	Abtrag ($\frac{\text{mg}}{\text{cm}^2 \cdot \text{h}}$)	Zeit min	Restakti- vität Autoklav (o/o)	Abtrag ($\frac{\text{mg}}{\text{cm}^2 \cdot \text{h}}$)	Zeit min
$\text{K}_2\text{CO}_3/\text{KNO}_3$	2,6/48,8	320	26,5	(0,2)	60	56,0	0,1	60
$\text{Na}_2\text{SO}_4/\text{KNO}_3$	21,3/30,6	250	45,0	0,1	60	82,7	0	45
$\text{K}_2\text{SO}_4/\text{NaNO}_3$	3,5/40,8	320	25,3	(0,1)	60	63,8	0,1	45
$\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$	28,3/33,7	250	29,1	0	60	60,4	0	60
$\text{NaNO}_3/\text{KNO}_3$ NaNO_2	2,9/22,4/16,7	160	31,5	(0,1)	60	66,0	0,1	45
$\text{NaNO}_3/\text{NaCl}$	79,4/3,7	260	16,4	(0,2)	60	52,1	(0,3)	30
$\text{Na}_2\text{SO}_4/\text{NaNO}_3$ Na_2CrO_4	21,3/12,8/24,3	320	15,8	0,5	60	15,8	0,2	60
$\text{Na}_2\text{Cr}_2\text{O}_7/$ $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$	26,2/29,4	350	14,1	0,1	60	27,7	0,1	60
NaOH_3COO	-	320	13,5	(0,1)	60	69,0	0	30

4412 Verhalten von Plutonium im "Boden"

Bestehende und potentielle Quellen für Plutoniumkontaminationen
in der Umwelt

(A. Jakubick, ADB)

In der nächsten Zukunft rechnet man mit einer beträchtlichen Steigerung des Plutoniumanteils am Brennstoffzyklus. Eine solche Erhöhung darf jedoch nicht zur Kontamination des Biozyklus führen:

Die maximal zulässige menschliche Körperbelastung bei innerer Kontamination mit Pu-239 liegt bei 0,04 μCi (0,6 μg) - ist also äußerst gering.

Andererseits, solange Plutonium als Rohmaterial in Fabrikationsanlagen, Energiequelle in Reaktoren und Batterien (im Weltall), Verunreinigung in radioaktiven Abfällen, Bestandteil von nuklearen Waffen vorkommt, kann seine Freisetzungswahrscheinlichkeit nicht Null werden.

Aus diesen zwei Gründen gehört die Ermittlung der schlecht überschaubaren ökologischen Zusammenhänge zu den wichtigsten Aufgaben bei der Analyse der Umweltaspekte einer Plutonium-Technologie. Ein Teil dieser Gesamtaufgabe ist die Aufklärung der Wanderungsmöglichkeiten langlebiger Transuranelemente.

Als erster Schritt auf diesem Weg wurde - um Kontaminationen überhaupt identifizieren zu können - der Bestand des bis jetzt freigesetzten Plutoniums und seine Verteilung in der Umwelt ermittelt.

Im weiteren - um potentielle und bestehende Quellen lokaler Plutoniumkontaminationen zu finden - wurden die Ursachen verschiedener Freisetzungen untersucht. Erst mit Hilfe dieser Daten kann mit einer vernünftigen Analyse der Migrationswege und der natürlichen Transportmechanismen begonnen werden.

Die Auswertung verschiedenster Literaturquellen ergab /1, 2, 3, 4, 5/, daß der Weltbestand des freigesetzten Plutoniums sich auf etwa $8 \pm 3\text{t}$ bzw. $4,90 \pm 1,90 \cdot 10^5$ ci, Pu 239 beläuft. Typische Pu-239,-240 Konzentrationen in europäischen Breitengraden liegen bei:

10^{-22} Ci/cm ³	in der Luft
3,5 bis $30 \cdot 10^{-19}$ Ci/cm ³	im Meereswasser
10^{-14} bis 10^{-13} Ci/g	in oberster Bodenschicht
oder flächenbezogen	
10^{-3} Ci/km ²	in oberster 20 cm dicken Bodenschicht

Stellenweise können diese Werte bedeutend höher sein.

Fast alle erhöhte Plutoniumgehalt in der Umwelt konnte man bis jetzt direkt auf Freisetzungseignisse im militärischen oder nuklear-industriellem Bereich zurückführen. Sekundäre Anreicherungen durch natürliche Prozesse stellte man nur in seltenen Fällen, vor allem im marinem Milieu [6, 7] fest. Auch im Falle, daß weitere Untersuchungen die kleine ökologische Mobilität von Plutonium eindeutig nachzuweisen vermögen, besteht noch immer die Gefahr einer Erhöhung des Plutoniumpegels im Boden, der als natürlicher Auffänger von Plutonium aus Luft und Wasser funktioniert.

Aus künftigen Emissionen kann aufgrund der hohen Sorption an Bodenpartikel und wegen der langen Halbwertszeit von Pu-239 in absehbarer Zeit nur eine Zunahme, jedoch praktisch keine Abnahme von Plutonium in der Umwelt angenommen werden.

Als Grenze zwischen plutonium-kontaminiert/nicht kontaminiert schlägt Selby et al. [8] für nicht überwachte Flächen 10^{-8} Ci/m² vor.

Während der letzten drei Jahrzehnte hat man mehrere tausend kg Plutonium erzeugt. Allein der Weltvorrat an Reaktorplutonium beträgt heute etwa $2,8 \cdot 10^3$ kg [9]. Welche Umweltbelastung aus industriellen Plutoniumvorräten durch den Brennstoffkreislauf entsteht, hängt von geplanten und ungeplanten Freisetzungen aus kerntechnischen Anlagen ab. Einzelnen kann man sie folgenderweise charakterisieren:

- routinemäßige Plutonium-Abgaben in der Abluft und Abwasser zeichnen sich durch Konzentrationen an der Grenze der Meßbarkeit und durch zeitliche Beständigkeit aus;
- Unfallfreisetzungen können zwar größere Plutonium-Mengen in die Umwelt fördern, haben aber meist eine kurze Dauer.

Für die Abschätzung der Umweltbelastung durch den Brennstoffkreislauf können die routinemäßigen Plutonium-Ausstoßraten aus nuklearen Anlagen, die Plutonium zu anderen Zwecken als zur Energieerzeugung verarbeiten, nicht maßgebend sein. Mit der übrigen Atomindustrie verglichen, bestehen die Unterschiede vor allem in den gehandhabten Plutoniummengen, aber auch in seiner Isotopenzusammensetzung (Tab.:4412-1). Plutonium als ein künstliches Element besitzt keine natürliche Isotopenzusammensetzung. Sein chemisches sowie metabolisches Verhalten und daher auch die Belastung nach Freisetzung ist von Fall zu Fall verschieden.

Eine Untersuchung der charakteristischen Schritte des Brennstoffkreislaufs ergibt, daß:

- aus Reaktoren, außer bei einem extremen Unfall kein Plutonium freigesetzt wird; das gleiche gilt für den Transport von Plutonium;
- in Fabrikationsanlagen aufgrund der Erfahrung aus Brennstoffherstellung in Pacific Northwest Laboratories und aus Argonne National Laboratory mit kontinuierlicher Freisetzung von $5 \cdot 10^{-6}$ g Pu/a zu rechnen ist [10];
- eine Wiederaufarbeitungsanlage ca. $3,3 \cdot 10^{-4}$ bis $5 \cdot 10^{-2}$ g Pu/a an die Umwelt abgibt. Dieser Wert geht auf die Messungen in Abluft und Abwasser von Nuclear Fuel Services Plant in West Valley, N.Y. zurück [11, 12]. Bei neuen Wiederaufarbeitungsanlagen (z. B.: Mid-West Fuel Recovery Plant und Barnwell Nuclear Fuel Plant) rechnet man mit keinen Abwässern. Dadurch dürfte ihre Umweltbelastung unter dem angegebenen Wert liegen. Beobachtungen aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe [13] zeigten, daß das Verhältnis der Plutonium-Abgabe in der Abluft und im Abwasser bei ca. 1:3 liegt.

Die Angabe der kontinuierlichen Plutonium-Ausstoßrate kann unabhängig vom Plutonium-Durchsatz erfolgen. Den bisherigen Erfahrungen zufolge [8] besteht zwischen beiden Faktoren keine Abhängigkeit. Eine solche Unabhängigkeit könnte aber auch dadurch vorgetäuscht sein, daß die Pu-Konzentrationen in der Abluft an der Grenze der Meßbarkeit liegen.

Größere Unfälle können zu erheblicher Umweltbelastung führen: Kritikalitätsunfälle, chemische Explosion von Behältern mit Plutoniumlösungen oder von Autoklaven, Feuer in Nähe von Behältern mit Plutoniumlösungen, Beschädigung

der Handschuhkästen, Explosion beim Sintern, Brand von Harz-Kolonnen, Brand der Anlage.

Zur Abschätzung der Quellenstärke und Freisetzungswahrscheinlichkeit bei Unfällen muß die beteiligte Plutoniummenge und seine Bereitschaft zur Aerosolbildung bekannt sein.

Wäre der Plutoniumdurchsatz für Anlagen, wo sich unvorhergesehenen Plutoniumfreisetzungen ereignet haben, bekannt, könnte man leicht zwischen beiden Faktoren eine Korrelation aufstellen. Solche Angaben werden jedoch aus verständlichen Gründen nicht veröffentlicht. Die Freisetzungsmöglichkeiten müssen also anhand anderer Kriterien veranschlagt werden.

Im Einzelnen ist die Freisetzung von Korngröße, physikalischer und chemischer Form von Plutonium, Luftzug und Umgebungstemperatur abhängig. Von entscheidender Bedeutung ist die Beschädigung der Filter beim Unfall sowie ihre vorherige Beladung. Aufgrund dieser Kriterien und vorhandener Literaturangaben [8, 10, 24, 25, 26, 27, 28, 29] wurde, unter Annahme einer gegenseitigen Unabhängigkeit der Unfallereignisse, eine gesamte Freisetzungswahrscheinlichkeit für Plutonium aus Fabrikationsanlagen von $3,11 \cdot 10^{-2}$ g/a mit 11,3 % Wahrscheinlichkeit berechnet.

Für die aufgezählten Unfälle läßt sich die Aerosolbildung anhand einer reichlichen Literatur [14, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 22] ermitteln. Bei Oxidation von metallogenem Plutonium entstehen Partikel einer charakteristischen Form im Submikron-Bereich. Sie setzen sich gleich nach Entstehung zu größeren Agglomeraten mit Durchmesser um 4μ zusammen. Agglomeratbildung über 8μ ist selten. Plutoniumverbindungen (Pu-Oxalate, Pu-Peroxide, Pu-Oxide, Pu-Fluoride) verhalten sich nicht sehr verschieden. Die Bildung einer charakteristischen sphärischen Partikelform wurde zwar nur bei Oxalaten beobachtet, aber die Korngröße lag auch hier oft über 1 bis 2μ , mit feinsten Partikeln um 0,02 bis $0,1 \mu$ [23].

Aus dem Vergleich des Unfalltyps mit den Möglichkeiten zur Aerosolbildung gelangt man zu folgenden Schlußfolgerungen:

- in Fällen: Kritikalität, Explosion, Feuer und Brand des Ionenaustauschharzes ist das entweichende Plutonium in löslichem Zustand; in restlichen Fällen überwiegt die unlösliche Form;

- bei allen Unfällen befindet sich das Plutonium bzw. bei lokalem Feuer zu ca. 80 % in respirablem Bereich ($< 3,3 \mu$).
- zur Verdampfung von nicht vernachlässigbaren Plutoniummengen kommt es in keinem der Fälle.

Wenn man eine Freisetzung infolge verschiedener Einwirkungen von außen (z. B. durch Erdbeben, Flugzeugabsturz, Sabotage oder Kriegshandlungen) als unwahrscheinlich beiseite läßt, dann ist bei allen übrigen Freisetzungsarten - gleichgültig ob kontinuierlich oder zufällig in ihrer Art - nur ein Entweichen durch das Abluftsystem möglich.

Man kann mit hoher Sicherheit annehmen, daß von luftgetragenen Plutoniumpartikeln die Teilchen von $0,3 \mu$ Durchmesser am wahrscheinlichsten bis in die Umwelt gelangen. Sie besitzen das größte Durchdringungsvermögen durch die Absolutfilter [8].

Weiterhin kann angenommen werden [25, 28], daß in allen aufgezählten Fällen, mit Ausnahme vom Großbrand, die Ausbreitung der Plutoniumpartikel im Freien in bodennaher Luft erfolgt. Etwa zwei Stunden nach dem Schadensereignis ist mit dem Beginn des Ausfallens der Plutoniumpartikel zu rechnen. Nur beim Großbrand können Plutoniumpartikel auch größere Höhen erreichen und länger als 2 Stunden in der Atmosphäre bleiben. In diesem Fall jedoch auch nicht länger als 8 Stunden.

Berechnungen nach dem Modell von Slade [30] zeigen, daß die Plutoniumpartikel aus bodennaher Luft in Windrichtung innerhalb einer Entfernung von 100 m zu 99,90 % abgelagert werden. Bei einer Freisetzung in 100 m Höhe ist die Konzentration von Plutonium in der Luft in Windrichtung nach einem Kilometer ca. $2 \cdot 10^{-5}$ % der Anfangskonzentration und fällt mit Entfernung weiter ab.

Darüber, ob die Endlagerung in geologischen Formationen bereits eine Umweltkontamination darstellt oder nicht und welcher Grad der Umweltbelastung durch diese Entsorgungsform entsteht, gehen die Meinungen weit auseinander. Um auf der sicheren Seite zu bleiben, kann die Endlagerung als potentielle Kontaminationsquelle betrachtet werden. Ihr Charakteristikum ist: Fixierung relativ großer Plutoniummengen für extrem lange Zeit auf einer Stelle und begrenzte Möglichkeit der Kontrolle nach Auftreten unerwarteter Ereignisse. Eine Freisetzung durch schnell wirkende geologische Prozesse wie Erdbeben oder vulkanische Tätigkeit ist bei richtiger Standortwahl vernachlässigbar gering. Die Wirkung von langsamen exo-

genen Kräften wie Verwitterung, Denudation, Wind- und Wassererosion, Änderung des Meeresspiegels wird während einer Lebenszeit kaum wahrgenommen. Im Hinblick auf die lange Zeitdauer - etwa eine viertelmillion Jahre - bis sich die Menge an Pu-239 um drei Größenordnungen reduziert hat, können diese geologischen Prozesse jedoch nicht mehr unberücksichtigt bleiben.

Die relativ wahrscheinlichste Freisetzungsmöglichkeit aus dem Endlager besteht durch die Erosion des Grundwassers, durch sog. Suffosion und anschließende Auslaugung. Durch einen solchen Vorfall beschleunigt sich auch die rein diffusive Ausbreitung des Nuklids. Sie verläuft dann nicht mehr in fester, sondern in flüssiger Phase, die möglicherweise ein poröses Medium sättigt.

Im Hinblick auf die Wissenslücken und dem bei PNS bearbeiteten Themenkreis ergeben sich die folgenden Forschungsaufgaben:

- Für eine Sicherheitsstudie zur Endlagerung hochaktiver und α -strahlender Abfälle sind Untersuchungen über das Rückhaltevermögen der Endlagerformation und ihrer geologischen Umgebung für Transurane notwendig; solche Untersuchungen sind auch für die Beurteilung verschiedener Strategien zur Abfallentsorgung erforderlich.
- Um Richtwerte für effektive Dekontaminationsmaßnahmen im offenen Gelände nach nichtgeplanten Transuranenfreisetzungen ausarbeiten zu können, muß die Vorrückung und Dispersion dieser Nuklide in typischen mitteleuropäischen Böden und ihre Löslichkeit in typischen natürlichen Wässern ermittelt werden.
- Bei Erarbeitung der Richtlinien für Standortauswahl von Pu-bearbeitenden Anlagen und zur Beurteilung der Umgebungs-Belastung durch solche Anlagen müssen auch hydrologische, geologische und bodenkundliche Fragen berücksichtigt werden. Dabei treten insbesondere die Aspekte in den Vordergrund, die die Langzeitakkumulation von Transuranen aus nicht rückhaltbaren Freisetzungen beeinflussen.

Tab. 4412-1: Vergleich der Isotopenzusammensetzung von schwach-
bestrahltem bzw. rezykliertem Plutonium

Isotop	Emissionart	HWZ [a]	spez. Akt. [Ci/g]	schwach bestrahltes Pu [%]	rezykl. Pu [%]
Pu-238	α	86,4	$1,74 \cdot 10$	$1,15 \cdot 10^{-2}$	2,9
Pu-239	α	23490	$6,14 \cdot 10^{-2}$	$9,36 \cdot 10$	$3,96 \cdot 10$
Pu-240	α	6580	$2,26 \cdot 10^{-1}$	5,9	$2,56 \cdot 10$
Pu-241	β	13,2	$1,12 \cdot 10^2$	$4,0 \cdot 10^{-1}$	$1,68 \cdot 10$
Pu-242	α	379000	$3,9 \cdot 10^{-3}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10$

Zitierte Literatur

- [1] Harley, J.H.
Worldwide Plutonium Fallout From Weapon Tests
LA-4756, 1971
- [2] Hardy E.P., Krey P.W., Volchok H.L.
Global Inventory and Distribution of Fallout Plutonium
Nature, 241, No 5390, 1973
- [3] Hardy E.P. [ed]
Fallout Program Quarterly Summary Report
HASL-Reports since 1965
- [4] Schleien B., Magno P.J.
Plutonium Concentration in ground level air and changes in
Pu-238 to Pu-239 ratios
Radiol. Health Data Rep. 8, 561, 1967
- [5] Schleien B., Cochran J.A., Magno
Strontium and Plutonium Isotopes in ground level air
October 1963 - March 1969
Radiolog. Health Data and Reports, March 1970
- [6] Pillai K.C., Smith R.C., Folsom T.R.
Plutonium in the Marine Environment Nature
203, 1964
- [7] Wong, K.M.
Pu-239 in Some Marine Organisms and Sediments
NYO-2174-115, 1970
- [8] Selby et al.
Considerations in the Assessment of the Consequences of
effluents from mixed oxide fuel fabrication plants.
BNWL-1697, 1973
- [9] Keller C.
Herstellung und Anwendung der Transuranelemente
Naturwissenschaftliche Rundschau
4.9., 1972

- [10] Swain E.O. and Habermann H.D.
Plutonium Emission Rates From Various Incidents in the
234-5 Z Building
Gen. Electric, HAPO, Richland, Washington, 1961
- [11] Cochran J.A., Smith D.G., Magno P.J., Schleien B.
An Investigation of Airborne Radioactive Effluent from an
Operating Nuclear Fuel Reprocessing Plant
BRH/NERHL 70-3, 1970
- [12] Magno P., Reavey T., Apidianakis I.
Liquid Waste Effluents from a Nuclear Fuel Reprocessing Plant.
NERHL 70-3, 1970
- [13] Kiefer H., W. Koelzer
Abt. Strahlenschutz und Sicherheit
Jahresbericht 1971, KFK 1565, 1972
- [14] Stewart K.
The Particulate Material Formed by the Oxidation of Plutonium
Progress in Nuclear Energy, Series N, Vol. 5 1963
- [15] Chatfield E.J.
The generation of Particulate Aerosols from Plutonium
Surfaces
Armospheric Environment, Vol. 2, No. 2, 1968
- [16] Mishima J.
Plutonium Release Studies I. Release from the Ignited Metal
BNWL-205
- [17] Mishima J.
Plutonium Release Studies II. Release from Ignited
Bulk metallic Pieces
BNWL-357

- [18] Carter R.F. Stewart K.
On the Oxide Fume Formed by the Combustion of Plutonium
and Uranium
Inhaled Particles III., Vol. II The Gresham Press, 1971
- [19] Mishima J., Schwendiman L.C. Radasch C.A.
Plutonium Release Studies III. Release from Plutonium
Bearing Powers
BNWL-786, 1968
- [20] Mishima J., Schwendiman L.C.
The Amount and Characteristics of Plutonium Made Airborne
Under Thermal Stress.
BNWL-SA 3379, 1970
- [21] Cladwell C.S.
Development of Plutonium Bearing Fuel Materials
NUMEC-P80, 1961
- [22] Mishima J., Schwendiman L.C. Radasch C.A.
Plutonium Release Studies IV. Fractional Release from
Heating Plutonium Nitrate Solutions in a Flowing
Air Stream
NBWL-931, 1968
- [23] Hagden J.A., Baker H.M., Robinson H.N.
Plutonium Particle Studies
RfP-1837-A
- [24] Paxton H.C.
Criticality Control in Operations With Fissile Material
LA-3366, 1972
- [25] Strenge D. L. Hendrickson M.M. Watson E.C.
Racer - A Computer Code for Calculating Potential External
Dose from Airborne Fission Products Following Postulated
Reactor Accidents
BNWL-B-69, 1971

- [26] Fullam H.T., Jansen G.S., Van Slyke W.J.
Thermochemical Instabilities in Anion-Exchange
Processing
BNWL-SA-2067, 1969
- [27] Van Slyke W.J., Jansen G.S. Swift W.H.
Thermal Effects on Anion-Exchange Resin-Nitric-Acid
Systems
BNWL-114, 1965
- [28] Reliability and Maintainability Data-Source guide
US Naval Applied Sci. Lab. N.Y. 1967
- [29] Gumprecht R.O.
Mathematical Basis of Computer Code RIBD
DUN-4136, 1968
- [30] Slade D.H. (ed)
Meteorology and Atomic Energy 1968
USAEC Rep. TID-24190, 1968

Eigene Veröffentlichungen:

A. Jakubick

Wanderung langlebiger Transurane im Boden und geologischen Formationen

Literaturauswertung und Versuchsprogramm

April 1974

4420 Technik der Räum- und Demontgearbeiten

4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung
und Endbeseitigung nuklearer Anlagen
(W. Bahm, G.W. Köhler, G. Scholer, RBT)

Zur Ermittlung des Standes der Technik und Klärung der örtlichen Verhältnisse wurde umfangreiches Material beschafft sowie teilweise bereits ausgewertet, und zwar über bisherige Stilllegungsarbeiten, dabei verwendete Spezialwerkzeuge, mögliche Arbeitsverfahren und Detail-Pläne verschiedener Kernkraftwerke.

Zur Ermittlung des Abklingverhaltens von Groß-Komponenten wurde ein Arbeitsprogramm aufgestellt.

Zur planungs- und materialmäßigen Vorbereitung von Stilllegungen, die durch einen schweren Störfall erzwungen werden, wurde ein koordiniertes Arbeitsprogramm ausgearbeitet. Beteiligt sind die Gesellschaft für Kernforschung mbH sowie die Firmen: Kraftanlagen AG, Heidelberg, Nukem GmbH, Nuklear-Ingenieur-Service GmbH und Transnuklear GmbH. Das Programm gliedert sich in drei Aufgabenblocks, und zwar:

- Stilllegungsstrategien für schwere Störfälle
- Detaillierte Planungen und Beschaffung von Geräten zur Behebung schwerer Störfälle
- Begleitendes F- und E-Programm für große Reparaturen.

Bei einer Stilllegung nach einem schweren Störfall muß damit gerechnet werden, daß die Brennelemente teilweise oder alle nicht mehr mit den für den normalen Betrieb zur Verfügung stehenden Geräten aus dem Core entfernt werden können. Hierdurch unterscheidet sich - abgesehen von möglichen ausgedehnten schweren Kontaminationen und Schäden an Komponenten - die Situation nach einem schweren Störfall wesentlich von einer geplanten Stilllegung. Das Räumen des Cores ist neben Störfall-Analysen, Abschätzung der zu erwartenden Ortsdosisleistungen, Klärung von Fragen der Dekontamination und des Transportes von Groß-Komponenten eine der vordringlich zu bearbeitenden Aufgabe. Es ist daher geplant, zunächst diese Probleme zu bearbeiten.

Für einen größten Teil der zur geplanten Stilllegung des HDR-Reaktors voraussichtlich benötigten Geräte wurde eine erste Spezifikation, Klärung der technischen Konzepte und Kostenschätzung durchgeführt.

4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte
(G.W. Köhler, M. Salaske, M. Selig, RBT)

1. Mittleres Manipulator-Fahrzeug "MF2"^{x)}

Das komplette System, bestehend aus dem Manipulator-Fahrzeug "MF2", einem Leitfahrzeug und einem Lastkraftwagen für den Transport des "MF2", wurde an den Kerntechnischen Hilfszug übergeben und einer ersten Erprobungsphase unterzogen. Das Projekt ist damit als Entwicklungsvorhaben abgeschlossen. In Zukunft sind aufgrund gesammelter Erfahrungen oder zusätzlicher Anforderungen voraussichtlich noch einige Verbesserungen bzw. Ergänzungen an dem Gerät vorzunehmen.

2. Leichtes Manipulator-Fahrzeug "MF3"^{xxx)}

Der Auftrag über die Fertigung des Fahrgestells und der zugehörigen Steuerung wurde einer Fachfirma erteilt. Die erstellten Konstruktions- bzw. Auslegungsunterlagen konnten nach Prüfung und einigen Korrekturen zur Ausführung freigegeben werden. Die Abwicklung verläuft bis jetzt im Einklang mit dem vereinbarten Liefertermin.

Für den Prototyp des elektrischen Master-Slave-Manipulators "EMSM I" sind einige ergänzende Komponenten in Planung, Fertigung bzw. in Erprobung, um mit diesem bereits vorhandenen Gerät in Versuchen unter möglichst echten Bedingungen erste Erfahrungen im Arbeiten mit Manipulator-Fahrzeugen in Räumen zu gewinnen.

x) Siehe auch 1. Halbjahresbericht 1972 des PNS, KFK 1702

xxx) Siehe auch Halbjahresberichte 1972 und 1973 des PNS, KFK 1787, 1859 und 1908.

Im einzelnen sind im wesentlichen vorgesehen bzw. notwendig:

- Je ein fahrbarer Hubwagen ohne Antrieb für den Slave- und Master-Arm
- eine Stereo-Fernseh-Anlage
- ein Ausleger mit einem elektromotorisch angetriebenen Schwenk-Neige-Kopf für die Fernsehkameras
- mechanische und elektrische Werkzeuge für die verschiedensten Zwecke, die vom Slave-Arm zum Einsatz gebracht werden können, einschließlich der erforderlichen Bereithalte- und Wechselvorrichtungen.
- Beleuchtung und Kabelführung

Die Fernsehanlage besitzt Kompakt-Kameras und arbeitet mit 675 Zeilen sowie 60 Hz. Sie liefert ein gutes und vor allem sehr ruhiges Bild. Dies ermöglicht infolge weniger rascher Ermüdung der Augen eine längere Einsatzdauer der Operateure.

Für das leichte Fahrzeug "MF3" sind jedoch wesentlich kleinere Fernsehkameras mit fernsteuerbaren Vario-Optiken erforderlich.

Als Standard-Arbeitsgeräte für das "MF3" sind zwei leichte elektrische Master-Slave-Manipulatoren "EMSM II" noch im Detail zu entwickeln und zu beschaffen. Sie werden vom Prototyp "EMSM I" abgeleitet und eine vom Prinzip her gleiche Steuerung erhalten.

Es ist ein Arbeitsbericht weit fortgeschritten, in dem die Ergebnisse der Untersuchungen im Hinblick auf die Zugänglichkeit und Einsatzmöglichkeiten des "MF3" in Kernkraftwerksanlagen zusammengestellt sind.

4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG NUKLEARER ANLAGEN

4530 Risiko- und Zuverlässigkeitsanalyse nuklearer Anlagen

Statusbericht über Methoden der quantitativen Analyse
von Unfallrisiken kerntechnischer Anlagen

(R. Papp, L. Caldarola, F. Helm, P. Jansen, P. McGrath, G. Weber,
G. Wittek, IASR)

Im Berichtszeitraum wurde der Entwurf des Statusberichts fertiggestellt
/1/.

Ziel aller Bemühungen auf diesem Gebiet ist es, zu vollständigen,
quantitativen Aussagen in Form von Kosten/Nutzen/Risiko-Analysen zu
kommen, so daß z.B. das Reaktorrisiko als eine der Planungsgrundlagen
in Entscheidungsprozessen (beispielsweise bei Standortfragen) mit heran-
gezogen werden kann. Im Rahmen dieser Studie wurden Kosten/Nutzen-Aspekte
nicht behandelt; dagegen wurde der heutige Stand und die Aussagefähigkeit
der vorhandenen Methoden und Verfahren für eine quantitative Risiko-
betrachtung untersucht und bewertet. Außerdem wurden Vorschläge für
notwendige weitergehende Anstrengungen auf diesem wichtigen Gebiet
erarbeitet.

Methoden der Risikoberechnung

Voraussetzung für die Berechnung des mit Störfällen verbundenen Risikos
ist die Bestimmung der Versagenswahrscheinlichkeit von Systemen. Dazu
werden Methoden verwendet, die nach folgenden Gesichtspunkten klassifiziert
werden können:

a) von einer Ursache (Komponentenausfall) ausgehend werden alle möglichen
Folgen bestimmt

oder

b) von einem "unerwünschten Ereignis" ausgehend (Systemausfall) wird auf
mögliche Ursachen geschlossen. Es gibt noch weitere Unterscheidungsmög-

lichkeiten: qualitative Analyse (im Fall a) z.B. die "Ausfallart- und Fehlereffektanalyse" (FMEA) und quantitative Analyse (z.B. im Fall b) die "Fehlerbaumanalyse").

Die Zuverlässigkeitsanalyse stellt damit ein Werkzeug zur Erfassung von Versagenswahrscheinlichkeiten von Systemen dar. Die Leistungsfähigkeit dieser Methode kann wie folgt zusammengefaßt werden:

1. Systematische Beurteilung von Komponenteneinflüssen auf das Ausfallverhalten eines Gesamtsystems.
2. Ermittlung von Systemschwachstellen sowie von Zuverlässigkeitsanforderungen an Untersysteme und Komponenten.
3. Entscheidungshilfe bei Beurteilung alternativer Auslegungskonzepte.

Grenzen der Zuverlässigkeitsanalyse:

1. Unsicherheiten bezüglich der "Daten" (Ausfallraten von Komponenten).
2. Unerkannte Systemversagensraten
3. Common-Mode-Fehler
4. Problem des menschlichen Einflusses.

Aufgrund der genannten Einschränkungen ist eine absolute Aussage über die Zuverlässigkeit von Systemen heute nur in Einzelfällen möglich.

Zur Bestimmung des Risikos sind neben der Ermittlung der Eintrittswahrscheinlichkeit und Größe von Schadensereignissen weitere Schritte notwendig, die Überlegungen zur vollständigen Erfassung aller Schadensereignisse, die wesentliche Risikobeiträge liefern, beinhalten. Besonders bekannt geworden sind Verfahren von Otway und Farmer. Aus den Untersuchungsergebnissen für die wichtigsten Störfallmechanismen leitet Otway eine Gesetzmäßigkeit für die Abhängigkeit zwischen der Eintrittswahrscheinlichkeit eines Störfalls und der damit verbundenen Abgabe von Radioaktivität an die Biosphäre ab.

Eine Ähnlichkeit mit dem Vorgehen Otways hat das Grenzlinienkonzept von Farmer. Dabei handelt es sich um die Erarbeitung einer Bedingung, der jeder denkbare Unfallablauf genügen muß, um nicht zu einem unannehmbaren Risiko zu führen. Diese Bedingung besagt, daß in einem Diagramm in dem - ähnlich wie bei Otway - Unfallhäufigkeit gegen Aktivitätsfreisetzung (in Einheiten Ci J-131) aufgetragen ist, alle Unfälle unterhalb dieser Grenzlinie liegen müßten.

Eine neuere Arbeit auf dem Gebiet der Risikoberechnung schwerer Reaktor-Störfälle stellt die Rasmussen-Studie dar, mit deren Fertigstellung und Veröffentlichung im Sommer dieses Jahres gerechnet werden kann.

In Kapitel II und Anhang 1-8 des Statusberichts werden die heute verfügbaren Methoden und Verfahren der quantitativen Risikoanalyse ausführlich behandelt und bewertet.

Risiko des nuklearen Brennstoffzyklus (BZ)

Hier soll nur auf die besondere Art des Risikos im BZ, besonders bei der Endlagerung von Abfall, hingewiesen werden. Unter dem Risiko erster Art wird hier jenes verstanden, das bei Betreiben der Anlagen des BZ entsteht und somit gleichsam "abgeschaltet" werden kann.

Die zweite Art des Risikos ist durch den entstehenden radioaktiven Abfall charakterisiert und kann durch Abschalten der Anlagen nicht wieder zum Verschwinden gebracht werden. Die Zeitcharakteristik dieser Art Risiko erstreckt sich weit in die Zukunft, theoretisch bis zu dem Zeitpunkt, wo das letzte radioaktive Isotop zerfallen ist. Praktisch könnte ein "effektiver Nullpunkt" so gefunden werden, indem der Zeitpunkt errechnet wird, zu dem unbeabsichtigtes Öffnen einer Abfall-Lagerstätte keine größere Gefahr in sich birgt, als die in Uranbergwerken angetroffene.

Im Anhang 7 des Statusberichtes /1/ wird darauf näher eingegangen.

Das Problem der "Public Acceptance" von Kernenergie

In diesem Kapitel wird der Aspekt der Public Acceptance behandelt, wobei betont wird, daß dieser im wesentlichen ein Kommunikationsproblem darstellt. Das Kommunikationsproblem zeigt sich dabei in zwei Richtungen,

einmal von den KE-Fachleuten in Richtung Öffentlichkeit, zum anderen von der Öffentlichkeit in Richtung KE-Fachleute.

In Richtung Öffentlichkeit besteht das Kommunikationsproblem vor allem in der

- Vermittlung technischer und wissenschaftlicher Einzelheiten, um die Beurteilung der Solidität eines Vorhabens möglich zu machen,
- Durchsichtigung von Entscheidungs- und Überwachungsprozessen,
- Verdeutlichung des Nutzens der KE insbesondere auch im Vergleich zu anderen Möglichkeiten der Energieerzeugung.

In der Gegenrichtung ist Kommunikation deshalb nötig, weil die Festlegung von Zumutbarkeitsgrenzen nicht durch Fachexperten allein geschehen kann, sondern nur im Kontakt mit den Betroffenen.

Einige der Schlußfolgerungen des Statusberichtes sind:

Auf der Basis des erörterten Wissensstandes scheint eine quantitative Abschätzung der Risiken durch Störfälle von KE-Anlagen noch nicht befriedigend möglich zu sein. Drei Gebiete haben sich im wesentlichen als Schwachstellen erwiesen, und dort müssen auch die Schwerpunkte weiterer Arbeiten liegen:

- a) Die Eintrittswahrscheinlichkeit unfallauslösender Ereignisse sowie die Zuverlässigkeit der unfallhemmenden Funktion sicherheitstechnischer Einrichtungen kann wegen mangelnder Daten der Komponenten und nur unvollständiger Erfassung aller Funktionszusammenhänge im allgemeinen noch nicht hinreichend genau ermittelt werden.
- b) Der physikalische Ablauf des Unfallgeschehens in der Anlage sowie die physikalischen Folgeereignisse in ihrer Umgebung vollziehen sich in außerordentlich komplexen Systemen. Methoden zur modellmäßigen Erfassung dieser Vorgänge befinden sich heute in der Entwicklung, haben jedoch noch nicht den Stand erreicht, der zu einer Errechnung von Risikowerten voraussetzen wäre.

- c) Über die Schadensauswirkungen eines Unfalls, d.h. über die biologischen Konsequenzen äußerer Bestrahlung und der Inkorporation radioaktiven Materials sind allgemein akzeptierte quantitative Angaben nur in beschränktem Umfang verfügbar. Schließlich befinden sich auch die Methoden zur Bewertung dieser Folgen und zum quantitativen Vergleich mit anders gearteten Risiken erst in der Entwicklung.

Eigene Veröffentlichung:

/1/ R. Papp, L. Caldarola, F. Helm, P. Jansen, P. McGrath, G. Weber,
G. Wittek,
Statusbericht - Methoden zur quantitativen Analyse von Kernenergie-
Risiken,
Juni 1974

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1974

2. Halbjahresbericht 1973 des Projekts Nukleare Sicherheit,
KFK 1908, April 1974

H. Schüttelkopf,

Die Umgebungsbelastung durch ^{129}Jod aus einer Wiederaufarbeitungs-
anlage mit 1500 t Uran Jahresdurchsatz,
KFK 2045 (1974)

A. Bayer, T.N. Krishnamurthi, M. Schückler,

"Population Dose Considerations for the Release of Tritium, Noble Gases
and Iodine-131 at a Special Region",
IAEA-Seminar Portoroz 1974, IAEA Wien (1974)

F. Porz,

"Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Jodisotopen durch Kernreaktoren
und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische
Belastung bis zum Jahr 2000"
KFK 1912 (1974)

K.D. Appelt, G. Bönisch, J. Kadlec, E. Wolf,

Untersuchungen des Druckpulsationsfeldes und der in die Kondensations-
kammer des Druckabbausystems der Reaktoranlage MARVIKEN eingeflossenen
Massenströme beim Blowdown.

Reaktortagung des Deutschen Atomforums e.V., Berlin, 2.-5. April 1974

R. Löffel,

Anwendungsmöglichkeiten der Radionuklidtechnik zur Untersuchung von
instationären Mehrphasenströmungen,
Reaktortagung 1974 des Deutschen Atomforums e.V., Berlin, 2.-5. April 1974

C. Petersen,

Literaturübersicht über einige Eigenschaften von Zircaloy-4 bei höheren
Temperaturen,
KFK-Ext. 6/73-6, März 1974

A. Bayer, R. Kalckbrenner, T.N. Krishnamurthi,

Die zukünftige Tritiumbelastung des Oberrheins,
Reaktortagung 1974 des Deutschen Atomforums e.V., Berlin 2.-5. April 1974

F. Süss, P. Thomas,

On-line Datenerfassung und Datenaufbereitung in einer Kopplung
meteorologischer Turm - PDP-8/I - CALAS-System
KFK 1934 (April 1974)

Projektberichte (beschränkter Verteiler)

S. Malang,

Bericht über das Water Reactor Safety Research Meeting der USAEC
vom 4. - 6. Dez. 1973 in Washington,
Januar 1974

M. Fischer,

Statusbericht der Projektleitung über das 2. Halbjahr 1973,
April 1974

D. Maier,

Literaturstudie zur Primärkreislaufkontamination,
Dez. 1973

R. Köster,

Zum Problem der Schutzschichtenbildung in LWR-Primärkreisläufen,
Febr. 1974

G. Class, A. Fiege, M. Fischer, G. Hofmann, E. Karb, W. Kramer, M. Küchle, T. Schmidt,
B. Schulz, GfK; E. Dluzniewski, IRS; H. Karwat, LRA; K. Riedle, KWU,
Stellungnahme der Arbeitsgruppe PHEBUS zum Phebus-Programm des CEA und
zu einer deutsch-französischen Zusammenarbeit bei in-pile-Sicherheits-
experimenten zum Kühlmittelverlustunfall von LWR
Mai 1974

S. Dorner, K. Schretzmann,

Rekombination des bei einem Störfall freigesetzten Wasserstoffs
mittels CuO,
Juni 1974

A. Jakubick,

Wanderung langlebiger Transurane im Boden und geologischen Formationen
Literaturauswertung und Versuchsprogramm,
April 1974

R. Papp, L. Caldarola, F. Helm, P. Jansen, P. McGrath, G. Weber, G. Wittek,
Statusbericht - Methoden zur quantitativen Analyse von Kernenergie-
Risiken,

Juni 1974

GfK, Battelle, IRS, LRA, KWU,
Spezifikation der sicherheitstechnischen Untersuchungen am HDR
"Blowdown-Versuche",

Juni 1974

