

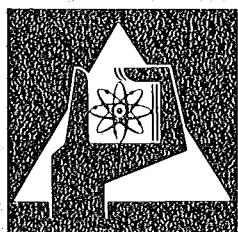
# KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Mai 1975

KFK 2130

Projekt Nukleare Sicherheit

2. 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

Korrekturbeilage zum KFK 2130

---

- Seite 44: In der Überschrift zu 4151 soll der letzte Teil richtig lauten: "A Contribution to Heat Loss Models."
- Seite 128 und 129: Die Bildunterschriften sind in der Reihenfolge der Abbildungen zuzuordnen, nicht entsprechend den Hinweispfeilen.
- Seite 196: Der Text gehört zur Beschreibung des Vorhabens 4237.1 und ist zwischen die Seiten 210 und 211 einzuordnen.
- Seite 210: Zeile 14 soll lauten: "Sie ergab sich zu 4,7 % U-235."

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

KFK 2130

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

6. Projektbericht / 2. 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 Behandlung radioaktiver Abfülle	ABRA
Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit	ASS
Laboratorium für Isotopentechnik	LIT
Laboratorium für Filtertechnik	LFT
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 6. Halbjahresbericht 2/1974 beschreibt die Fortschritte der Arbeiten im 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 eine KURZFASSUNG (S. 1 - 76) 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.

NUCLEAR SAFETY PROJECT

SECOND SEMIANNUAL REPORT 1974

---

The 6th Project Report 2/1974 is a description of work within the Nuclear Safety Project performed in the second six month 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.38 - 76 ) on

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

This report was compiled by the project management.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Kurzfassung	1
Summary	38
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNTECHNISCHE ANLAGEN UND WIEDERAUFA- ARBEITUNGSANLAGEN	77
4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufar- beitungsanlagen	77
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spalt- produkten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	77
4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufar- beitungsanlagen	85
4114 Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgasen	96
4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen und deren Reinigung	106
4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktorkühlmitteln	106
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	111
4132 Untersuchung der <sup>129</sup> J-Radioökologie	111
4134 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung durch eine Anhäufung kerntechnischer Anlagen	115
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechni- scher Anlagen	119
4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen	124
4151 Untersuchung des Wärmeaustausches Fluß/Atmosphäre am Beispiel des Rheins unterhalb des Kernkraftwerkes Philippsburg als Beitrag zu Abkühlungsmodellen	124
4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf ihre Umgebung	133

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	139
4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen	139
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen	139
4212 Dynamische Beanspruchungen von Druckbehälterein- bauten bei Kühlmittelverlustunfällen von LWR	148
4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasen- strömungen	149
4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kali- brieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrom- Meßverfahren	163
4230 Notkühlung von LWR	168
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall	168
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühl- mittelverlustunfall	174
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlust- unfall	174
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf- Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren beim Kühl- mittelverlustunfall	183
4235.3 Experimentelle Untersuchung zur chemischen Wechselwirkung Brennstoff/Zircaloy-Hülle	190
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blow- down-Phase eines Kühlmittelverlustunfalles Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben	199
4237.1 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Auf- heizphase eines Kühlmittelverlustunfalles. In-pile- Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations- Loop (DK-Loop) des FR2	209
4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten PNS	217
4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren	
4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung	219
4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flut- phase eines Kühlmittelverlustunfalles	231

4240 Coreschmelzen von LWR	240
4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von $UO_2$ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung	240
4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Frei- setzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	251
4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR- Materialien beim Coreschmelzen	261
4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	276
4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktions- vorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Stör- fällen	276
4311 Nukleare Schadstoffe in der Nachunfall-Atmosphäre eines Leichtwasserreaktor(LWR)-Containments	276
4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase	300
4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN	314
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	314
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	314
4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope im Boden und geologischen Formationen	324
4420 Technik der Störfallfolgenbeseitigung und Stilllegung	335
4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen	335
4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte und mobile Systeme zur Schadenserfassung	336
Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1974	347

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFGARBEITUNGS-  
ANLAGEN

4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs-  
anlagen  
(H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer, R. Kaempffer, H. Pasler,  
A. Weinert, J.G. Wilhelm, LFT)

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Erste Messungen an dem Prototyp eines Störfall-Umluftfilters wurden durchgeführt. Der Abrieb der Imprägnierung des darin benutzten Jod-Sorptionsmaterials war auch während des Einfüllvorganges so niedrig, daß die Nachweisgrenzen der angewandten naßchemischem Untersuchungsverfahren nicht überschritten wurden. Ein Tropfenabscheider des im Prototypfilter eingesetzten Typs wurde mit einem Wassertropfen-Aerosol mit einem Tropfendurchmesser von ca.  $60 \mu\text{m}$  bei einer Massenkonzentration von  $50 \text{ g/m}^3$  beaufschlagt und zeigte unter diesen Bedingungen einen Abscheidegrad von 99,8 %. Die Fasermatte zur Abscheidung kleiner Tropfen und von Feststoff-Aerosolen erbrachte bei der Prüfung mit NaCl-Aerosol, das nach dem Flammenverdampfungsverfahren hergestellt wurde, unerwartet niedrige Abscheidegrade. Der Abscheidegrad des Jod-Sorptionsbettes des Prototypfilters betrug bei Nenndurchsatz ( $1200 \text{ m}^3/\text{h}$ ,  $30^\circ\text{C}$  und 70 % r. F.) nach dem Einbau einer zusätzlichen Schikane 99,8 %. Dieser Wert entspricht den Ergebnissen von Laborprüfungen des Sorptionsmaterials.

Das Flammenverdampfungsverfahren zur Messung des Durchlaßgrades von Schwebstofffiltern lieferte reproduzierbare Ergebnisse unter Raumluftbedingungen.

Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Tropfenabscheidermessungen werden nach Umrüstung der Sprühhanlage mit kleineren Tropfendurchmessern fortgesetzt. Des Prototypfilter wird auf Abscheideleistung bei höheren Temperaturen und im Heißdampf untersucht. Das Aerosol-Erzeugungsverfahren nach der Flammenverdampfungsmethode wird für den Einsatz unter Druck und Feuchte weiterentwickelt.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Für die zukünftigen GWA-Filter ( GWA Wiederaufarbeitungsanlage für 1500 jato Uran) wurde hochimprägniertes Jod-Sorptionsmaterial (AC 6120/H<sub>1</sub>) hergestellt. In Abscheidungsversuchen mit elementarem Jod an Testbetten mit der für die GWA-Jodfilteranlage vorgesehenen Bett-Tiefe wurden Kapazitätsausnutzung, Abscheidegrad und Abscheidungsprofil festgestellt. Die Ausnutzung des Ag<sup>+</sup> der AC 6120-Imprägnierung betrug > 90 %, es wurden Abscheidegrade > 99,99 % erreicht, das Abscheidungsprofil im Jod-Sorptionsbett ist so steil, daß bei dem projektierten 2-stufigen Filter eine ausreichende Ausnutzung des Sorptionsmaterials zu erwarten ist. Das Konzept für die WAK-Jodfilteranlage und das GWA-Jodfilter wurde festgelegt.

Die Arbeiten zum Reaktionsverhalten von org. Jodverbindungen an AC 6120 wurden fortgesetzt. Nur das Jodbenzol (als Modellsubstanz einer org. Ringverbindung, bei der Jod direkt an den aromatischen Ring gebunden ist) reagierte nicht mit AC 6120. Die anderen Verbindungen zeigten eine zur Abscheidung im Jodfilter unter GWA-Bedingungen ausreichende Reaktionsfähigkeit.

Vorversuche zur Austreibung von Jod aus Auflöser und rückgewonnener Säure sind angelauft und zeigten hohe Freisetzungswerte.

Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Untersuchungen an dem für die GWA vorgesehenen Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H<sub>1</sub> sollen 1975 vorwiegend in den Originalabgasen der WAK und später der WA Marcoule fortgesetzt werden.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Der Einfluß von Lösungsmittelbeladungen auf die Abscheideleistung von typisch ausgelegten Abluftfiltern wurde im Labor untersucht. Eine Beladung in Höhe von 5 % des Kohle-Trockengewichtes führte unter den gewählten Versuchsbedingungen zum Absinken des Abscheidegrades von 99,99 auf 99 %.

Die Entwicklung eines diskriminierenden Probensammlers zur Bestimmung der Anteile von Spaltjodgemischen in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken wurde aufgenommen.

Die Untersuchungen zum Transport und Abscheidungsverhalten unterjodiger Säure wurden fortgesetzt. Bisher wurde keine schwer abscheidbare luftgetragene Jodverbindung gefunden.

Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Vorfilter zur Reduktion der Lösungsmittelbeladung von Jod-Sorptionsfiltern werden erprobt. Die Untersuchungen zu einem diskriminierenden Probensammler werden innerhalb des Parameterbereiches fortgesetzt, der für die Untersuchung der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken von Bedeutung ist.

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

- 4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktorkühlmitteln  
(J. Michael, IRB)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Untersuchung der Metallabgaberate von Werkstoffen für den Primärkreislauf von Druckwasserreaktoren wurde mit Incoloy 800 weitergeführt. Die wegen der Eigenmetallabgabe der Autoklavenwand notwendig gewordene

Schutzschicht aus Gold wurde galvanisch aufgebracht. Betriebsstunden mit dieser Schutzschicht bisher ca. 1000 Stunden. Einbringung von Incoloy-800-Proben, Probenoberfläche  $3540 \text{ cm}^2$ , Betriebsstunden ca. 540 Std. Leitfähigkeitsmessung mit einer für hohe Drücke und Temperaturen entwickelten Meßzelle.

Abgabe von Gold an das Druckwasser nicht nachweisbar.

Mittlere Fe-Abgabe bei  $342^\circ\text{C}$  und 150 bar:  $90 \mu\text{g/dm}^2$  · Monat.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Weitere Untersuchung der Metallabgabe von reaktorspezifischen Werkstoffen bei veränderten pH-Werten des Druckwassers. Weiterentwicklung der Leitfähigkeitsmeßtechnik bei hohen Temperaturen und Drücken.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

4132 Untersuchungen der  $^{129}\text{J}$ -Radioökologie in der Umwelt  
(H. Schüttelkopf, ASS)

Die Arbeiten zur  $^{129}\text{J}$ -Radioökologie wurden 1974 begonnen. Zur Verfügung stand eine Neutronenaktivierungsmethode zur Bestimmung von  $^{129}\text{J}$  in Abwässern. Die Nachweisgrenze betrug 1 pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$ .

Es wurden analytische Methoden für folgende Probematerialien entwickelt: Aktivkohle, Aerosolfilter, Pflanzen, Boden, Fleisch (Schilddrüsen), Milch und Wasser, Abwasser und Fisch. 0,5 g  $^{129}\text{J}$  wurden aus der Abluft der WAK gewonnen und werden als Standard zur Neutronenaktivierung verwendet. Da nur die Kenntnis der  $^{129}\text{J}/^{127}\text{J}$ -Verhältnisse sinnvolle Aussagen über die Kontamination von Umgebungsproben erlaubt, werden z.Z. die verwendeten Chemikalien von  $^{127}\text{J}$ -Spuren gereinigt. Diese Arbeiten sind fast abgeschlossen.

Die mit den analytischen Methoden erreichten Nachweisgrenzen liegen bei ca.  $3 \cdot 10^{-4}$  pCi  $^{129}\text{J}/\text{g}$  fester Proben und bei ca.  $10^{-3}$  pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$  flüssiger Probe. Diese Nachweisgrenzen reichen aus, um alle radioökologischen Fragestellungen bearbeiten zu können.

Ab Februar 1975 wird mit einer Emissions- und Immissionsmessung an der WAK begonnen. Nach Lieferung eines Gaschromatographen soll die Identifizierung der Jodverbindungen der Luft in Angriff genommen werden.

4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung von nuklearen Anlagen  
(A. Bayer, INR)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Arbeiten zur Berechnung der radiologischen Belastung im Oberrhein-gebiet wurden fortgesetzt mit der Erweiterung des Rechenprogramms um Unter-programme, welche die Auswaschung aus der radioaktiven Wolke und die Direkt-bestrahlung durch am Boden abgelagerte Aktivitäten berücksichtigen. Zur Abschätzung der Genauigkeit der Ergebnisse werden Sensitivity-Studien begonnen. Die Datensammlung wurde ausgedehnt auf Freisetzungsraten von Transuranelementen aus Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs-anlagen.

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

Durchgeführte Arbeiten

Nach der Entscheidung, die Entwicklung der Edelgasabtrennung bei Wieder-aufarbeitungsanlagen durch Tieftemperatur-Rektifikation fortzusetzen, wurden für die Versuchsanlage die Anlagenteile Tieftemperatur-Rektifikation und Edelgas-Abfüllung spezifiziert und bei Firmen der Tieftemperatur- und Verfahrenstechnik angefragt. Der Beschaffungsauftrag wurde zum Jahresende 1974 erteilt.

Vor der eigentlichen Abtrennung des Kryptons muß das Abgas einer Wieder-aufarbeitungsanlage mehreren Vorreinigungsschritten unterworfen werden. Dies sind u.a.

- a) die katalytische Reduktion der Stickoxide und des Sauerstoffs mit Wasserstoff. Die Entfernung des Sauerstoffs ist notwendig, um die gefährliche Ozonbildung im Sumpf der Destillationskolonne zu ver-meiden.
- b) Die Adsorption von  $H_2O$  und  $CO_2$  an Molekularsieben. Dieser Schritt kann kombiniert werden mit der adsorptiven Vorabtrennung des Xenons an Aktivkohle als Alternative zur destillativen Abtrennung von Xenon gemeinsam mit Krypton.

Schritt a), die katalytische Reduktion von  $\text{NO}_x$  und  $\text{O}_2$  mit  $\text{H}_2$  wurde in einer Reihe von Laborversuchen auf seine prinzipielle Durchführbarkeit hin untersucht.

Erzielte Ergebnisse

- a) Der  $\text{NO}_2$ -Gehalt eines Gasgemischs läßt sich durch katalytische Reduktion mit  $\text{H}_2$  bis auf  $\leq 1 \text{ ppm}$  herabsetzen.
- b) Trotz der Vergiftungswirkung des Spaltjodes sind Katalysatorstandzeiten von etwa einem Jahr zu erreichen, sofern vor dem Katalysator eine Jod-Abscheidung von  $\geq 99,8 \%$  erfolgt.
- c) Die Bildung von  $\text{NH}_3$  läßt sich nur durch Verwendung relativ inaktiver Katalysatoren auf Werte von ca. 30 ppm senken. Das hat zur Folge, daß auch für die Umsetzung von  $\text{O}_2$  höhere Temperaturen erforderlich werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Neben dem Verhalten von  $\text{NH}_3$  im weiteren Prozeßverlauf müssen die regelungs- und sicherheitstechnische Beherrschung der zur Reduktion erforderlichen großen  $\text{H}_2$ -Mengen untersucht und Prozeßalternativen durchdacht werden.

Sodann werden die Vorreinigungsschritte (Reduktion von  $\text{NO}_x$  und  $\text{O}_2$ ; Adsorption von  $\text{H}_2$  und  $\text{CO}_2$ ) spezifiziert, angefragt und bestellt.

Zur adsorptiven Abtrennung von Xe sind noch umfangreiche Laborversuche zur prinzipiellen Durchführbarkeit dieser Prozeß-Variante erforderlich.

4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

4151 Untersuchung des Wärmeaustausches Fluß/Atmosphäre am Beispiel des Rheines unterhalb des Kernkraftwerkes Philippsburg als Beitrag zu Abkühlungsmodellen  
(G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, IASR)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Außer den Meßsonden für Sauerstoffgehalt, Oberflächenströmungsgeschwindigkeit, Oberflächenrauhigkeit und Pegelstand des Wassers sowie Sichtweite sind alle Geräte installiert und an die Datenerfassungsanlage (Schreiber

und/oder Prozeßrechner) angeschlossen und in Betrieb. Ein endgültiger Abgleich und Abstimmung an die Leitungsverhältnisse steht noch aus.

Der Kernspeicher des Prozeßrechners erwies sich im Zuge der Softwareerstellung mit 8 k als zu klein, so daß in einem vorläufigen Programm auf die Abfrage von Windgeschwindigkeits- und Richtungsmeßwerten sowie auf Powerfail-Restart und Lochstreifen- sowie Cassettedatenausgaberoutinen verzichtet werden mußte. Die erforderliche Memory Extension Box ist jedoch bereits in Betrieb, so daß die Fertigstellung des Programms erfolgen kann. Die für die Ziele des Vorhabens wesentlichen Daten werden z.Z. auf 10 min.-Protokolle ausgegeben, Störungen bei der Erfassung sind lokalisiert und zum überwiegenden Teil bereits behoben.

In der Umgebung der Meßstelle wurde eine vorläufige Messung der Oberflächentemperaturverteilung vorgenommen. Im engen Bereich um die Meßstelle konnten keine Inhomogenitäten innerhalb der Auflösung ( $0,2^\circ$ ) festgestellt werden.

#### Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Zunächst wird die Sicherstellung eines einwandfreien Betriebes und einer geeigneten Datenübermittlung der Prozeßrechnerergebnisse an die Großenrechenanlage des Kernforschungszentrums im Vordergrund stehen. Weiterhin sind Auswerteverfahren sowie Modellansätze zu entwickeln und zu testen, um bei Vorhandensein ausreichender Datensätze zur Verfügung zu stehen.

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

Das Computer-Programm zur numerischen Berechnung des Aufstiegs von Kühltürmen (3-dimensional) wurde erweitert. Es liefert jetzt zusätzlich zur Verteilung der Aufstiegsgeschwindigkeit, der Temperatur und der spezifischen Feuchte auch noch die der Regentröpfchen in der Fahne. Grundlage für die Erfassung der wirksam werdenden, wolkenphysikalischen Prozesse war die Theorie von KESSLER (E. Kessler, Meteorological Monographs 10 (1969) No. 32). Zur Zeit wird versucht, die Programmparameter durch einen Vergleich zwischen beobachteten und berechneten Kühlturmfahten an die Realität anzupassen.

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen  
(R.A. Müller, 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 Blowdownversuche im Kernkraftwerk MARVIKEN (Schweden) im Zeitraum August 1972 bis Mai 1973 durchgeführt. Im 2. Halbjahr 1974 wurden die Berichte über die Auswertung und Darstellung der Meßergebnisse (MXA-1-115, MXA-1-221/222/223) fertiggestellt. Bei der weiteren vertieften Auswertung der Meßergebnisse, die die Interpretation der beobachteten Phänomene und die Aufstellung theoretischer Modelle zum Ziel hat, wurde mit der Untersuchung über die möglichen Systemeigenschwingungen begonnen.

In Ergänzung zu den theoretischen Untersuchungen wurden im Berichtszeitraum auch an der experimentellen Entwicklung eines Infrarot-Absorptions-Meßverfahrens gearbeitet, das zur kontinuierlichen Bestimmung der Massenströme und der Gemischzusammensetzung bei Zweiphasenströmungen dienen soll. Diese Arbeiten werden zusammen mit dem Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe durchgeführt. Eine entsprechende Versuchsstrecke zur Durchführung von Parameteruntersuchungen wurde inzwischen am ITS erstellt. Es ist geplant, nach erfolgreicher Beendigung der Versuche eine Meßeinrichtung dieser Art bei den MARVIKEN II-Experimenten und evtl. bei den HDR-Versuchen einzusetzen.

Im Kernkraftwerk Brunsbüttel wurden im Okt. 1974 ebenfalls Messungen des durch die Dampfkondensation induzierten Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage und der entsprechenden dynamischen Reaktion des Sicherheitsbehälters durchgeführt. Diese Messungen wurden im Rahmen von nichtnuklearen Heißtests realisiert, bei denen der Dampf aus dem Reaktordruckgefäß über die Entlastungsventile und Kondensationsdüsen in die Wasservorlage abgeblasen wurde. Insgesamt wurden 90 Abblaseversuche mit verschiedenen Parametern durchgeführt. Die Auswertung der gemessenen Daten wurde in Angriff genommen.

Hinsichtlich der Strukturuntersuchungen wurden die Eigenschwingungsformen und Eigenfrequenzen des Sicherheitsbehälters der Reaktoranlage Brunsbüttel mit dem ICES-Subsystem DYNAL berechnet. Um bei minimalem Rechenaufwand zuverlässige Ergebnisse zu erreichen, wurden Finite-Element-Modelle mit unterschiedlichem Feinheitsgrad untersucht. Als Ergebnis liegen die Frequenzen und Eigenschwingungsformen bis ca. 50 Hz vor. Die einfachste Eigenschwingungsform der Gesamtstruktur ist eine horizontale Biegeschwingung bei ca. 10 Hz. Danach folgt eine Hub-Eigenschwingungsform bei ca. 29 Hz. Im Bereich zwischen 30 und 40 Hz liegt eine große Zahl von Eigenschwingungsformen, an denen jeweils nur Teile der Struktur beteiligt sind.

Bei den künftigen Arbeiten sollen die bei den Heißtests im KKB gemessenen Druckbelastungen als Eingabewerte für transiente Rechnungen benutzt und die ermittelten Strukturbeschleunigungen mit den Messungen verglichen werden. Darüberhinaus ist vorgesehen, den Einfluß der Wasservorlage und der Kondensationsrohre auf das Strukturverhalten zu untersuchen.

4212      Dynamische Beanspruchung von Druckbehältereinbauten  
              bei Kühlmittelverlustunfällen von LWR  
              ( R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

Die begleitenden theoretischen Arbeiten zum HDR-Versuchsprogramm wurden Anfang Oktober begonnen. Im Berichtszeitraum konzentrierten sich die Arbeiten auf

- Beteiligung an der Spezifikation für die HDR-Einbauten
- Planung der Entwicklungsarbeiten für die Erstellung gekoppelter fluid- und struktur-dynamischer Programme
- Beginn der Übernahme geeigneter Fluiddynamikcodes, die als Ausgangsbasis dienen können.

4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen  
(R. Löffel, LIT)

### Einleitung

Aufgrund der guten Ergebnisse bei den MARVIKEN I-Experimenten wird das dort angewandte Radiotracergeschwindigkeitsmeßverfahren im Rahmen von PNS zu einem Massenstrommeßverfahren weiterentwickelt. Eine gleichzeitige, aber dennoch getrennte Geschwindigkeitsmessung beider Phasen soll erreicht und mit einer radiometrischen Dichtemessung gekoppelt werden. Die unter PNS 4214 laufenden F+E-Arbeiten werden zusätzlich in folgenden beiden Sonderforschungsvorhaben vom BMFT unterstützt:

1. RS 146 Entwicklung des Verfahrens insbesondere auf eine Anwendung bei RS 109 (Zweiphasengeschwindigkeitsmessung)
2. RS 123 Anwendung des Verfahrens bei den HDR-Blowdown-Experimenten (Zweiphasenmassenstrommessung)

### Durchgeführte Arbeiten

Die Argonaktivierungsanlage zur Markierung der Gasphase wurde fertiggestellt. Eine entsprechende Anlage zur Herstellung des Radiotracers Mn-56 zur Markierung der Flüssigphase wurde konstruiert und wird zur Zeit gebaut. Zur Verbesserung der Gasinjektionstechnik wurde ein neues Injektionsventil entwickelt. Für die Flüssiginjektion wurden zwei verschiedene Verfahren gewählt. Das erste Verfahren entspricht dem der Gasinjektion. Das zu injizierende Medium (hier Wasser) wird unter hohem Druck in einem Kolben- oder Membranspeicher vorgespannt und so einem Injektionsventil zugeführt, das mit den gewünschten Impulsbreiten und Impulsfrequenzen arbeitet. Das zweite Verfahren basiert auf dem Prinzip der Einspritzpumpe und ist nur für die Flüssiginjektion brauchbar. Die Planung der Injektions- und Meßeinrichtung wurde abgeschlossen. Vorversuche zur Zweiphasengeschwindigkeitsmessung wurden begonnen. Eine für die Entwicklung und Erprobung des Verfahrens erforderliche Kaltwasserteststrecke wird zur Zeit aufgebaut. Arbeiten zur Auswertetechnik wurden begonnen. Die Vorbereitungsarbeiten für die Radiotracergeschwindigkeitsmessungen bei den Blowdown-Experimenten des Battelle Instituts Frankfurt (RS 50) wurden fortgesetzt.

### Erzielte Ergebnisse

Mit der Erstellung der Argonaktivierungsanlage ist die Markierung der Gasphase gesichert. Eine endgültige Aussage über die Eignung von Manganverbindungen zur Markierung der Flüssigphase ist erst nach Abschluß der an einer Autoklavenanlage für Anfang 1975 geplanten Vorversuche möglich. Mit dem neu entwickelten Injektionsventil konnten Injektionsimpulse von 5 ms Dauer erreicht werden. Messungen ergaben, daß mit dem neuen Ventil unter Verwendung der dazu speziell angepaßten Injektionsdüsen auch bei langen Düsen noch Injektionsimpulse von kürzer als 15 ms erzielt werden können. Damit sind lokale und integrale Injektionen erreichbar. Erste Vorversuche an einer Behelfsteststrecke (Rohrpostanlage) haben gezeigt, daß eine Zweiphasengeschwindigkeitsmessung grundsätzlich möglich ist. Dabei traten jedoch zwei besondere Probleme auf:

1. Die Detektoren wiesen eine Energieshift mit negativer Tendenz bei zunehmender Impulsrate auf (erheblicher Nachteil für Energietrennung),
2. es wurden neben den erwarteten noch zusätzliche Einstreueffekte festgestellt, deren Ursache erst noch näher untersucht werden muß.

Es gelang inzwischen durch Modifikation der elektronischen Komponenten der Detektoren der Energieshift so zu reduzieren, daß sie nahezu vernachlässigt werden kann. Die beobachteten Einstreueffekte müssen durch entsprechend hohen Aufwand an Meß- und Auswertetechnik eliminiert werden. Hierzu sind 1975 weitere intensive Arbeiten notwendig.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Markierungs- und Injektionstechnik soll im Bereich hoher Drücke und Temperaturen erprobt und weiterentwickelt werden. Hierzu sind zunächst Vorversuche an einer Autoklavenanlage vorgesehen. Der Aufbau der 12-Sonden-Geschwindigkeitsmeßeinrichtung muß im Februar 1975 abgeschlossen werden. Die Einstreueffekte müssen gründlich untersucht werden, damit sie mit Hilfe eines noch zu erstellenden Auswerteprogrammes eliminiert werden können. Die Arbeiten zur Auswertetechnik werden fortgesetzt. Dabei sollen verschiedene Auswerteprogramme gegebenenfalls auch unter Anwendung der Korrelationsanalyse erstellt werden. Eine Mitwirkung an den Blowdown-

Experimenten RS 50 des Battelle-Instituts Frankfurt ist für das erste Halbjahr 1975 geplant. Die weiteren Entwicklungsarbeiten können ab März 1975 an der Kaltwasserteststrecke begonnen werden. Die endgültige Erprobung des Verfahrens unter blowdown-ähnlichen Bedingungen erfolgt 1976 an dem "Gemeinsamen Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren von verschiedenen Zweiphasenmassenstrommeßverfahren" (PNS 4215 / RS 145).

Die durchgeführten Arbeiten und erzielten Ergebnisse werden ausführlicher im 2. Halbjahresbericht 1974 des PNS beschrieben.

4215      Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren  
(F. Erbacher, H. John, E. Wanner, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Auftrag des BMFT wurde im Institut für Reaktorbauelemente damit begonnen, einen Versuchsstand zu errichten, dessen Aufgabe es sein wird, die an verschiedenen Forschungsstellen entwickelten Meßverfahren für instationäre Zweiphasen-Massenströme zu testen und zu kalibrieren.

Der Versuchsstand ist für die Erzeugung von Dampf-Wassergemischen bei beliebigem Mischungsverhältnis und einem Druck von max. 160 ata ausgelegt. Der Massendurchsatz erreicht je nach Mischungsverhältnis einen maximalen Wert von 10 bis 20 t/h. Die Konzipierung des Versuchsstandes wurde weitgehend abgeschlossen und mit der Bestellung von Komponenten begonnen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Entwicklung einer Mischkammer zur Erzeugung eines gewünschten Zweiphasengemisches und die Auswahl einer geeigneten Methode zur Identifizierung des Phasenverteilungszustandes sind die wichtigsten im folgenden Berichtszeitraum zu lösenden Aufgaben. Die Fertigstellung der Aufbauarbeiten für den Versuchsstand ist für Ende 1975 vorgesehen.

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  
(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE/Stuttgart)

Durchgeführte Arbeiten

- Der Modul RAND zur Aufbereitung der RELAP-Ergebnisse für die nachfolgende detaillierte Brennstabanalyse wurde so geändert, daß eine flexible Zeitschrittsteuerung während der Rechnung eingesetzt werden kann.
- Der Modul SPAGDR zur Bestimmung des Innendruckes wurde so umgestellt, daß die transiente Spaltgasfreisetzung während des Unfalles beschrieben wird.
- Der Modul ZET-2D zur zweidimensionalen instationären Wärmeleitung wurde in einer ersten Version fertiggestellt.

Die Arbeiten zu den Modulen ODRUSPA (ortsabhängiger Druck im Spalt), HYDRA (Druck- und Temperaturverteilung im Unterkanal), STADEF (verbesserte zweidimensionale rotationssymmetrische Beschreibung der Hüllrohrdeformation) wurden fortgeführt, letztere in Zusammenarbeit mit dem IRT, Darmstadt.

Zur Erweiterung und Verbesserung des Programmsystems wurden Voruntersuchungen zur Statistik des Hüllrohrblähens, zur verbesserten Darstellung der Stoffgesetze ( $Z_{ry}$ ) und zur Thermohydraulik während der Flutphase durchgeführt.

Darüber hinaus wurden die Auslegungsrechnungen für die Vorhaben PNS 4236 und 4237 fortgesetzt.

### Erzielte Ergebnisse

Die am IRT in Darmstadt durchgeführte Analyse zur Auswahl eines geeigneten Verfahrens zur Beschreibung der zweidimensionalen Hüllrohrverformung ergab, daß die Schalentheorie für den Deformationsmodul des SSYST-Programmsystems zur Anwendung kommen sollte.

Erste Untersuchungen zu der Frage, ob ein frischer oder ein abgebrannter Brennstab bei einem Kühlmittelverlustunfall kritisch ist, deuten an, daß ein frischer Brennstab wegen seiner höheren Temperaturen der gefährdetere ist.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im nächsten Halbjahr ist zunächst vorgesehen, das Programmsystem SSYST in einer ersten Version fertigzustellen und zu dokumentieren. Die verwendete Theorie wird in den noch offenen Punkten (Flutphase) einfach gehalten sein.

Danach (2. Quartal) ist die Durchführung einer umfangreichen Parameterstudie vorgesehen, um die Leistungsfähigkeit des Systems kennenzulernen.

PNS 4235 - Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlustunfall  
(M. Boček, IMF)

### Durchgeführte Arbeiten

- Um Aufschluß zu bekommen über den weithin unbekannten Textureinfluß auf das plastische Verhalten von Zry-4 bei den hier interessierenden höheren Temperaturen wurde die Temperaturabhängigkeit einiger Kenngrößen der Spannungs-Dehnungskurven in Abhängigkeit von der Texturgeometrie untersucht.
- Erste Versuche zum superplastischen Verhalten wurden in Luftatmosphäre und vergleichsweise auch im Vakuum durchgeführt.

### Erzielte Ergebnisse

- Der Einfluß der Textur auf die Streckgrenze verschwindet oberhalb 650 °C. Wie vorläufige Ergebnisse zeigen, wird jedoch der weitere Verformungsverlauf von der Art der Textur mitbestimmt.
- Bei den durchgeführten Versuchen zeigte Zry-4 im Temperaturbereich oberhalb 780 °C superplastisches Verformungsverhalten (Bruch erfolgt nach großen Dehnungen ohne Bruchheinschnürung). Die bei höheren Temperaturen stattfindende drastische Oxidation hatte offensichtlich keinen Einfluß auf dieses Verhalten, welches im wesentlichen von der Verformungstemperatur und -geschwindigkeit abhängt.

Kriechversuche an Zry-2 bei 650 °C und relativ kleinen Ausgangsspannungen zeigten normalplastisches Verhalten.

Dieses Ergebnis unterstreicht die Bedeutung der Verformungstemperatur für das superplastische Verhalten.

### Geplante fortführende Arbeiten

- Die oben genannten Probleme werden weiter behandelt.

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

### Durchgeführte Arbeiten

Im Berichtszeitraum wurden oxidationskinetische Messungen zur Bestimmung des Streubereichs der Gewichtszunahme bei Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy-4-Rohrmaterial, vergleichende Oxidationsuntersuchungen an Zircaloy-2 und -4 und Oxidationsversuche unter induktiver Beheizung durchgeführt. Ihre Auswertung wurde durch metallographische Methoden sowie Mikrosonden- und Härtemessungen vorgenommen.

### Erzielte Ergebnisse

Die Versuche ergaben, daß der Streubereich der Gewichtszunahme von Zircaloy-4-Rohrproben mit zunehmender Reaktionszeit (2- 15 min) und Reaktions-

temperatur (900 - 1300 °C) auf maximale Werte von 8,4 % anstieg. In die gemessenen Streubereiche des Zircaloy-4 fielen auch die Werte des Zircaloy-2. Die induktive Probenbeheizung scheint durch über den Rezipienten gezogene Ankopplungshilfen verbessert werden zu können. Dadurch werden lokale Temperaturdifferenzen vermindert. Die Übereinstimmung von Sauerstoff-Konzentrationsverlauf und Härteprofil lässt nach Eichung quantitative Rückschlüsse auf den Grad der Versprödung erwarten.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Beabsichtigt werden weitere transiente, oxidationskinetische Untersuchungen an Rohrproben ohne sowie mit bei- und nachgeordneter mechanischer Belastung.

4235.3 - Experimentelle Untersuchung zur chemischen Wechselwirkung Brennstoff/Zircaloy-Hülle  
(P. Hofmann, IMF/I)

#### Durchgeführte Arbeiten

Zum Studium der Innenkorrosion von LWR-Hüllrohren während eines Kühlmittelverlustunfalles durch Oxidbrennstoff und die Spaltprodukte und der damit verbundenen Änderung der mechanischen Eigenschaften der Hülle wurden Experimente mit kurzen Zry-Hüllrohren und -Näpfchen durchgeführt. Die Proben wurden in Handschuhboxen mit  $UO_2$  und simulierten Spaltprodukten (Cs, J, Te) gefüllt, gasdicht verschweißt und bei isothermen Temperaturbedingungen unter Schutzgas bis zu 1 h geglüht. Der simulierte Abbrand variierte zwischen 5 und 10 At.%, das O/M-Verhältnis des  $UO_2$  zwischen 2.00 und 2.08.

#### Erzielte Ergebnisse

Die Experimente mit kurzen Zircaloy-Hüllrohren (DWR-Dimension) zeigten, daß sich die Zry-Rohre bereits beim Hochheizen unterschiedlich stark aufblähen und z.T. platzen können. Die Bersttemperatur war außer vom Innendruck sowohl von O/M-Verhältnis des  $UO_2$  als auch vom Spaltproduktangebot abhängig.

Die mit spaltproduktfreiem  $UO_2$  gefüllten Hüllrohre barsten bereits zwischen 800 und 900 °C (Innendruck der Proben bei Raumtemperatur gleich dem Atmosphärendruck). Die Hüllrohr-Proben, die nur simulierte Spaltprodukte enthielten, versagten erst oberhalb 900 °C. Der Einfluß des Sauerstoffpotentials des  $UO_2$  auf die mechanischen Eigenschaften der Zry-Hüllrohre ist offenbar größer als das Reaktionspotential der Spaltprodukte.

Die ersten metallographischen und Mikrosonde-Untersuchungen der Näpfchenproben ergaben, daß unterhalb 1000 °C (Glühzeit 1 h) der in das Zry diffundierende Sauerstoff des  $UO_2$  zu einer Versprödung des Zry an der Phasengrenze  $UO_2/Zry$  führt; gleichzeitig reagiert das Tellur mit dem Zry. Oberhalb 1000 °C kommt es auch zu stärkeren chemischen Wechselwirkungen zwischen dem  $UO_2$  und Zry-Hüllmaterial.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Systematische Untersuchungen des Einflusses des O/M-Verhältnisses des  $UO_2$  und der Spaltprodukt-Konzentration auf das chemische und mechanische Verhalten des Zry. Experimente mit kurzen Brennelementproben unter variablem Innendruck. Versuche mit Hüllrohren unter oxidierender Atmosphäre, d.h. bei gleichzeitiger Innen- und Außenkorrosion. Korrosionsversuche unter transienten Temperaturbedingungen.

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

Mit Hilfe eines neu erstellten eindimensionalen instationären Wärmeleit-Rechenprogramms RESIM wurde der optimale zeitliche Verlauf der elektrischen Heizleistung des Brennstabsimulators ermittelt und damit die Anforderungen an die Versorgungseinrichtungen festgelegt. Die Möglichkeiten zur Außenbeschichtung der  $UO_2$ -Ringpellets mit einer elektrisch isolierenden Schicht zur Verbesserung der elektrischen Durchschlagsfestigkeit wurden untersucht.

Mit Hilfe von RELAP-3-Rechnungen wurde das Anlagenkonzept hinsichtlich der Simulierbarkeit reaktorähnlicher Kühlungsbedingungen in der Teststrecke überprüft. Die konstruktive Ausführung der Teststrecke wurde durchgeführt.

In Vorversuchen wurde ein Verfahren zur berührungslosen optischen Messung der Hüllrohrtemperaturen im Temperaturbereich von etwa 550 bis 900 °C erprobt. Die Arbeiten zur instationären Dichtemessung in den Kühlmittelplena wurden bis zum Angebotsstadium weitergeführt. Die Entwicklung des "true mass flow meters" zur Messung instationärer Zweiphasenmassenströme wurde fortgeführt. Das Meßwerterfassungs- und Anlagensteuerungssystem wurde projektiert.

#### Erzielte Ergebnisse

Die RESIM-Rechnungen zeigen, daß die transiente Stableistung des Brennstab-simulators bis auf einen temporären maximalen Fehler von - 5% derjenigen des Reaktorbrennstabes entspricht, während die Speicherwärme temporär bis -25 % abweichen kann. Die Außenbeschichtung der UO<sub>2</sub>-Pellets kann mit dem Plasmaspritzverfahren in befriedigender Weise durchgeführt werden.

Die RELAP-3-Rechnungen zeigen, daß das Anlagenkonzept geeignet ist, mit Hilfe gesteuerter Abblaseventile an den Kühlmittelplena die gewünschten Kühlungsbedingungen in der Teststrecke hinsichtlich Druck, Massenstrom und Qualität zu erzielen.

Die Vorversuche zur optischen Messung der Hüllrohroberflächentemperatur zeigten, daß auch bei Anwesenheit einer Zweiphasenströmung im Strahlengang unter den geometrischen Gegebenheiten der Teststrecke Meßgenauigkeiten von  $\pm 3\%$  erreichbar sind. Das "true mass flow meter" zeigt eine Meßunsicherheit von maximal  $\pm 6\%$  des Endwertes bei Volumenänderung von 1 bis 300 bei konstantem Massendurchsatz.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Vor allem wird ein Rechenprogramm zur Auswertung der Versuche zu erstellen sein. Das Versuchsprogramm wird weiter spezifiziert werden.

Neben dem schrittweisen Aufbau der Versuchsanlage, abhängig vom Ein-treffen der Hauptkomponenten, werden die notwendigen Versorgungs-einrichtungen zum Anlagenbetrieb erstellt.

Die Optimierung der speziell entwickelten Meßanordnungen zur Hüllrohr-temperaturmessung bzw. zur Messung des Zweiphasenmassenstromes muß durchgeführt, die Anordnungen müssen zu Betriebsmeßgeräten entwickelt werden.

4237.1 - Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalls.

In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampfkontaminationsloop (DK-Loop) des FR2  
(E. Karb, L. Sepold, RBT)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

1. Vorversuche im DK-Loop des FR2

Die im 1. Halbjahr 1974 begonnenen Versuche wurden programmgemäß weitergeführt und im Juli abgeschlossen. Insgesamt bestanden die Vorversuche aus 11 Versuchen mit der Brennstabatrappe (Stationärversuche) und 18 Transientenversuchen mit 3 nuklear beheizten Prüflingen.

Die Auswertung, im wesentlichen der Vergleich von Rechenprogrammen (RELAX des IRB, WL des IKE Stuttgart) mit Messungen, wurde zum Jahresende abgeschlossen. Die Rechnungen konnten durch Messungen (Temperatur-transienten) bestätigt werden.

Die Anfangsanreicherung der Brennstäbe für die Hauptversuche wurde daraufhin zu 4,7 % U-235 berechnet (für alle Stäbe gleich).

Nicht nur zur Kontrolle der Rechnungen, sondern auch für die Verbesserung der Leistungsbestimmung haben sich die Vorversuche als bedeutungsvoll erwiesen. Erkenntnisse bezüglich der Thermoelementbefestigung und des Stabverhaltens unter transienten Bedingungen (Oxidation, bleibende Längung des Stabes) konnten gewonnen werden.

## 2. Konstruktion und Prototypenprobung von Vorbestrahlungs- und Versuchseinsatz

Die Konstruktion des Vorbestrahlungseinsatzes für jeweils 6 Brennstäbe konnte abgeschlossen werden. Der Einsatz ermöglicht das Entnehmen der Brennstäbe einzeln und ist so ausgeführt, daß er auf jede gewünschte Position im Reaktorkern gesetzt werden kann.

### Zum Versuchseinsatz

Die Versuche zur Erprobung mehrerer Endstopfenausführungen sind erfolgreich abgeschlossen. Eine Ausführung erwies sich bei den eingestellten Betriebsbedingungen und bei Zyklenbetrieb als besonders dicht und wurde deshalb ausgewählt.

Der obere Endstopfen des Stabes mußte so konstruiert werden, daß beim Ankopplungsvorgang der Meßkapillare kein Spaltgas aus dem Stab verloren geht.

Die Konstruktion des Kopfstückes, das den Druckaufnehmer und die Druckaufgabevorrichtung enthält, steht unmittelbar vor dem Abschluß.

### Weiteres Vorgehen

#### Zum Versuchsprogramm 1975

Aus den Vorversuchen Juni/Juli 1974 hat sich, wie schon unter Punkt 1. angeführt, ergeben, daß eine Verbesserung zur Bestimmung der Prüflingsleistung unumgänglich ist.

Es sollten deshalb im Frühjahr 1975 Prüfungen bzw. Eichungen der Meßgeräte (Temperatur, Druck, Durchsatz) des Versuchskreislaufes durchgeführt werden. Zur Prüfung der Meßgeräte ist geplant, die dann schon erstellte Daten erfassungsanlage einzusetzen.

Zum Vergleich der Bestimmungsarten der Prüflingsleistung (reaktorphysikalisch, thermisch) sowie zur Eichung von Temperaturmeßfehlern durch verschiedene TE-Anbringungsweisen auf der Stabhülle sollen im Frühjahr 1975 Versuche mit elektrisch beheizten Brennstab simulatoren (BSS) durchgeführt werden.

Diese Versuche sind mit dem Vorhaben 4237.2 kombiniert.

Die Bestellphase der Brennstäbe für die Hauptversuche ist eingeleitet. Die Bestellung soll im Februar 1975 erfolgen, so daß sie für den Beginn der Hauptversuche im September 1975 zur Verfügung stehen. Gleichzeitig soll die Vorbestrahlung beginnen.

4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten PNS 4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (Einzelstäbe)  
(B. Räpple, RBT)

Das Vorhaben wurde 1974 mit zunächst geringer Personalkapazität begonnen. Dabei lag der Schwerpunkt auf der Untersuchung verschiedener Anlagenvarianten auf ihre Durchführbarkeit bzw. der damit erzielbaren Vergleichsmöglichkeiten zu den Versuchen PNS 4237.1.

Von drei möglichen Anlagenkonzepten ergab sich bislang eine in-pile-Version als erfolgversprechende Lösung. Für diese Anordnung wurde in Zusammenarbeit mit IRB ein Versuchseinsatz mit elektrischem Heizstab entworfen. Die Fertigungsprobleme wurden in Angriff genommen, ein Versuchsprogramm für 1975 durchzuführende Vorversuche ausgearbeitet.

4238 - Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung  
(K. Wiehr, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Zur Herstellung des Brennstabsimulators mit 3,90 m beheizter Länge und axialem Leistungsprofil wurden verschiedene Vorversuche durchgeführt und Fertigungsverfahren entwickelt. Die Herstellung des röhrenförmigen Heizleiters durch Einschleifen eines äußeren stufenförmigen Profils und anschließendes Hämmern auf einen konstanten Durchmesser über die gesamte Länge erwies sich als durchführbar. Für die Fertigung wurden verschiedene spezielle Einrichtungen zum Hämmern, Zwischenglühen, Einfüllen und Vibrieren von MgO- und BN-Pulver gebaut. Für die Schweißverbindung zwischen Zircaloy und Inconel wurden Versuche zum Explosionsschweißen vorbereitet.

Ein Vorversuchsprogramm an verkürzten Brennstabsimulatoren zum Nachweis einer axialen Lokalisierungsmöglichkeit der Aufblähstelle durch Ver- schwächung der Hülle wurde begonnen. Erste Versuche zeigten, daß durch eine geringe Verschwächung des Hüllrohres, die weit geringer als der zulässige Toleranzbereich nach Reaktorhüllrohrspezifikation war, die entstehende Beule lokalisiert werden konnte.

Der Entwurf des Versuchsstandes wurde überarbeitet, Vorbereitungen zur Errichtung wurden getroffen. Die Planung der elektrischen Leistungs- steuerung der Brennstabsimulatoren wurde weitgehend abgeschlossen. Für die Beobachtung des Aufblähvorganges des Hüllrohres wurde die Röntgendifurchleuchtung als geeignetes Verfahren ermittelt. Eine entspre- chende Anlage wurde bestellt.

Zur berührungslosen Temperaturmessung der aufblähenden Hülle wurden Arbeiten zum Umbau eines Quotientenpyrometers durchgeführt. In Vor- versuchen wurde die Eignung von Quarzglasstäben als Lichtleiter unter- sucht.

Die Meßdatenerfassungsanlage wurde konzipiert und bestellt. Zur Meß- datenverarbeitung durch das System CALAS wurden ein schneller Datenweg installiert sowie die Terminals und Bildschirme beschafft.

Die Rechnungen zur thermischen Auslegung der Brennstabsimulatoren mittels eines 1-dimensionalen Wärmeleitprogramms wurden abgeschlossen. Ein 2-dimensionales Wärmeleitprogramm zur Ermittlung des Einflusses der axialen Wärmeleitung wurde entwickelt. Die Erstellung eines Rechenprogramms zur Berechnung der Spaltwärmewiderstandes beim Aufblähen der Hülle aus Temperaturmessungen wurde begonnen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Als wichtige Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- Ermittlung eines geeigneten Schweißverfahrens zwischen Zircaloy und Inconel
- Herstellung von Brennstabsimulatoren
- Anbringung von Thermoelementen auf Zircaloy-Hüllen
- Durchführung von Vorversuchen zum Nachweis einer axialen Lokalisierungs- möglichkeit der Aufblähstelle
- Aufbau des Versuchsstandes

- Aufbau der elektrischen Leistungsversorgung und -steuerung
- Erprobung der Röntgeneinrichtung
- Fertigstellung eines Quotientenpyrometers
- Erarbeitung eines Konzeptes für die Schaltwarte
- Einrichtung der Meßdatenerfassung und -verarbeitung
- Testläufe mit 2-dimensionalem Wärmeleitprogramm
- Durchführung einer Empfindlichkeitsstudie zum thermischen Verhalten der Brennstabsimulatoren

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

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Die Konstruktion des Versuchskreislaufes wurde beendet und die Errichtung in Auftrag gegeben. Noch fehlende Teile wurden bestellt. Die Steuerung der Stromversorgung und die Datenerfassungsanlage wurden konzipiert und bestellt. Eine Teststrecke für die erste Stababordnung befindet sich in der Konstruktion. Mechanische Vorversuche zur Heizstabinstrumentierung verliefen erfolgreich; eine Prüfung unter Versuchsbedingungen steht noch aus. Die Geometrie der zu untersuchenden künstlichen Blockaden wurden ausgewählt, Vorversuche zu ihrer Herstellung und Befestigung auf den Stäben laufen noch und sollen durch eine Prüfung unter Betriebsbedingungen abgeschlossen werden. Zur Filmbeobachtung der schnellen Zweiphasenströmung wurden Experimente durchgeführt, die zeigten, daß kürzere Belichtungszeiten erforderlich sind und Maßnahmen gegen die Benetzung der Beobachtungsfenster getroffen werden müssen. Während eines Teils des Flutvorganges wurden bei Vorversuchen im Kühlkanal Temperaturfluktuationen gemessen, die bei Kreuzkorrelation eine Aussage über die Strömungsgeschwindigkeit zulassen. Eine Rechnung zum Einfluß der Heizwendel des Heizstabes auf die Temperaturverteilung auf die Stabhülle ergab für die mittlere Heizzone des Stabes vernachlässigbar kleine Temperaturunterschiede. Eine weitere Rechnung zur Bestimmung der axialen Komponente der Wärmestromdichteverteilung im Heizstab als Folge einer künstlichen Blockade wurde vorbereitet.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im 1. Halbjahr 1975 sollen die Versuchsanordnung und die erste Stabkonfiguration betriebsbereit aufgebaut werden. Die bereits begonnenen und geplanten Vorversuche zu Meßverfahren und Konstruktion werden ebenso wie Rechnungen zum thermischen Verhalten der Heizstäbe und des Versuchskanals fortgeführt. Es wird ein vorläufiges Versuchsprogramm aufgestellt und die Reduktion und Dokumentation der Meßdaten vorbereitet.

4240 Coreschmelzen von LWR

4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von  $UO_2$ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung  
(S. Hagen, RBT)

### Durchgeführte Arbeiten

Im Berichtszeitraum wurden Versuche an Einzelstäben in Schutzgasatmosphäre und in Luft durchgeführt. Sie sollen das Verhalten in nicht und in stark oxidierender Atmosphäre simulieren. Als Parameter wurde die Aufheizgeschwindigkeit und das radiale Temperaturprofil variiert. Die Veränderung des radialen Temperaturprofils wurde durch Variation der Anzahl der zusätzlichen zylinderförmigen Strahlenschirme vorgenommen.

In Schutzgas wurden Versuche mit einer Aufheizgeschwindigkeit von 1/2, 1, 2, 4 und 6  $^{\circ}\text{C}/\text{s}$  durchgeführt. Hierbei wurden die Versuche bei 1  $^{\circ}\text{C}/\text{s}$  mit 1 und 5 zusätzlichen Strahlenschirmen wiederholt. In Luft wurde die Temperatur mit 0,5, 1 und 5  $^{\circ}\text{C}/\text{s}$  gesteigert.

### Erzielte Ergebnisse

Diese ersten Versuche zeigen, daß es im gesamten überstrichenen Parameterbereich nicht zu einem getrennten Abschmelzen von Hülle und Brennstoff kommt, sondern daß durch die starke Wechselwirkung zwischen Zircaloy-Hülle und  $UO_2$ -Pellets (Verdampfen, Diffusion) das Verhalten des Dreistoffsystems Uran-Zircaloy-Sauerstoff für das Abschmelzen bestimmend ist.

Bei den Versuchen in nicht oxidierender Atmosphäre waren stets bei Temperaturen unter 2000 °C schon Hülle und Pelletsäule abgeschmolzen. Eine typische Abhängigkeit von Aufheizgeschwindigkeit und radialem Temperaturprofil konnte dabei nicht festgestellt werden.

Bei den Abschmelzversuchen in Luft bildet sich eine relativ feste Hülle aus Zirkondioxid, die umso stärker ist, je langsamer die Temperatur erhöht wird. Bei den in unseren Versuchen erreichten Temperaturen von über 2000 °C bleibt diese Hülle stabil, während es im Innern des Stabes zu einem gemeinsamen Schmelzen des mit dem  $UO_2$  wechselwirkenden Restzircaloys kommt.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Da die Wechselwirkung zwischen Zircaloy und  $UO_2$  das Abschmelzverhalten wesentlich beeinflußt, soll durch Versuchsreihen mit systematisch bei verschiedenen Temperaturen abgebrochenen Experimenten und durch die anschließende metallkundliche Untersuchung die zeitliche Einwirkung der Wechselwirkung und damit das dynamische Verhalten des Abschmelzvorganges untersucht werden.

Nach Fertigstellung des Druckkessels wird mit den Experimenten in Wasserdampf begonnen. Es werden zuerst Experimente an Einzelstäben bei unterschiedlichem Angebot von Wasserdampf durchgeführt, die das Verhalten in den verschiedenen Bereichen des Cores simulieren sollen. Ferner wird der Einfluß der Umgebung des Stabes untersucht, indem Abschmelzversuche von Brennstabbündeln durchgeführt werden. Hierbei wird ebenfalls der Einfluß von Abstandshaltern und Führungsrohren betrachtet. Weiter ist geplant, das Abschmelzverhalten von aufgeblähten Hüllen zu untersuchen.

4243 Versuche zu Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen  
(H. Albrecht, IRCH)

Durchgeführte Arbeiten

Die bei einer Industriefirma in Auftrag gegebene Schmelzanlage für Corium-Proben mit schwacher Aktivität wurde weitgehend fertiggestellt. Zur Zeit läuft ein Versuchsprogramm zur Vorabnahme der Anlage.

Das zur Temperaturmessung benutzte Quotienten-Pyrometer zeigte bei Verwendung eines strahlenresistenten Lichtleiters starke Drifterscheinungen. Als Ursache dafür wurde das Einlaufverhalten des Photomultipliers ermittelt, der wegen des speziellen Lichtleiters nicht mit den üblichen Referenzwellenlängen betrieben werden kann. Aufgrund dieser Tatsache wird das Pyrometer nun mit dem vom Hersteller empfohlenen Lichtleiter benutzt; beim Einsatz in aktiver Umgebung muß er so gut wie möglich abgeschirmt werden.

Zum Schmelzen von Corium in Luft wurden weitere Vorversuche durchgeführt mit dem Ziel

- die geometrische Anordnung von Induktionsspule, Tiegel und Schmelzgut zu optimieren,
- das Verhalten des Schmelzgutes im Bereich der Schmelztemperatur zu beobachten,
- die Wechselwirkung zwischen Schmelze und Tiegelmaterial zu untersuchen.

Da bei den Versuchen zur Spaltprodukt-Freisetzung u.U. auch inaktive Fissium-Proben zum Einsatz kommen, wurde ein Versuchsprogramm begonnen, das die quantitative Bestimmung inaktiver Spaltprodukt-Niederschläge sowohl im Rohrsystem als auch auf den Meßfiltern zum Ziel hat. Zur Erzeugung dieser Niederschläge wurden mit einem Aerosol-Generator simulierte Spaltprodukt-Aerosole hergestellt.

Erzielte Ergebnisse

Beim Aufheizen der Corium-Proben unter Luft waren bei Temperaturen um 2200 °C Flammen, Rauchschwaden und heftige Eruptionen von Schmelzgutpartikeln zu beobachten. Bei einigen Versuchen kam es zum Hochquellen der Schmelze bis über den Tiegelrand, obwohl das Schmelzgut zunächst nur etwa 1/3 des Tiegelvolumens

beanspruchte. Die aufgequollenen Teile koppelten nicht mehr an das Induktionsfeld an. Sie bildeten eine schlackenförmige Kruste, die den Einblick auf die Schmelze versperrte und so die pyrometrische Temperatur-Messung behinderte. Ein Teil der unter Luft in  $\text{ThO}_2$ -Tiegeln geschmolzenen Corium-E-Proben wurde metallographisch, mit der Mikrosonde und durch chemische Analyse untersucht. Die wichtigsten Ergebnisse waren:

- a) Unterhalb von  $1800^\circ\text{C}$  zeigten  $\text{ThO}_2$ -Tiegel eine gute Verträglichkeit mit Corium, darüber kommt es zu Reaktionen, die nicht nur mit der Temperatur, sondern auch der Zeit stark zunehmen und dabei zu einer Auswaschung der Tiegelwand führen. Wahrscheinlich lässt sich das bei  $2400^\circ\text{C}$  bereits völlig geschmolzene Corium unter Luft nicht wesentlich länger als 15 min im  $\text{ThO}_2$ -Tiegel halten.
- b) Zuerst erfolgt die Oxidation des Zircaloys, dann reagieren die Stahlkomponenten mit dem Sauerstoff, u.z. in der Reihenfolge, Cr, Fe, Ni. Erst nach Bildung der Oxidphasen kommt es zu stärkeren Reaktionen mit dem  $\text{ThO}_2$ .
- c) Bei kurzen Aufheizzeiten kommt es nach dem Schmelzen zur Ausbildung einer metallischen Phase (Stahl) und einer oxidischen Phase ( $\text{UO}_2/\text{ZrO}_2$ ). Diese Phasentrennung bleibt nach Oxidation des Stahls nicht erhalten.

Die Versuche mit inaktiven Testaerosolen ergaben, daß man bei Anwendung der Aktivierungsanalyse zur Bestimmung der Niederschläge diese zusammen mit den Filtern im Reaktor bestrahlen kann, wenn man Membranfilter aus regenerierter Zellulose oder aus Zellulose-Acetat verwendet. Demgegenüber liefern Glasfaser-Membranfilter durch die Nuklide Na-24 und K-42 eine etwa 1000-fach höhere Untergrund-Aktivität, so daß sie für aktivierungsanalytische Zwecke nicht in Frage kommen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Als wichtigste Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- Aufbau und Inbetriebnahme der neuen Schmelzanlage
- Fortsetzung der Versuche mit inaktiven Spaltprodukt-Aerosolen zur Ermittlung der relevanten Eigenschaften verschiedener Filter und zur Erprobung von Analysenverfahren für die Niederschläge
- Untersuchung von Transport und Abscheidung dieser Aerosole nicht nur in Luft, sondern auch in Wasserdampf.

4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen  
(P.Hofmann, H.Holleck, C.Politis, A.Skokan, IMF)

1. Durchgeführte Arbeiten

a) Konstitutionsuntersuchungen

Konstitutionsuntersuchungen in den Systemen U-Zr-O, Fe-Zr-O und U-Fe-O führten zur Festlegung und Abschätzung der Phasenverhältnisse bei 1000, 1500 und 2000°C. Im System U-Zr-O wurden die Schmelztemperaturen ermittelt.

b) Reaktionsuntersuchungen

An den hauptsächlichen LWR-Corekomponenten  $UO_2$ , Zircaloy (Zry-4) und Stahl (1.4550) wurden integrale Reaktionsuntersuchungen durchgeführt. Die Ausgangskonzentration der Komponenten entsprach der des "Corium E" (35 Gew.%  $UO_2$ , 10 Gew.% Zry, 55 Gew.% Stahl), die Anordnung der Komponenten war ringförmig (Kern  $UO_2$ , innerer Mantel Zry, äusserer Mantel Stahl). Die Versuche wurden in einem Induktionsofen in Schutzgas, Luft oder Wasserdampf bei Temperaturen bis über 2400°C durchgeführt.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben

An Stäben aus verschiedenen Abschmelzexperimenten (vgl. auch PNS 4241) wurden metallographische und röntgenographische Untersuchungen durchgeführt.

2. Erzielte Ergebnisse

a) Konstitutionsuntersuchungen

System U-Zr-O:  $UO_2$  und Zr sind bei Temperaturen ab 1000°C nebeneinander nicht stabil, sondern bilden eine Kombination aus den drei Phasen  $UO_2$ ,  $\alpha$ -Zr(0) (mit 30 at.% Sauerstoff) und U(Zr)-Mischphase. Die metallische Mischphase U(Zr) liegt schon bei Temperaturen unter 1500°C als Schmelze vor. Bei 2000°C existiert ein weites Gebiet metallischer Schmelze, das auf der Zr-Seite nahe an die Zusammensetzung (ZrO) heranreicht.

System U-Fe-O:  $UO_2$  und Fe stehen miteinander im Gleichgewicht. Bereits bei 1000°C liegt eine metallische Schmelze vor, ab 1500°C existieren ausgedehnte flüssige Phasenbereiche auch im Bereich der Oxide. Die Schmelzen von  $UO_2$  und Fe sind nicht voll mischbar.

System Fe-Zr-O: Bei ~1000°C steht  $ZrO_2$  mit Fe und einigen Zr-Fe-Verbindungen, darunter eine sauerstoffstabilisierte  $\eta$ -Phase im ternären Gebiet (5-10 at.-%), im Gleichgewicht. Diese  $\eta$ -Phase zeigt ein metallisches Erscheinungsbild und

stellt einen Übergang zu den keramischen Oxidphasen dar. Ab 1500°C existieren metallische und oxidische Schmelzenfelder.

b) Reaktionsuntersuchungen

Unter Schutzgas (Argon) wurden chemische Wechselwirkungen zwischen Zry und Stahl bei 1000°C, erste flüssige Phasen im Zusammenhang mit einer eutektischen Reaktion des Zry mit den Komponenten des Stahles bei 1350°C beobachtet. Ab ~1800°C beginnen Bestandteile der Probe abzudampfen (bevorzugt  $\text{UO}_2$ ). Oberhalb 2400°C liegt eine einheitliche Schmelze vor. Beim Wiederaufschmelzen einer erstarrten Probe erfolgt vollständiges Schmelzen schon bei ~2000°C. Experimente mit oxidiertem "Corium E", d.h. alle Komponenten des Coriums wurden in oxidischer Form eingesetzt, ergaben erste flüssige Phasen bei ~1300°C und vollständiges Aufschmelzen bei ~1600°C.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben

Der Schmelzbeginn erfolgt an der Hüllrohr-Innenseite, am Kontakt  $\text{UO}_2$ -Zry. In der erstarrten Schmelze wurden die gleichen Phasen nachgewiesen, die bei den Konstitutionsuntersuchungen als Gleichgewichtsphasen des Schnittes  $\text{UO}_2$ -Zr beobachtet werden:  $\text{UO}_2$ ,  $\alpha$ -Zr(0) und U(Zr). Die Mengenanteile dieser drei Phasen sind unterschiedlich je nach der Stelle der Probeentnahme. In der vom oberen Teil des Stabes entnommenen Probe findet man in der erstarrten Schmelze bevorzugt  $\text{UO}_2$  neben  $\alpha$ -Zr(0) und geringen Anteilen an U(Zr), in der am unteren Stabteil erstarrten Schmelze dagegen weniger  $\text{UO}_2$ , mehr  $\alpha$ -Zr(0) und eine Anreicherung an U(Zr). Diese Befunde verdeutlichen, dass Zusammensetzung und Temperatur der abfliessenden Schmelze zeitabhängig sind.

3. Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

a) Konstitutionsuntersuchungen:

Vervollständigung der Systeme U-Fe-O und Zr-Fe-O, einschliesslich Ermittlung der Schmelztemperaturen.

b) Reaktionsuntersuchungen:

Untersuchungen zum Entmischungs- und Abdampfverhalten von komplexen Schmelzen im System  $\text{UO}_2$ -Zircaloy-Stahl-O<sub>2</sub>.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Stäben aus Abschmelzexperimenten an Luft.

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVOGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN  
BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

- 4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktions-  
vorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen
- 4311 Nukleare Schadstoffe in der Nachunfall-Atmosphäre eines Leicht-  
wasser-Reaktor (LWR)-Containments  
(G. Haury, H. Jordan, IASR)

Durchgeführte Arbeiten

Ziel des Programms ist die Entwicklung eines Computermodells zur Vorhersage des Verhaltens radioaktiver Aerosole in der Nachunfall-Atmosphäre von LWR-Containments.

Nach der Identifizierung der relevanten Aerosolelementarprozesse und der Untersuchung ihrer mathematischen Behandlung wurde damit begonnen, Modelle zu charakterisieren und zu bearbeiten, die diese Prozesse beinhalten. (Wegen der Notwendigkeit, die zum Teil stark vereinfachenden Modellannahmen experimentell zu verifizieren, wird das Gesamtmodell in vier Stufen erstellt, die zunehmend mehr Annahmen enthalten und immer komplexere Systeme beschreiben). Die vier Modelle genügen folgenden Forderungen:

- Jedes Modell eignet sich für eine experimentelle Simulation und Verifizierung der vereinfachenden Annahmen.
- Die vier Modelle werden in der Reihenfolge zunehmender Komplexität entwickelt, wobei die Ergebnisse einer Stufe jeweils eine notwendige Basis für die nachfolgenden Stufen sind.
- Jedes Modell ist numerisch lösbar.
- Das vierte und letzte Modell spiegelt die tatsächliche Nachunfall-Atmosphäre befriedigend gut wieder, um realistische Rechnungen durchführen zu können.

Charakteristische Eigenschaften der vier Modelle sind im Gerüst fertiggestellt. Das letzte Modell beschreibt ein System mit folgenden Merkmalen:

- Ein definierter Grad der Anfangsübersättigung.
- Eine kontinuierliche Wasserdampfquelle.
- Keine weitere Partikelquelle nach der momentanen Anfangsfreisetzung.
- Schnelle homogene Durchmischung des Systems.

### Erzielte Ergebnisse

In einem ersten Schritt wurde der Einfluß der Wasserdampfkondensation auf eine Log-normal verteilte Aerosolmenge mit einem neu von uns entwickelten Computerprogramm berechnet. Dabei wird der Fall einer kontinuierlichen Wasserdampfquelle und der Fall ohne Wasserdampfquelle untersucht. In beiden Fällen zeigt sich sehr deutlich die sehr schnelle Bildung einer bimodalen Verteilung, deren eine Mode praktisch monodispers ist, und die alle Partikeln enthält, deren Radius größer als der kritische Radius ist, und die daher durch Kondensation gewachsen sind. Die andere Mode enthält die durch die Kondensation beeinflußten Partikeln mit Radien kleiner als der kritische Radius.

Dieses Ergebnis wurde dazu benutzt, die Anfangsbedingungen der vier vorgeschlagenen Modelle stark zu vereinfachen.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Entsprechend der in Abschnitt 1 aufgeführten Modellannahmen wird zunächst mit der mathematisch-numerischen Formulierung der Modelle begonnen, wobei der Schwerpunkt bei Modell I liegen wird.

4312      Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase  
(Dr. Hübschmann, Dr. König, H. Schüttelkopf, ASS)

Die Messung meteorologischer Daten am nunmehr vollständig instrumentierten 200 m hohen meteorologischen Turm, ihre Registrierung und Speicherung wurden im Berichtszeitraum planmäßig weitergeführt, so daß die kompletten Daten einer mehr als 1-jährigen Meßperiode auf Magnetband vorliegen. Dieser Datensatz umfaßt neben den bereits bisher gemessenen Profilen der Windrichtung, der Windgeschwindigkeit und der Temperatur auch dasjenige des Taupunkts, die Meßwerte zweier Vektorfahnen in 40 und 100 m Höhe sowie die Strahlungsbilanz. Aufgrund der positiven Erfahrungen wurde ein Vorschlag zur meteorologischen Instrumentierung eines Kernkraftwerkes ausgearbeitet, welche neben der Messung von Windrichtung und -geschwindigkeit auch die zulässige Bestimmung der Stabilitätskategorie gestattet. Damit ist es möglich, für kurzzeitige Emissionen radioaktiver Stoffe in die

Atmosphäre auf Abruf eine Isodosenkarte auf dem Bildschirm des Prozeßrechners des Kernkraftwerks darzustellen.

Zu den Auswertungen der meteorologischen Daten im Berichtszeitraum zählt die Bestimmung der Stabilitätsklassen nach fünf verschiedenen Bestimmungsschemata.

Korrelationsuntersuchungen liefern zahlenmäßige Unterlagen über die Zuverlässigkeit der verschiedenen Schemata. Der ausbreitungsklimatologische Standortvergleich wurde auf die Standorte Lahr und Söllingen (Nato-Flughäfen) ausgedehnt.

Nachdem die Auswertung von Vorversuchen zum Ausbreitungsverhalten chemischer Tracer in der Atmosphäre die Überlegenheit des Diflourdibrommethan ( $\text{CBr}_2\text{F}_2$ ) erwiesen hat, wurden 2 Ausbreitungsversuche mit gleichzeitiger Emission von tritiertem Wasser und  $\text{CBr}_2\text{F}_2$  durchgeführt, beide bei neutraler Stabilitätskategorie. Es wurde ein ähnliches Verhalten der beiden Tracer festgestellt, so daß mit dem chemischen Tracer  $\text{CBr}_2\text{F}_2$  eine Leitsubstanz zur Verfügung steht, um den Anwendungsbereich der Ausbreitungsversuche auch auf bisher nicht untersuchte Emissionshöhen und Stabilitätskategorien auszudehnen. Mit diesem Tracer wurden 3 weitere Ausbreitungsversuche mit erstmaliger Emission der Leitsubstanz in 60 m Höhe am meteorologischen Turm durchgeführt.

Die Messungen der Gamma-Strahlung aus der Ar-41-Abluftfahne des FR2 mit Hilfe eines hochempfindlichen Szintillations-Dosisleistungsmeßgerätes wurden bei stabiler Ausbreitungskategorie fortgesetzt. Es wurde eine befriedigende Übereinstimmung zwischen Messung und Berechnung festgestellt.

Die Ausbreitungsversuche werden auch in den folgenden Jahren fortgeführt und werden nach Fertigstellung automatischer Probenahmestationen auch auf stabile Wetterlagen ausgedehnt.

Die Entwicklung eines meteorologischen Informationssystems wird bis Ende 1975 abgeschlossen.

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren  
(T. Dippel, S. Kunze, D. Hentschel, ABRA)

1. Entwicklung einer Dekontaminationspaste

Durchgeführte Arbeiten

Aufgrund früherer Ergebnisse diente als Grundlage zur Weiterentwicklung einer Deko-Paste die häufig in der Reaktortechnik verwendete Säuremischung mit 3 Gew.% Flußsäure und 20 Gew.% Salpetersäure.

Unter dem Gesichtspunkt einer guten Verträglichkeit mit den derzeitig zur Fixierung der radioaktiven Abfallkonzentrate angewandten Verfahren wurde eine Vielzahl bis 200 °C thermisch beständigen Pasten durch Mischen von Kunststoffpulvern mit flußsäurebeständigen Füllstoffen und Säuregemischen (HF, HNO<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> und HCl) angesetzt und getestet.

Erzielte Ergebnisse

Flußsäure-salpetersäurehaltige Pasten ergaben nur mäßige, schwefelsäure- oder flußsäure-salpetersäure- und schwefelsäurehaltige Pasten zeigen bessere, aber immer noch keine mit Industriebeizpasten vergleichbare Dekontaminationsergebnisse. Erst nach Zudosierung geringer Mengen Salzsäure zu flußsäure-salpetersäurehaltigen Pasten mit einem geeigneten Füllstoff wurden gute Resultat erzielt.

Mit dieser entwickelten Dekontaminationspaste, die im Vergleich zu der bisher eingesetzten Industriepaste weniger als 25 % an Salzsäure enthält, wurden auch in der Gerätedekontamination der Abteilung Dekontaminationsbetriebe bessere Resultate als mit Industriebeizpasten erzielt. Mit der Lieferfirma der Industriepaste wurde ein Lizenzvertrag abgeschlossen.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Prüfung und Überwachung der von der Lizenzfirma hergestellten Paste hinsichtlich ihrer Dekontaminationswirkung wird durchgeführt. Die Fortsetzung der Versuche zielt einmal darauf ab, die Pastenkonsistenz zu verbessern, zum anderen die derzeit noch unvermeidliche Salzsäure durch andere Chemikalien zu ersetzen und damit zu einer gleichwertigen, salzsäurefreien Dekontamiantionspaste zu gelangen.

### 2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschmelzen

#### Durchgeführte Arbeiten

Die im 1. Halbjahresbericht 1974 beschriebenen Dekontaminationsversuche mit Salzschmelzen wurden fortgesetzt. Dabei kamen neue Salze zum Einsatz. Als gut dekontaminierend eingestufte Schmelzen wurden an einem neu beschafften Vielkanalysator auf die Wirksamkeit für einige spezielle Nuklide untersucht. Im Hinblick auf die Dekontamination Pu-kontaminierte Oberflächen sind Vorversuche an U- bzw. Th-kontaminierten Oberflächen durchgeführt worden.

#### Erzielte Ergebnisse

Aus den Versuchen ergab sich, daß Aluminiumchloride, alkalische Schmelzen und Phosphate gute Dekontaminationsergebnisse für Co-60, Ru-136 und Ce-144 liefern. Die gute Dekontaminationswirkung von Sulfaten beschränkt sich offensichtlich auf Erdalkalinuklide. Die genannten Schmelzen zeigen auch ein gutes Dekontaminationsvermögen gegenüber U- bzw. Th-kontaminierten Oberflächen.

Durch geeignete Materialvorbereitung konnte ein Auftragsverfahren in dünnen Schichten auf die Oberfläche für  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  und eine alkalische Schmelze demonstriert werden.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit den Schmelzen, die ein gutes Dekontaminationsvermögen zeigen, sollen folgende Versuche durchgeführt werden:

- Dekontaminationsversuche an weiteren metallischen Materialien und einer erweiterten Nuklidenauswahl
- Dekontaminationsversuche an Materialien, die im Reaktorbetrieb kontaminiert wurden
- Korrosionsuntersuchungen
- Aufbau einer Anlage, die das Auftragen in dünnen Schichten ermöglicht
- Dekontamination Pu-kontaminierte Oberflächen.

4412      Wanderung von langlebigen Transuranisotopen im Boden und in geologischen Formationen  
(A. Jakubick, T. Dippel, ABRA)

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Plutonium-Zufuhrquellen wurden im Hinblick auf die Plutonium-Wechselwirkung mit der Umwelt untersucht. Von diesen hängen weitgehend auch die natürlichen Transportmechanismen ab. Für die Wanderung von Plutonium im Ökosystem wurde ein Fließschema aufgestellt. Um das dynamische Verhalten von Plutonium an einem Modell simulieren zu können, sind Informationen über Anfangszustand des Systems sowie über Gesetzmäßigkeiten des Transports und seiner Übertragungskoeffizienten nötig.

#### Erzielte Ergebnisse

Einige Daten über den momentanen Stand der Pu-Kontamination der Bio-, Hydro- und Lithosphäre stehen zur Verfügung; sie wurden tabellarisch zusammengefaßt. Zur Beschreibung des Plutoniumtransports wird ein Modell vorschlagen, das auf einer Kinetik erster Ordnung basiert. Formell ist auch die Matrix der Plutonium-Übertragungskoeffizienten dargelegt. Sie kann jedoch z.Z. noch nicht quantitativ belegt werden.

Für die Strahlenbelastung der Komponenten des Ökosystems ist die Bestimmung der einzelnen Verweilzeiten maßgebend.

Zum Schluß werden die Diskriminierungsfaktoren zwischen den Einzelkomponenten berechnet, die durch wichtigste Migrationspfade verbunden sind, und für welche die Übertragungskoeffizienten definiert wurden.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im Gegensatz zu dem hier dargelegten system-analytischen Schritt sollen sich die geplanten Arbeiten vor allem mit der Wirkung der physikalischen und chemischen Prozesse beschäftigen, die auf die natürlichen Transportmechanismen einen Einfluß nehmen; insbesondere mit: Transport in bodennaher Luft, Löslichkeit in natürlichen Wässern sowie Transport und Akkumulation in der Lithosphäre.

4420      Technik der Räum- und Demontagearbeiten

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

### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das Arbeitsprogramm "Stilllegung und Endbeseitigung als Folge eines schweren Reaktorunfalles" wurde in Angriff genommen. Die wichtigsten Themen sind:

- Analyse der Auswirkungen schwerer Störfälle
- Dekontaminations- und Transportprobleme bei der Beseitigung von Störfallfolgen
- Ausräumen eines unfallgeschädigten Cores

Zum letzten Thema werden die notwendigen Core-Daten von Reaktoren in der BRD gesammelt und Berichte über bereits aufgetretene Störfälle ausgewertet.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf

Die Lebensdauer und die Anzahl der Kernkraftwerke steigen in der BRD stark an. Dadurch wird schon heute eine Anlage zur Dekontamination, Reparatur oder endlagerfähige Aufbereitung großer Reaktorkomponenten gebraucht. Die Arbeiten werden sich deshalb auf Heiße-Zellen-Projektierung und Anwendung von Fernbedienungstechniken für eine derartige Konditionierungsanlage verlagern.

4422      Ferngesteuerte Arbeitsgeräte und mobile Systeme zur Schadens-  
erfassung  
(G.W. Köhler, RBT)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das Fahrgestell für das leichte Manipulator-Fahrzeug "MF3" und die zugehörige elektrische Steuerung befinden sich im Bau. Die hierzu erforderliche Einsatz-Steuerung mit Multiplexern für das komplette MF3-System sowie eine einfache Ausrüstung zur Schadenserfassung wird spezifiziert und die Ausschreibung vorbereitet.

Bei den vorgesehenen leichten elektrischen Master-Slave-Manipulatoren "EMSM II" wurden alle wesentlichen Konstruktionsprobleme geklärt.

Der Prototyp des elektrischen Master-Slave-Manipulators "EMSM I" konnte mit einem Teil der für Versuchseinsätze notwendigen Ergänzung (einfaches Fahrgestell) ausgestattet werden.

In einem Arbeitsbericht über Einsatzmöglichkeiten von ferngesteuerten mobilen Geräten in kerntechnischen Anlagen werden u.a. Empfehlungen für bauliche Maßnahmen gegeben, die einen besseren Einsatz von derartigen Geräten ermöglichen würden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Es werden alle erforderlichen Unterlagen zur Beschaffung des elektrischen Master-Slave-Manipulators "EMSM II" erarbeitet und die Spezifikationen fertiggestellt. Mit dem Prototyp "EMSM I" werden Testreihen durchgeführt. Am mittelschweren Manipulatorfahrzeug MF2 sind Verbesserungen und Ergänzungen erforderlich.

Summary

4100 ENVIRONMENTAL IMPACT OF NUCLEAR POWER STATIONS AND REPROCESSING PLANTS

4110 Fission Product Iodine Removal in Nuclear Power Plants and Reprocessing Plants  
(H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer, R. Kaempffer, H. Pasler, A. Weinert, J.G. Wilhelm, LFT)

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

Work completed and results obtained

Preliminary measurements have been carried out on the prototype of a post accident recirculation air filter. The wear of the impregnation of the iodine sorption material used in that filter was such low, even during the filling procedure, that the limits of detection of the wet chemical methods applied were not exceeded. A moisture separator of the type used in the prototype filter was exposed to a water droplet aerosol with a drop diameter of approximately 60  $\mu\text{m}$  at a concentration of 50  $\text{g/m}^3$  exhibiting a removal efficiency of 99,8 % under these conditions. The fiber mat used for the removal of very small drops and of solid aerosols, which was tested with NaCl aerosols produced by the flame evaporation method, showed unexpectedly low removal efficiencies. The removal efficiency of the iodine sorption bed of the prototyp filter was 99,8 % at the rated air flow ( $1200 \text{ m}^3/\text{h}$ ,  $30^\circ\text{C}$  and 70 % r.h.) after an additional baffle plate had been installed. This value corresponds to the results of laboratory tests of the sorption material.

The flame evaporation method used to measure the penetration of aerosol filters yielded reproducible results under room air conditions.

Planning for the near future

The measurements at the moisture separator will be continued after the spray system has been modified such as to produce smaller droplet diameters. The removal efficiency of the prototype filter will be investigated at higher temperatures and in superheated steam. The method of aerosol

production by the flame evaporation method will be further developed for use under high pressure and humidity.

4112 Development of Off-Gas Filters for Reprocessing Plants

Work completed and results obtained

Highly impregnated iodine sorption materials (AC 6120/H<sub>1</sub>) was produced for the future GWA filters (German reprocessing plant for 1500 t/a of uranium). The utilization of the capacity, the removal efficiency and the removal profile were determined in removal tests with elemental iodine on test beds of the depth planned for the GWA iodine filter system. Utilization of the Ag<sup>+</sup> of the AC 6120 impregnation amounted to > 90 %; the removal efficiencies reached > 99,99 %; the removal profile in the iodine sorption bed is so steep that satisfactory utilization of the sorption material may be anticipated in the two stage filter planned. The concepts of the WAK iodine filter system and of the GWA iodine filters were finished.

Work on the reaction behavior of organic iodine compounds on AC 6120 was continued. Only iodobenzene (as the model substance of an organic ring compound in which iodine is directly bound to the aromatic ring) did not react with AC 6120. The other compounds exhibited a reactivity which was sufficient for removal purposes in the iodine filter under GWA conditions.

Preliminary experiments have been started on the expulsion of iodine from the dissolver and the recovered acid and have exhibited high release values.

Planning for the near future

The studies of the AC 6120/H<sub>1</sub> iodine sorption material planned for GWA will be continued in 1975 in the original off-gases of the WAK, and later on, of the Marcoule Reprocessing Plant (SAP) in France.

4114      Filtration of Exhaust Air of Reactors, Identification of Iodine Compounds in Reactor Off-Gases. Aging and Poisoning of Iodine Sorption Material

Work completed and results obtained

The influence of solvent loading upon the removal efficiency of exhaust air filters of typical designs was investigated in the laboratory.

Loading to the extent of 5 % of the dry charcoal weight under the experimental conditions selected reduced the removal efficiency from 99,99 to 99 %.

The development of a discriminating sample collector designed to allow the assessment of the physical and chemical forms of fission product iodine in the exhaust air and the recirculation air of nuclear power stations has been started.

Investigations of the transport and removal behavior of hypo-iodous acid were continued. So far, no airborne iodine compound has been found which would be difficult to remove.

Planning for the near future

Prefilters designed to reduce the solvent loading of iodine sorption filters have been tested. Studies on a discriminating sample collector will be continued within the range of parameters of importance for studies of the exhaust air and the recirculation of nuclear power stations.

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

4123      Contaminants Substances in Light Water Reactor Coolants  
(I. Michael, IRB)

Work completed, essential results

The autoclave system (Volume 3,9 l, max. pressure: 230 bar, max. temperature: 480°C; analytical method: atomic absorption spectroscopy) had been operated first at temperatures up to 300 °C and at a pressure up to 86 bar.

The autoclave wall has a protective layer of gold which was electrodeposited. More than 1000 hours of operation have been achieved with this layer.

The investigation of the metal loss rate of Incoloy 800 was continued in respect to the primary loop conditions of pressurized water reactors. The surface of the sample was  $3540 \text{ m}^2$ , the operation time about 540 hours.

Release of gold to the pressurized water not detectable. Average Fe-release at  $342^\circ\text{C}$  and 150 bar:  $90 \mu\text{g}/\text{dm}^2 \times \text{month}$ .

#### Planning for the near future

Investigation continued of the metal loss rate of reactor specific materials with different ph-values of the pressurized water. Development of the technology of conductivity measurement at high temperatures and pressures.

4130 Long-Term Radiological Environmental Burden

4132 Investigation of  $^{129}\text{I}$  Radioecology  
(H.Schüttelkopf, ASS)

#### Work completed, essential results

Work on  $^{129}\text{I}$  radioecology was started in 1974. A neutron activation method was available to determine  $^{129}\text{I}$  in waste waters. The detection limit was 1 pCi  $^{129}\text{I}/\text{l}$ .

Methods were developed allowing to analyze the following sample materials: activated carbon, aerosol filters, plants, soil meat (thyroid glands), milk and water, waste water and fish. 0,5 g  $^{129}\text{I}$  were collected from the WAK exhaust air and are used as a standard for neutron activation. Since only the knowledge of the  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios allows reasonable statements to be made on the contamination of samples taken in the environment the chemicals employed are presently purified from traces of  $^{127}\text{I}$ . This work has almost been completed.

The detection limits obtained by use of the analytical methods are about  $3 \times 10^{-4}$  pCi  $^{129}\text{I}/\text{g}$  of solid sample and about  $10^{-3}$  pCi  $^{129}\text{I}/\text{l}$  of liquid sample. These detection limits are sufficient to handle all the radioecological problems encountered.

Planning for the near future

Starting in February 1975, the emission and immission will be measured at WAK. It is intended to begin with the identification of iodine compounds in the air as soon as gas chromatograph has been delivered.

4134      Investigation of the Long-Term Radiological Environmental Burden Caused by an Accumulation of Nuclear Facilities  
(A. Bayer, INR)

Work completed, essential results

Investigations on the radiological impact in the Upper Rhine river bassin are continued with an expansion of the computer program. The additional subroutines takes into account the wash-out of the radioactive cloud and the gamma radiation by material deposited on the ground. Sensitivity-studies were started in order to estimate the accuracy of the results. The collection of data was expanded to the release rates of transuranium elements released by nuclear power plants and reprocessing plants. In addition, statistics of the food consumption in the FRG were compiled.

Planning for the near future

The model of the hydrospheric transport of radionuclides will be detailed. It is planned to consider the reactions with suspended and deposited sediments and the living organisms.

4140 Separation of Krypton and Xenon from the Offgas of Nuclear Facilities  
(E. Hutter, RBT; R. v. Ammon, IHCH)

Work completed

After finishing two engineering studies to make out the most promising process it was decided to build a low-temperature rectification pilot plant. Specification were set up, inquiries were made.

At the end of 1974 the order has been given for designing and building the low-temperature section and noble gases filling station.

Before rectification the dissolver offgas of a reprocessing plant has to be purified in several steps.

A. Separation of nitrogen oxides and oxygen by catalytic reduction with hydrogen.

B. Adsorption of  $H_2O$  and  $CO_2$  on molecular sieves.

The catalytic reduction of  $NO_x$  and  $O_2$  with  $H_2$  was studied in the laboratory.

Essential results

1. The  $NO_x$ -content of a gas mixture can be reduced to  $\leq 1$  ppm by catalytic reduction with hydrogen.
2. The fission product iodine is a catalytic poison. Operating times of the catalyst of approximately one year can be achieved, on the premises, the iodine filters before the catalyst are at least 99,8 % effective.
3. Formation of  $NH_3$  cannot be completely prevented; values as low as 30 ppm can be achieved if relatively inactive catalysts are used. As a consequence, reaction temperatures above room temperature even for the  $O_2$ -reduction have to be tolerated.

Planning for the near future

A laboratory experiment is to be carried out concerning the quantity and behavior of  $\text{NH}_3$  formed during the catalytic reduction. Safety aspects and the control of the large amounts of hydrogen will be considered.

The adsorptive separation of Xenon by charcoal will be tested in a laboratory scale.

4150      Waste Heat Problems Associated with Nuclear Facilities

4151      Investigation of the Heat Exchange River/Atmosphere at the Rhine River Downstream of the Philippsburg Nuclear Power Station. A Contribution of Heat Loss Models.

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

Work completed

All probes and interfaces with exception of those for oxygen solution in water, water surface flow, roughness of surface, water level and fog density have been installed and are under operation. Automatic data processing is accomplished either by computer or by a 12 channel analog printer. Presently the final calibration of the signal transmission lines is being completed.

The data processing software is in a preliminary configuration yet. Another 8 k memory extension box has been installed in order to allow the addition of modules such as powerfail-restart routines, I/O subroutines for magnetic cassettes and tapes and storage capacity for windspeed direction values.

The present output is restricted to 10 mins. teletype messages, comprehending the most essential data. Data collection difficulties have generally been overcome.

A survey on the water surface temperature distribution in the surrounding of the station has been performed and revealed no inhomogenities in the vicinity of the mast within a accuracy of about 0,2  $^{\circ}\text{C}$ .

Planning for the near future

The start of the routine operation of the station is aimed at within the first few months 1975. Later on data analysing procedures and models will be developed.

4152      Environmental Impact of Cooling Towers of Large Nuclear Power Plants  
(K. Nester, ASS)

Work completed and essential results

The computer program for the calculation of the rise of cooling tower plumes (3-dimensional) was extended. In addition to the distributions of the vertical velocity, the temperatures and the specific humidity, it yields now the distribution of the rain droplets in the plume, too. The treatment of the cloud physics was based on the theory of KESSLER<sup>+</sup>).

Planning for the near future

By a comparison of observed and calculated cooling tower plumes it will be tried now to adapt the parameters of the program to reality.

---

+ ) E. Kessler, Meteorological Monographs, 10 (1969) No. 32

4200 SYSTEM BEHAVIOR OF NUCLEAR FACILITIES DURING INCIDENTS

4210 Dynamic Load of Components and Systems

4211 Dynamic Load of LWR Pressure Suppression Systems

(R.A. Müller, E. Wolf, IRE)

Work Performed and Results Obtained

Experimental investigations were performed of the local pressure pulsation field in the water pool of the wetwell and the mass flows of the steam-water-air mixture flowing into the wetwell were measured during the loss-of-coolant true scale blowdown tests carried out at the MARVIKEN nuclear power station (Sweden) from August 1972 until May 1973. In the second half year of 1974 the reports were terminated on the evaluation and representation of measured results (MXA-1-115, MXA-1-221/222/223). The more detailed evaluation of measured results aiming at the interpretation of the phenomena observed and the establishment of theoretical models was started with the study of the possible natural vibrations of the system.

As a supplement to the theoretical investigations the experimental development of an infrared absorption measurement method was pursued within the period of reporting, which is to be used to determine continuously the mass flows and the composition of the mixture in the two-phase flow. These activities are jointly performed with the Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) of the Karlsruhe University. ITS has meanwhile constructed a test section which allows to carry out parameter studies. It is intended to use a measurement device of this type in the MARVIKEN-II tests and, possibly, also in the HDR-tests (4222 and 4223) after the tests have been sucessfully terminated.

At the Brunsbüttel nuclear power station measurements were also made in October 1974 of the pressure pulsation field induced by steam condensation in the water pool and of the respective dyna-

mic response of the safety containment. These measurements were performed within the framework of non-nuclear hot tests in which the steam from the reactor pressure vessel was blown off into the water pool via relief valves and condensation nozzles. 90 blowoff tests in total were performed with different parameters. The evaluation of the measured data was initiated.

As regards the investigations of structures natural frequencies and the corresponding vibration modes of the safety containment of the Brunsbüttel reactor plant were calculated by means of the ICES sub-system DYNAL. To obtain reliable results with a minimum of computation work, finite element models with different degrees of fineness were investigated. The results are the natural frequencies with the corresponding vibration modes from the frequency domain up to about 50 Hz. The simplest mode of natural oscillation of the whole structure is a horizontal bending oscillation at about 10 Hz. It is followed by a mode of lifting natural oscillation at about 29 Hz. In the range between 30 and 40 Hz many modes of natural oscillations are encountered to which contribute only parts of the structure.

In future work the pressure loads measured in the KBB hot tests will be used as input data for transient computations. The structure accelerations determined will be compared with the measurements. Moreover, it is envisaged to examine the influence exerted by the water pool and the condensation tubes on the behavior of the structure.

4212      Dynamic Load of Pressure Vessel Internal in LWR Loss of Coolant Accidents  
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

The theoretical investigations which will accompany the HDR-blowdown experiments have started early October 1974. Main activities were:

- contribution to the specification of the HDR internals
- establishing a work plan for the development of a coupled fluid and structural dynamics code system
- start of the implementation of fluid dynamic codes which may be used as a basis for future development
- formulation of a simplified shell model (membrane stresses) for structural analysis of the barrel.

4214 Development of a Radionuclide Method of Mass Flow Measurement  
in Non-Steady State Multiphase Flows

Introduction

As a consequence of the good results achieved in the MARVIKEN I experiments /1/ the radiotracer method of gas velocity measurement applied in that experiment is further developed into a method of measuring mass flows within the framework of the Nuclear Safety Project (PNS). Simultaneous but separate measurement of the velocities of the phases gas and liquid is to be achieved and coupled with a radiometric density measurement. The R + D work currently performed under PNS 4214 /2/ is additionally financed under the following two special research projects by the Federal Ministry of Research and Technology.

1. RS 146, Development of the method in particular with respect to an application of RS 109 (two phase velocity measurement),
2. RS 123, application of the method to the HDR blowdown experiments (measurement of two phase mass flow).

Work performed

The argon activation system for labeling the gas phase has been completed. A corresponding system for the production of the Mn-56 radiotracer for labeling the liquid phase has been designed and is presently under construction. A new injection valve has been developed to improve the gas injection technique. Two different methods have been selected for liquid injection. The first method corresponds to the gas injection method. The medium to be injected (water in this case) is pressurized in a piston or membrane reservoir under high pressure and then supplied to an injection valve working with the desired pulse widths and pulse frequencies. The second method is based on the principle of the injection pump and can be used only for the injection of liquids. Planning of the injection and measuring system has been finished. Preliminary experiments have been started on measuring two-phase velocities. A cold water test facility required for testing and trial operation of the method is currently under construction. Work on the evaluation technique has been started.

Preparatory work for the radiotracer velocity measurements to be carried out in association with the blowdown experiments of the Frankfurt Battelle Institute (RS 50) has been continued.

Essential results

The completion of the argon activation system takes care of the labeling of the gas phase. A final statement about the suitability of manganese compounds for labeling the liquid phase is not possible before preliminary tests in an autoclave system have been carried out in early 1975. The own developed injection valve was able to achieve injection pulses down to 5 msec duration. Measurements indicated that the new valve can reach injection pulses shorter than 15 msec, even with long nozzles, when using the specially adapted injection nozzles. This allows, that local and integral injections can be achieved. First preliminary tests in a simple selfmade test facility (pneumatic-tube plant) have indicated the basic possibility of measuring the velocity of two-phase flows. However, this involved two special problems:

1. The detectors indicated a peak shift to lower energies as the pulse rate is considerably increased (disadvantage to energy discrimination).
2. Additional scattering effects other than those anticipated were found; their causes will have to be further investigated.

In the meantime, it has been possible by modification of the electronic components of the detectors to reduce the peak shift in such a way as to make it almost negligible. The scattering effects observed must be eliminated by extensive measurement and evaluation techniques. This requires further studies in 1975.

Planning for the near future

The labeling and injection technique is to be tested and further developed for range of high pressures and temperatures. Preliminary tests in an autoclave system are planned for this purpose. The velocity measuring systems must consist of twelve probes and the additional electronics must be ready for operation in February 1975. The scattering effects must be thoroughly

studied so that they can be eliminated by means of an evaluation program yet to be drafted. Work on the technique of evaluation in general will be continued. Various programs will be set up, if necessary also by means of correlation analysis. Cooperation with the Frankfurt Battelle Institute in the RS 50 blowdown experiments is planned for the first six months of 1975. Further development work on the cold water test facility can be started after March 1975. Final testing of the method under blowdown-like conditions will be carried out in 1976 on the "Joint Test Rig for Test and Calibration of Different Methods of Two-Phase Mass Flow Measurement" (PNS 4215 / RS 145).

The work performed and the results achieved are described in more detail in the second semi-annual report, 1974, of the PNS /3/.

References

- /1/ KFK 1859, Halbjahresbericht 1/1973 des Projekts Nukleare Sicherheit
- /2/ KFK 2050, Halbjahresbericht 1/1974 des Projekts Nukleare Sicherheit
- /3/ KFK 2130, Halbjahresbericht 2/1974 des Projekts Nukleare Sicherheit

4215      Joint Test Rig for Tests and Calibration of Different Methods  
              of Two-Phase Mass Flow Measurement  
              (F. Erbacher, H. John, E. Wanner, IRB)

Work completed, essential results

On behalf of the Federal Ministry of Research and Technology, the Institute of Reactor Components (IRB) has begun building a test rig which will be used for testing and calibrating the methods of measuring non-steady state two-phase mass flows developed by various research agencies.

The test rig is designed for the generation of steam-water mixtures of any mixing ratio and a maximum pressure of 160 ata. Depending on the mixing ratio, the mass flow will reach a maximum level of 10 to 20 t/h. The conceptual design phase of the test rig has largely been finished, the component ordering phase has begun.

Planning for the near future

The most important problems to be solved in the next period under review will be the development of a mixer chamber for generation of the desired two-phase mixture and the choice of a suitable method for identifying the flow regimes. Construction work on the test rig is due to be finished by late 1975.

4230      Emergency Core Cooling of LWR's

4231      Theoretical Investigations of the Fuel Rod Behavior during  
a LOCA

(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE/Stuttgart)

Work completed

- The modulus RAND, to prepare the RELAP-results for the following detailed fuel rod analysis, was modified so that a flexible time step control could be introduced in the calculations.
- The modulus SPAGDR to determine the internal pressure of the pin was modified so that the transient fission gas release during the accident can be described.
- The modulus ZET-2D to determine the two dimensional transient heat transfer was completed in a first version.

The work on the moduli ODRUSPA, space dependent pressure in the gap, HYDRA, pressure and temperature distribution in the subchannel, STADEF, improved two dimensional description of the cladding deformations was continued (the latter in cooperation with the IRT (Darmstadt)).

For the code system improvement preliminary work was done for the statistic of the ballooning, for an improved representation of the mechanical properties (Zry) and for the thermohydraulics during the reflood phase. Additionally supporting calculations were done for the experiments 4236 and 4238.

Essential results

The analysis made at IRT/Darmstadt to select a proper method to describe the 2D cladding deformations had the result that the shell theory should be used.

According to preliminary results on the question, whether a fresh pin or a pin with high burnup is the more critical in a LOCA it seems that the

fresh pin is the more tical due to the higher temperatures.

Planning for the near future

For the next six month it is planned to complete a first version of the code-system SSYST.

After that a detailed parameter-study is planned to check the capabilities of the system.

4235 Studies on Material Behavior during a LOCA

4235.1 Studies on the Mechanical Behavior of Zircaloy-Cladding Material during a LOCA  
(M. Boček, IMF/II)

Work completed

- To study the unknown influence of texture on the plastic behavior of Zry-4 at the higher temperatures of interest, the temperature and texture dependence of some characteristics of the stress-strain-curve had been investigated.
- First experiments on superplastic behavior had been performed in air atmosphere and parallel experiments were carried out in vacuum for comparison.

Essential results

- The influence of texture on the yield point disappeared above 650 °C. First results showed, that the deformation behavior at temperatures above 600 °C depends on the texture.
- At temperatures above 780 °C Zry-4 showed superplastic behavior (Rupture occurred after extensive deformation without necking). The strong oxidation at higher temperatures had no influence on this

behavior. Superplastic behavior depends essentially on the test temperature and the deformation rate.

- Creep tests on Zry-2 at temperatures of 650 °C and low initial stresses showed normal plastic behavior. This result emphasizes the importance of the deformation temperature on the superplastic behavior.

Planning for the near future

- The above problems will be treated more extensively.

4235.2 High Temperature Corrosion Studies on Zircaloy-4 Cladding Tubes

(S. Leistikow, IMF/II)

Work completed

Zircaloy-4-high temperature steam oxidation kinetic measurements were performed to evaluate the band of scattering of weight gains, to compare the behavior of Zircaloy-2 and -4, and to check the performance of inductive heating coils. The evaluation was made by gravimetric, metallographic, microprobe, and hardness measurements.

Essential results

The experiments showed that the band of scattering expanded with increasing time and temperature of exposure ( 2 - 15 min, 900 - 1300 °C) to maximum values of 8,4 %. In each case weight gains of Zircaloy-2 specimens fitted in the given bands after exposure under identical conditions. During application of inductive heating systems it seems that the surface temperature distribution can be improved by metallic cylinders - pulled over the test section - for coupling purposes. The general agreement of local oxygen and hardness profiles in the cross-section of the oxidized specimens let expect that after calibration the embrittlement can be evaluated by hardness measurements more precisely.

Planning for the near future

It is intended to perform more transient oxidation kinetic measurements on Zircaloy-4 tubing without and with application of defined mechanical stresses.

4235.3 Experiments on the Chemical Interaction between Fuel and Zircaloy-Cladding  
(P. Hofmann, IMF/I)

Work completed

In order to study the Zry cladding attack during a LOCA by oxide fuel and fission products and its influence on the mechanical properties of Zry, experiments were carried out on short Zry-pins and Zry-containers. The samples were filled with  $UO_2$  and simulated fission products (Cs, J, Te) in gloveboxes, welded leak proof and subsequently annealed in inert gas under isothermal conditions up to 1 h. The simulated burnup varied between 5 and 10 at.% and the O/M-ratio of the  $UO_2$  between 2.00 and 2.08.

Essential results

The experiments with short Zry-pins (PWR-dimensions) showed, that the Zry-tubes exhibited a swelling during heating and as a result burst partly. The burst temperature of the tubes depends in addition to the inner pressure, on the O/M-ratio of the  $UO_2$  and the fission product concentration.

The Zry-pins which contained  $UO_{2.08}$  without fission products burst already at temperatures between 800 and  $900^\circ C$  (the inner pressure corresponds to the atmospheric pressure at room temperature). The pins containing only fission products failed at temperatures above  $900^\circ C$ . The influence of the oxygen potential of the  $UO_2$  on the mechanical properties of the Zry-claddings is obviously greater than the reaction potential of the fission products.

Initial metallographic and electron microprobe analysis of the Zry-containers showed, that below  $1000^\circ C/1$  h the Zry was embrittled at the phase boundary  $UO_2/Zry$  due to the oxygen diffusion from the  $UO_2$  into the Zry; Tellurium also reacts with the Zry. Above  $1000^\circ C$  chemical interactions between the  $UO_2$  and Zry are more pronounced.

Planning for the near future

Systematic investigations of the influence of the O/M-ratio in  $UO_2$  als well as the fission product concentration on the chemical and mechanical properties of Zry. Experiments with short Zry-pins under variable inner pressure and under oxidizing conditions. Corrosion experiments under transient temperature conditions.

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 and results

A recently developed one-dimensional non-steady state heat conduction computer program RESIM was used to determine the optimum time curve of the electric heating power of the fuel rod simulator and to define the requirements of the supply systems. The RESIM calculations show that the transient rod power of the fuel rod simulator corresponds to that of the reactor fuel rod. The maximum error is - 5 % occurring temporarily, while the storage heat may deviate temporarily by as much as -25 %.

The possibilities have been examined for external coating of the  $UO_2$  annular pellets by providing an electrically insulating layer in order to improve the dielectric strength.

RELAP-3 calculations for the plant concept have been performed to investigate if the simulated cooling conditions in the test section are similar to the reactor operation. They show that the plant concept is appropriate to obtain the desired coolant conditions in the test section as regards pressure, mass flow and quality, by use of controlled blowoff values. The construction of the test section was completed.

In preliminary experiments an optical method was tested for contact-free measurement of the cladding tube temperatures in the temperature range from about 550 to 900°C. It has been shown that also in the presence of a two phase flow accuracies in measurement within about  $\pm 3\%$  are achievable under the geometrical conditions of the test section. Work on the non-steady state density measurement in the coolant plena was carried on to the bidding stage. The development of the true mass flow meter for measurement of non-steady state two phase mass flow was continued. The true mass flowmeter shows a maximum uncertainty in measurement of  $\pm 6\%$  of the total range for changes in the volume flow from 1 to 300 in case of constant mass flow.

The data acquisition system and the plant control system were planned.

#### Planning for the near future

The main task will be the establishment of a computer program allowing to evaluate the experiments. The test program will be specified in more detail. Besides the stepwise construction of the test facility, the necessary supply system for plant operation will be installed.

The specially developed instrumentation for measurement of the cladding temperature and of the two phase mass flow, respectively, have to be optimized. The devices for operating instrumentation are to be designed.

4237.1 Studies on the Fuel Rod Failure in the Second Heatup Phase of a Loss-of-Coolant Accident. In-pile Experiments with Single Rods in the Steam Contamination Loop (DK Loop) of the FR2 Reactor

(E. Karb, L. Sepold, RBT)

#### Work completed, essential results

##### 1. Preliminary Experiments in the DK-Loop of the FR2

The experiments begun in the first half year of 1974 were continued according to the program and concluded in July. On the whole the preliminary experiments comprised 11 experiments with a dummy

fuel rod (steady state experiments) and 18 transient experiments with 3 nuclearly heated test specimens.

The evaluation, mainly a comparison of the computer programs (RELAX of the IRB, WL of the IKE at Stuttgart) with measurements, were finished by the end of the year. The calculations were confirmed by measurements (temperature transients).

Accordingly, the initial enrichment of the fuel pin for the main experiments was calculated to be 4,7 % of U-235 (identical for all rods).

The preliminary experiments were important not only as a means of checking up the calculations but also in improving the power assessment. Important facts have been found with respect to the attachment of thermocouples and the rod behavior under transient conditions (oxidation, permanent elongation of the rod).

## 2. Design and Prototype Testing of Pre-irradiation and Test Rigs

The design of the pre-irradiation rig for 6 fuel rods each has been completed. The rig allows the fuel rods to be unloaded individually and has been designed so that it can be loaded on any position in the reactor core.

### Test Rig:

The experiments testing various designs of the end plug have been concluded sucessfully. One design turned out to be particularly leak-proof under the operating conditions and also in cyclic operation and was selected for this reason.

The upper end plug of the rod had to be designed so that no fission gas is lost from the rod during the coupling procedure of the measurement capillaries.

The design of the head piece, which includes the pressure transducer and the pressurization system, is about to be finished.

Planning for the near future

1975 Experimental Program

As mentioned under item 1 above, it has become evident from the preliminary experiments carried out in June and July 1974 that the power determination of the test specimens must be improved.

For this reason, tests and calibrations, respectively, of the measuring gear (temperature, flow, pressure) of the test loop will be carried out in the spring of 1975. The data acquisition system, which will have been set up by that time, will be used to test the measuring gear.

Experiments with electrically heated fuel rod simulators will be carried out in the spring of 1975 to compare the modes of determining the power of the test specimens (reactor physics, thermal) and to calibrate errors in temperatures measurement by different ways of attaching thermocouples to the cladding of the rod. These experiments are combined with the 4237.2 project.

The ordering phase of the fuel rods for the main experiments had been initiated. The fuel rods will be available by the beginning of the main experiments in September 1975. Pre-irradiation will begin at the same time.

4237.2 Reference Experiments for the PNS 4237.1 In-pile  
Experiments with Electrically Heated Fuel Rod Simulators  
(Single Rods)  
(B. Räpple, RBT)

In 1974 the project was initially started with a small number of personnel. Most of the activities were concentrated on studies of different plant variants with respect to their feasibility and the possibilities that could be established of comparing them with the PNS 4237.1 experiments.

Out of the three possible plant concepts an in-pile version has so far turned out to be a promising solution. In cooperation with the IRB a test rig with an electrically heated fuel rod simulator has been tackled, an experimental program for preliminary tests to be carried out in 1975 has been drafted.

4238      Investigations of the Interaction between Ballooning Zircaloy Claddings and the Reflooding Emergency Core Cooling Water  
(K. Wiehr, IRB)

Work completed, essential results

Various preliminary tests have been carried out and methods of fabrication developed to manufacture the fuel rod simulator with 3,90 m heated length and an axial power profile. Fabrication of the tubular heating rod by grinding an external stepped profile and subsequent hammering to a constant diameter over the entire length turned out to be feasible. For fabrication purposes, various specialized systems had to be built, such as for hammering, intermediate annealing, filling and vibrating of MgO and BN powders. Experiments with respect to explosion welding have been prepared for the weld between Zircaloy and Inconel.

A preliminary test program of shortened fuel pin simulators has been started to prove a possibility of axial localization of the ballooning by weakening of the cladding. Preliminary experiments have shown that a slight weakening of the cladding tube, which was below the permissible tolerance level according to the specifications of the reactor cladding tube, was able to localize the ballooning.

The design of the test rig was revised, preparations for construction were made. Most of the planning of the electrical power control of the fuel rod simulators has been finished.

X-ray-penetration was selected as a method suitable for observation of the ballooning process of the cladding tube. A system along these lines has been ordered.

For contactless temperature measurement of the ballooning cladding work has been started on the modification of a quotient pyrometer. The suitability of quartz glass rods as light conductors has been studied in preliminary tests.

A system for recording of measured data was designed and ordered. For processing the measured data by the CALAS system a fast data line was installed and the terminals and video displays were ordered.

Calculations on the thermal design of the fuel rod simulators by means of a one dimensional heat conduction program were finished. A two dimensional heat conduction program was developed to determine the influence of axial heat conduction. A computer program is being drafted for calculation, from temperature measurements, of the gap heat transfer resistance generated as the cladding expands.

#### Planning for the near future

Important steps to be taken in the next few month include the following aspects:

- Fabrication and instrumentation of fuel rod simulators.
- Performance of preliminary tests to prove a possibility of axial localization of the ballooning.
- Setup of the test rig.
- Testing the X-ray facility.
- Finishing the quotient pyrometer.
- Setting up a system for data recording and processing.
- Computer runs with a two dimensional thermal conduction program on the influence of axial heat conduction.

4239      Influence of the Size and Shape of Cooling Channel  
Blockages upon Emergency Core Cooling in the Flooding  
Phase of a LOCA  
(G. Hofmann, IRB)

#### Work completed, essential results

The design of the test loop has been finished, the construction has been commissioned. Outstanding components have been ordered. The

control system for the power supply and the data recording system have been designed and ordered. A test section for the first rod configuration is under construction. Preliminary mechanical tests regarding instrumentation of the heater rod were successfull, but there is to be done a test under true experimental conditions. The geometry of the artificial blockages to be studied was selected, preliminary tests on their fabrication and attachment to the rods are still under way and will be concluded by a test under operating conditions. Experiments were performed with respect to observation of the rapid two phase flow on a film, which showed that shorter exposure times are required and measures must be taken against wetting of the observation windows. During part of the flooding procedure, temperature fluctuations were measured in preliminary experiments in the cooling channel which permit some information to be gained about the flow velocity from a cross correlation. A calculation regarding the influence of the helical heaters of the heating rod upon the temperature distribution on the cladding of the rod resulted in negligibly small differences in temperature for the central heating zone of the rod. Another calculation was prepared to determine the axial component of the heat flow density distribution in the heating rod as a consequence of an artificial blockage.

Planning for the near future

In the first six months of 1975 the test rig and the first rod configuration will be built up ready for operation. The preliminary tests on the method of measurement and on the design, which have been started and planned, will be continued, and so will be the calculations on the thermal behavior of the heater rods and the test channel. A preliminary test program will be set up and the reduction and documentation of measurement data will be prepared.

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 time of report experiments were done with single rods in inertgas and air. These experiments should simulate the behaviour of rods in non-oxidizing and strong oxidizing atmosphere. The velocity of heating and the radial temperature profil were changed as parameters. Changing of the radial profil was done by variation of the number of additional zylindrical radiation screens.

Investigations in inertgas were done with heating velocity of 1/2, 1, 2, 4 and  $6^{\circ}\text{C/sec}$ . The experiments with  $1^{\circ}\text{C/sec}$  were repeated with 1 and 5 radiation screens. In air temperature was raised with 1/2, 1 and  $5^{\circ}\text{C/sec}$ .

Essential results

One can see from these first experiments, that in the region of used parameters, there was no separate melting of can and fuel, but by the strong interaction of Zircaloy and  $UO_2$  the behaviour of the ternary system Uranium-Zirconium-Oxygen is of main influence on the meltdown.

All experiments in inert gas show a melting of can and  $UO_2$  below  $2000^{\circ}\text{C}$ . No typical dependance from heating velocity and radial temperature gradient was found. When heating up in air, there develops a relative strong skin of  $ZrO_2$ , which has a higher thickness, when the heating velocity was lower. At the maximum temperatures of our experiments of nearly  $2000^{\circ}\text{C}$  this cover stayed stabil, while the inner region of interacting Zircaloy and  $UO_2$  was melting.

Planning in the near future

As the interaction between Zircaloy and  $UO_2$  is of high influence on the meltdown, the development of this interaction, and with this the dynamics of the meltdown during the temperature rise, will be investigated by series of experiments systematically stopped at different temperatures and analyzed metallurgically.

After completion of the pressure vessel, we start with the experiments using a steam atmosphere. First there will be done experiments on single rods in an atmosphere with a different amount of water vapour, which should simulate the behaviour in the different regions of the core. Further on the influence of the surrounding of the rod is to be investigated by the meltdown of bundles. In this experiments also the influence of spacers and guiding tubes are to be checked. Later on the meltdown behaviour of ballooned cans will be investigated.

4243      Experiments on Determination and Limitation of Fission and Activation Product Release During Core Meltdown  
(H. Albrecht, IRCH)

Work completed

The high frequency induction furnace ordered from an industrial firm which is to be used to melt weak active corium specimens has been nearly completed and will be installed in February 1975.

The measurement of the melt temperature is carried out by use of a two-color pyrometer. This instrument turned out to show a considerable drift of the temperature reading when a radiation resistant optical waveguide was used. The cause was found to be the running-up time of the photomultiplier, which - due to the special waveguide - could not be operated with the usual wave lengths. So the pyrometer will be used now with the optical waveguide recommended by the manufacturer and it must be protected from the  $\gamma$ -radiation as well as possible.

Some more preliminary melting-experiments have been carried out under air-atmosphere in order to

- study the behavior of the corium during meltdown
- optimize the geometric configuration of the induction coil, crucible and specimen
- investigate the interaction between molten corium and the crucible material ( $\text{ThO}_2$ ).

Furthermore, a series of experiments have been carried out to develope methods for quantitative determination of inactive fission product deposits in the transport line as well as on the filters.

The fission product elements present in aerosol form have been generated with an ultrasonics and a nozzle aerosol generator.

#### Essential Results

During the heat-up phase of the Corium-E samples in air atmosphere in the temperature range of about  $2200^\circ\text{C}$  flames and vapour dusts of evaporized condensed particles were observed. In some cases the melting charge swelled over the edge of the crucible, although it required initially a third of the crucible volume. A slag-like crust has formed at the top of the crucible which did not couple to the induction field. This crust hindered also the pyrometric temperature measurement. Some melted Corium-E-samples were investigated metallographically, by Microsonde and by chemical analysis.

- Below  $1800^\circ\text{C}$  the  $\text{ThO}_2$ -crucible showed a good compatibility with Corium. Above  $1800^\circ\text{C}$  reactions araise increasing with temperature and time, leading to a washout of the crucible walls. Above  $2400^\circ\text{C}$  the total Corium is melted and probably it can not be kept more than 15 minutes in an air atmosphere.
- Oxidation occurs first with Zircaloy, followed by the steel components, and at least Cr, Fe, Ni in this order. Afterwards these oxid phases react with the  $\text{ThO}_2$ .
- After short time heating-up experiments in the melt a metallic phase (steel) and an oxidized one ( $\text{UO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ) are built up. This separation of the phases is not conserved after the oxidation of the steel.

The experiments with inactive test aerosols showed good results when employing the activation analysis method in order to determine the fission product element deposition on the filters. Glass fiber filter and membrane filters (regenerated cellulose or cellulose acetate) were used. After activation, the former showed a 1000-fold higher background activity for Na-24 and K-42 nuclides.

Planning in the near future

In the near future the following works are planned:

- mounting, preliminary operation and testing of the induction melting device,
- experiments with inactive fission product aerosols in order to determine relevant properties of other filter materials.
- testing of methods for deposit analysis,
- investigation of transport and precipitation for fission product aerosols in air and water vapour.

4244 Constitution and reaction behaviour of LWR materials at core-melting conditions

(P.Hofmann, H.Holleck, C.Politis, A.Skokan, IMF)

1. Work to date:

a) Phase equilibrium studies

Phase relations in the systems U-Zr-O, Fe-Zr-O and U-Fe-O were investigated and estimated at temperatures of 1000, 1500 and 2000°C. Melting temperatures were measured in the system U-Zr-O.

b) Reaction studies

The constituent materials of LWR-Cores,  $UO_2$ , Zircaloy (Zry) and stainless steel (1.4550 DIN) were investigated concerning their reactivity and compatibility at high temperatures. The samples of bulk composition 35 wt.%  $UO_2$ , 10 wt.% Zry and 55 wt.% steel, corresponding to "Corium E", contained three components in annular arrangement: an  $UO_2$ -kernel, surrounded by an inner mantle of Zry and an outer mantle of steel. The samples were heat-treated in an induction furnace in inert gas atmosphere, air or water vapour at temperatures up to  $>2400^{\circ}\text{C}$ .

c) Metallurgical examinations of molten rods

Cross sections of molten simulated LWR-fuel rods (see also PNS 4241) were examined metallographically and by X-ray diffraction methods.

2. Results to date:

a) Phase equilibrium studies

System U-Zr-O: At 1000°C pure Zr is not in equilibrium with  $UO_2$ ; the two components react leading to  $UO_2$ ,  $\alpha$ -Zr(O) with an oxygen-content of 30 at.% and an U(Zr) solid solution. This latter phase melts in the 3 phase-field below 1500°C. At 2000°C on the Zr-rich side the melt extends nearly to the composition (ZrO).

System U-Fe-O:  $UO_2$  and Fe are in equilibrium. A metallic melt occurs already at  $T < 1000^\circ\text{C}$ , above 1500°C large fields of metallic and also oxidic melts exist. The melts of  $UO_2$  and Fe are not miscible.

System Fe-Zr-O: At temperatures of about 1000°C there is equilibrium between  $ZrO_2$  and Fe or some Zr-Fe-compounds respectively, one of them being an oxygen-stabilized  $\eta$ -phase containing about 5-10 at.% oxygen. This  $\eta$ -phase shows metallic shape, representing a transitional stage between the metallic alloys and the ceramic oxide phases. Above 1500°C extending fields of metallic and oxidic melts exist. On the join  $ZrO_2$ -Fe a large liquid-liquid miscibility gap can be observed.

b) Reaction studies

Chemical interactions between Zry and steel were first observed at 1000°C (inert gas argon), molten phases were formed at 1350°C due to eutectic reactions between Zry and steel. Above  $\sim 1800^\circ\text{C}$  constituents of the sample (mainly  $UO_2$ ) vaporized. At temperatures above 2400°C the entire sample was molten; the solidified and reheated sample was totally liquid already at 2000°C.

Experiments with oxidized "Corium E", e.g. all corium-components were used in oxidic form, showed first liquid phases to be formed at  $\sim 1300^\circ\text{C}$  and total melting of the sample at  $\sim 1600^\circ\text{C}$ .

c) Metallurgical examinations of molten rods

First melting of simulated LWR-fuel rods started at the contact  $UO_2$ /Zry-cladding. The solidified melt contained the equilibrium phases of the join  $UO_2$ -Zr:  $UO_2$ ,  $\alpha$ -Zr(O) and U(Zr).

The proportions of these three phases however depend on the rod position where the sample was taken. The melt solidified at the top of the rod contained more  $UO_2$  and less metallic phases than the melt solidified at the lower part. The latter showed more  $\alpha$ -Zr(O) and an accumulation of U(Zr). These findings make clear that composition and temperature of the melt flowing down change during the melting process.

3. Work planned:

- a) Phase equilibrium studies: completion of the systems U-Fe-O and Fe-Zr-O, measurements of melting temperatures in the same systems.
- b) Reaction studies: investigations of the segregation and vaporization behaviour of complex melts in the system  $UO_2$ -Zry-steel- $O_2$ .
- c) Metallurgical examinations of molten rods: melting experiments performed in air.

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

4311 Radioactive Pollutants in the Post Accident Atmosphere of a LWR-Containment  
Description of Models of the Post Accident Atmosphere  
(G. Haury, H. Jordan, IASR)

Work Completed

Goal of the project is the development of a computer model for predicting the behaviour of radioactive aerosol in the post - accident atmosphere of LWR containments.

After identifying the relevant elementary aerosol processes and investigating their mathematical treatment, work has begun on the characterization and implementation of models that incorporate these processes and meet the following necessary requirements: (Because of the necessity to experimentally verify the individual, rather incisive simplifying assumptions, the model is to be achieved in four stages or models, which successively incorporate more assumptions and describe more complex systems).

- Each model is amenable to experimental simulation and verification of its simplifying assumptions.
- The four models are to be developed in order of increasing complexity, with the results of the previous model a prerequisite for the implementation of the following one.
- Each model is numerically solvable.
- The fourth or final model mirrors the actual post-accident LWR-containment atmosphere sufficiently closely to permit realistic calculations.

Characterization of the four models is complete in skeletal form. The final model describes a system that includes

- a defined initial degree of supersaturation
- a continuous source of water vapor
- no further particle source after the initial instant
- a continuous source of cold spray droplets of a given size distribution
- rapid homogeneous mixing of the system.

#### Essential Results

As a first step, the effect of water condensation on a log-normally distributed collection of particles was calculated with the aid of a computer program. The two cases of a continuous source and no source of water vapor were considered. Both cases clearly show the rapid establishment of a bimodal distribution, whose one mode is almost disperse and includes all particles with radius larger than the critical radius. These have grown through condensation. The other mode includes all particles with radius smaller than the critical radius. These remain untouched by condensation.

This effect, by virtue of the approximate monodispersion of the second mode and by virtue of its rapid stabilization, has been used to greatly simplify the initial conditions of the four proposed models.

#### Planning in the Near Future

In accordance with the model assumptions listed in section one above, work is to proceed on the mathematical formulation and numerical analysis of the four models, with emphasis on model 1.

4312 Theoretical and Experimental Investigations of the Atmospheric Dispersion of Radioactive Gases  
(W. Hübschmann, L.A. König, H. Schüttelkopf, ASS)

Work completed and essential results

The meteorological data measurement at the now completely instrumented 200 m high tower, the data registration and record have been continued during the report period. The complete data set of a more than 1 year period is now available to tape, comprising additionally to the profiles of the wind direction, wind velocity and the temperature, which have been recorded already before, also the solar radiation budget. Based on the favourable experience in the tower operation, a meteorological information system for a nuclear power plant has been proposed which determines - besides of the wind direction and velocity - the stability category in a reliable manner. With this information it is possible, to display on the screen of the power plant process computer an isodose chart for a short-term radioactivity emission from the stack.

The theoretical evaluations of meteorological data include the stability category determination according to five different schemes. The correlation examination determines quantitatively the reliability and accuracy of the different schemes. The site comparison in terms of atmospheric dispersion climatology has been extended to the sites of Lahr and Söllingen (Nato-airports).

5 diffusion experiments have been carried out during 1974. In two of these experiments two tracers have been emitted simultaneously: tritiated water and  $CF_2Br_2$ . The latter tracer has proven superior during three small-scale diffusion experiments which allowed the compare the tracer qualities of  $CCl_4$ ,  $CFCl_3$  and  $CF_2Br_2$ . The  $CF_2Br_2$  tracer has been emitted during three other full-scale diffusion experiments at the 60 m level of the meteorological tower.

The measurements of the  $\gamma$ -radiation from the Ar-41-plume of the FR2 using a highly sensitive Szintillation doseratemeter have been continued during stable weather categories. Measured and calculated values compared satisfactorily.

Planning for the near future

The diffusion experiments will be continued in the following years and will be extended to stable weather situations once automatic sampling stations are available. The development of the meteorological information system will be completed in 1975.

4400 CONFINEMENT AND ELIMINATION OF THE CONSEQUENCES OF INCIDENTS

4410 Isolation and Removal of Contamination

4411 Development of Decontamination Methods

1. Development of a Cleansing Paste for Decontamination

(S. Kunze, ABRA)

Work Completed

Based on prior experimental results a acid mixture containing 3 w/o hydrofluoric acid and 20 w/o nitric acid was selected as the aggresive chemical agent for the further development of a cleansing paste. Taking in account the aspects of the compatibility of the chemical constituents with the solidification procedures currently used in nuclear technology a large number of test pastes has been mixed out of a plastic powder, a carrier material resistant to hydrofluoric acid and different acids and acid mixtures respectively. These test pastes have been thermically stable up to 200°C.

Essential results

Compared with standard industrial etching pastes the pastes with hydrofluoric and nitric acid only show poor decontamination results. Pastes with a further addition of sulfuric acid show moderate decontamination results.

Significantly better decontamination results are obtained after adding some hydrochloric acid to the hydrofluoric-nitric-acid-type pastes. But in comparison to industrial etching paste only 25% of the hydrochloric acid content of the latter is necessary. This paste has been tested already in every day decontamination practice with good results. To obtain more detailed experience of the behavior of this paste on fabrication a cooperation contract was signed with a industrial company.

Planning for the near future

It is planned to continue these experiments under the aspects of improvement of the consistency of the paste on storing and of substitution of the hydrochloric acid which is inevitably necessary to get good decontamination results by other effective chemicals.

2. Decontamination of Metal Surfaces by Molten Salts

( D. Hentschel, ABRA)

Work Completed

The decontamination experiments described in the First Semiannual Report 1974 have been continued with a number of other salts and salt mixtures. Salt melts with a significant over all decontamination effectiveness had been tested in detail with respect to special nuclides by aid of a multichannel spectrometer. Regarding the decontamination of plutonium-contaminated metal surfaces some preliminary experiments have been carried out on uranium and thorium contaminated samples. To reduce the bulk of inactive salts diluted in radioactive decontamination liquids a procedure was selected to coat contaminated surfaces with salt melts in order to substitute the dipping technique.

Essential results

The experiments indicate, that molten alkaline chlorids, phosphate and alkaline type melts have a high decontamination effectiveness with respect to Co-60, Ru-136 and Ce-144. Good decontamination results obtained by molten sulfates are apparently confined to alkaline earth nuclides. In

addition these melts show a good decontamination effectiveness on uranium and thorium contaminated surfaces. By appropriate pretreatment of the non molten salts a coating procedure could be demonstrated with an acidic phosphate and alkaline melts.

Planning for the near future

With salt melts, which show a high decontamination effectiveness the experiments are continued and extended on

- other metallic surfaces than stainless steel and other nuclides
- samples, which had been contaminated during plant operation in nuclear facilities
- materials corrosion
- plutonium contaminated surfaces

A small facility will be installed to coat surfaces with thin layers of molten salts.

4412      Migration of Longlive Transuranium in the Soil and Geological Formations

Aspects of theoretical models on the migration of plutonium in the environment

---

(A. Jakubick, ABRA)

Work completed

The sources of Plutonium-pollution were studied in respect of Plutonium interaction with the environment. These are the main controlling factor of the migration of Plutonium in the nature. By means of a flow sheet the pathways of Plutonium in an ecosystem are presented. For the simulate the dynamic behavior of the nuclide in such a model, informations are required on the initial conditions of the system, transport mechanisms acting and transfer-coefficients.

Essential results

Data on the present stage of Plutonium-contamination of the bio-, hydro- and lithosphere are available; they were filed in a table. In first approximation the Plutonium-transport may be described by first grade kinetics. The matrix of the Plutonium transfer coefficients is formally constructed as well - a quantitative approach is not yet possible.

With respect to the radiation hazard the estimation of the residence time in each compartment of the ecosystem is needed. At last the discrimination factors between compartments connected by most important pathways were computed.

Planning for the near future

The work planned shall deal less with system-analytical approach to the Plutonium-pollution problem but more with the physical and chemical factors influencing its migration - like: resuspension, solubility in natural waters, transportation and accumulation in the lithosphere.

- 4420 Techniques of Clearing and Decommissioning  
4421 Development of Methods and Procedures for the Decommissioning and Final Disposal of Nuclear Facilities  
(W. Köhler, RBT)

Work completed, essential results

The program "decommissioning as a consequence of a major accident" was started. The main problems were

- Analysis of the consequence of major nuclear reactor accidents
- Decontamination and transport problems in connection with the removal of damaged reactor components
- Clearing of a reactor core damaged by an incident.

For the latter the necessary core data of German reactors have to be collected and reports about previous incidents evaluated.

Planning for the near future

The lifetime and number of nuclear power stations is increasing. In consequence there is already today a need for a facility in which activated heavy reactor components can be decontaminated, repaired or cut up for the waste storage. Therefore hot cell design and remote handling experience will be compiled and first proposes drawn up.

4422      Remotely Controlled Working Gear and Mobile Systems for  
                 Damage Assessment  
                 (W. Köhler, RBT)

The chassis of the light MF3 manipulator vehicle and the necessary electric control system have reached an advanced stage of construction.

Bids will soon be invited for the mission control system with multiplexers of whole MF3 unit and for simple equipment for damage assessment.

All major problems have been clarified in the course of the design phase of the light electric EMSM II Master-Slave manipulators intended for this service.

The prototype of the electric EMSM I Master-Slave manipulator has been equipped with some of the supplementary tools required for test missions.

The PNS Working Report No.32/74 "Possibilities of Using Remotely Controlled Mobile Vehicles in Nuclear Facilities", has recently been published which also contains recommendations about provisional construction measures which would allow the more effective use of such equipment.

Planning for the near future

The medium sized MF2 manipulator vehicle will incorporate some improvements and additional features as a result of the experience gathered and additional requirements imposed.

The prototype electric Master-Slave manipulator EMSM I will be tested after completion.

Specifications and other necessary data for the submission of the light electric Master-Slave manipulator EMSM II have to be prepared.

## 4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFAU ARBEITUNGSANLAGEN

### 4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitsanlagen

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

### 4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spalt- produkten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre

#### Versuchsziele

Zur schnellen Abscheidung von Spaltjod und radioaktiven Schwebstoffen aus der Atmosphäre von Reaktorsicherheitsbehältern können Störfall-Umluftfilter eingesetzt werden. Diese Filter sollten sowohl nach kleinen Betriebszwischenfällen mit relativ geringer Aktivitätsfreisetzung als auch nach großen Störfällen betrieben werden können. Die Betriebsbedingungen, denen Störfall-Umluftfilter im Sicherheitsbehälter leichtwassergekühlter Reaktoren ausgesetzt werden, zeichnen sich aus durch erhöhte Temperaturen der Sicherheitsbehälteratmosphäre, hohe Aktivitätskonzentration und Ortsdosisleistung sowie extreme Luftfeuchten bzw. starken Kondensatanfall. Die z. Z. laufenden Untersuchungen sind ausgerichtet auf die Abscheidung von Radiojod und Schwebstoffen aus einer Nachunfall-Atmosphäre im Reaktorsicherheitsbehälter mit einer Temperatur von  $\leq 157^{\circ}\text{C}$ , einem Druck von  $\leq 5,7$  ata, einer Ortsdosisleistung von ca.  $1 \cdot 10^7$  rad und einem Anfall an Kondensat in Form von Tropfen und Aerosolen in der Höhe von  $\leq 100 \text{ g/m}^3$ . Es sind Filter-Materialien und -Komponenten zu entwickeln, die diesen Anforderungen entsprechen. Durch Prüfung im Labor- und Prüfstandversuch ist ihre Funktionsfähigkeit nachzuweisen. Abscheidegrade  $\geq 95\%$  sollten sicher erreicht werden.

#### Stand der Untersuchungen

##### Jod-Sorptionsmaterialien, Aktivkohle

Aufgrund der hohen im Sorptionsmaterial zu erwartenden Temperaturen erwiesen sich die z. Z. verfügbaren Aktivkohlen wegen Desorption des abgeschiedenen Jodes und der Entzündungsgefahr als nicht geeignet.

### Anorganische Jod-Sorptionsmaterialien

Molekularsiebe in der Silberform, z. B. Linde 13 X Ag, zeigten in trockener Luft, selbst bei Temperaturen von  $600^{\circ}\text{C}$ , hohe Abscheidegrade. In Dampfatmosphäre wurde jedoch eine Zersetzung des Binders beobachtet; außerdem ist der Bedarf an Silber zur Herstellung des Sorptionsmaterials extrem hoch. Weitere Versuche mit diesem Material wurden vorläufig aufgegeben.

Das anorg. Jod-Sorptionsmaterial AC 6120 zeigte extrem hohe Abscheidegrade bei mittleren und hohen Temperaturen, jedoch setzt oberhalb von  $200^{\circ}\text{C}$  langsam eine Zersetzung der Imprägnierung ein. Dieser Vorgang beeinflußt die Abscheideleistung nur in geringem Maße, da bei derartig hohen Temperaturen auch die Endprodukte der Zersetzung mit ausreichender Geschwindigkeit mit Spaltjod und seinen Verbindungen zu festen, temperaturbeständigen Jodverbindungen reagieren. Schwierigkeiten können nur dann entstehen, wenn nach einer längeren Betriebsperiode bei hoher Temperatur ein weiterer Filterbetrieb bei dann niedrigen Temperaturen erforderlich ist. Dies ist bei Störfallfiltern für leichtwassergekühlte Reaktoren nicht zu erwarten, da eine wesentliche Temperaturanhebung im Sorptionsmaterial des Störfallfilters nur durch die Zerfallswärme der abgeschiedenen radioaktiven Stoffe hervorgerufen werden kann und eine Temperaturabsenkung dann vorwiegend durch das Abklingen der abgeschiedenen  $^{131}\text{J}$ -Aktivität ( $T_{1/2} = 8 \text{ d}$ ) bedingt ist. Zum Vergleich: Es wird angestrebt, die Atmosphäre des Reaktorsicherheitsbehälters mit einer Abscheidungskonstanten von  $\sim 0,5 \text{ h}^{-1}$  durch Störfall-Umluftfilter zu reinigen, so daß die Jodkonzentration in der Sicherheitsbehälteratmosphäre innerhalb von ca. 14 h auf 1% herabgesetzt wird.

Bei gasgekühlten Reaktoren kann unmittelbar nach dem Druckentlastungsstörfall eine starke Erwärmung der Atmosphäre im Reaktorgebäude mit einem Spitzenwert von ca.  $360^{\circ}\text{C}$  auftreten, jedoch werden nach 10 - 20 min bereits Temperaturen  $< 100^{\circ}\text{C}$  erreicht. Die unter HTR-Bedingungen bei einem Nachfahren des Temperaturverlaufes erreichten Abscheidegrade zeigten keine wesentliche Beeinflussung der Abscheideleistung infolge der hohen Anfangstemperaturen (KFK 2050, S. 75).

Bei der Zersetzung der Imprägnierung von AC 6120 bei hoher Temperatur wird NO<sub>2</sub> freigesetzt. Im Reaktorsicherheitsbehälter können dadurch geringe NO<sub>2</sub>-Gehalte (ppm-Bereich) auftreten, die als unbedenklich anzusehen sind.

Molekularsiebe und AC 6120 sollten nicht bei extrem hohen Luftfeuchten eingesetzt werden, da die Abscheideleistung dann stark nachläßt. Da es in diesem Zusammenhang auf die relative Luftfeuchte ankommt, dann durch Vorheizung der Filterzuluft eine ausreichende Absenkung der relativen Luftfeuchte erreicht werden.

Die Untersuchungen an verschiedenen Jod-Sorptionsmaterialien zur Abscheidung von Jod aus Feuchtluft bei Normaldruck sind abgeschlossen.

Das Desorptionsverhalten von Jod, das in AC 6120 abgeschieden wurde, wurde bei Temperaturen bis zu 300 °C gemessen. Versuche bis zur Zersetzungstemperatur der Jodverbindungen im Sorptionsmaterial sind vorgesehen. Die Versuche mit AC 6120 in Dampf-atmosphäre und Helium unter Druck werden nach einem Umbau der Dampfapparatur, der durch auftretende Leckagen notwendig war, im Jahre 1975 fortgesetzt. Im besonderen ist die Auslaugbarkeit der Imprägnierung durch Heißdampf zu untersuchen. Bestrahlungsuntersuchungen an AC 6120 wurden statisch bis zu einer Dosis von  $8,6 \cdot 10^8$  rad (KFK 1565) und dynamisch bis  $1,6 \cdot 10^8$  rad durchgeführt. Letztere sind in Zusammenarbeit mit Savannah River Plant durch einige Versuche mit einer Dosis von  $1 \cdot 10^9$  rad zu ergänzen, da in der BRD eine geeignete Anlage für derartige Untersuchungen nicht zur Verfügung steht und der Aufwand zu ihrer Errichtung nicht gerechtfertigt erscheint.

#### Schwebstoff-Filtermaterialien

Unterlagen zur Wirkung des kombinierten Einflusses von hoher Temperatur und Feuchte auf Schwebstoff-Filtermaterialien sind nicht erhältlich; ein Verfahren zur Filterprüfung unter diesen Bedingungen wird z.Z. im LFT ausgearbeitet (s. KFK 2050, S. 76 - 78 und den folgenden Bericht). Einige Ergebnisse von Bestrahlungsuntersuchungen können z.T. aus amerikanischen Arbeiten entnommen werden. Zur Zeit sind eigene Bestrahlungsuntersuchungen nicht

vorgesehen, da eine Vorauswahl von Fasermatten erst aufgrund der oben angesprochenen Untersuchungen erfolgen kann.

#### Prüfung von Einzelkomponenten im technischen Filterprüfstand unter simulierten GaU-Bedingungen

Untersuchungen an Tropfenabscheidern sind angelaufen. Anschließend werden weitere Einzelkomponenten wie z.B. Jod-Sorptionsbetten und ganze Filterstrecken aus Tropfenabscheider, Nacherhitzer, Schwebstofffilter und Jod-Sorptionsbetten unter simulierten GaU-Bedingungen geprüft.

#### Prüfung von Prototyp-Jod-Sorptionsfiltern im technischen Filterprüfstand

Die Untersuchungen wurden begonnen. Zur Zeit wird das Verhalten des Prototypfilters bei hoher Feuchte und Temperatur unter Normaldruck untersucht. Versuche bei gleichzeitiger Einwirkung von Druck, Feuchte und Temperatur sind erst nach Fertigstellung des LFT-Erweiterungsbaues und des darin aufzustellenden Drucktanks, in den Prototypfilter eingesetzt werden können, möglich.

#### Arbeiten im Berichtszeitraum

##### Untersuchungen am technischen Filterprüfstand

(H.-G. Dillmann, H. Pasler)

##### Tropfenabscheider

Einschlägige Untersuchungen mit Hilfe des technischen Prüfstandes sind angelaufen. Erste Versuche mit einem Fangrillenabscheider des gleichen Types, der im nachfolgend genannten Prototypfilter eingesetzt ist, ergab für Tropfendurchmesser um 60  $\mu\text{m}$  einen Abscheidegrad von 99,8 % bei einer Beaufschlagung mit einer Massenkonzentration der Tropfen in der Zuluft von 50  $\text{g}/\text{m}^3$  und dem auslegungsgemäß vorgesehenen Durchsatz von 2000  $\text{m}^3/\text{h}$ .

##### Prototypfilter

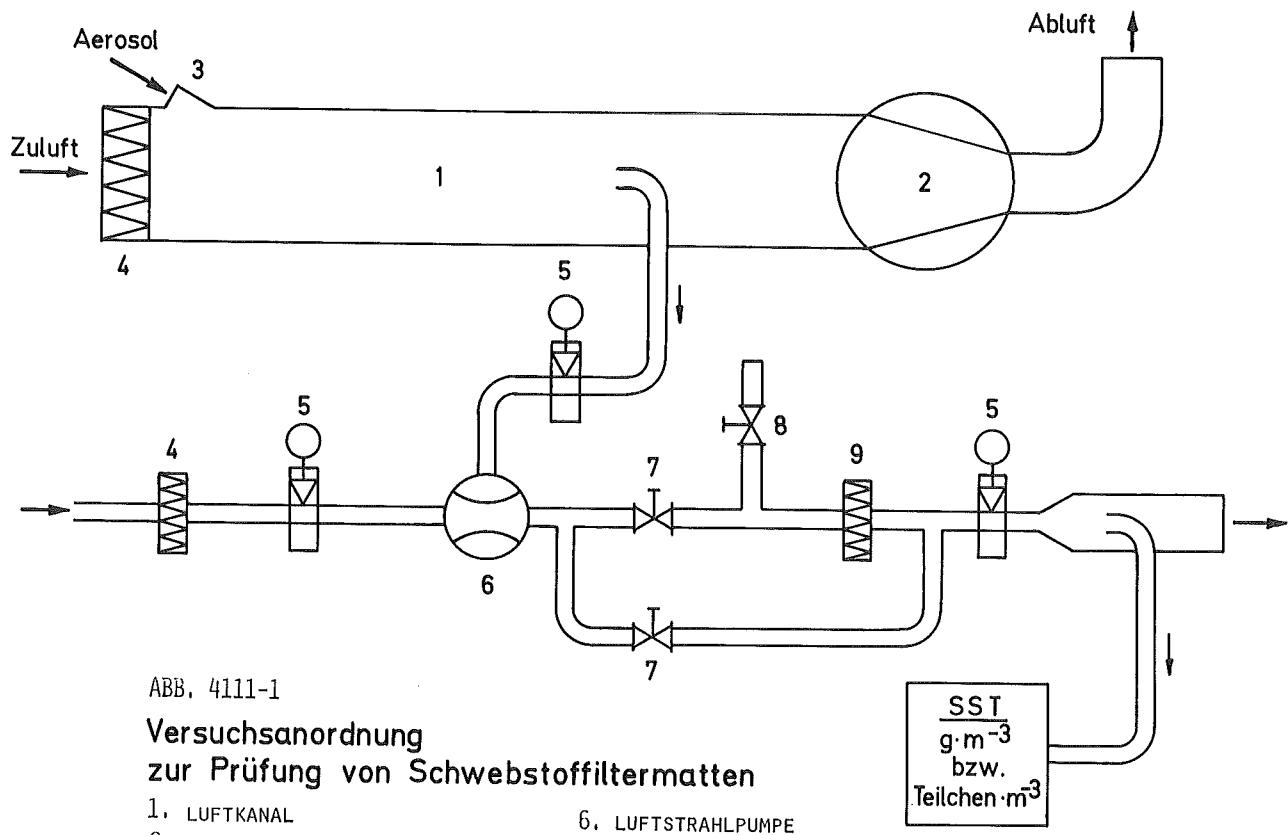
Ein Prototyp-Jod-Sorptionsfilter für Störfall-Bedingungen, das mit AC 6120 als Sorptionsmaterial ausgerüstet ist, wurde am technischen Filterprüfstand betrieben. Als erstes wurde die Aerosolentwicklung durch Abrieb der Imprägnierung des Jod-Sorptionsmaterials beim Befüllen untersucht. Diese Untersuchungen sind wichtig, da ein wesentlicher Abrieb der Imprägnierung eine reinluftseitige Schwebstoff-Filterung erfordern

würde, die bei der Auslegung für die genannten Betriebsbedingungen von Störfall-Umluftfiltern einen großen Aufwand bedingt. Zur Messung der Aerosolentwicklung wurde unmittelbar über dem jeweiligen Füllniveau mit einer Sonde Luft abgezogen und durch ein Aerosolfilter geleitet, das anschließend mit verdünnter  $\text{HNO}_3$  extrahiert und auf  $\text{Ag}^+$  untersucht wurde. Die Aerosolentwicklung bei der angewandten Füllmethode (Zugabe des AC 6120 über Füllrohr) war so gering, daß die Nachweisgrenze des Ag-Nachweises ( $1 \text{ mg/m}^3$  Sondenluft) nicht erreicht wurde. Anschließend wurde das frisch mit Sorptionsmaterial gefüllte Prototypfilter 3 Stunden mit vollem Durchsatz ( $1200 \text{ m}^3/\text{h}$ ) betrieben, die Filterabluft wurde durch ein Schwebstofffilter der Klasse S geleitet. Die Filterzelle wurde zerlegt und Proben der Fasermatte auf  $\text{Ag}^+$  untersucht. Mit naßchemischen Methoden war kein Silber nachzuweisen (Nachweisgrenze  $60 \mu\text{g Ag}^+/\text{m}^3$  Abluft), Aktivierungsanalysen werden z. Z. noch durchgeführt. Anschließend wurde, nach dem Einbau einer zusätzlichen Schikane in den Filterdeckel zur Verhinderung von Randleckagen, ein erster Abscheidungsversuch mit radioaktiv markiertem Methyljodid durchgeführt. Bei Standardbedingungen (70 % r. F. und  $30^\circ\text{C}$ ) wurde bei einem Durchsatz von  $1200 \text{ m}^3/\text{h}$  ein Abscheidegrad von 99,8 % gemessen. Dieser Wert entspricht dem bereits früher für AC 6120 mit gleich hoher Imprägnierung im Laborversuch gemessenen Wert. Eine Erhöhung der Durchlässigkeit durch Randleckage und Separation verschiedener Korngrößen bei Einfüllen des Materials war beim Prototypfilter nicht zu beobachten. Das weitere Prüfprogramm für das Prototypfilter sieht Messungen der Abscheideleistung in Heißdampf bei Atmosphärendruck vor.

Prüfung von Schwebstofffiltern mit Aerosolen, die durch Flammenverdampfung erzeugt werden (A. Weinert)

Für die Prüfung von Schwebstofffiltern unter simulierten GaU-Bedingungen wird ein Verfahren entwickelt, mit dem geeignete Prüfaerosole erzeugt werden können. Das dafür eingesetzte Flammenverdampfungsverfahren liefert jetzt mit  $\text{NaCl}$  unter Normalbedingungen reproduzierbare Werte. Die Anpassung des Verfahrens für Messungen bei hoher Temperatur, Feuchte und hohem Druck ist in Arbeit.

Zur Prüfung von Schwebstofffiltermaterialien unter Normalbedingungen wurde der in Abb. 4111-1 dargestellte Versuchsaufbau benutzt.



Es wird ein Teilstrom des durch Flammenverdampfung erzeugten Aerosols abgezweigt und zur Beaufschlagung des Testfilters verwendet. Zur Probenahme und Weiterförderung der Aerosole wird eine Strahlpumpe eingesetzt, die keine beweglichen Teile hat und damit die Partikel wenig beeinflußt. Die bisherigen Versuche wurden mit einer normalen Wasserstrahlpumpe durchgeführt, die mit Preßluft betrieben wurde. Es ergab sich ein ungünstiges Verhältnis zwischen Treibluft und Probenluft, das zu einer Aerosolverdünnung von 1 : 4 bis 1 : 7 führte. (In Zukunft soll eine den Versuchsbedingungen besser angepaßte spezielle Luftstrahlpumpe verwendet werden, die etwa im Verhältnis 1 : 1 fördert).

Die zum Betrieb der Pumpe notwendige Luftmenge wird über ein Vorfilter und ein Schwebstofffilter Klasse S gereinigt und an einem Durchflußmesser angezeigt. Das aus dem Kanal angesaugte Aerosol-Luftvolumen strömt nach Mischung mit der Pumpentreibluft ins Freie. Davor wird durch den Szintillations-Teilchenzähler (SST) Probenluft abgezogen. Wurde der Aerosolstrom über das Testfilter geleitet, entspricht dies einer Reinluftprobe, im anderen Fall einer Rohluftkonzentrationsmessung.

Zum Betrieb der Strahlpumpe ist eine bestimmte Mindestmenge an Preßluft erforderlich. Überschüssiges Aerosol-Luftgemisch wird über ein Ventil abblasen. Dadurch lassen sich unterschiedliche Beaufschlagungsgeschwindigkeiten am Filter einstellen.

Mit der in Abb. 4111-1 wiedergegebenen Apparatur wurde eine Probe der Fasermatte aus dem Prototyp-Störfall-Umluftfilter auf ihren Abscheidegrad für flammenverdampfte NaCl-Aerosole untersucht. Versuchsbedingungen waren Raumtemperatur und Normaldruck. Die Filterprobe wurde mit der Luftgeschwindigkeit des Prototypfilters von  $22,5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  beaufschlagt. Dabei ergab sich ein mittlerer Abscheidegrad der Fasermatte von 42 %, entsprechend einem Durchlaßgrad von 58 %. Bei diesem Versuch lag die Teilchengröße zwischen 0,05 und 0,2  $\mu\text{m}$ .

In einem weiteren Versuch wurde die Filterprobe mit unverdampftem, jedoch sehr feinkörnigem NaCl-Pulver mit Teilchengrößen von 0,2 bis 0,8  $\mu\text{m}$  beaufschlagt. Bei dieser Messung wurde ein Abscheidegrad von 68 % festgestellt. Die Fasermatte entsprach nicht den gestellten Anforderungen (max. Durchlaßgrad 5 %). Von der Industrie zur Verfügung gestellte Daten ließen weitaus höhere Abscheidegrade erwarten. Die Auswahl erfolgte u. a. wegen der günstigen Werte für den Druckabfall, die eine Anordnung im Kessel eines Ringschicht-Jod-Sorptionsfilters mit minimalen Dichtwegen und geringem konstruktiven Aufwand zulassen würde. Andere Fasermatten sind zu erproben.

Bei der Teilchenzählung mit dem SST ist durch die notwendige Verweilzeit der Teilchen in der Flamme eine obere Konzentrationsgrenze gegeben. Treten hohe Massenkonzentrationen sehr kleiner Aerosolpartikel auf, dann übersteigt die Teilchenzahl die zulässige obere Grenze des Gerätes. Auch die interne Verdünnungs-

einrichtung (bis ca. 10 : 1) reicht nicht aus. Zur Lösung dieser Schwierigkeiten wurde eine externe Verdünnungseinrichtung konstruiert, die sich z. Z. im Bau befindet. Sie ermöglicht die Teilchengrößenanalyse der vom Generator erzeugten NaCl-Aerosole.

Die bisher durchgeführten Experimente zeigten, daß die mit der im LFT verwendeten Methode des Flammenverdampfungsverfahrens erzeugten NaCl-Aerosole für Abscheideuntersuchungen an Schwebstofffiltern geeignet sind. Die Arbeiten zur Anwendung des Verfahrens unter hohem Druck, Temperatur und Gasfeuchte sind an- gelaufen. Die Entscheidung für ein bestimmtes Konzept (externe oder interne Aerosolerzeugung in der Teststrecke) soll Anfang 1975 fallen.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

(J. Furrer, R. Kaempffer)

#### Abscheidungsversuche unter GWA-Bedingungen

Nachdem im 1. Halbjahr 1974 erstmals verschiedene der zur Auslegung der GWA-Jodfilteranlage (GWA: Große Wiederaufarbeitungsanlage, Durchsatz 1500 jato) notwendigen Daten zur Verfügung standen, wurde das Filterkonzept und die Auslegung des Sorptionsteiles der GWA-Jodfilter festgelegt.

Es zeigte sich, daß eine möglichst hohe Imprägnierung und Ausnutzung des einzusetzenden Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 vorausgesetzt werden muß, um ausreichende Filterstandzeiten und geringen Raumbedarf für das verbrauchte Jod-Sorptionsmaterial im Endlager zu erreichen. Aufgrund der speziellen Anforderungen an die GWA-Jodfilteranlage wurde auf der Basis bereits früher durchgeföhrter Untersuchungen (KFK 1365, S. 114), die u. a. ein Ansteigen der Abscheideleistung mit steigender Imprägnierung des Basismaterials zeigten, der Anteil der Imprägnierung des AC 6120 neu festgelegt. Das hochimprägnierte Material wird im folgenden Text als AC 6120/H<sub>1</sub> bezeichnet.

Durch Versuche, die im 2. Halbjahr 1974 aufgenommen wurden, ist nachzuweisen, daß die Imprägnierung des AC 6120/H<sub>1</sub> durch die vorgesehene Betriebsweise des 2stufigen Filters genügend ausgenützt werden kann und die geforderten Abscheidegrade erreicht werden.

#### Versuchsdurchführung

Als kontinuierlich betreibbares Darstellungsverfahren für große Mengen an elementarem, radioaktiv markiertem Jod erwies sich die Methode nach Duflos in abgeänderter Form am geeignetsten. Sie beruht auf der Oxidation von Jodionen mit Eisen III-Sulfat in schwefelsaurer Lösung. Ein Jod-Generator, mit dem nach dieser Methode größere Mengen an gasförmigem elementarem Jod hergestellt werden können und der die Einstellung der gewünschten Jodkonzentration in der Zuluft durch kontinuierliche Betriebsweise erlaubt, wurde entwickelt.

Filterbetten mit der für die GWA vorgesehenen Bett-Tiefe wurden mit einer Menge an radioaktiv markiertem elementaren Jod beaufschlagt, die annähernd der stöchiometrischen Menge zur Umsetzung der Ag-Imprägnierung der Hälfte des eingesetzten AC 6120/H<sub>1</sub> entsprach. Dadurch konnte zur Bestimmung der Beladekapazität ein Teil des Sorptionsmaterials erschöpfend beladen und gleichzeitig zur Bestimmung des Abscheidegrades der Verlauf des Abscheidungsprofiles im restlichen Testbett gemessen werden.

#### Versuchsbedingungen

Jod-Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub>, Korndurchmesser: 1 - 2 mm, Imprägnierung des Sorptionsmaterials und Tiefe der Testbetten wie für GWA vorgesehen.

Trägergas: Feuchtluft, Taupunkt 30°C, Temperatur 120 bzw. 150°C, NO<sub>2</sub>-Gehalt 2,5 bzw. 5 %. Lineare Luftgeschwindigkeit und Verweilzeit wie für GWA vorgesehen.

#### Versuchsergebnisse

Die einzelnen Versuchsergebnisse sind in den Tab. 4112/1-5 und der Abb. 4112-1 wiedergegeben.

Bei erschöpfender Beladung des AC 6120/H<sub>1</sub> (s. Kapazitätsausnutzung der ersten Einzelbetten) wurde eine Jodrückhaltung entsprechend einer Umsetzung von > 90 % des Ag<sup>+</sup> der Imprägnierung erreicht. Trotz der Umsetzung eines wesentlichen Anteiles der Imprägnierung wurden für eine Bett-Tiefe, die einer GWA-Filterstufe entspricht, Abscheidegrade > 99,99 % gemessen. Die unterschiedlichen Testbett-Temperaturen und NO<sub>2</sub>-Gehalte des Trägergases zeigten keinen erkennbaren Einfluß.

Tab. 4112-1 Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, Versuch-Nr. 1

Versuchsbedingungen:

Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub>, 1 - 2 mm Kugeldurchmesser, Imprägnierung gemäß GWA-Bedingungen  
 Trägergas : Luft + 2,5 % NO<sub>2</sub>, Taupunkt-Temperatur: 30°C, Testbett-Temperatur: 120°C  
 Vorströmzeit : 20 h, Beaufschlagung: 7 h, Nachströmzeit: 12 h  
 Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 1,96 mCi <sup>131</sup>J<sub>2</sub>

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	11,2	2027	1. Bett	2027	1723	92,3
13,1	22,7	4116	2. "	2089	1776	95,2
19,7	34,1	6174	3. "	2058	1749	93,7
26,3	45,4	8223	4. "	2049	1742	93,4
32,9	56,5	10228	5. "	2005	1704	91,3
39,5	66,9	12105	6. "	1877	1595	85,5
46,0	76,6	13861	7. "	1756	1493	80,0
52,6	84,9	15367	8. "	1506	1280	68,6
59,2	91,5	16571	9. "	1204	1023	54,8
65,8	96,3	17423	10. "	852	724	38,8
72,3	98,90	17903	11. "	480	408	21,9
78,9	99,90	18078	12. "	175	149	8,0
85,5	99,9991	18096	13. "	18	15	0,8
92,1	99,9997	18098	14. "	2	2	0,1
100,0	99,9999	18099	15. "	1	1	-

Tab. 4112-2 Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, Versuch-Nr. 2

Versuchsbedingungen:

Sorptionsmaterial: s. Tab. 4112-1  
 Trägergas : Luft + 5 % NO<sub>2</sub>, Taupunkt-Temperatur: 30°C, Testbett-Temperatur: 120°C  
 Vorströmzeit : 20 h, Beaufschlagung: 5 h, Nachströmzeit: 4 h  
 Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 1,04 mCi <sup>131</sup>J<sub>2</sub>

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	10,5	1902	1. Bett	1902	1617	91,4
13,1	20,6	3724	2. "	1822	1549	87,5
19,7	30,5	5516	3. "	1792	1523	86,0
26,3	40,0	7225	4. "	1709	1453	82,1
32,9	49,1	8888	5. "	1663	1414	80,0
39,5	57,8	10466	6. "	1578	1341	75,8
46,0	66,0	11946	7. "	1480	1258	71,1
52,6	74,1	13403	8. "	1457	1238	69,9
59,2	81,5	14746	9. "	1343	1142	64,5
65,8	88,4	16002	10. "	1256	1068	60,3
72,3	94,0	17012	11. "	1010	850	48,5
78,9	97,8	17694	12. "	682	580	32,8
85,5	99,6	18014	13. "	320	272	15,4
92,1	99,9936	18090	14. "	76	65	3,7
100,0	99,9998	18092	15. "	2	2	0,1

Tab. 4112-3 Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, Versuch-Nr. 3

Versuchsbedingungen:

Sorptionsmaterial: s. Tab. 4112-1

Trägergas : Luft + 2,5 % NO<sub>2</sub>, Taupunkt-Temperatur: 30°C, Testbett-Temperatur: 150°C

Vorströmzeit : 20 h, Beaufschlagung: 5 h, Nachströmzeit: 12 h

Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 0,55 mCi <sup>131</sup>J<sub>2</sub>

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	11,4	2069	1. Bett	2069	1759	94,3
13,1	22,5	4080	2. "	2011	1709	91,6
19,7	33,4	6049	3. "	1969	1674	89,7
26,3	44,0	7969	4. "	1920	1632	87,5
32,9	54,1	9786	5. "	1817	1544	82,7
39,5	63,5	11487	6. "	1701	1446	77,5
46,0	72,3	13085	7. "	1598	1358	72,8
52,6	80,1	14487	8. "	1402	1192	63,9
59,2	86,8	15709	9. "	1222	1039	55,7
65,8	92,2	16683	10. "	974	828	44,4
72,3	96,0	17365	11. "	682	580	31,1
78,9	98,3	17781	12. "	416	354	19,0
85,5	99,5	18002	13. "	221	188	10,1
92,1	99,903	18076	14. "	74	63	3,4
100,0	99,9987	18092	15. "	16	14	0,8

Tab. 4112-4 Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, Versuch-Nr. 4

Versuchsbedingungen:

Sorptionsmaterial: s. Tab. 4112-1

Trägergas : Luft + 5 % NO<sub>2</sub>, Taupunkt-Temperatur: 30°C, Testbett-Temperatur: 150°C

Vorströmzeit : 20 h, Beaufschlagung: 5 h, Nachströmzeit: 4 h

Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 1 mCi <sup>131</sup>J<sub>2</sub>

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	10,9	1964	1. Bett	1964	1669	94,2
13,1	21,8	3944	2. "	1980	1683	95,0
19,7	32,7	5917	3. "	1973	1677	94,6
26,3	43,4	7852	4. "	1935	1645	92,8
32,9	54,1	9789	5. "	1937	1646	92,9
39,5	64,7	11718	6. "	1929	1640	92,5
46,0	75,2	13611	7. "	1893	1609	90,8
52,6	85,2	15426	8. "	1815	1543	87,1
59,2	91,2	16505	9. "	1079	917	51,7
65,8	95,5	17281	10. "	776	660	32,2
72,3	98,3	17790	11. "	509	433	24,4
78,9	99,7	18040	12. "	250	213	12,0
85,5	99,9901	18096	13. "	56	48	2,7
92,1	99,9990	18098	14. "	2	2	0,1
100,0	99,9997	18099	15. "	1	1	-

Tab. 4112-5 Dekontaminationsfaktoren von AC 6120/H<sub>1</sub>, Testbetten;  
Hochbeladungsversuche mit radioaktiv markiertem elementarem Jod

Testbett-Temperatur [°C]	NO <sub>2</sub> -Gehalt in Zuluft [Vol.-%]	Testbett-Tiefe (in % der Bett-Tiefe einer GWA-Filterstufe)				
		20	40	60	80	100
120	2,5	1,51	3,02	11,8	949	1030000
	5,0	1,43	2,37	5,40	45,4	990000
150	2,5	1,49	2,66	13,0	1755	676000
	2,5	1,50	2,73	7,58	57,8	77300
	5,0	1,48	2,83	11,3	316	340000

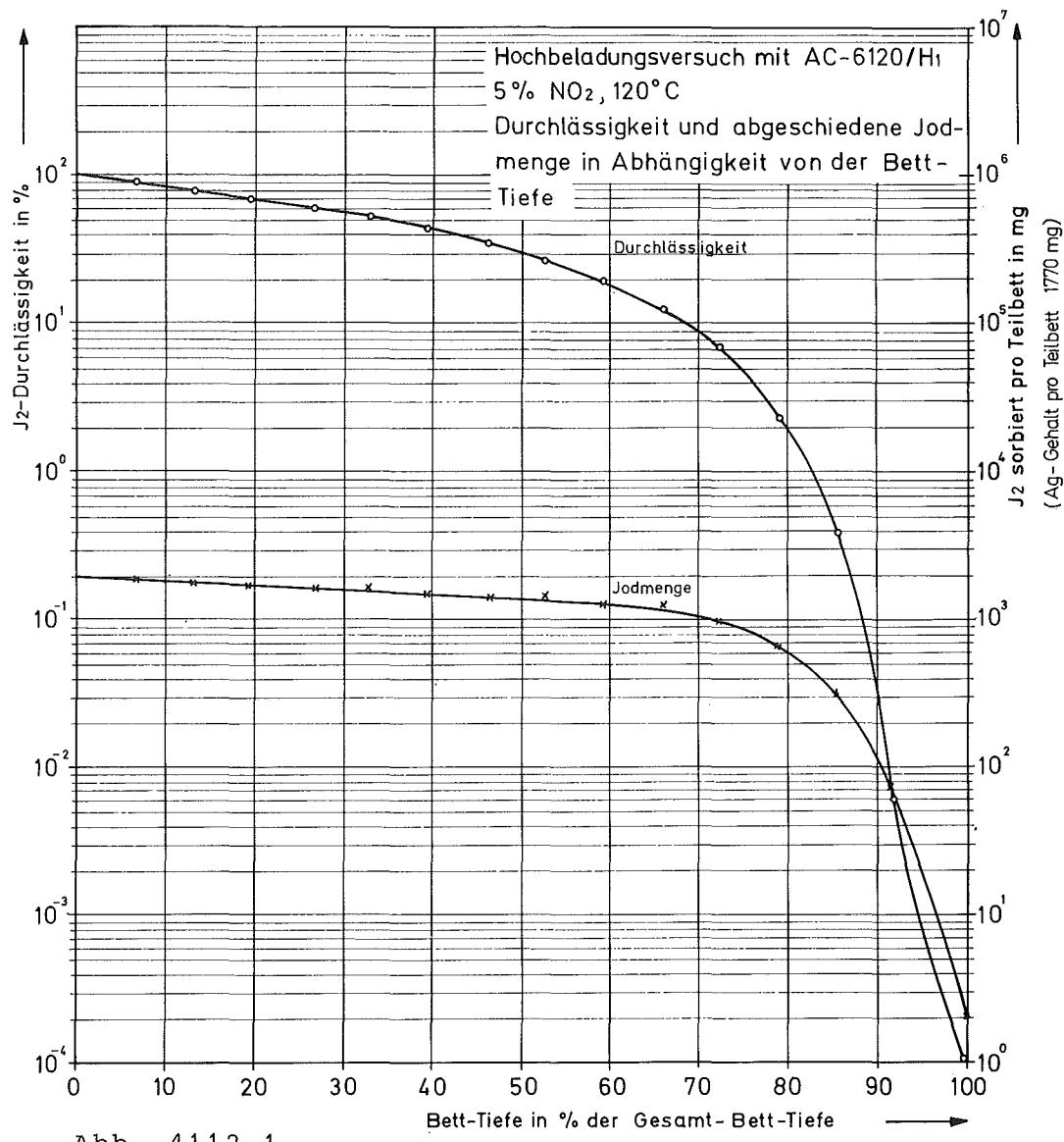


Abb. 4112-1

Die erreichten Abscheidegrade, die in den Tabellen für 100 % Bett-Tiefe angegeben sind, liegen über den für GWA geforderten Werten. Sie dürften annähernd den Abscheidegraden entsprechen, die beim Filterbetrieb in der GWA und erschöpfender Beladung der ersten von insgesamt zwei aufeinanderfolgenden Filterstufen gegenüber elementarem Jod durch die zweite Filterstufe erreicht werden. Dabei ist zu beachten, daß im praktischen Filterbetrieb das Sorptionsmaterial aus der 2. Filterstufe bereits vor Erreichung des hier vorliegenden Beladungszustandes in die erste Filterstufe überführt werden kann, so daß insgesamt mehr unverbrauchtes Sorptionsmaterial zur Abscheidung zur Verfügung steht.

Die Abb. 4112-1 zeigt den Verlauf des Abscheidungsprofiles in einem typischen Hochbeladungsversuch, dargestellt durch die pro Teilbett abgeschiedene Jodmenge bzw. durch den Abscheidegrad in Abhängigkeit von der Bett-Tiefe.

#### Versuche zur Jod-Freisetzung aus salpetersauren Lösungen

Für den Erfolg einer "head end"-Jodabscheidung ist es entscheidend, daß das im Auflöser anfallende Jod möglichst quantitativ in das Abgas des Auflösers überführt werden kann. Die wenigen bisher vorliegenden Daten lassen keine diesbezüglichen Schlüsse zu. Es wurden daher zur Bestimmung der Freisetzung von Jod aus salpetersauren Lösungen des Auflösekessels bzw. der Jod-Desorptionskolonne einer Wiederaufarbeitungsanlage einige Vorversuche durchgeführt. Die Simulation rezyklierter Säure erfolgte durch Zugabe von Tributylphosphat (TBP) zur konzentrierten Salpetersäure. Die Untersuchungen wurden mit geträcertem  $^{127}\text{J}$  vorgenommen; als Tracer diente  $^{131}\text{J}$ . Zur Erweiterung der Kenntnisse zur Jodaustreibung aus salpetersauren Lösungen wurden Uranylnitratlösungen von 300 g Uran (VI)-Oxid in 1 l 3 M- bzw. 4 M Salpetersäure hergestellt und die Jodfreisetzung aus diesen Lösungen gemessen. Entsprechend einem mittleren Abbrand von ca. 32.000 MWd/t U wurden auf 300 g  $\text{UO}_3$  81 mg Jod in Lösung angesetzt.

### Versuchsdurchführung

Der heißen, mit TBP versetzten Salpetersäure bzw. der salpetersauren Lösung von Uranylnitrat wurde eine konzentrierte Lösung von  $K^{127}J$  getracert mit  $^{131}J$  über einen Tropftrichter zugegeben. Die Lösung wurde zur Vermeidung von Siedeverzügen ge- rührt und auf etwa  $105 - 110^{\circ}C$  erhitzt. Das freigesetzte Jod wurde unter Überleiten von  $40 - 50$  l/h Luft über die Flüssigkeitsoberfläche aus dem Auflösekolben ausgetrieben und auf einem Jodfilter aus dem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H<sub>1</sub> abgeschieden.

Die Gaszuführungsstrecke zwischen Auflösekolben und Jod- Sorptionsfilter wurde mit geregelten Heizbändern bei  $120^{\circ}C$  gehalten. Ein ebenfalls beheiztes Aerosolfilter soll aerosolgetragenes Jod abscheiden. Die Temperatur im Jod-Sorptionsfilter betrug  $150^{\circ}C$ . Etwa 10 % der salpetersauren Ausgangslösung wurde bei allen Versuchen überdestilliert.

### Auswertung

Die Bestimmung der Jodfreisetzung aus den Lösungen erfolgt durch Messung der  $^{131}J$ -Aktivität der Lösung, des Jod-Sorptionsmaterials sowie aller benutzten Apparateteile.

Die bisher durchgeführten Versuche zeigen insgesamt eine hohe Jodfreisetzung aus der Lösung. Offensichtlich spielt die Molarität der  $HNO_3$  eine gewisse Rolle; der Einfluß von Jodkonzentration, Molarität, TBP-Gehalt und U-Gehalt sollte systematisch bei konstanter Siederate und Siedezeit untersucht werden.

Tab. 4112-6 Jod-Freisetzung aus salpetersauren Lösungen

Molarität HNO <sub>3</sub>	Volumen HNO <sub>3</sub> [l]	gelöstes Jod-127 [mg]	eingesetzte J-131-Akti- vität [mCi]	TBP [mg]	UO <sub>3</sub> [g]	%-Anteil der J-Rückhaltung in Lösung
3 M	1	81	0,52	100	-	0,53
3 M	1	81	0,5	100	300	2,96
3 M	1	81	0,2	100	300	3,1
4 M	1	162	0,2	200	300	0,22
4 M	1	162	0,2	200	300	0,28

Versuche in den Original-Abgasen von Wiederaufarbeitungsanlagen

Wegen des Stillstandes der WAK und starker Kontamination des Aufstellungsraumes des LFT-Teststandes konnten im Berichtszeitraum keine einschlägigen Untersuchungen vorgenommen werden. Für zukünftige Untersuchungen im Abgasstrom des Auflösers der WA Marcoule wurde eine bis 160°C betreibbare  $\alpha$ -glove box spezifiziert. Die Herstellung wurde an eine Industriefirma vergeben.

Jodfilteranlage für WAK

In Zusammenarbeit mit der RBT wurde das Konzept der technischen Ausführung der Jodfilteranlage für die WAK erarbeitet. Es handelt sich um eine Betriebsanlage an der zusätzliche Erfahrungen zum Bau und Betrieb von Jodfilteranlagen an großen Wiederaufarbeitungsanlagen gewonnen werden sollen.

## Umsetzung von Jod-substituierten organischen Kohlenwasserstoffen mit dem anorg. Jod-Sorptionsmaterial AC 6120

Um die Untersuchungen des Reaktionsverhaltens von organischen Jodverbindungen mit der Silbernitratimprägnierung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 abzuschließen, wurden neben primären (KFK 1973, S. 93), sekundären und tertiären Alkyljodiden (KFK 2050, S. 80), alicyclische und aromatische (Kern- und Seitenketten substituiert) Jodverbindungen eingesetzt.

### Versuchsdurchführung

Die Versuchsbedingungen der Umsetzung sind im KFK 1973, S. 93, ausführlich erläutert. Die Identifikation der Umsetzungsprodukte erfolgte durch gaschromatographische Trennung und ggf. zusätzlich durch IR-spektrophotometrische Analyse.

Im Gegensatz zu den vorangegangenen Untersuchungen, bei denen in der gaschromatographischen Analyse als Trennsäule Chromosorb G AW-DMCS (80 - 100 mesh) mit einer Beladung von 2,5 Gew.% Di-n-decylphthalat als stationäre Phase benutzt wurde, fand für alicyclische und aromatische Jodverbindungen eine Trennsäule von 2,5 % Carbowax 20 M - Terephthalic Acid Terminated - auf Chromosorb G AW-DMCS (80 - 100 mesh) Verwendung. Die optimale gaschromatographische Trennung erforderte ein Temperaturprogramm von 70 - 150°C.

### Ergebnisse:

1. Als Modellsubstanz einer alicyclischen Jodverbindung wurde Jodcyclohexan zur Umsetzung mit AC 6120 eingesetzt. (Darstellung des Jodcyclohexans nach: Organikum, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1963, S. 160).

Jodcyclohexan setzt sich mit  $\text{AgNO}_3$  vollständig zu Cyclohexen,  $\text{AgJ}$  und  $\text{HNO}_3$  um



(Versuchsbedingungen: Bett-Tiefe: 2,5 cm; Verweilzeit: 0,1 s; Konzentration an  $\text{C}_6\text{H}_{11}\text{J}$ :  $1,0 \cdot 10^{-5}$  Mol/l Luft).

2. Jodbenzol wurde als Modellsubstanz einer kernsubstituierten aromatischen Ringverbindung benutzt. Eine Umsetzung des Jodbenzols mit AC 6120 konnte nicht beobachtet werden. (Versuchsbedingungen: Bett-Tiefe: 2,5 cm; Verweilzeit: 0,1 s; Konzentration an  $C_6H_5J$ :  $1,6 \cdot 10^{-5}$  Mol/l Luft).

3. Benzyljodid (Darstellung nach A. Wohl u. C. Oesterlin Chem. Berichte 33 (1900), S. 2739) diente als Modellsubstanz für eine Seitenketten substituierte aromatische Ringverbindung. Bei der vollständigen Umsetzung mit AC 6120 wurde gaschromatographisch sowie IR-spektrophotometrisch Benzylnitrat nachgewiesen



(Versuchsbedingungen: Bett-Tiefe: 2,5 cm; Verweilzeit: 0,1 s; Konzentration an  $C_6H_5-CH_2J$ :  $1,0 \cdot 10^{-5}$  Mol/l Luft).

In Abb. 4112-2 ist das Chromatogramm eines Gemisches von gleichen Volumenanteilen Jodbenzol, Benzyljodid und Jodcyclohexan in  $CCl_4$  wiedergegeben.

Die Abb. 4112-3 zeigt das gleiche Gemisch nach Durchgang durch ein 1 cm tiefes Bett von AC 6120 bei  $150^{\circ}C$ , wobei ein großer Überschuß der Jodide zum Silbergehalt der Imprägnierung eingestellt wurde. Die innerhalb der vorgegebenen geringen Bett-Tiefe des Sorptionsmaterials abgelaufene Reaktion ist aus den Veränderungen der Peakhöhen beim Vergleich von Abb. 4112-2 und Abb. 4112-3 zu erkennen. Außerdem sind die Umsetzungsprodukte Cyclohexen und Benzylnitrat identifiziert.

#### Zusammenfassung:

Aufgrund der bisherigen Untersuchungen zur Abscheidung von organischen Jodverbindungen dürften keine Schwierigkeiten bei der Jod-Filterung mit dem anorganischen Sorptionsmaterial AC 6120 in den Abgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage auftreten. Jod-Cyclohexan reagiert mit der  $AgNO_3$ -Imprägnierung wie ein geradkettiges sekundäres Alkyljodid unter Bildung von Cyclohexen. Benzyljodid als Vertreter von Seitenketten-substituierten aromatischen Jodiden reagiert mit  $AgNO_3$  entsprechend den primären Alkyljodiden zu Benzylnitrat.

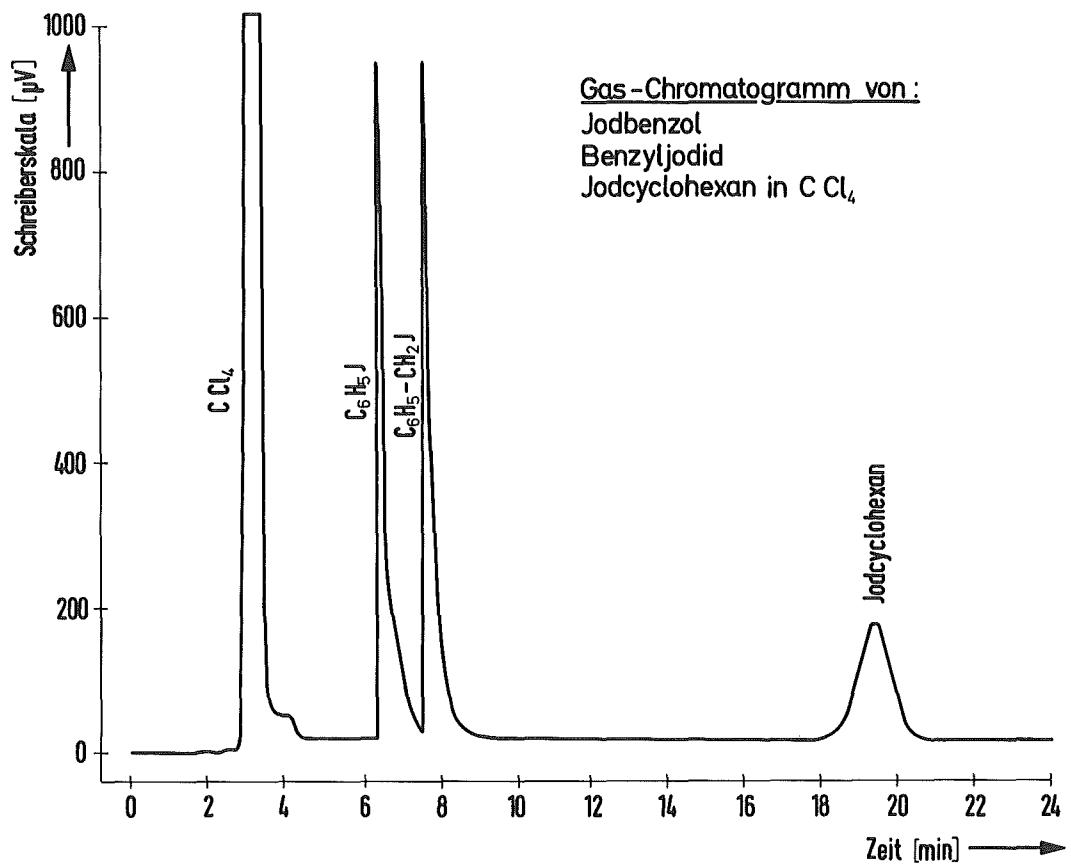


Abb. 4112-2

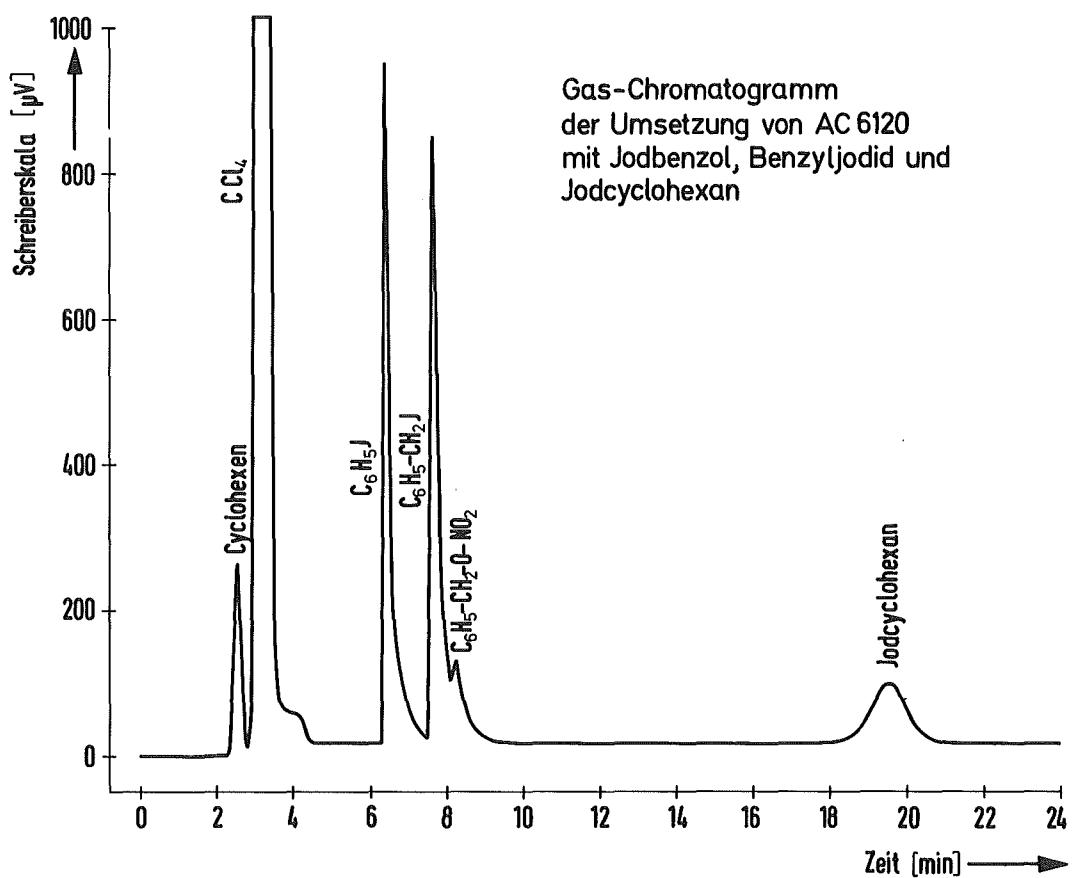


Abb. 4112-3

Jod-Benzol reagiert auch bei Temperaturen bis 180 °C nicht mit der  $\text{AgNO}_3$ -Imprägnierung von AC 6120.

In dem Prozeß der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen ist eine Zugabe von Benzol bisher nicht vorgesehen. Das Auftreten von Jod-Benzol in der Abluft in Mengen, die die Filterwirkung wesentlich beeinträchtigen, wird daher nicht erwartet.

Bei Abänderung bisheriger Lösungs- und Extraktionsschritte sollten Aromaten, die leicht einer Jodierung unterliegen, nicht verwendet werden.

#### 4114 Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgasen

##### Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

(J. Furrer, R. Kaempffer)

Aktivkohlen aus den Kontrollfiltern des Jodfilters eines Kernkraftwerkes zeigten bei der routinemäßigen Laborprüfung ein starkes Absinken der Abscheideleistung gegenüber  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ . Die zulässigen Durchlassgrade der entsprechenden Filter waren z.T. bereits weit überschritten.

Durch gaschromatographische Untersuchungen des  $\text{CCl}_4$ -Extraktes der Aktivkohle wurde ein Gemisch von Aethylacetat, Toluol und o-, m-, p-Xylol identifiziert, das durch die Aktivkohle adsorbiert worden war (KFK 1908, S. 13 - 19).

Eine Beladung der Aktivkohle mit Lösungsmitteln in Kernkraftwerken lässt sich nicht vollständig vermeiden. Das Abdunsten von Lösungsmitteln aus Farbanstrichen ist gerade bei neu errichteten Anlagen besonders stark und stellt in bezug auf die Auslegung der Filteranlagen ein z.Z. nicht gelöstes Problem dar, dessen Bearbeitung durch die große Anzahl der in Betrieb zu nehmenden neuen Kernkraftwerke besonders dringlich wird. Es wurden daher Untersuchungen zur Abhängigkeit des Abscheidegrades von der Lösungsmittelbeladung für Jodfilter typischer Auslegung durchgeführt.

### Versuchsdurchführung

Durch Feuchtluft konditionierte Aktivkohlebetten wurden mit Lackfarbenverdünner oben angegebener Zusammensetzung beaufschlagt.

Anschließend wurde der Abscheidegrad in Abhängigkeit von der Lösungsmittelbeladung und Tiefe der Aktivkohlebetten gemessen. Die Lösungsmittelbeladung wurde durch quantitative gaschromatographische Analyse von  $CCl_4$ -Extrakten der Aktivkohle bestimmt.

### Versuchsbedingungen

Aktivkohle: Typ CG II, stranggepreßt, Stäbchendurchmesser 2,0 mm, 1 % KJ-imprägniert, 20 aufeinanderfolgende Testbetten mit je 2,5 cm Bett-Tiefe.

Trägergas: Feuchtluft, vorgefiltert durch Schwebstofffilter der Klasse S,  $31,2^{\circ}C$ , 98 - 100 % r. F., scheinbare lineare Luftgeschwindigkeit in den Testbetten: 50 cm/s.

Vorströmzeit (nur Feuchtluft):  $\geq 20$  h

Beaufschlagung mit Lackfarbenverdünner und Feuchtluft: 1 h

Spülzeit (nur Feuchtluft): 2 h

Beaufschlagung mit Prüfmedium und Trägergas: 1 h

Nachströmzeit (nur Feuchtluft): 2 h

Prüfmedium:  $30 \pm 5 \mu g$   $CH_3^{127}J$  pro g Aktivkohle, vermischt mit ca.  $2 \mu Ci$   $CH_3^{131}J$  pro g Aktivkohle (Beladung berechnet auf 50 cm Bett-Tiefe).

### Aufarbeitung der Aktivkohle zur gaschromatographischen Analyse

Die Aktivkohle aus den Einzelbetten wurde mit 50 ml p.A.  $CCl_4$  24 Stunden in einer Soxhlet-Apparatur extrahiert. Die Untersuchung der Extrakte erfolgte mit dem Gaschromatographen der

Fa. Hewlett-Packard, Modell 5700 A. Die Arbeitsbedingungen am Gaschromatographen (FID) sind ausführlich im KFK 1908, S. 14, beschrieben.

### Ergebnisse

An dieser Stelle wird nur eine kurze Übersicht gegeben. Ausführlichere Angaben werden in einer weiteren Veröffentlichung gemacht.

Die Auswertung der Chromatogramme zeigte ein annähernd gleiches Adsorptionsverhalten von o-, m-, p-Xylol und Toluol, die in der Hauptmenge durch eine Aktivkohleschicht von max. 25 cm adsorbiert wurden. Auch vom Aethylacetat wurde die Hauptmenge in dieser Aktivkohleschicht adsorbiert, allerdings mit etwas weiter in Strömungsrichtung verschobener Peaklage.

In Tab. 4114-1 wird die Abhängigkeit der Abscheidegrade von der Lösungsmittelbeladung wiedergegeben. Die Daten unter "Bett I" gegen die Abscheidegrade wieder, die durch die in Anströmungsrichtung erste Aktivkohleschicht von 25 cm Bett-Tiefe erreicht wurden; die Daten unter "Bett II" gelten für eine nachfolgende Aktivkohleschicht von gleichfalls 25 cm Bett-Tiefe. Die Abscheidegrade, die mit einer Bett-Tiefe von insgesamt 50 cm erreicht wurden, sind unter "Bett I und Bett II" angegeben.

Die Tab. 4114-1 zeigt deutlich das Absinken der Abscheidegrade der Aktivkohlebetten mit steigender Lösungsmittelbeladung.

Dieser Effekt wird sich am stärksten in dem in Strömungsrichtung 1. Aktivkohlebett aus, in dem die Hauptmenge der Lösungsmittel abgeschieden wurde.

Aus den Daten der Tab. 4114-1 kann abgeschätzt werden, daß bei einem 50 cm tiefen Aktivkohlebett (Typ Norit CG II) eine Lösungsmittelbeladung in Höhe von ca. 5 % des Kohletrockengewichtes unter den angegebenen Bedingungen bereits zum Absinken des Abscheidegrades von 99,99 auf 99 % führt. Der zuletzt genannte Wert dürfte bei einer Reihe von Jodfilteranlagen dem niedrigsten zulässigen Abscheidegrad entsprechen.

Tab. 4114-1 Abscheidegrade von Aktivkohlebetten in Abhängigkeit von der Lösungsmittelbeladung

Lösungsmittelbeladung + [mg/g]	Abscheidegrade für $^{131}\text{J}$ (in Form von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ ) in %		
	Bett I	Bett II	Bett I + II
0	99 ++	99 ++	99,99
20	92,4	97,4	99,80
39	83,1	97,1	99,51
79	77,7	93,5	98,6
98	76,9	91,6	98,1

+ mg Lösungsmittel pro g trockener, nicht beladener Aktivkohle

++ errechnete Werte

An dieser Stelle sei erwähnt, daß in den Kontrollfiltern aus einem neu errichteten Kernkraftwerk nach 25 Monaten Einsatzzeit in der Anlagenraumabluft eine Lösungsmittelbeladung qualitativ gleicher Zusammensetzung in Höhe von 6 % des Kohlegewichtes festgestellt wurde und die Abscheideleistung der Aktivkohle während der Einsatzzeit durch zusätzliche Alterungseffekte weiter herabgesetzt werden kann.

#### Entwicklung von diskriminierenden Probensammlern (H. Deuber)

Die Kenntnis der physikalischen und chemischen Formen des Spaltjodes in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken ist von großer Bedeutung. Diese Formen bestimmen die Filterungs-, Transport- und Ablagerungseigenschaften des freigesetzten Jodes. Ihre Anteile in der Fortluft beeinflussen entscheidend das Ausmaß der Strahlenbelastung in der Umgebung eines Kernkraftwerkes infolge von Ingestion und Inhalation von  $^{131}\text{J}$ .

Zur Bestimmung der einzelnen luftgetragenen Jodformen können diskriminierende Probensammler eingesetzt werden, in denen die Jodaerosole und Verbindungen entsprechend ihren physikalischen und chemischen Eigenschaften in verschiedenen Filter- und Sorptionsstufen abgeschieden und dadurch getrennt werden (H. Deuber, Abscheidung von Jod mit diskriminierenden Probensammlern, PNS-Arbeitsbericht Nr. 38/74).

Entscheidend für die Brauchbarkeit diskriminierender Probensammler ist die Abscheideleistung und Selektivität der einzelnen Stufen. Die zur Zeit laufende Arbeit ist darauf ausgerichtet, einen Probensammler zu entwickeln, der in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken eine Trennung der einzelnen Jodformen erlaubt. Da die Zustandsgrößen Temperatur und Feuchte der Trägerluft das Abscheidungsverhalten einzelner Jodformen sehr stark beeinflussen, sind Probensammler herzustellen, die über einen Betriebsbereich der Abluft- bzw. Fortlufttemperatur von ca. 10 - 70 °C und der relativen Feuchte von 20 - 80 % weitgehend spezifische und reproduzierbare Abscheidungseigenschaften zeigen.

Vorerst ist eine Auftrennung in Aerosoljod, elementares Jod und organische Jodverbindungen beabsichtigt. Dabei sollte eine Kombination der zur Abscheidung einzelner Jodformen jeweils günstigstensowie ungünstigen Bedingungen (innerhalb des oben angegebenen Bereiches) die Selektivität der verschiedenen Probensammlerstufen so wenig beeinflussen, daß ein relativer Fehler von max.  $\pm 5\%$  bei der Bestimmung der Anteile einzelner Jodformen nicht überschritten wird.

Im Berichtszeitraum wurden Versuche zur selektiven Abscheidung von Aerosoljod und elementarem Jod durchgeführt. Erste Versuche mit binderfreien Glasfaserpapieren zur selektiven Abscheidung von Aerosoljod (Auswahlkriterien siehe auch folgenden Abschnitt!) zeigten eine sehr geringe Abscheidung (pro Schwebstofffilter ca. 0,08 % bei 30 °C, 70 % r.F.,  $v_{Luft\ lin.} = 7,5\text{ cm/s}$ ;  $c_J^2 = 3\text{ mg/m}^3$ ) des in dieser Hinsicht besonders kritischen elementaren Jodes.

Zur selektiven Abscheidung von Radiojod, das in elementarer Form vorliegt, wurden Filterbetten aus  $K^{127}J$ -imprägniertem Katalysatorträger eingesetzt, die in früheren Versuchen eine sehr geringe Abscheideleistung gegenüber  $CH_3^{131}J$  zeigten. Der Durchlaßgrad des Jod-Sorptionsteiles eines damit ausgerüsteten Probensammlers ergab sich bei  $30^{\circ}C$ , 70 % r.F.,  $v_{Luft\ lin.} = 25\text{ cm/s}$  sowie  $c_J = 3\text{ mg/m}^3$  zu ca. 0,02%. Die Abscheidung des elementaren Jodes an den Strukturmaterien des Probensammlers (Glasrohr, Schwebstoff-Filterhalter aus elektropoliertem Edelstahl, Edelstahlnetze, Dichtungen aus Teflon) betrug 2,6 %. Die Werte ergaben sich bei einer Beaufschlagungsdauer (mit  $J_2$ ) von 15 min und einer Spülzeit (nur Feuchtluft) von 1 h. Die angegebenen Werte wurden an einem Probensammler mit folgendem Aufbau gemessen:

1. 2 Schwebstofffilter Typ Whatman GF/A,  $\varnothing 4,5\text{ cm}$ .
2. 3 Betten AC 6111, imprägniert mit 8,5 %  $K^{127}J$  (Bett-Tiefe: 2,5 cm,  $\varnothing 2,5\text{ cm}$ ).
3. 3 Betten aus Aktivkohle CG 0,8, stranggepreßt, Stäbchen-durchmesser 0,8 mm, imprägniert mit 1 % KJ (Bett-Tiefe 2,5 cm,  $\varnothing 2,5\text{ cm}$ ).

Die Sorptionsversuche werden mit elementarem Jod und Methyljodid im eingangs angegebenen Parameterbereich an einer Reihe von Materialien fortgesetzt, die für die selektive Abscheidung der einzelnen Jodformen besonders geeignet erscheinen.

Messung des Durchlaßgrades von Glasfaserpapieren für diskriminierende Probensammler

(A. Weinert)

Zum Einsatz in diskriminierenden Probensammlern wurden verschiedene Schwebstofffilterpapiere untersucht, die aufgrund ihrer Zusammensetzung geringe Abscheidegrade für elementares Jod erwarten lassen. Von besonderem Interesse sind dabei Teflonfilter und binderfreie Glasfaserpapiere.

Mit der in Abb. 4114-1 dargestellten Apparatur wurden verschiedene Filterpapiere auf ihren Abscheidegrad untersucht. Für das hinsichtlich geringem Druckabfall und geringer  $J_2$ -Adsorption besonders interessante binderfreie Glasfaserpapier Whatmann GF/A ergaben sich die in Tab. 4114-2 angegebenen Werte.

Tab. 4114-2 Durchlaßgrad von binderfreiem Glasfaserpapier  
Whatman GF/A. Anströmgeschwindigkeit 7,5 cm/s,  
Raumtemperatur, Normaldruck

Messung	I	II	III
Rohluft-Konzentration ( $\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ )	$103 \cdot 10^{-6}$	$189 \cdot 10^{-6}$	$558 \cdot 10^{-6}$
Reinluft-Konzentration ( $\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ )	a) $1,1 \cdot 10^{-8}$ b) $1,1 \cdot 10^{-8}$	$2,1 \cdot 10^{-8}$	$9,7 \cdot 10^{-8}$
Durchlaßgrad (%)	a) 0,011 b) 0,011	0,011	0,017

Wegen der äußerst kleinen Reinluftkonzentration wurde die Bestimmung des Abscheidegrades über eine Teilchenzählung durchgeführt.

Da der "Nulleffekt", d.h. die ohne Beaufschlagung des Filters vorhandene NaCl-Konzentration mit  $1,8 \cdot 10^{-10} \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$  um mindestens zwei Größenordnungen unter dem Reinluftwert lag, wurde er in der Rechnung nicht berücksichtigt.

Ein Versuch bei höherer Luftgeschwindigkeit ergab einen geringeren Durchlaßgrad.

Der Teilchendurchmesser bei diesen Messungen lag zwischen 0,05 und 0,18  $\mu\text{m}$ . Eine exakte Bestimmung der Teilchengrößenverteilung kann erst bei Benutzung einer externen Verdünnungseinrichtung durchgeführt werden (s. Angaben unter PNS-Programmpunkt 4111).

Da das in der Kugelmühle gemahlene Natriumchlorid eine große Anzahl kleiner Teilchen unter 1  $\mu\text{m}$  Durchmesser enthielt, wurde in einem zusätzlichen Versuch das Filter mit diesen Aerosolen beaufschlagt. Dabei wurden in der Rohluft bei einer Meßzeit von 1 min (= 200  $\text{cm}^3$  Probe) bis zu 4000 Teilchen zwischen 0,175 und 0,3  $\mu\text{m}$  gezählt. Der Reinluftwert war praktisch mit dem Nullwert identisch. Das bedeutet, daß der Abscheidegrad des Filters für diese Teilchen > 99,975 % war. Die in der Tab. 4114-2 angegebenen Durchlaßgrade sind für die Verwendung des untersuchten Glasfaserpapiers in einem selektiven Probensammler ausreichend niedrig.

#### Flüchtigkeit von hypojodiger Säure

(H. Deuber)

In neueren Veröffentlichungen wurde wiederholt darauf hingewiesen, daß hypojodige Säure (HJO) gasförmig auftreten kann und bei ungünstigen Abscheidungseigenschaften die Dekontaminationsfaktoren, die durch Spaltjodfilter erreichbar sind, wesentlich herabsetzen könnte. Als Beitrag zur Klärung dieser Frage wurden Laboruntersuchungen über die Flüchtigkeit der hypojodigen Säure durchgeführt. In diesen Versuchen wurde Luft (als Trägergas für hypojodige Säure) durch eine wässrige Lösung (Verflüchtigungslösung) geleitet, die hypojodige Säure enthielt. Die eventuell mitgeführte hypojodige Säure wurde - je nach Konzentration der Verflüchtigungslösung - durch Adsorber (Auffanglösungen) oder Adsorber aus dem Luftstrom entfernt.

Der verwendete Versuchsaufbau wurde im KFK 2050, s. 86 - 90 beschrieben. Erste Versuchsergebnisse wurden an gleicher Stelle wiedergegeben. Die Untersuchungen wurden im Berichtszeitraum fortgesetzt; die Ergebnisse dieser Versuche, die unter Variation der Temperatur der Verflüchtigungslösung, der Versuchsdauer sowie der Art des Adsorbers durchgeführt wurden, sind in Tab. 4114-3 wiedergegeben. Die verflüchtigte Aktivität ist nicht aufgeführt. Sie lag - ohne erkennbaren Zusammenhang mit der Wahl der Parameter - zwischen 2 und 8 % der vorgelegten Aktivität. Die Aktivität wurde bei Verwendung von imprägnierter

Aktivkohle als Jod-Sorptionsmaterial praktisch vollständig auf dem jeweils ersten (von insgesamt fünf) Sorptionsbett abgeschieden, nur bei Einsatz von AC 6120 konnte auf dem 2. Testbett noch eine geringe Aktivität festgestellt werden. In keinem der Versuche konnte Aktivität in der Kühl fallen nachgewiesen werden.

Wie aus Tab. 4114-3 ersichtlich, sind die Anteile der auf Bett 1 abgeschiedenen Aktivität (Mittelwerte aus jeweils 2 Versuchen) nahezu gleich. Daraus ist zu schließen, daß die flüchtige Substanz bei 90 °C nicht länger als 1 h in der Lösung vorliegt (Reaktion oder Zerfall). Bei 20 °C dürfte sie länger existieren, doch verhindert anscheinend die bei dieser Temperatur geringere Flüchtigkeit eine Erhöhung der mitgeführten Menge. Es sei erwähnt, daß bei Ersatz des Rückflußkühlers durch ein Rohr von Zimmertemperatur praktisch gleiche Ergebnisse erzielt wurden.

Im Zusammenhang mit ähnlich durchgeführten Versuchen wurde schon die Ansicht geäußert, daß die Aktivität, auch unter Bedingungen, die günstig für die Bildung von HJO sind, in Form von  $J_2^-$  übergeht (KFK 2050, S. 90). Die vorliegenden Ergebnisse sind damit in Einklang. Zur Bestätigung dieser Ansicht sind Versuche mit diskriminierenden Probensammlern, mit denen man ein differenzierteres Abscheidungsprofil erhalten kann, durchzuführen. Weiterhin sollen Versuche aufgenommen werden, in denen HJO aus  $J^-$  in alkalischer Lösung unter Verwendung von  $Br_2$  erzeugt wird (s. M.J. Kabat, Testing and Evaluation of Absorbers for Gaseous Penetrative Forms of Radioiodine, 13<sup>th</sup> AEC Air Cleaning Conference, Aug. 1974). Eine Wertung der Bedeutung von HJO für die Abluftfilterung in Kernkraftwerken ist aufgrund der bisher vorliegenden Versuchsergebnisse noch nicht möglich. Aussagen zur Abscheideleistung von Jodsorptionsmaterialien gegenüber HJO können erst gemacht werden, wenn einwandfreie präparative Methoden zur Darstellung von HJO mit anschließender Überführung in flüchtige Form vorhanden sind.

Tab. 4114-3 Abscheidungsverhalten der aus HJO-haltigen  $J_2^-$

Lösungen durch Luft mitgeführten  $^{131}J$ -Aktivität

Konzentration der Verflüchtigungslösung:  $10^{-5}$  n ( $J_2^-$ )

pH-Wert der Verflüchtigungslösung : 8  
(pH-Einstellung mit  $H_2PO_4^-$  -  $HPO_4^{2-}$   
Puffer)

Luftstrom durch die Verflüchtigungslösung : 10 l/h

Sorptionsmaterial : Aktivkohle CG 0,8, stranggepreßt, Stäbchendurchmesser 0,8 mm, 1 % KJ-imprägniert bzw. AC 6120, Korn-durchmesser 1 - 2 mm

Temperatur des Adsorbers :  $35^{\circ}C$

Luftfeuchte : 24 %

Luftstrom durch den Adsorber : 441 l/h

$v_{Luft\ lin.}$  : 25 cm/s

Temperatur <sup>+</sup> [ $^{\circ}C$ ]	Versuchs-dauer [h]	Adsorber	Am Sorptionsmaterial abgeschiedene Aktivität [%] <sup>++</sup>		
			Schwebstoff-filter	Bett 1	Bett 2
90	1	Aktiv-kohle	0,02	1,7	$< 10^{-4}$
90	1	AC 6120	0,04	2,3	$1,2 \cdot 10^{-3}$
90	20	Aktiv-kohle	0,02	2,2	$< 10^{-4}$
20	20	Aktiv-kohle	0,49	2,7	$< 10^{-4}$

<sup>+</sup> Temperatur der Verflüchtigungslösung.

<sup>++</sup> Abgeschiedene Aktivität in Prozent der vorgelegten Aktivität.

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

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

Die Untersuchung der Metallabgaberate von Werkstoffen, die im Primärkreislauf von Druckwasserreaktoren verwendet werden, wurden weitergeführt.

#### Autoklaven-Schutzschicht

Nachdem die Metallabgaberate des 18/10-Chromnickelstahles der Autoklavenwand (Werkstoffnummer 1.4541) in Druckwasser bis 300 °C und 90 bar bestimmt worden war, war es notwendig, diese Eigenabgabe bei der Untersuchung anderer austenitischer Werkstoffe auszuschalten. Dazu war als Schutzschicht eine Goldbeschichtung entweder durch Sprengplattierung oder mittels Galvanik vorgesehen. Da die galvanische Vergoldung auch auf Chromnickelstählen industriell gut beherrscht wird, wurde in Zusammenarbeit mit der Fa. Degussa auf die Autoklaveninnenwand und die Flansche eine etwa 20 µm dicke Goldschicht aufgebracht.

Die ursprünglichen Bedenken auf ein Ablösen der galvanischen Schutzschicht haben sich nach etwa 1000 Betriebsstunden bei im Mittel 342 °C und 150 bar nicht bestätigt.

#### Metallabgabe von Incoloy 800

Es wurden in den Autoklaven 24 Streifenproben aus INCOLOY 800<sup>+) von 30 cm Länge, 2 cm Breite und 0,1 cm Dicke angebracht. Der dazugehörige Probenhalter bestand ebenfalls aus INCOLOY 800, so daß sich eine Gesamtprobenoberfläche von 3540 cm<sup>2</sup> ergab. Insgesamt wurde der Versuchswerkstoff bei 342 °C und 150 bar über 540 Stunden diesen Betriebsbedingungen unterworfen, wobei zum Ausgleich einer mittleren täglichen Wasserprobennahme von 70 ml</sup>

---

<sup>+)</sup> Richtanalyse von INCOLOY 800 (in Gewichtsprozenten) 42,5 Fe; 21 Cr; 32,5 Ni; 1,5 Mn; 0,75 Cu; 0,38 Al; 0,38 Ti; 1,0 Si; 0,10 C; 0,015 S

und einem etwas darüberliegenden Leckverlust jeweils frisches Deionat zugeführt wurde.

Bei den Mittelwerten der Temperatur von 342 °C und des Druckes von 150 bar betrug die mittlere Metallabgaberate der INCOLOY 800-Proben 90 µg/dm<sup>2</sup> · Monat.

#### Messung der elektrischen Leitfähigkeit

Da eine pH-Messung unmittelbar bei den Betriebswerten von Druckwasserreaktorkühlmitteln zwar wünschenswert, aber noch nicht realisierbar ist, andererseits eine direkte chemisch-physikalische Messung im Primärkreislauf wichtige Aufschlüsse über den Chemismus erwarten lassen würde, wurde eine Leitfähigkeitsmeßzelle für hohe Temperaturen und hohe Drücke (bis über den Betriebszustand von Druckwasserreaktoren hinaus) entwickelt (Abb. 4123-1).

Die spezifische elektrische Leitfähigkeit gibt die Abb. 4123-2 für das Anfahren des Autoklaven bis zum Betriebszustand (342 °C und 150 bar) im Zeitintervall von fünf Stunden wieder. Dabei wird über jeweils drei Werte gemittelt.

Es sind drei charakteristische Bereiche des Leitfähigkeitsverlaufs mit dem Temperaturanstieg zu erkennen. Zunächst der Anstieg, bedingt durch zunehmende Eigendissoziation des Wassers, durch die Erhöhung der Beweglichkeit der Restionen und den Beginn der Metallabgabe (Werkstoff 1.4541) bis etwa 150 °C und 4,8 bar. Im System Eisen-Wasser entsteht Eisen-(II)-hydroxid, das wegen seiner basischen Eigenschaft eine Selbsthemmung der Metallabgaberate im anschließenden Bereich bewirkt. Dabei fällt der Ionengehalt im Druckwasser (Deionat) leicht ab. Oberhalb von 300 °C und 85 bar ist die selbsthemmende Wirkung erschöpft und nach der van't Hoff'schen Regel über die Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit bei Temperaturerhöhung steigt die Ionenkonzentration durch ionale Metallabgabe bis 342 °C und 150 bar wieder deutlich an.

Diese Untersuchungstechnik war in Druckwassersystemen bislang unüblich. Sie bedarf noch der weiteren Vervollkommnung.

### Analysentechnik

Bekanntlich ist die Probennahme aus dem Druckwassersystem von Kraftwerken problematisch. Dies liegt daran, daß bei der Entnahme der Wasserproben mit Abkühlung und Druckentspannung Phasenänderungen des Probegutes eintreten können: Der Feststoffanteil kann sich erhöhen und im Entnahmekanal abgelagert werden.

Es wurden deshalb sowohl über Kühler, wie auch direkt aus dem Autoklaven Wasserproben entnommen. Dabei zeigte sich, daß die Probennahme über den Kühler bis zu um 44 % niedrigere Analysewerte bringen kann.

Obwohl die Wasseranalyse mittels des Atomabsorptions-Spektrometers (Gerät 303 von Perkin Elmer) allgemein gute Reproduzierbarkeit zeigt, so weist die Probenanalyse mit Feststoffgehalten größere Streuungen auf. Dies gilt insbesondere bei Atomisierung in der Graphitrohrküvette. Diese thermische Anregung bis ca. 2700 °C vermag offenbar kolloidale und größer disperse Teilchen aufzuschließen und zu atomisieren. Die Verweilzeit im Strahlengang des Spektrometers ist ungefähr 1000 mal länger als mit der sonst gebräuchlichen Flammenanregung und somit um den Faktor 100 besser in der Nachweisgrenze. Deshalb scheidet die Flammenanregung für diese Analyse der wässrigen Metallabgabeproben aus. Um die Steuerung zu mindern ist eine Filterung der Proben in Vorbereitung, die die Trennung vom ionalen- und vom Partikel-Metallgehalt gewährleisten soll. Daneben ist zur Ermittlung der Menge und Größe der Eisenoxidpartikel im Druckwasser die Laser-Streuanalyse vorgesehen.

Die Bestimmung der Metallabgaberate wird in Abhängigkeit vom pH-Wert des Druckwassers vor allem im alkalischen Bereich fortgeführt.

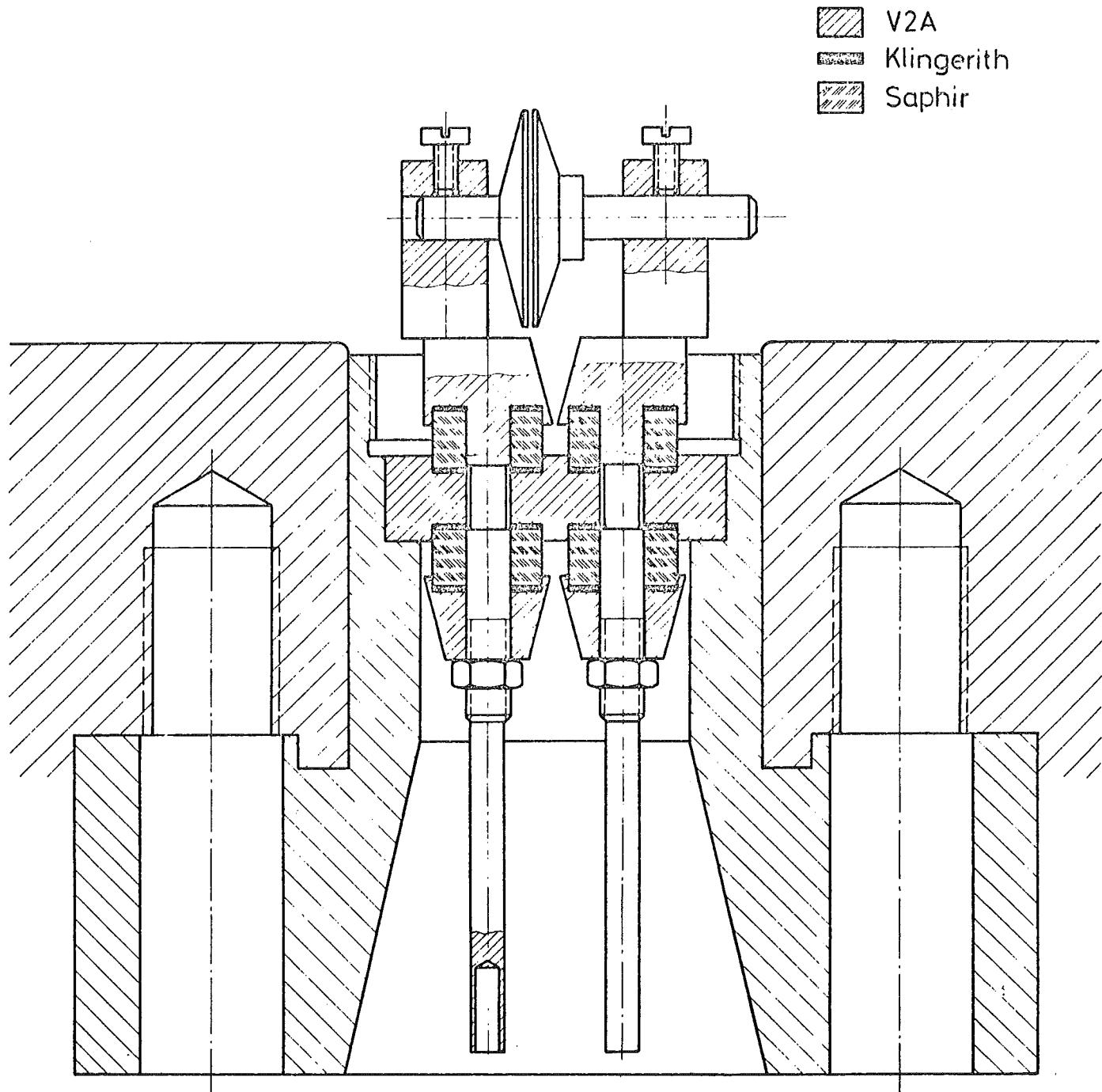
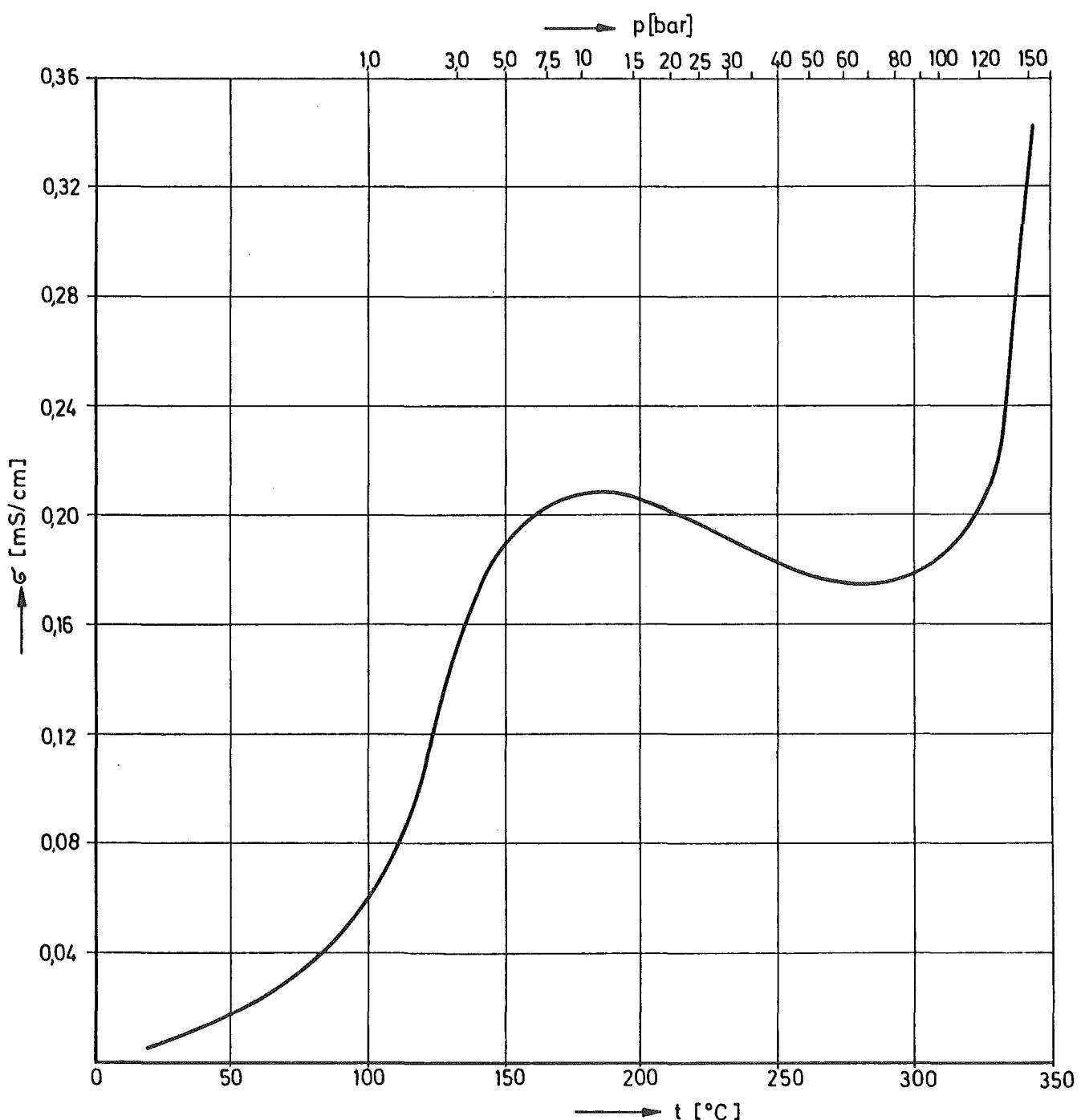


Abb.4123-1 Leitfähigkeits- und Kapazitätsmeßzelle  
für hohe Drücke und hohe Temperaturen

Abb. 4123-2

Spez. elektr. Leitfähigkeit des Druckwassers beim Anfahren  
des Autoklaven.



4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

Die Zielsetzung und Hintergründe des Forschungsvorhabens sind im letzten Halbjahresbericht (KFK 2050) beschrieben. Im Jahre 1974 wurden die für die Untersuchung notwendigen analytischen Methoden erarbeitet.

$^{129}\text{J}$  kann aus einer Wiederaufarbeitungsanlage primär über Abluft und Abwasser entweichen. Die Aufarbeitung der aktiven Abfallösungen trägt ebenfalls zur  $^{129}\text{J}$ -Abgabe über Abluft und Abwasser bei.

Grundsätzlich sind also eine Kontamination entlang des Abluftweges, (Abluft - Umgebungsluft - Pflanzen - Boden - Fleisch - Schilddrüsen - Milch) und eine entlang des Abwasserweges (Abwasser - Oberflächenwasser - Wasserpflanzen - Fische) zu unterscheiden.

Die für die Analyse verschiedener Abwasserproben notwendigen chemischen Methoden konnten aus der Literatur entnommen werden. Bei diesen Probematerialien ist eine Zugabe von inaktivem Trägerjod möglich, da nur der  $^{129}\text{J}$ -Gehalt interessiert und daher ergeben sich bei der Abtrennung des Jodes keine Schwierigkeiten. Als Modellösungen wurden  $0 \cdot 1\text{M}$   $\text{NaNO}_3$  (10 ml Probevolumen von mittelaktivem Abwasser, 100 ml von niedrigaktivem Abwasser) und eine  $1\text{M}$   $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2/2.5\text{M}$   $\text{HNO}_3$  gewählt (1 ml Probemenge, hochaktive Abfälle). Keine Probleme gab es auch bei der Bestimmung von  $^{129}\text{J}$  in geeigneten Abluftfiltermaterialien (Aktivkohle,  $\text{AgNO}_3$  auf Katalysatorträgern).

In allen anderen Probematerialien lässt nur die Messung des Verhältnisses von  $^{129}\text{J}/^{127}\text{J}$  sinnvolle Aussagen über Ausmaß und Veränderungen der  $^{129}\text{J}$ -Kontamination zu. Daher muß in diesen Probematerialien auch der  $^{127}\text{J}$ -Gehalt bestimmt werden und deshalb darf kein Trägerjod zugesetzt werden.

Wegen der dadurch notwendig gewordenen Abtrennung von Jodspuren einerseits und der Verwendung großer Probenmengen, um die Nachweisgrenze für  $^{129}\text{J}$  so niedrig wie möglich zu halten, andererseits, wurden die meisten in der

Literatur beschriebenen Analysenmethoden unbrauchbar. Übliche Fällungen von AgJ oder PdJ<sub>2</sub> und Mitfällungen mit AgCl, AgCN, AgSCN, CnSCN und anderen Salzen konnten nur mit beachtlichen Verlusten an Jod durchgeführt werden. Extraktionszyklen und Destillationen führten zu teilweise quantitativem Verlust des Jodes. Obwohl der Anionenaustausch quantitativ erfolgte, waren die Jodspuren nicht mehr vollständig aus dem Austauscher zu eluieren. Verluste beim Veraschen, durch Adsorption an den Glasgefäßen und Adsorption an Niederschlägen in Probelösungen erschwerten die Entwicklung geeigneter Analysenmethoden.

Das Schema der erarbeiteten Analysenmethoden für die oben angegebenen Probematerialien wird in Abb. 4132-1 wiedergegeben.

Nach der Neutronenaktivierung der Jodfraktion einer Reihe von Blindproben wurden zwei Störungen beobachtet. Erstens war die Abtrennung von Cl, Br, Ag und Na nicht ausreichend. Die Störung durch die Nuklide <sup>38</sup>Cl, <sup>82</sup>Br, <sup>110m</sup>Ag und <sup>24</sup>Na wurde durch Nachschalten eines Extraktionszyklus und durch weitgehende Beseitigung der Na-haltigen Chemikalien durch Kauf und Herstellung entsprechender NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Salze erreicht. Die zweite Beobachtung zeigte, daß alle Chemikalien <sup>127</sup>J-Spuren enthalten. Die Reinigung der Chemikalien und der verwendeten Anionenaustauscher wurde durchgeführt und ist praktisch abgeschlossen.

Die bisher erreichten Nachweisgrenzen für <sup>129</sup>J liegen bei ca.  $3 \cdot 10^{-4}$  pCi <sup>129</sup>J/g fester Probe und bei ca.  $10^{-3}$  pCi <sup>129</sup>J/l flüssiger Probe. Der Zeitaufwand pro Analyse erlaubt 2 - 3 Proben während einer Woche aufzuarbeiten. Die chemischen Ausbeuten liegen für die verschiedenen Probematerialien zwischen 60 und 100 %.

Ab Februar 1975 werden niedrigaktive Abwässer, mittelaktive Abwässer und einige hochaktive Lösungen der WAK auf ihren <sup>129</sup>J-Gehalt untersucht, um die in der Umwelt gemessene <sup>129</sup>J-Konzentration zu der ursprünglich freigesetzten Konzentration in Relation setzen zu können. Die Messung des <sup>129</sup>J im Abgas der WAK erfolgt in Zusammenarbeit mit dem LFT. Nachdem die Emissionen der WAK voll erfaßt werden können, wird <sup>129</sup>J in Proben entlang dem Weg des Abwassers und der Abluft gemessen werden.

Die für die Deposition von Jod auf Gras wichtige chemische Zusammensetzung der Jodverbindungen der Umgebungsluft soll nach Lieferung eines Gaschromatographen in Angriff genommen werden.

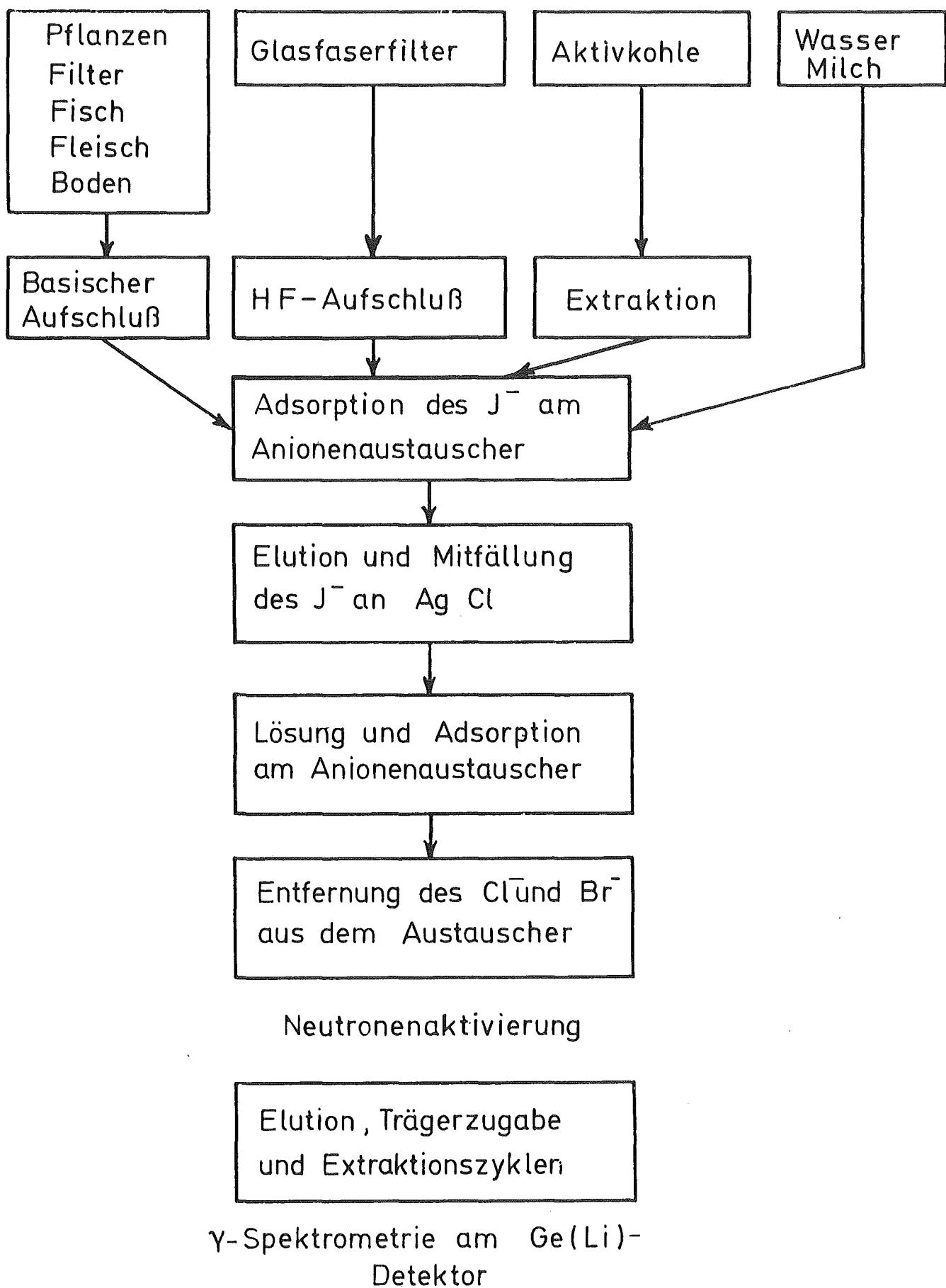


Abb: 4132-1 Schema der Analysenmethoden für Jod in verschiedenen Probematerialien

4134 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung durch eine  
Anhäufung kerntechnischer Anlagen  
(A. Bayer, R. Kalckbrenner, M. Schückler, INR)

Die Arbeiten zur Berechnung der radiologischen Belastung der Bevölkerung durch kerntechnische Anlagen im Oberrheingebiet wurden fortgeführt mit der Erweiterung des Programmsystems und der Sammlung von Daten. Es wurden Unterprogramme eingefügt, welche die Auswaschung aus der radioaktiven Wolke durch Regen und die Dosisbelastung durch Direktbestrahlung von im Boden absorbierten Aktivitäten berücksichtigen.

Zur Ausdehnung der Studie auf weitere wichtige Nuklide, insbesondere Cäsium, Strontium und Ruthenium, sind Modelle für das Verhalten dieser Elemente im Boden und im Biozyklus nötig. Diese Arbeiten werden zunächst auf die Auswertung der in der Literatur vorhandenen Modelle beschränkt. Die durch trockene Ablagerung und Auswaschung abgelagerten Aktivitäten wandern in den Boden und tragen deshalb in abnehmendem Maße zur Strahlenbelastung bei. In der Literatur finden sich zwei Ansätze zur Lösung des Problems.

- Es wurden zahlreiche Perkolationsversuche mit einer einmaligen Kontaminierung des Erdbodens durchgeführt und das Eindringen der Radioisotope in Abhängigkeit von der Zeit beobachtet.
- Bei kontinuierlicher Kontaminierung durch den Fall-out der Kernwaffenversuche wurden die stationären Tiefenverteilungen gemessen.

Bei den Berechnungen für den Normalbetrieb eines Kernkraftwerkes wird angenommen, daß die Freisetzung der Radioisotope in die Atmosphäre zeitlich konstant ist. Die daraus resultierende konstante Kontamination des Bodens führt zu folgender akkumulierter Aktivität.

$A(t)$	$= \frac{D}{\lambda_{\text{eff}}} \{1 - \exp(-\lambda_{\text{eff}} \cdot t)\}$	
$\lambda_{\text{eff}}$	$= \lambda_r + \lambda_v$	
$A(t)$	$= \text{akkumulierte Aktivität}$	$\text{[Ci/m}^2\text{]}$
$D$	$= \text{Ablagerungsrate}$	$\text{[Ci/m}^2\cdot\text{a}]\text{}$
$\lambda_{\text{eff}}$	$= \text{effektive Zerfallskonstante}$	$\text{[a}^{-1}\text{]}$
$\lambda_r$	$= \text{radiologische Zerfallskonstante}$	$\text{[a}^{-1}\text{]}$
$\lambda_v$	$= \text{Zerfallskonstante, bedingt durch Eindringen in den Boden}$	$\text{[a}^{-1}\text{]}$

In Tab. 4134-1 sind die Werte von  $\lambda_{\text{eff}}$  für einige Isotope zusammenge stellt. Diese Aktivität nimmt nach verschiedenen Veröffentlichungen eine exponentielle Konzentrationsverteilung mit einer Relaxationslänge von 3 cm an. Aufgrund dieser Wanderung der Radioisotope in die Tiefe ist die Dosisbelastung des Menschen geringer als unter der i.a. gemachten Annahme, daß sich die gesamte Aktivität auf der Erdoberfläche befindet. Die entsprechenden Dosisfaktoren  $g$  für externe Gammastrahlung in 1 m Höhe über dem Boden sind ebenfalls in Tab. 4134-1 eingetragen (hauptsächlich nach H.L. Beck, Health Physics 12 (1966) 313).

Da in das Rechenprogramm sehr viele Eingangsdaten mit unterschiedlichen Gewichten und zahlreiche Modelle eingehen, ist es nötig, Sensitivity-Studien durchzuführen, um ein Gefühl für die Genauigkeit der Ergebnisse zu erhalten und um kritische Größen zu erkennen. Dazu wurden erste Rechnungen durchgeführt, die sich vor allem mit den Parametern der meteorologischen Ausbreitung befaßten.

Die Sammlung von Freisetzungsraten aus Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen anhand veröffentlichter Erfahrungswerte wird fortgesetzt mit den Transuranelementen.

Es wurden die zur Berechnung von Dosisfaktoren und der Belastung über den Nahrungspfad notwendigen Werte über den Lebensmittelverbrauch in der BRD zusammengestellt. Dabei erwies es sich als sehr schwierig, altersabhängige Werte dieser Größen zu erhalten.

Veröffentlichungen

F. Hilbert,

"Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Krypton- und Xenonisotopen durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahre 2000"

Bericht KFK 2035, August 1974

A. Bayer,

"Radiologische Belastung im Oberrheingebiet durch kerntechnische Anlagen"

KFK-Nachrichten 3/1974, 6. Jahrgang, S. 17-24

Isotop	$\lambda_{\text{eff}}$ [ $\text{a}^{-1}$ ]	g [ $10^6 \frac{\text{rem} \cdot \text{m}^2}{\text{a} \cdot \text{Ci}}$ ]
Ru-103	6,99	0,029
Ru-106	1,37	0,012
I-131	31,4	0,049
Cs-134	0,446	0,096
Cs-137	0,031	0,033
Sr-90	0,07	0 (reiner Betastrahler)

Tab. 4134-1:

Effektive Zerfallskonstante im Boden und Dosisfaktor  
für externe Gammastrahlung bei exponentieller Tiefen-  
verteilung für verschiedene Isotope.

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

(R. v. Ammon, W. Weinländer, IHCH; E. Hutter, RBT)

Nach der Entscheidung, die Entwicklung der Edelgasabtrennung durch Tieftemperatur-Rektifikation fortzusetzen, wurden für die Versuchsanlage die Anlagenteile Tieftemperatur-Rektifikation und Edelgas-Abfüllung spezifiziert und bei Firmen der Tieftemperatur- und Verfahrenstechnik angefragt. Der Auftrag wurde zum Jahresende 1974 erteilt. Bei Lieferzeiten von mehr als einem Jahr ist mit dem Aufbau und der Inbetriebnahme ab Anfang 1976 zu rechnen.

Die bestellte Tieftemperatur-Rektifikationsanlage wird nach folgendem Konzept arbeiten: (siehe Abb. 4140-1)

1. Das Prozeßgas wird in einem Wärmetauscher auf ca. 95°K gekühlt, wobei der noch kalte Stickstoff aus dem Kondensator der ersten Rektifikationssäule und das gereinigte Abgas (hauptsächlich Stickstoff) aus deren Kopf als Kühlmittel verwendet werden.
2. In einer ersten Tieftemperatur-Rektifikationssäule wird Krypton und Xenon gemeinsam im Sumpf abgeschieden. Diese Säule wird bei ca. 5 bar Druck betrieben.
3. Das Sumpfprodukt der ersten Säule wird in eine zweite Tieftemperatur-Rektifikationssäule gegeben. Dort reichert sich das Xenon im Sumpf an, während das Krypton über den Säulenkopf abgezogen wird. Der Verfahrensdruck beträgt hier ca. 1,5 bar.
4. Das Krypton wird in einem Dosierbehälter aufgefangen und daraus durch Kryopumpwirkung in Druckflaschen von ca. 10 ltr. Inhalt abgefüllt. Dieses Gas ist zur Langzeitlagerung bestimmt, wobei als Flaschendruck ca. 120 bar vorgesehen ist.
5. Das Xenon wird auf ähnliche Weise wie das Krypton in Behälter abgefüllt. Falls eine genügende Reinheit dieses Edelgases erreicht wird, ist eine weitere Nutzung denkbar.

Bevor das Abgas einer Wiederaufarbeitungsanlage der Tieftemperatur-Rektifikation zur Krypton-Abtrennung zugeführt werden kann, muß es einer ausgedehnten Vorreinigung unterzogen werden. Neben der Rückwäsche eines großen Teils der Stickoxide in Säure-Rekombinationskolonnen und der Abscheidung des Spaltjodes in speziellen Filtern werden zwei Schritte geplant:

1. Die katalytische Reduktion der restlichen Stickoxide ( $\text{NO}_x$ ) und des Sauerstoffs mit Wasserstoff. Die Entfernung des Sauerstoffs ist notwendig, um die gefährliche Ozonbildung im Sumpf der Tieftemperaturdestillationskolonne zu vermeiden.
2. Die Adsorption von Wasser und  $\text{CO}_2$  an Molekularsieben. Dieser Schritt kann noch kombiniert werden mit der adsorptiven Vorabtrennung des Xenons an Aktivkohle als Alternative zur destillativen Abtrennung von Xe gemeinsam mit Krypton. Damit würde die zweite Destillationskolonne entfallen können. Die genannte Alternative bedarf jedoch noch der Entwicklung, weshalb die Entscheidung zugunsten der 2 Kolonnen-Version getroffen wurde.

Um die prinzipielle Durchführbarkeit des 1. Schrittes, der katalytischen Reduktion, insbesondere der Stickoxide zu belegen, konnten eine Reihe von Laborversuchen bei der Fa. Doduco, Sinsheim, dank derer großzügigen Unterstützung, durchgeführt werden. Folgende Ergebnisse wurden dabei erzielt:

#### I. Effektivität der NO-Reduktion

Bei Eingangswerten von 800 - 500 ppm NO betrugen die Endwerte bei allen untersuchten Katalysatoren (Ru und Pt auf  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) stets  $\leq 1$  ppm, gemessen mit der Chemilumineszenzmethode (Modell 1400 McMillan der Fa. Kontron-Technik). Die Temperatur variierte dabei zwischen 200° und 400°.

#### II. Bildung von $\text{NH}_3$

Die Bildung von Ammoniak läßt sich bei der Reduktion von  $\text{NO}_x$  mit  $\text{H}_2$  nicht völlig unterdrücken. Die niedrigsten erreichten Werten liegen bei 15 - 20 ppm (gemessen mit Dräger-Röhrchen und dem Chemilumineszenz-Gerät). Folgende Parameter wurden dabei variiert:

### 1. Edelmetall

Ru unterdrückt die  $\text{NH}_3$ -Bildung sehr stark gegenüber Pt, bei dem Meßwerte erhalten wurden, die einer Umsetzung von bis zu 50 % des eingesetzten NO zu  $\text{NH}_3$  entsprechen. Diese Beobachtung deckt sich mit Literaturangaben /1/.

### 2. $\text{H}_2$ -Gehalt

Großer  $\text{H}_2$ -Überschuß begünstigt die  $\text{NH}_3$ -Bildung deutlich. Die niedrigsten  $\text{NH}_3$ -Werte wurden bei nahezu stöchiometrischer Gaszusammensetzung (z.B. 1 %  $\text{O}_2$ , 800 ppm NO, 2 %  $\text{H}_2$ ) erhalten.

### 3. Temperatur

Innerhalb des untersuchten Temperaturbereiches von 200 ° bis 400 ° konnte keine merkliche Änderung des  $\text{NH}_3$ -Gehaltes festgestellt werden.

### 4. Verweilzeit

Eine Erhöhung der Belastung des Katalysators von 4000 auf 10.000 Nl Gas/l Katalysator und Stunde ergab keine Veränderung der  $\text{NH}_3$ -Konzentration.

### 5. Spezifische Oberfläche und Porengröße des Katalysatorträgers

Je "aktiver" ein Katalysator ist (als aktiv ist z.B. ein Katalysator mit einer spez. Oberfläche von  $\geq 250 \text{ m}^2/\text{g}$  und einem freien Porenvolumen von  $\geq 50 \text{ cm}^3/\text{g}$  zu bezeichnen.), desto größer ist die  $\text{NH}_3$ -Bildung. Der niedrigste  $\text{NH}_3$ -Wert wurde mit einem Katalysator erzielt, dessen schlechte Aktivität dadurch gekennzeichnet ist, daß die  $\text{O}_2$ -Reduktion, die bei aktiveren Proben bereits bei Raumtemperatur abläuft, an ihm erst bei ca. 100 °C zündete.

## III. Vergiftung durch Jod

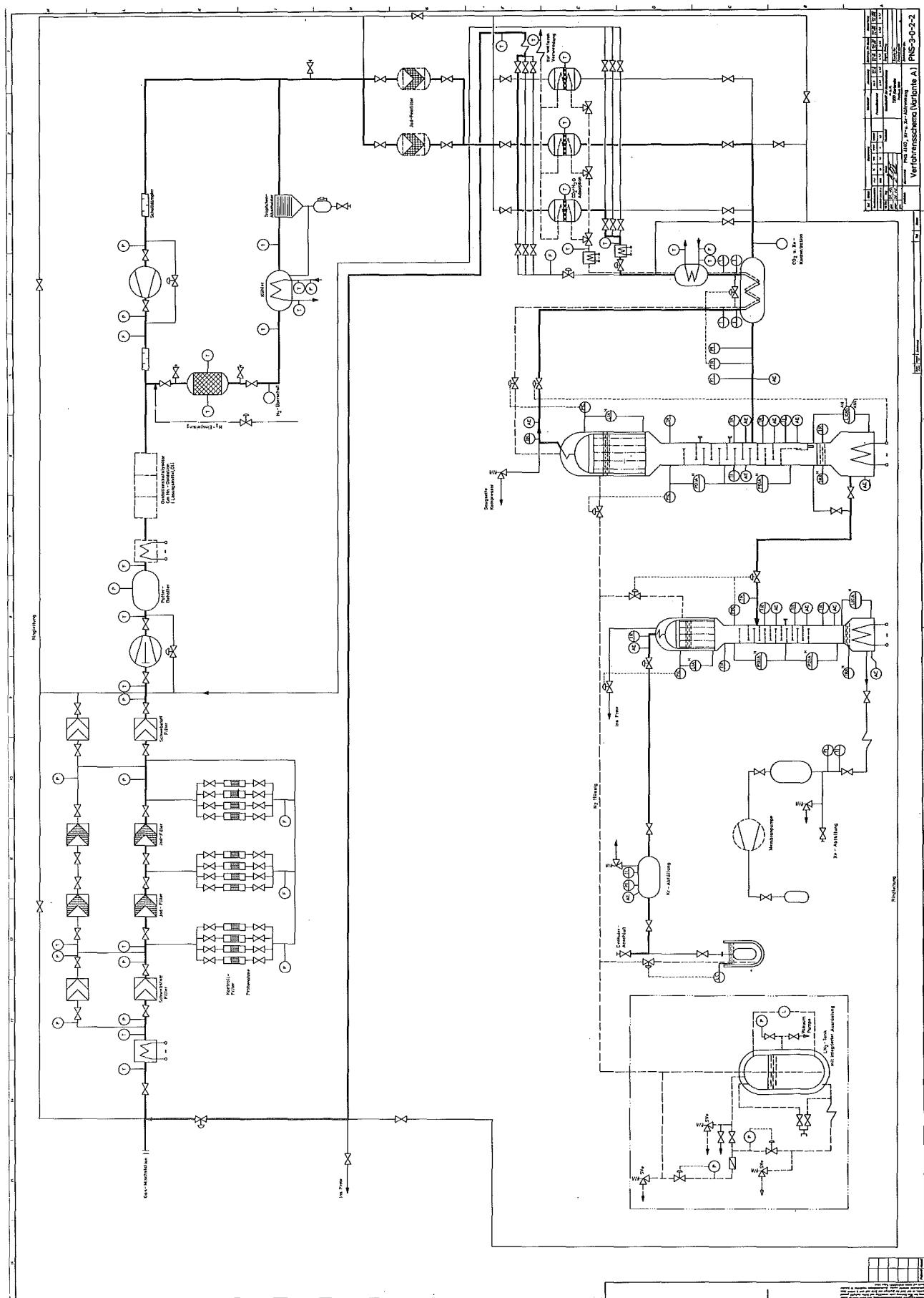
Zwei Proben eines Ru-Katalysators waren von Dr. Furrer, LFT, mit 17,5 bzw. 35 mg  $\text{J}_2$  / 50 ml Katalysator beaufschlagt worden (entsprechend derjenigen Jodmenge, die sich aus dem KEWA-Abgas bei einer Effektivität der vorgeschalteten Jodfilter von 99,9 bzw. 99,8 %

im Verlauf eines Jahres am Katalysator niederschlagen würde). Bei 400 °C konnte eine Erhöhung der NO- und NH<sub>3</sub>-Werte an diesen beiden Proben gegenüber dem jodfreien Katalysator nicht festgestellt werden ( 1 ppm NO, 15 - 30 ppm NH<sub>3</sub>). Eine Aktivitätsverringerung zeigte sich jedoch an einer Erhöhung der Zündtemperatur von 260 °C (jodfrei), über 280 °C (17,5 mg J<sub>2</sub>), auf 300 °C (35 mg J<sub>2</sub>). Beim Abkühlen setzte die NO-Reduktion bei folgenden Temperaturen aus: 260 °C (jodfrei), 320 °C (17,5 mg J<sub>2</sub>), 350 °C (35 mg J<sub>2</sub>).

Nach Klärung der noch offenen Fragen zu den Vorreinigungsschritten: Katalytische Reduktion und Adsorption von CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>O und nach Erstellung einer Sicherheitsbetrachtung im Hinblick auf die Verwendung großer H<sub>2</sub>-Mengen, die für die Reduktion benötigt werden, werden diese Anlagenteile spezifiziert und beschafft.

#### Literatur

/1/ G.L. Bauerle, K. Nobe, Ind. Eng. Chem., Prod. Res. Development, 13, 185, (1974)



4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

- 4151 Untersuchung des Wärmeaustausches Fluß/Atmosphäre am Beispiel des Rheins unterhalb des Kernkraftwerkes Philippsburg als Beitrag zu Abkühlungsmodellen  
(G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, IASR)

Die im Juli begonnene Montage der im letzten Halbjahresbericht tabellierten Sonden wurde bis auf 5 Geräte abgeschlossen. Die Signale wurden im Zuge der Fertigstellung der Installation jeweils auf einem 12-Kanal-Schreiber mehrere Tage lang getestet und auf grobe Fehler hin überprüft.

Der Prozeßrechner mit vorgeschalteter Camac-Datenerfassungskonfiguration wurde aufgestellt und mit einem gegenüber der Spezifikation reduzierten vorläufigen Programm in Betrieb genommen. Die Notwendigkeit einer Einschränkung ergab sich - im Widerspruch zu den Schätzungen auch der Vertriebsfirmen - im Zuge der Softwareerstellung aus mangelnder Speicherkapazität, die mittlerweile von 8 auf 16 K erweitert wurde und damit allen Anforderungen genügt. Mit dem Betrieb des vorläufigen Programmes konnten eine Reihe von Fehlern und Schwachstellen im Bereich der Camackonfiguration nachgewiesen werden, die noch innerhalb der Gewährleistungspflicht des Herstellers behoben wurden. Gleichzeitig traten im Betriebszustand bei der analogen Datenübermittlung der Meßwerte Unverträglichkeiten im Bereich Verstärkerausgänge - Analog/Digitalwandlereingänge auf, die zu Schwingungen Anlaß gaben und/oder Koppeleffekte bewirkten. Die Ursachen konnten lokalisiert, jedoch witterungsbedingt nicht vollständig behoben werden, sofern Maßnahmen am Mast betroffen waren.

Grundsätzlich wurde angestrebt, von jeder Kombination (Sondertyp/Abfrage-modus) wenigstens einen reproduzierbar technisch einwandfreien Protokollausdruck zu erzielen, um die Reklamationsfristen bei identifizierten Fremdfehlern zu wahren. Dies ist gelungen, und die restlichen Korrekturen werden zügig durchgeführt. Der derzeitige Datensatz ermöglicht allerdings noch keinerlei Auswertungen, zumal ein letzter Feinabgleich noch aussteht.

Ein wesentlicher Gesichtspunkt bei den künftigen Auswertungen der Daten der Meßstation Rheinhausen (BALMUNG = Beobachtungsstation zum Abwärmeeübergang an die Luft mit Meßeinrichtungen am Ufer und in Nähe der Gewässeroberfläche) ist die relative Lage der Sonden im und über dem Rhein zu eventuell jetzt

oder zukünftig vorhandenen Warmwasserfahnen bzw. einer vertikalen Temperaturschichtung.

Zur Klärung dieser Fragen sollen verschiedentlich Profilmeßfahrten in der Umgebung der Meßstelle durchgeführt werden, mit denen die Temperatur in einigen cm Wassertiefe gemessen werden kann. Mit Hilfe der Infrarot (IR)-Messung wird jedoch die für den Wärmeübergang entscheidende Schicht von wenigen  $\mu\text{m}$  an der Fließwasser-Oberfläche erfaßt. Ein Test zur Beurteilung dieser Meßtechnik fand am 15. November 1974 statt, dessen Resultat trotz seines recht vorläufigen Charakters berichtenswert erscheinen.

Es wurde ein IR.Linescanner der Firma AGA Infrared Systems AB, Lidingö, Schweden, auf dem 40 m über die Wasseroberfläche ragenden 15 m landeinwärts von der Uferbaukante errichteten Mast der Meßstation montiert und insgesamt 6 Meßstrecken, die in der Photomontage (Abb. 4151-1) eingezeichnet wurden, eingepaßt und registriert. Das Gerät verfügt über eine rotierende Germaniumoptik, die den Meßfleck vom Winkel  $-40^\circ$  bis  $+40^\circ$  auf einen stickstoffgekühlten InSb-Detektor abbildet. Der im Referenzverfahren stabilisierte Meßwert, der analog direkt in  $^\circ\text{C}$  umgewandelt als Oszillogramm ausgegeben wird, ist zwar prinzipiell absolut eichfähig, hier wurde jedoch auf eine solche Prozedur aus Zeitgründen verzichtet, da das Interesse an Temperaturdifferenzerkennung bei weitem überwog.

Es wurde in den empfindlichsten Bereichen des Gerätes gemessen mit 0,5 und  $2^\circ/\text{cm}$  Anzeige.

Die Grenzen der Infrarot-Meßtechnik bestehen darin, daß der aus der Intensität gemessene Meßwert außer von der Oberflächentemperatur des Objekts von dessen Emissivität und der Absorption in der Luft abhängt; er wird außerdem durch Reflexionen verschiedenster Art beeinflußt, vor allem bei flachen Beobachtungswinkeln. Diese Reflexionen können, müssen sich aber nicht analog zu den optisch sichtbaren verhalten, da die reflektierten Objekte vielfach im IR-Gebiet eigene Strahlungsquellen darstellen, während sie im sichtbaren Bereich nur selbst Reflektoren von Lichtquellen sind. Man wird also bei der Suche nach Warmwasserzonen oder aufgewirbelten, möglicherweise kälteren Bodenwassermassen stets mehrere Schnittaufnahmen und deren Umgebungen in die Interpretation einbeziehen und in nicht eindeutigen Fällen auf eine zu folgernde Aussage verzichten müssen. Inwieweit Auflösung und Eindeutigkeit bei Messungen bei dem verwendeten Gerät und dem gewählten Standort (Bessere aber teuere Alternative: Überfliegen des Geländes) zu Aussagen

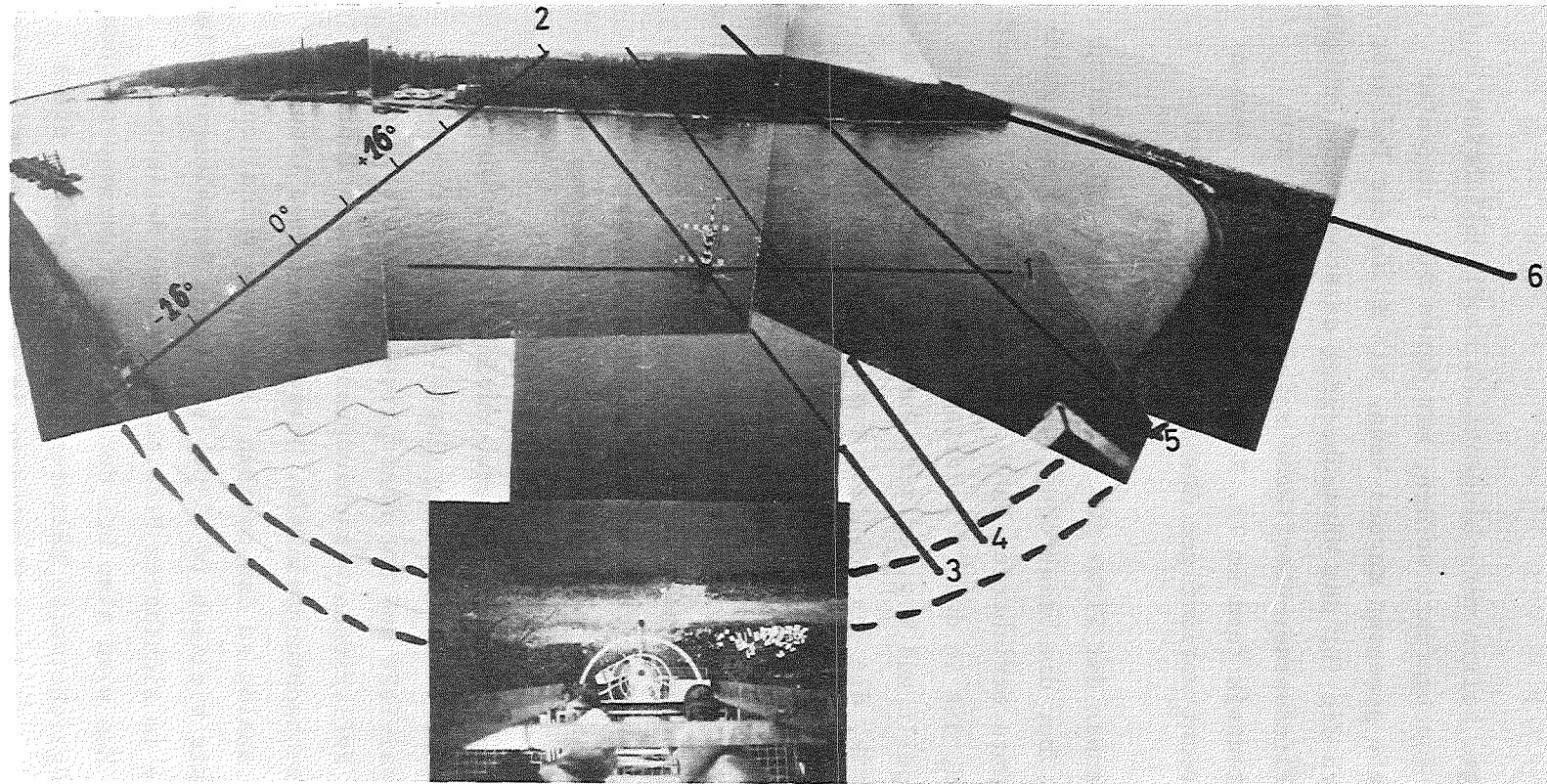


Abb. 4|51-1: Perspektive des IR-Meßgerätes (Erläuterungen siehe Text!)

Der mit den örtlichen Gegebenheiten nicht vertraute Betrachter sollte beachten, daß bei einer Gesamtbreite des Rheins von ca. 200 m der Dalben um 60 m vom badischen Ufer (auf dem sich der Beobachter befindet) entfernt steht und der Rhein oberstromseitig (im Bild links) einen in Fließrichtung gesehenen Rechtsbogen beschreibt, während der Linksbogen unterstromseitig im Verlaufe aus der Montage deutlicher hervorgeht. Die ungewohnte Perspektive soll durch die Einbeziehung der Steigleiter des Ufermastes mit gleicher Optik in die Montage verdeutlicht werden.

ausreichen, zeigen die folgenden Bilder, bei denen den Oszillogrammen die entsprechenden Ausschnitte aus der Photomontage hinterlegt wurden; dabei liessen sich geometrische Ungenauigkeiten in der Größenordnung weniger Grade vom Beobachterstandpunkt ausgehend infolge zum Rande hin zunehmender Vergrößerung von Photoobjektiven nicht vermeiden. Zudem wurden die Photoaufnahmen zu einem anderen Zeitpunkt nachgefertigt, da eine ursprünglich beabsichtigte Projektion der Skanlinien und deren Winkelteilung ohne dieses Hilfsmittel unangemessen aufwendig gewesen wäre und keine gute Interpretation erlaubt hätte. Es sollte besser zu solchen Zwecken gleichzeitig zu jeder IR-Messung eine Panoramalichtbildaufnahme von der exakten Meßebene des Geräts aus vorgenommen werden.

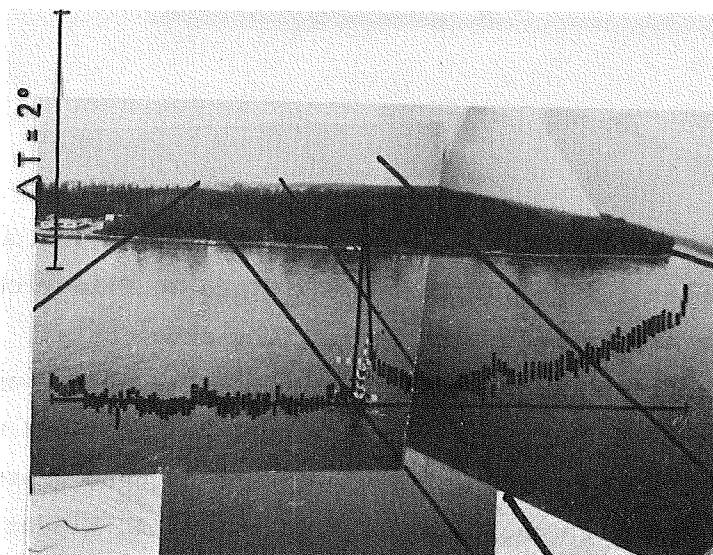


Abb. 4151-2: Temperaturprofil. Verlauf aus Abb. 4151-1 ersichtlich.

Schnitt 1;  $\pm 40^\circ$  stromauf-und abwärts des Meßdalgens;  $0,5^\circ$ / Teilung. Ponton  $1,5^\circ$  über Wassertemperatur, möglicherweise ist im Kielwasser, das aus stark hochgewirbelten Tiefenwasser besteht, eine minimale Erhöhung der Oberflächentemperatur in der Größenordnung von  $0,2^\circ$  zu erkennen, nach leichtem Absinken scheint zum Ufer hin eine Erwärmung um  $0,5$  bis  $0,7^\circ$  vorzuliegen, die Schnitt 5 jedoch nicht bestätigt.

Zeitpunkt : 14.30 Uhr

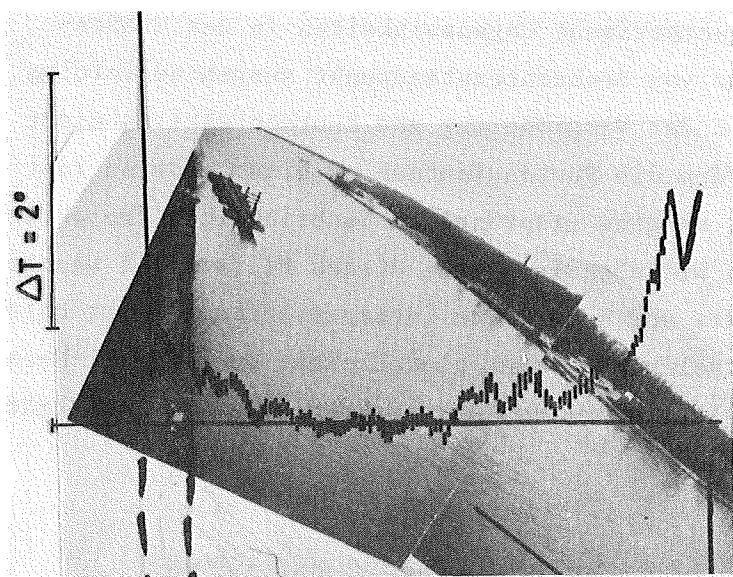
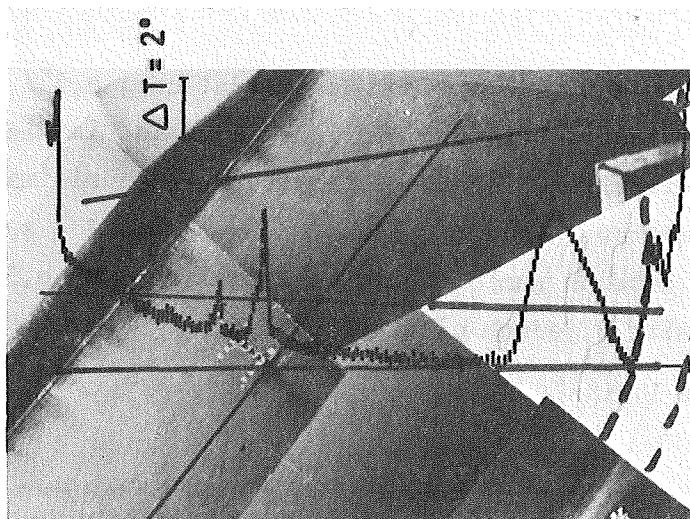


Abb. 4151-3:

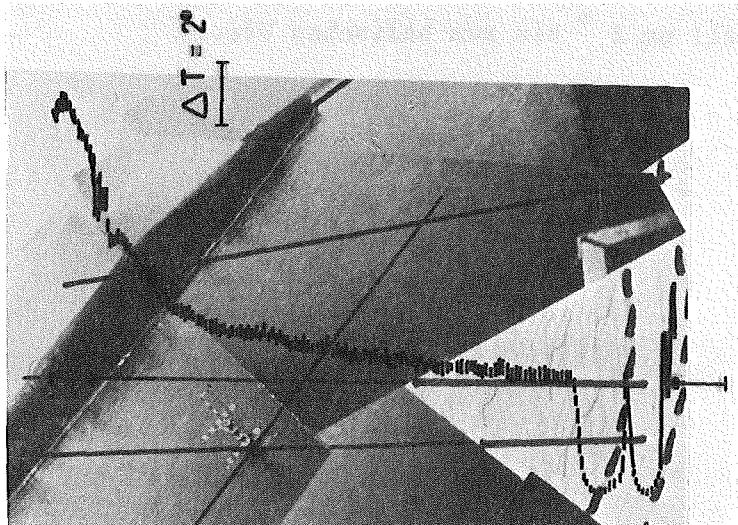
Schnitt 2 a) Stromaufwärts des Dalbens quer zur Fließrichtung, in Nähe des pfälzischen ( gegenüberliegenden) Ufers in Fließrichtung abschwenkend ( nur bei eingehender Betrachtung einsichtig). Von links nach rechts: "warmer" Wald, "kühler" Weg, Böschung wärmer bis auf wellenumspülte Kaltzone. Wasserkörper-vom Ufer bis wasserwärts 20 m- Abfall um ca.  $0,5^{\circ}$  , jedoch bereits in Höhe Fahrwasserrinne ca.  $0,3^{\circ}$  Anstieg, nochmals  $0,2^{\circ}$  in Ufernähe. Wieder kalte Wellenzone und warme Böschung, kalter Weg, warmer Wald, kalter Horizont. (Zeit: 14.45 Uhr )



← Abb. 4151-4:

Schnitt 3)  $2^{\circ}$  / Teilung, in Höhe Dalben, Ponton (Strom km 394,36) und Ausleger streifend, schräg zur Flußrichtung, gegen das pfälzische Ufer hin stromauf schwenkend. V.l.n.r. ganz kurz der warme Wald, kalter Weg, warme Böschung,  $25^{\circ}$  Temperaturabfall vom Ufer bis Standort Dalben, Peak durch oberen Ausleger, 2. Peak von Aufbau und Ponton, ca  $1^{\circ}$  Abfall bis Nähe des badischen Ufers, breiter Peak durch das sehr nahe und daher nicht fokussierte Geländer der Beobachtungsplattform, die weitere Zuordnung hängt stark vom genauen Standpunkt des Scanners ab, der nicht im Photo reproduziert ist.

Zeitpunkt: ca. 15 Uhr ( d.h. tiefstehende Sonne)



← Abb. 4151-5:

Schnitt 4) fast parallel zu 3, ca. 10 m stromabwärts verschoben, den Dalben gerade nicht mehr streifend, aber 2 Stunden später, d.h. nach Sonnenuntergang. Im Wasser fast identischer Verlauf, aber pfälzer Böschung und Wald deutlich kühler, kühle Wellenzone als relativer Peak nach unten ausgeprägt, Geländer der Plattform kälter als sonstige Umgebung.

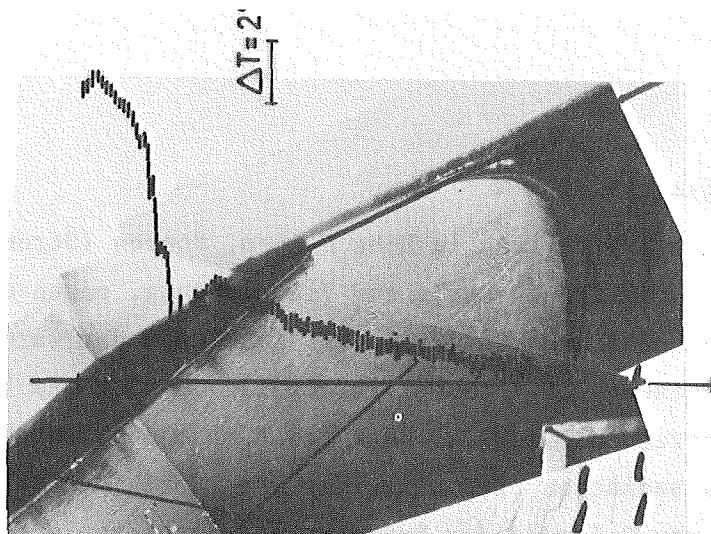


Abb. 4151-6:

Schnitt 5 ) Quer zum Strom von km 394,50 auf der pfälz. Seite nach 394,56 auf der badischen, fast gerader Schnitt. Nach Temperaturanstieg um ca.  $1^\circ$  vom pfälz. Ufer zur Fahrwasserrinne hin fast gleichmäßiger Abfall um  $2^\circ$  bis zum badischen Ufer.

Zeitpunkt: 17.15.

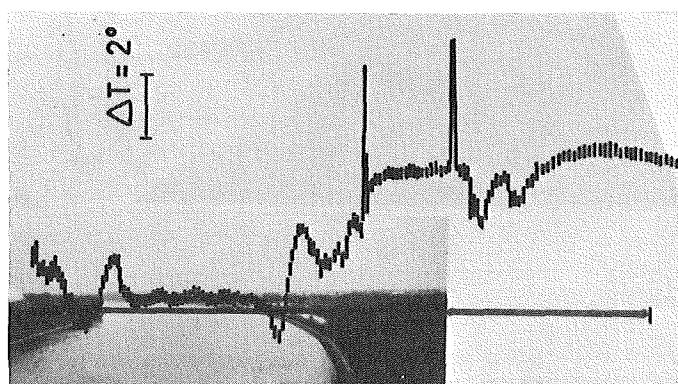


Abb. 4151-7:

Schnitt 6 ) Im Bereich der Strombiegung nach Speyer mit dem badischen Kieshafen sehr flach streifender Schnitt. Im Wasserbereich auf der pfälzischen Seite im Flachwasser breiter Peak mit ca.  $1^\circ$  Scheitelwert, sonst homogener Verlauf, die steilen Peaks rechts im Hafenbereich stammen von Schiffen bzw. Kaminen.

Zeitpunkt: 17.30 Uhr.

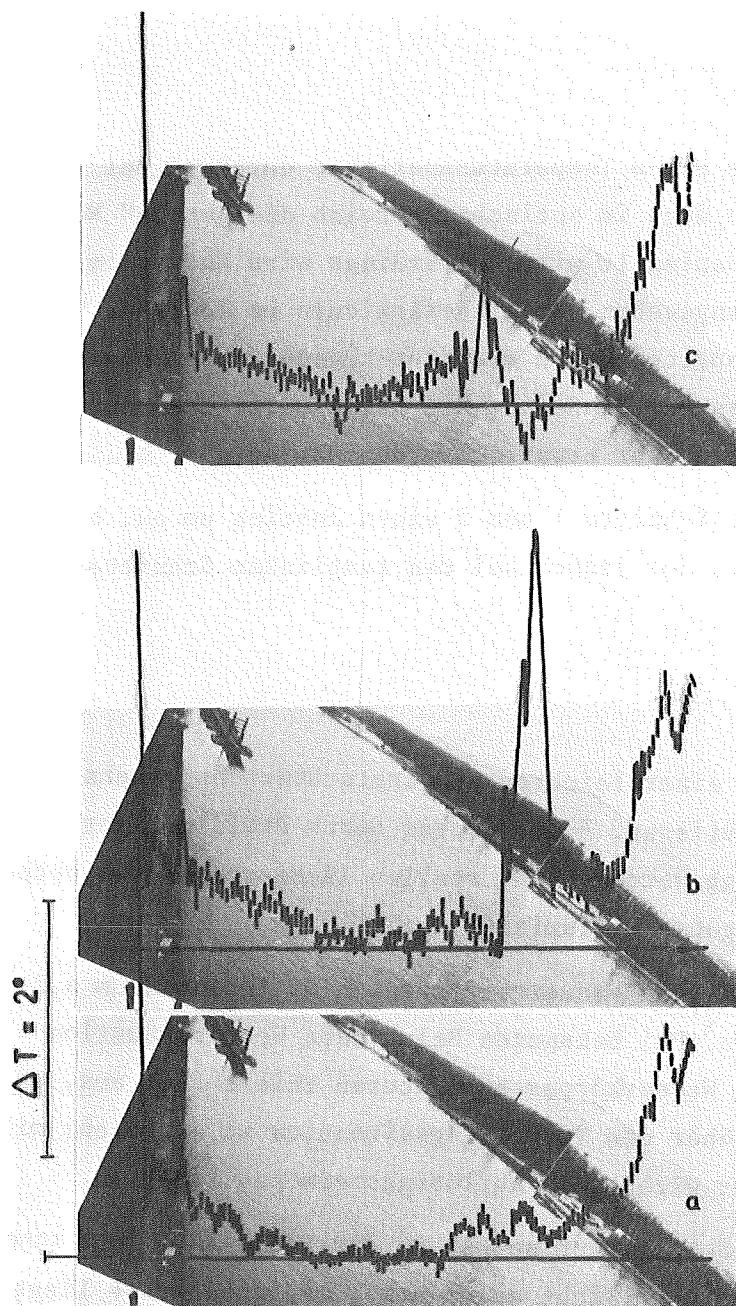


Abb. 4151-8:  
Temperaturprofil.  
(Erläuterungen s. Text!)

Das Tiefenwasser ist, wie aus einer zeitlichen Serie 2 a, 2 b, 2 c (Bild 4151-8) zu erkennen ist, ca.  $0,7^\circ$  kälter als die Oberfläche im Bereich der Fahrtrinne. 2 a zeigt den Schnitt nach einer möglichst langen Schiffahrtspause (ca 5 min. ohne Passage), 2 b während und 2 c kurz nach der Passage eines vollbeladenen Bergfahrers. In 2b deutlich zu erkennen: (v.l.n.r.) Kühlwasser - auslaß seitlich, Schiffswand, Aufbau Maschinenhaus. Nach der Passage bleibt das Kühlwasser, zur Strommitte hin verdrängt und verbreitert, sichtbar, und es erscheint das kalte, aufgewirbelte Tiefenwasser. In dieser Folge kann der Einfluß von Reflexionen auf diese relative Aussage klar ausgeschlossen werden, der Effekt überwiegt deutlich den Rauschpegel.

#### Zusammenschau:

Gemeinsam zeigen die Schnitte 2 bis 6 eine Oberflächentemperaturerhöhung auf Seiten des pfälzischen Ufers, und zwar um jeweils maximal  $0,7^\circ$ ,  $2,5^\circ$ ,  $3,5^\circ$ ,  $2,3^\circ$  und  $1,8^\circ$  mit qualitativ uneinheitlichen Verläufen. Dabei liegen die je-

weils beobachteten Bereiche eines Temperaturanstieges durchweg bei flach streifenden Winkeln, unter denen auch im optischen Bereich die "warme" Waldzone auf der Wasseroberfläche gespiegelt wird. Allerdings wird Wasser im IR-Bereich als fast schwarzer Körper angesehen, sodaß Reflexionen um 10 % der beobachteten Waldemission die Verläufe nur teilweise erklären können; zudem bleibt auch vielfach (2,4 und 5) ein Anstieg zur Flussmitte hin übrig unter Beobachtungswinkeln, unter denen keine Reflexionen mehr erwartet werden würden.

Ebenso gemeinsam zeigen die Schnitte 1 und 2 einen Anstieg um ca. 0,5 bzw.  $0,7^{\circ}$  zum badischen Ufer hin, der jedoch bei den restlichen Schnitten deutlich nicht vorhanden ist.

Folgerungen:

- 1.) Es scheint ein Hinweis einer leichten Temperaturüberhöhung nahe des pfälzischen Ufers vorzuliegen. Falls dieser durch Profilmeßfahrten auch im Wasser bestätigt werden kann, stellen IR-Messungen vom vorhandenen Meßmast aus ein gutes Hilfsmittel dar.
- 2.) Es können auch bei niedrigen Wassertemperaturen Differenzen um  $0,2^{\circ}$  gut nachgewiesen werden. Bei bekannten Relationen Wettersituation- Verhältnis Oberflächen- zu Wasserkörpertemperaturen reicht dies aus, um ausreichende Übersichten über die Verteilungssituation zu erzielen; mit steigender Wassertemperatur wächst das Auflösungsvermögen rasch an.
- 3.) Zumindest die oberste Schicht ist selbst in der Fahrwasserrinne schon durch schwache Sonneneinstrahlung leicht aufgewärmt, möglicherweise liegt jedoch - entgegen oft vorgetragener Ansichten- auch eine in die Tiefe reichende Vertikalschichtung vor. Dies muß durch Messungen geklärt werden.
- 4.) Künftige IR-Messungen, deren Durchführung noch von der Klärung des Punktes 1 abhängen, bedürfen sorgfältigerer begleitender Maßnahmen (Photographien, punktuelle Messungen, Markierungen), um über exakte Grundlagen zu einer quantitativen Auswertung zu verfügen. Zahlen aus diesem Bericht sollten allenfalls als Anhaltswert zur Beurteilung des Verfahrens verstanden werden.
- 5.) Im Bereich des Meßdalbens selbst scheint eine sehr homogene Wasseroberflächentemperaturverteilung zu bestehen.

Wir danken an dieser Stelle ganz besonders Herrn Euskirchen von der Firma AGA Optronik, der durch seinen persönlichen Einsatz, seine fachliche Erfahrung und durch die Bereitstellung der Geräte die Durchführung dieses Testes ermöglichte und wesentlich zum Ergebnis beigetragen hat.

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 Kühlturmfahten in die Atmosphäre zu berechnen, da während der Aufstiegsphase die für die Auswirkungen auf die Umgebung wesentlichen Prozesse stattfinden.

Das im ersten Halbjahr 1974 erstellte Computer-Programm zur numerischen Berechnung des Aufstiegs von Kühlturmfahten wurde erweitert. Es liefert jetzt zusätzlich zur Berechnung der dreidimensionalen Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit, der Temperatur und der spezifischen Feuchte auch noch die des Regentröpfchengehaltes in der Kühlturmfahne.

Zur Bestimmung der Programmparameter sind Vergleiche zwischen an bestehenden Kühltürmen beobachteten bzw. vermessenen und berechneten Fahnen notwendig. Da sich die veröffentlichten Beobachtungen meist nur auf den sichtbaren Schwaden beziehen, beschränkt sich dieser Vergleich vorerst auf diesen, allerdings sehr wichtigen Teil der Fahne.

Die Abb. 4152-1 zeigt das Ergebnis eines solchen Vergleichs. Die ausgezogene Kurve stellt den am 4.10.1973, 0.30 Uhr, beobachteten Schwaden der Kühltürme in Neurath /1/ dar. Die gestrichelte Linie umschließt den aufgrund der Rechnung bestimmten Schwaden. Basis für diese Rechnung waren die in Neurath gemessenen Emissions- und Umgebungsbedingungen. Die Übereinstimmung der beiden Schwaden ist zufriedenstellend, wenn man berücksichtigt, daß das Programm vorerst nur eine lineare Überlagerung mehrerer Kühlturmfahten ermöglicht. In den Abbildungen 4152-2 bis 4152-4 sind die berechneten Verteilungen der Aufstiegs geschwindigkeit, der Temperatur und der spezifischen Feuchte in einem Vertikalschnitt durch die Fahne eines Kühlturms enthalten.

Die Vertikalgeschwindigkeit in der Kühlturmfahne nimmt durch den Auftrieb zu, bis das Endringen von Umgebungsluft den Auftrieg kompensiert. Auffällig ist die asymmetrische Verteilung mit einem starken Gradienten auf der Luv-Seite der Fahne.

Im Gegensatz zur Vertikalgeschwindigkeit nehmen die Übertemperatur und die Feuchte in der Fahne aufgrund des Eindringens von Umgebungs- luft rasch mit der Höhe ab. Der maximale spezifische Regentröpfchen- gehalt in der Fahne lag unter  $1,5 \cdot 10^{-3}$  g/kg.

Die begonnenen Vergleiche werden fortgesetzt, um möglichst realistische Ergebnisse mit dem Rechenprogramm erzielen zu können. Im Anschluß daran wird zum Zwecke von statistischen Untersuchungen ein einfacheres eindimensionales Rechenprogramm mit wesentlich geringerem Bedarf an Computerzeit erstellt. Die statistischen Untersuchungen sollen die Beurteilung von Standorten mit unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen sowie verschiedenen Kühlurmleistungen ermöglichen.

Zitierte Literatur:

/1/ E. Baer, et al.,  
Untersuchungen an einem Naturzug-Naßkühlturm  
Fortschrittsberichte, VDI-Zeitschriften, Reihe 15,  
Nr.5 , Juli 1974

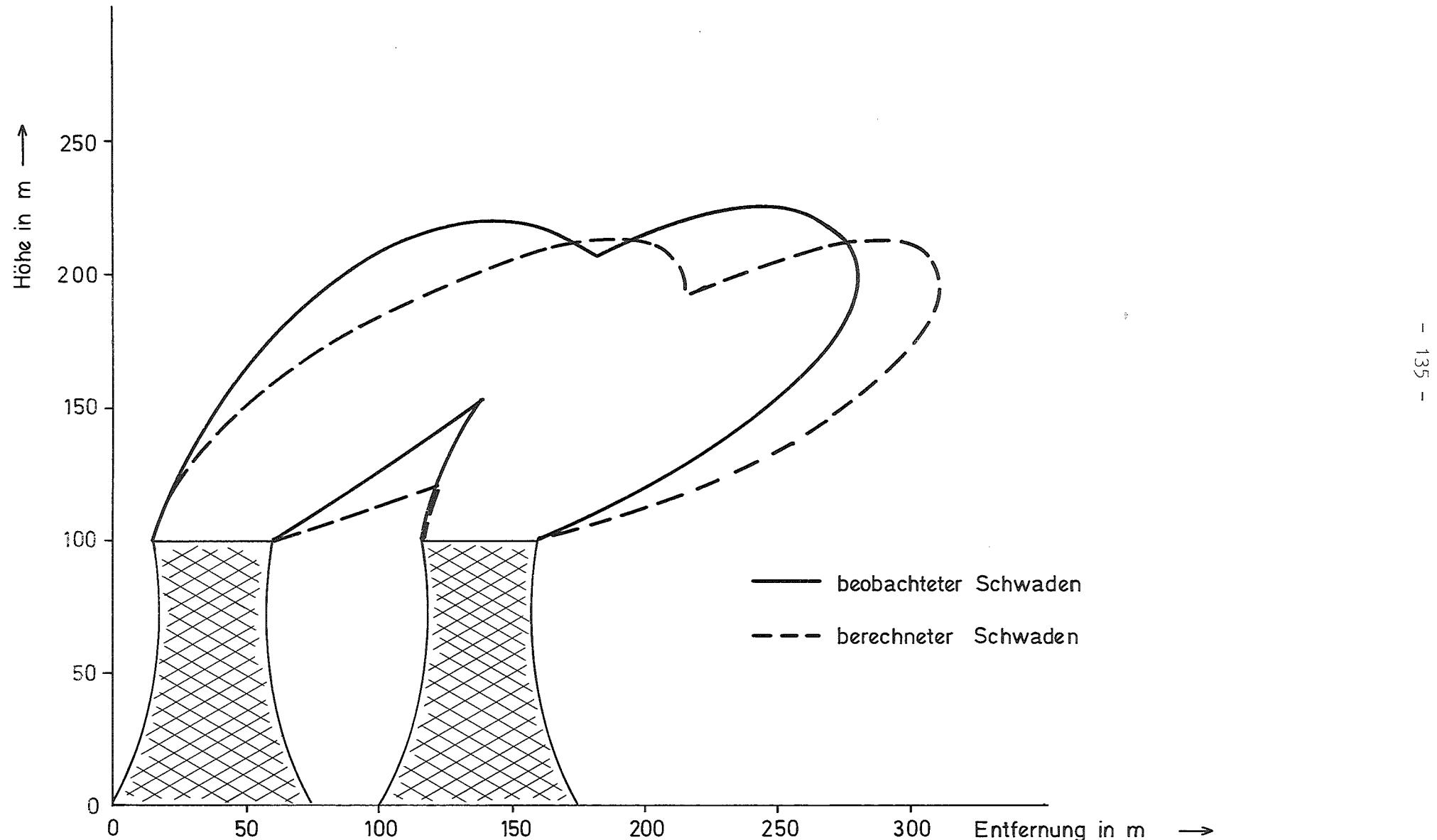


Abb. 4152-1 Sichtbarer Schwaden aus den Kühltürmen in Neurath, 4.10.73 0<sup>30</sup> Uhr

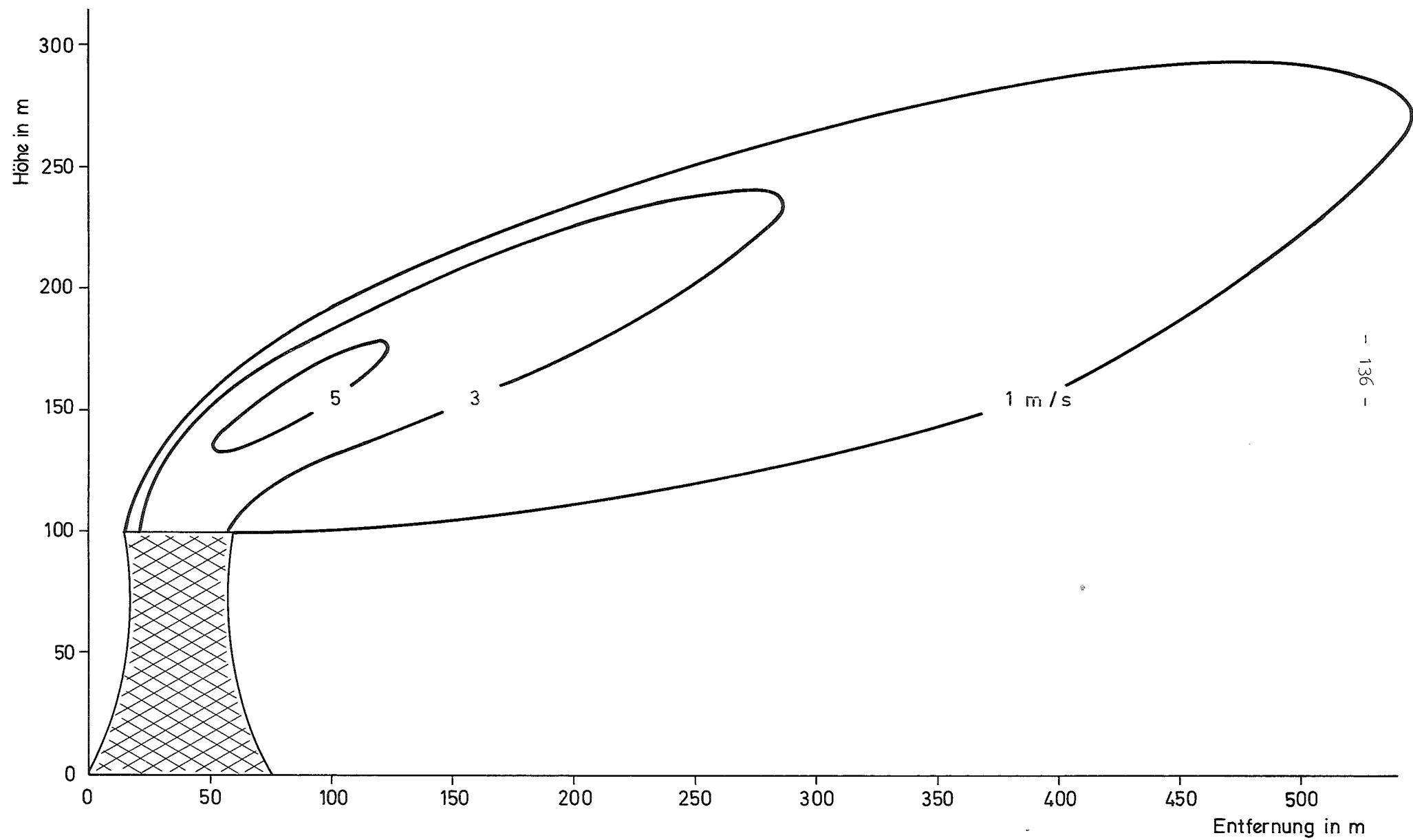


Abb. 4152 - 2 Verteilung der Vertikalgeschwindigkeit in der Fahne  
(Berechnet mit den Daten am Kühlurm Neurath vom 4.10.73 0<sup>30</sup> Uhr)

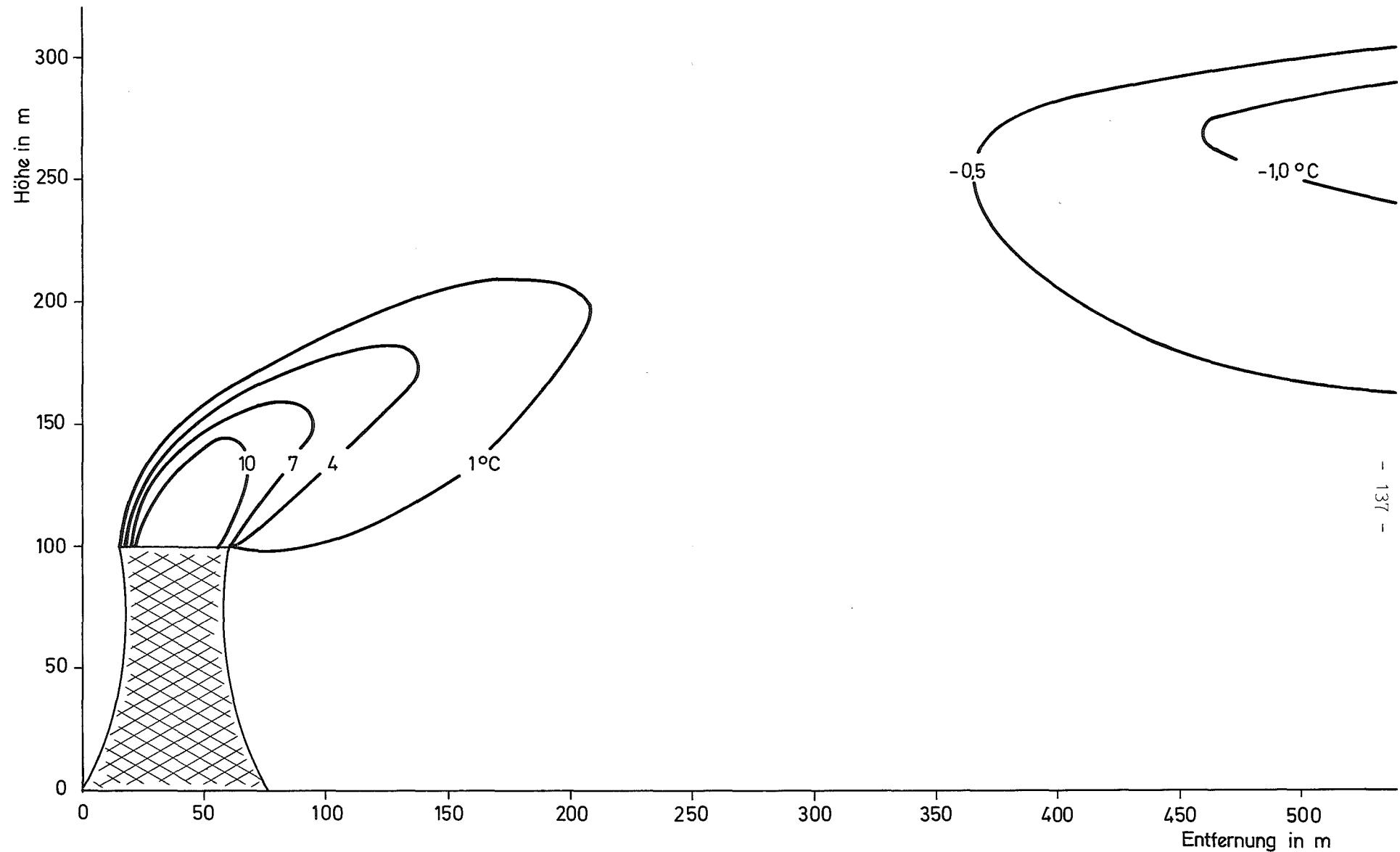


Abb. 4152 - 3 Verteilung der Temperaturerhöhung in der Fahne  
(Berechnet mit den Daten am Kühlturn Neurath vom 4.10.73 0<sup>30</sup> Uhr)

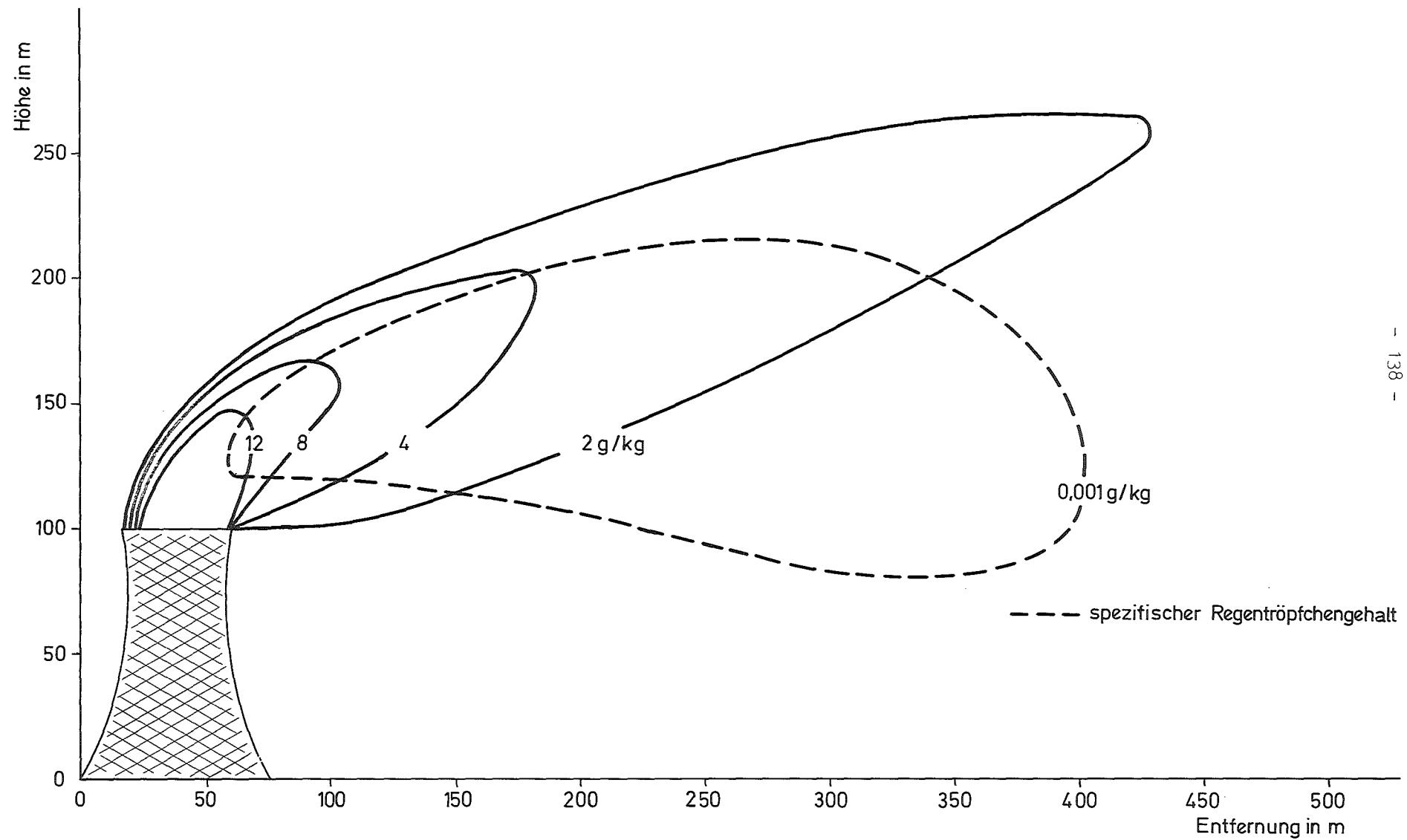


Abb. 4152-4 Verteilung der spezifischen Feuchteerhöhung in der Fahne  
 (Berechnet mit den Daten am Kühlurm Neurath vom 4.10.73 0<sup>30</sup> Uhr)

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

1. MARVIKEN-Blowdown-Experimente

1.1 Auswertung der MARVIKEN I-Meßergebnisse

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

Im Berichtszeitraum wurden die restlichen Beiträge zu den MARVIKEN-Reports MXA-1-115, MXA-1-221, MXA-1-222 und MXA-1-223 fertiggestellt und an die Projektleitung nach Schweden übersandt. In diesen Berichten sind die Auswertemethoden und Fehlerbandbreiten sowie die GfK-Meßergebnisse zusammenfassend dargestellt und diskutiert.

Die vertiefte Auswertung der Meßergebnisse wurde weitergeführt. Der Schwerpunkt der Arbeiten konzentriert sich im gegenwärtigen Stadium auf die Untersuchung der möglichen System-Eigenschwingungen in Zusammenhang mit den bei Versuch Nr. 10 und Nr. 13 besonders deutlich in Erscheinung getretenen Schwingungsphänomenen.

Bei Versuch Nr. 10 wurden etwa 70 sec nach Blowdownbeginn in der Kondensationskammer Hubschwingungen der gesamten Spiegelfläche der Wasservorlage im Frequenzbereich von ca. 3 Hz beobachtet. Dabei wurden auch in der Dampfverteilerkammer aufklingende Druckamplituden festgestellt.

Bei Versuch Nr. 13, der mit schwacher Dampfvorspülung der Druckkammer durchgeführt wurde, traten ebenfalls Schwingungserscheinungen auf. Dabei waren die in der Wasservorlage und in der Dampfverteilerkammer gemessenen Druckamplituden mit Abstand größer als bei allen übrigen Versuchen. Die bei Versuch Nr. 10 aufgetretenen Hubschwingungen der gesamten Wasserspiegelfläche wurden jedoch nicht beobachtet.

Es ist anzunehmen, daß die Schwingungsphänomene in engem Zusammenhang mit den Wellenausbreitungsvorgängen im Anströmsystem stehen, die von der Geometrie, von der Strömungsgeschwindigkeit und der Schallgeschwindigkeit abhängen. Die Strömungsgeschwindigkeit wiederum ist eine Funktion der Massenströme und die Schallgeschwindigkeit ist stark abhängig von der lokalen Gemischzusammensetzung (Gasanteil/Flüssigkeitsanteil) 1,2,3. Da

diese Einflußparameter auch noch in anderer Hinsicht bedeutungsvoll sind (s. Kap. 1.2), ihre Ermittlung bei Blowdownvorgängen aber andererseits noch Probleme aufwirft, wurden neben den theoretischen Untersuchungen auch experimentelle Arbeiten zur Entwicklung eines hierfür geeigneten Meßverfahrens in Angriff genommen.

### 1.2 Experimentelle Arbeiten (D.Barschdorff<sup>x</sup>, E.Erb, P.Philipp, E.Wolf)

Für eine Analyse der im Druckabbausystem beobachteten Schwingungen soll die volumetrische Gemischzusammensetzung einer Mehrphasenströmung Luft-Dampf-Flüssigkeit kontinuierlich gemessen werden. Diskontinuierliche Messungen (Probenentnahmen) stellen nur einen Behelf dar und geben bei instationären Strömungserscheinungen keine Auskunft über kurzzeitige Fluktuationen.

Da der Strömung beigemischte Luftanteil in hohem Maß die Intensität der Kondensations-Druckpulsationen beeinflußt, müssen die Konzentrationen Luft-Wasserdampf und Wasserdampf-Flüssigkeit sowie die Strömungsgeschwindigkeiten ermittelt werden. Die in MARVIKEN eingesetzte GfK-Meßeinrichtung II gestattete zwar vom Prinzip her die Messung dieser Größen, doch sollten aus heutiger Sicht die Meßgenauigkeit und die Zeitauflösung verbessert werden.

Im Hinblick auf das MARVIKEN-Folgeprogramm wurde deshalb mit der Entwicklung eines geeigneten Meßverfahrens begonnen. Es handelt sich dabei um eine Meßmethode, bei der die lokale Gemischzusammensetzung (Dichte) durch Infrarot-absorption 4,5,6 und die Strömungsgeschwindigkeit der beiden Phasen über eine Laufzeitmessung durch Korrelation der stochastischen Dichtesignalschwankungen bestimmt werden 7,8.

Das Entwicklungsvorhaben wird zusammen mit dem Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) an der Universität Karlsruhe durchgeführt, da dort durch die Arbeiten von Herrn Dr. Barschdorff auf dem Gebiet der Infrarot-Meßtechnik bereits umfangreiche Erfahrungen vorliegen. Da an diesem Institut ferner ein Dampfkreislauf und die notwendigen Hilfseinrichtungen vorhanden sind, werden auch die Eignungstests und Parameterversuche dort durchgeführt. Für die Geschwindigkeitsmessung steht eine speziell für Laufzeitmessungen vom Lehrstuhl für Meß- und Regelungstechnik (Prof. Mesch) entwickelte Korrelationsmeßeinrichtung zur Verfügung, und bei Sachfragen können ggf. Mitarbeiter dieses Lehrstuhls beratend hinzugezogen werden.

---

<sup>x</sup> Dr.-Ing. D.Barschdorff ist Wiss.Rat u. Professor am Institut für Thermische Strömungsmaschinen der Universität Karsruhe

Die Eignungstests und Parameteruntersuchungen machen eine Versuchsstrecke erforderlich, die gemeinsam geplant und vom IRE gefertigt wurde. Sie wurde inzwischen am ITS in den vorhandenen Dampfkreislauf eingebaut und einem Dichtetest unterworfen. Auf Abb. 1 ist die Versuchsstrecke dargestellt: Sie besteht aus einer Rohrschleife in Haarnadelform mit einem lichten Rohrdurchmesser von 150 mm. In dem nach unten durchströmten Teil der Rohrschleife befindet sich die eigentliche Meßstrecke mit den zu erprobenden Einrichtungen.

Die Versuchsstrecke wird in der Anströmung mit Heißdampf von max. 1,5 bar und 160 °C beschickt, dem in der aufwärts durchströmten Rohrschleife Luft zugemischt wird. In den mit Luft vermischten Heißdampf wird durch ein Düsensystem im oberen Teil der abwärts durchströmten Rohrschleife Wasser eingespritzt, um den jeweils gewünschten Dampfzustand einzustellen. Der Heißdampfdurchsatz beträgt max. 2 t/h und die Strömungsgeschwindigkeit ca. 41 m/s. Die Strecke kann sowohl stationär als auch instationär betrieben werden.

Bei der Versuchsdurchführung werden die Einflußparameter auf die MARVIKEN-Verhältnisse abgestimmt. Darüberhinaus ist geplant, die Grenzen des Wasseranteils (nach oben) zu untersuchen, innerhalb derer die Infrarotabsorption noch zuverlässig funktioniert. Wenn sich das Meßprinzip als zweckmäßig erweist, soll eine speziell für MARVIKEN II zugeschnittene Meßeinrichtung gebaut werden.

## 2. Versuche im Kernkraftwerk Brunsbüttel

(K.D.Appelt, M.Cramer, F.Eberle, J.Kadlec, P.Klíma, G.Lang)

Im Rahmen der nichtnuklearen Heißtests des Kernkraftwerkes Brunsbüttel wurden im Oktober 1974 Entlastungsventilversuche durchgeführt, bei denen der Dampf aus dem Reaktordruckgefäß über die Entlastungsventile und Kondensationsdüsen in die Wasservorlage des Druckabbausystems abgeblasen wurde. An diesen Großexperimenten hat sich das Institut für Reaktorentwicklung mit einer eigenen Instrumentierung beteiligt. Für die entsprechenden Messungen, deren Ziel die experimentelle Bestimmung des beim Abblasevorgang induzierten Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage der Kondensationskammer und der entsprechenden dynamischen Antwort des Containments war, wurde das Containment mit 20 Druckaufnehmern (in der Wasservorlage) und 35 Beschleunigungsaufnehmern (an Containment-Kugelschale und Betonstrukturen) instrumentiert. Insgesamt wurden 90 Abblaseversuche mit verschiedenen Parametern (Anfangsdruck im Reaktordruckgefäß, Anfangstemperatur in der Wasservorlage,

Abblasedauer und Anzahl der aktiven Abblaseventile) durchgeführt. Die Auswertung der gemessenen und auf Magnetband registrierten Signale wurde im Berichtszeitraum begonnen, so daß bisher nur vorläufige Resultate zur Verfügung stehen.

Der Zeitverlauf der in der Wasservorlage in der Nähe einer Abblasedüse gemessenen Druckpulsationen (Abblasetest Nr. 67, Druckaufnehmer Nr. DA 21) ist z.B. in Abb. 4211-2 schematisch dargestellt. Es handelt sich um einen langzeitigen Kondensationsversuch mit einem aktiven Abblaseventil, bei dem nach ca. 210 sec noch ein zweites Abblaseventil zugeschaltet wurde. Das erste Diagramm in Abb. 4211-2 zeigt den Gesamtverlauf der gemessenen Druckpulsationen. Aus diesem Diagramm folgt, daß das Zuschalten des zweiten Abblaseventils einen gut erkennbaren Anstieg der Druckpulsationen hervorruft. In den folgenden drei Diagrammen sind die Signale aus der Anfangsphase und aus den darauffolgenden quasistationären Phasen dargestellt. Die letzten zwei Diagramme zeigen, daß in den randomen Druckpulsationssignalen quasiperiodische Anteile enthalten sind. Die Kreuzspektralanalyse der Druckpulsationssignale von verschiedenen Druckaufnehmern deutet darauf hin, daß in der Wasservorlage ein quasiperiodisches Druckpulsationsfeld mit einer endlichen Anzahl von Druckwellen in Umfangsrichtung gebildet wird. Die gemessene dynamische Reaktion der Containmentkugelschale ist mit diesem Druckpulsationsfeld eng gekoppelt.

### 3. Berechnung dynamischer Containmentbeanspruchungen

(B. Göller, B.M. Laursen, E.G. Schlechtendahl)

Im Berichtszeitraum wurden Eigenschwingungsformen und Eigenfrequenzen des Brunsbüttel Containments mit dem ICES-Subsystem DYNAL berechnet. Dazu wurden zunächst Finite-Element-Modelle unterschiedlichen Feinheitsgrades für den kugelförmigen und den zylindrischen Teil der Struktur untersucht, um Aussagen über den erforderlichen und aus Gründen des Rechenaufwandes noch vertretbaren Grad an Detaillierung zu erhalten. Für das Gesamtmodell (bestehend aus etwa 230 Knoten bzw. 350 finiten Elementen) wurde wiederum mit unterschiedlichen Diskretisierungen gerechnet, um so Hinweise auf die Zuverlässigkeit der Ergebnisse zu erhalten. Für die Erzeugung dieser Struktur wurde das ICES-Subsystem TOPOLOGY benutzt, die graphische Darstellung erfolgte mit speziell erstellten FORTRAN-Programmen und dem ICES-Subsystem STRUDL-PLOTS. Zur Analyse des Einflusses des Kondensationswassers auf das Strukturverhalten wurde das von Los Alamos übernommene und als REGENT-Subsystem weiterentwickelte Programm SMAC benutzt. Erste Vergleiche zwischen den berechneten Eigenfrequenzen und den Spitzen des gemessenen Frequenzspektrums wurden durchgeführt.

Als Ergebnis liegen vor die Frequenzen und Schwingungsformen der Eigenschwingungen bis zu etwa 50 Hz. Die unterste Eigenschwingung bei 10 Hz ist eine seitliche Biegeschwingung ("Nicken") der gesamten Struktur. Bei 29 Hz liegt eine Schwingungsform, bei der die Struktur in senkrechter Richtung gedrückt und gedehnt wird. Bei etwa 34 Hz verformt sich die Struktur oval (s. Abb. 4211-3). Ferner liegen zwischen 30 und 40 Hz eine große Zahl von Eigenschwingungen, an denen jedoch nur Teile der Struktur (überwiegend der Innenzylinder bzw. das kegelförmige Dach der Kondensationskammer) beteiligt sind.

Im nächsten Halbjahr werden mit den gemessenen Druckbelastungen transiente Rechnungen durchgeführt. Die daraus ermittelten Containmentbeschleunigungen werden mit den Messungen verglichen. Nach Auswertung weiterer Meßsignale wird der Vergleich zwischen Messung und Rechnung vertieft. Der Einfluß des Kondensationswassers und der Kondensationsrohre wird untersucht.

Literatur:

1 Fischer, M., Karlsruhe:

Zur Dynamik der Wellenausbreitung in der Zweiphasenströmung unter Berücksichtigung von Verdichtungsstößen.

Diss. Uni Karlsruhe (1967), Fakultät für Maschinenbau und Verfahrenstechnik

2 Von Böckh, P. und Chawla, J.M., Karlsruhe:

Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Druckstörung in Flüssigkeits/Gasmischungen.

Brennstoff-Wärme-Kraft 26 (1974) Nr. 2, Februar

3 Sameith, H.:

Untersuchungen zur Ausbreitung von Stoßwellen in relaxierenden Zweikomponenten-Blasengemischen.

KFK 1796 (Mai 1973)

4 Barschdorff, D.:

Infrarot-Feuchtemeßgerät zur Messung der Feuchtigkeit in Gasen.

msr 12 ap (1969) H. 8, S.119-122

5 Barschdorff, D.:

Kurzzeitfeuchtemessung und ihre Anwendung bei Kondensationerscheinungen in Lavaldüsen.

Diss. Uni Karlsruhe (1967), Fakultät für Maschinenbau und Verfahrenstechnik

6 Greenberg, M.:

An Infrared Instrument for the Measurement of the Quality of Steam.

U.S. Navy Marine Engineering Laboratory, Annapolis, Maryland

7 Mesch, F., Daucher, H.-H. und Fritzsche, R., Karlsruhe

Geschwindigkeitsmessung mit Korrelationsverfahren.

Meßtechnik DK 531.767: 53257

8 Mesch, F., Kipphan, H., Universität Karlsruhe:

Solids flow measurement by correlation methods.

Opto-electronics 4 (1972) 451-462

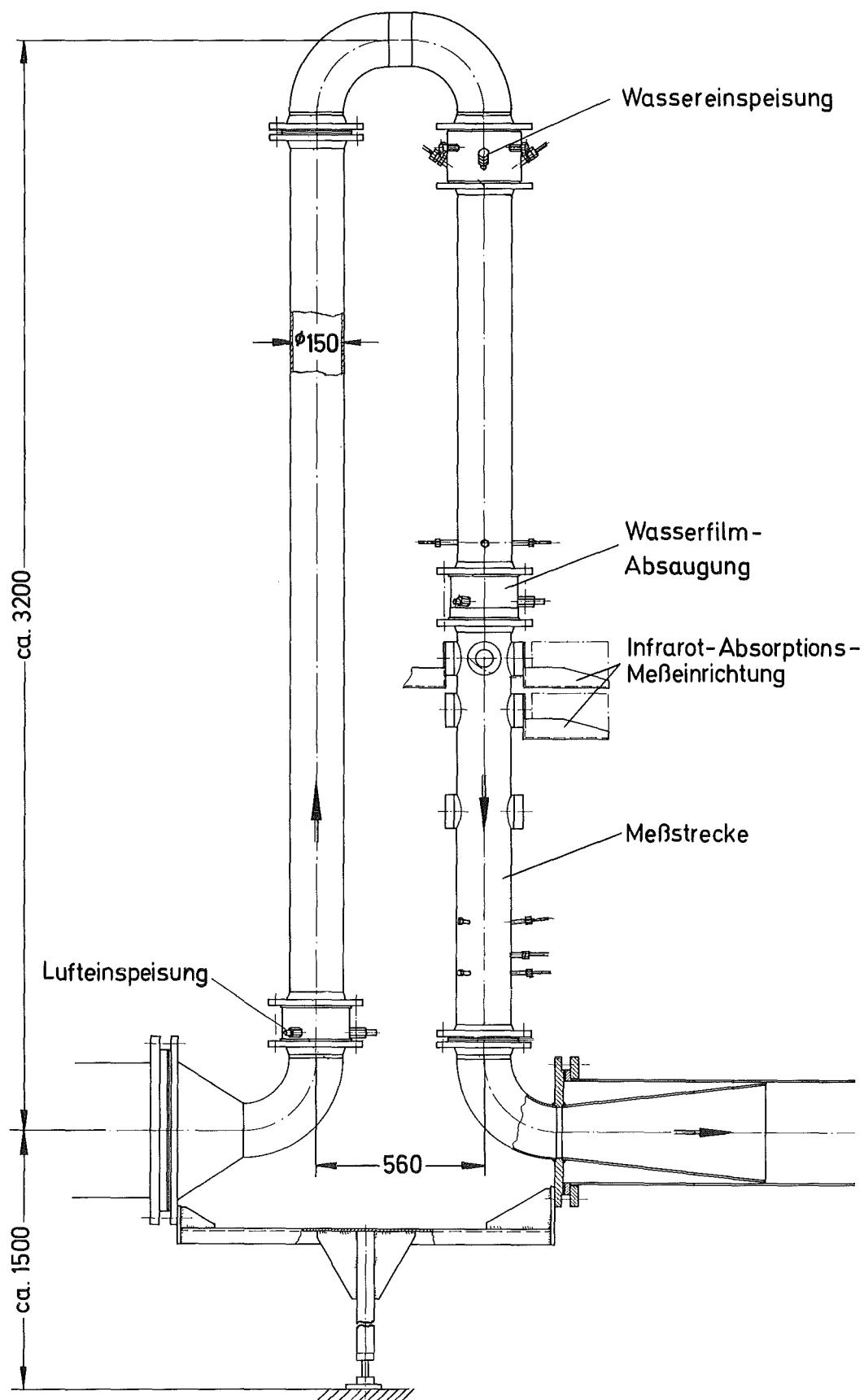


Abb. 4211-1: Versuchsstrecke für Massenstrommessung einer 2-phasigen Mehrkomponentenströmung

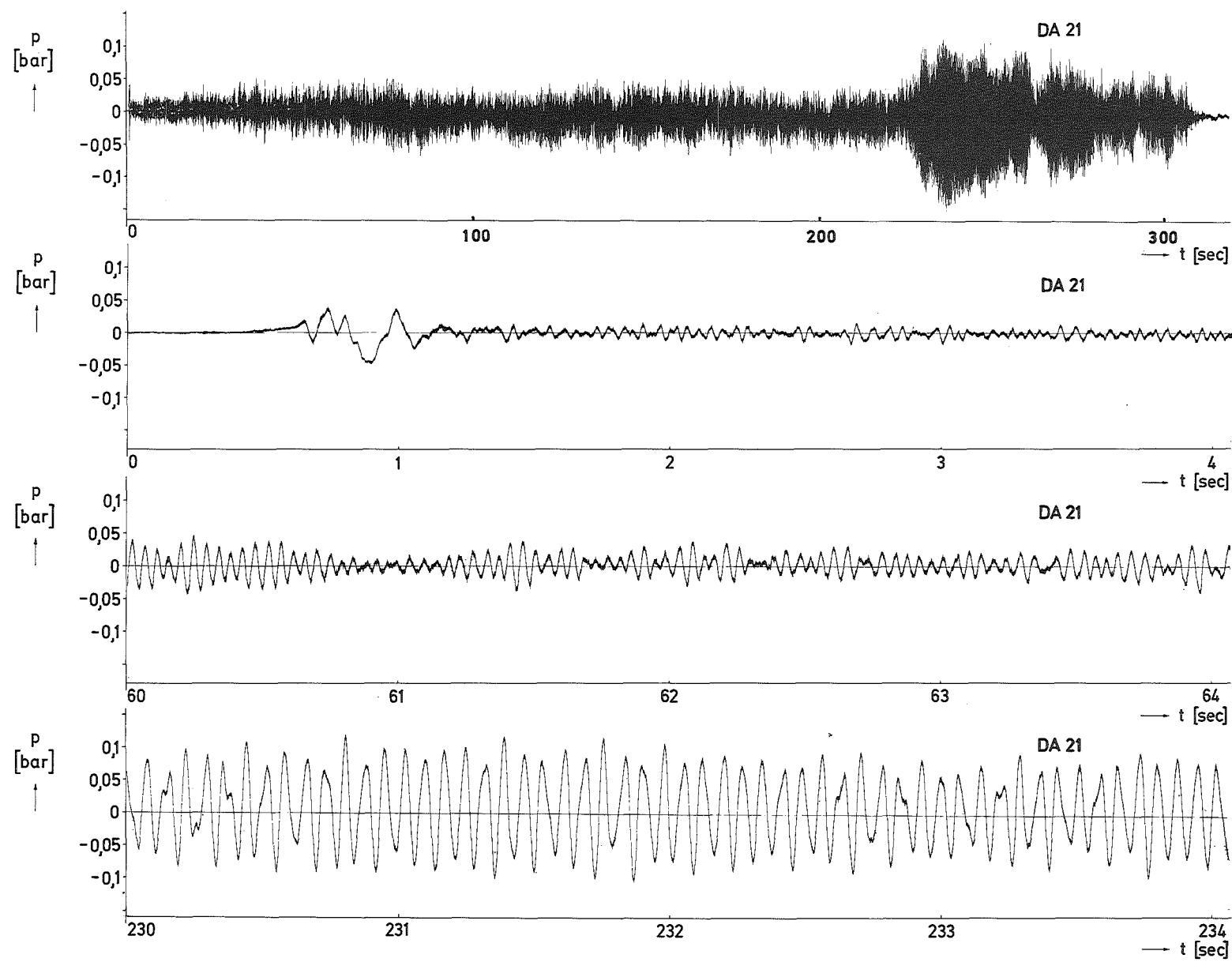


Abb. 4211-2: Zeitverlauf der gemessenen Druckpulsationen im KKB-Containment.  
Abblaseversuch Nr. 67

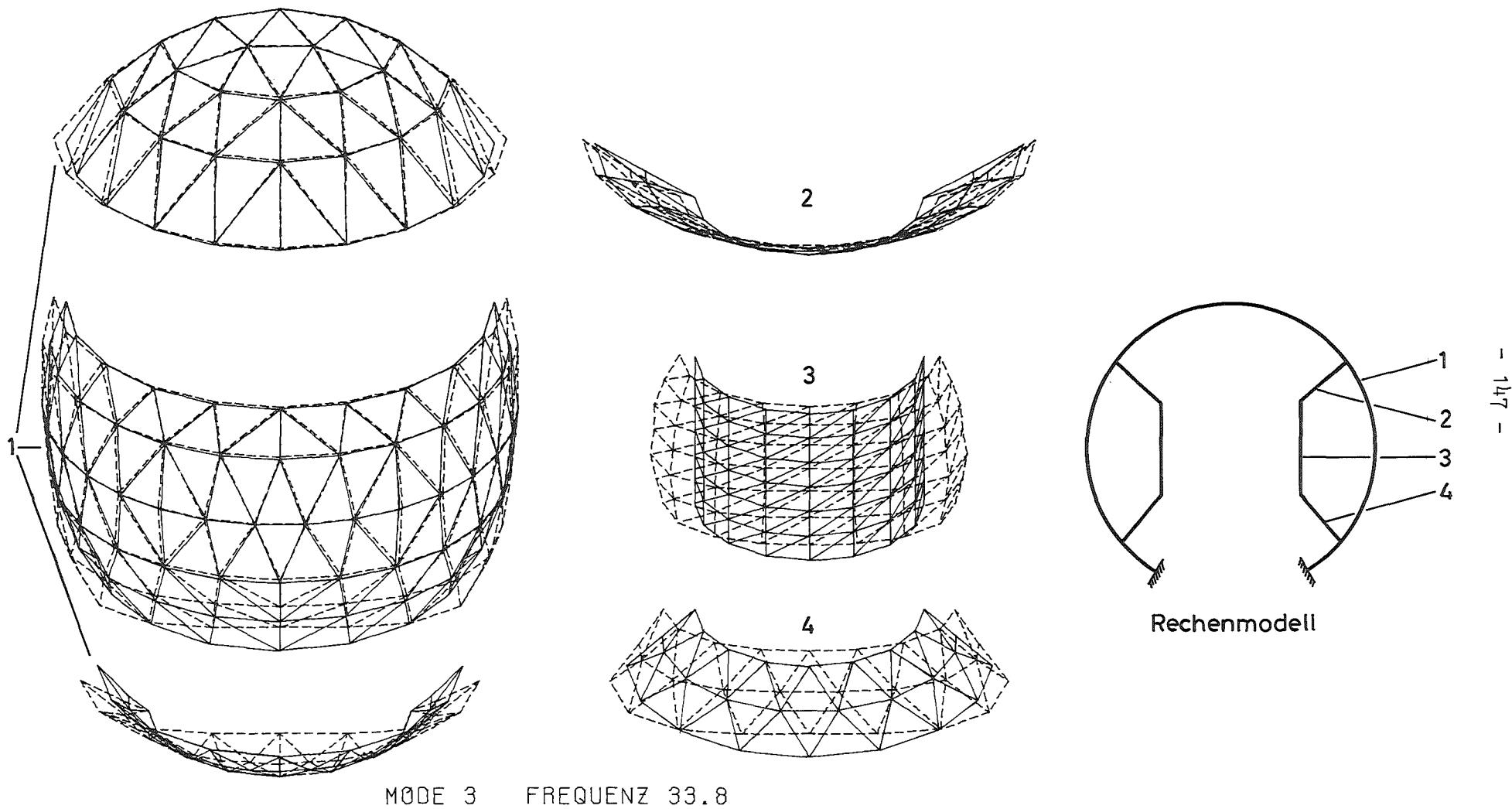


Abb. 4211-3: 3. Eigenschwingungsform des Reaktorsicherheitsbehälters KKB

4212 Dynamische Beanspruchungen von Druckbehältereinbauten bei Kühl-  
mittelverlustunfällen von LWR.  
( R.Krieg, E.G.Schlechtendahl )

Die begleitenden theoretischen Arbeiten zum HDR-Versuchsprogramm wurden Anfang Oktober begonnen. Im Berichtszeitraum konzentrierten sich die Arbeiten auf

- Beteiligung an der Spezifikation für die HDR-Einbauten
- Planung der Entwicklungsarbeiten für die Erstellung gekoppelter fluid-  
struktur-dynamischer Programme
- Beginn der Übernahme geeigneter Fluidodynamikcodes, die als Ausgangsba-  
sis dienen können
- Formulierung eines einfachen Schalenmodells (Membranspannungen) zur  
festigkeitsmäßigen Auslegung des Kernmantels.

Die Programmentwicklungsplanung sieht vor, auf der Fluidodynamikseite von der im YAQUI-Code (aus Los Alamos) enthaltenen ICED-ALE-Technik auszugehen und diesen YAQUI-Code an HDR-Erfordernisse anzupassen. Parallel dazu soll der Einsatz analytischer Lösungen untersucht werden. Es ist vorgesehen, den Fluidodynamikcode mit dem für die spezielle HDR-Geometrie zu erstellen-  
den Strukturmechanikcode zu koppeln, um so die Wechselwirkung zwischen Struktur und Kühlmittel erfassen zu können.

Nachdem zunächst der Code SMAC (für inkompressible Strömungen) übernommen und als REGENT-Subsystem verbessert wurde, haben die Arbeiten zur Übernahme des YAQUI-Codes (kompressibler Strömungen) inzwischen begonnen.

Im nächsten Halbjahr wird voraussichtlich der YAQUI-Code mit den ursprüng-  
lich in ihm enthaltenen Fähigkeiten voll verfügbar gemacht werden. Das Schalenmodell zur nicht-rotationssymmetrischen Analyse des Kernmantels wird erweitert (Berücksichtigung der Biegung) und getestet.

4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen

(R. Löffel, LIT; A. Suppan, RBT )

1. Einleitung

Aufgrund der guten Ergebnisse bei den MARVIKEN-I-Experimenten [1, 2] wird das dort angewandte Radiotracergeschwindigkeitsmeßverfahren im Rahmen von PNS zu einem Massenstrommeßverfahren weiterentwickelt. Eine gleichzeitige, aber dennoch getrennte Geschwindigkeitsmessung beider Phasen soll erreicht und mit einer radiometrischen Dichtemessung gekoppelt werden. Das Verfahren und die erforderlichen Entwicklungsarbeiten sind im 1. Halbjahresbericht 1974 beschrieben [2]. Die unter PNS 4214 laufenden F+E-Arbeiten werden zusätzlich in zwei Sonderforschungsvorhaben vom BMFT unterstützt:

1. RS 146 Entwicklung des Verfahrens insbesondere im Hinblick auf eine Anwendung bei den Blowdown-Experimenten RS 109 in ISPRA. Dabei soll eine Zweiphasengeschwindigkeitsmessung erreicht werden. Dieses Vorhaben hat eine Laufzeit von 3 Jahren.
2. RS 123 Weiterentwicklung und Anwendung des Verfahrens bei den HDR-Blowdown-Experimenten. Dort soll eine Zweiphasenmassenstrommessung durchgeführt werden. Dieses Vorhaben hat eine Laufzeit von 4 - 5 Jahren.

Nachdem im vorhergehenden Halbjahresbericht ein allgemeiner Überblick über die Entwicklung und Anwendung des Verfahrens gegeben wurde, werden hier die im 1. Halbjahr begonnenen und im 2. Halbjahr fortgeführten Arbeiten beschrieben.

## 2. Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

### 2. 1. Arbeiten zur Markierungstechnik

#### 2. 1.1 Markierung\_der\_Gasphase

Zur Markierung der Gasphase wurde Ar-41 gewählt. Es hat sich bereits bei den MARVIKEN-I-Experimenten bewährt und wird auch in Zukunft angewandt werden. Zur Herstellung des erforderlichen Ar-41 wurde von RBT im Auftrag und nach der Konzeption des LIT eine moderne Argonaktivierungsanlage im FR 2 erstellt, die bis zu 100 Ci Ar-41 erzeugen kann. Mit dem in Karlsruhe hergestellten Ar-41 können damit trotz der kurzen Halbwertszeit des Ar-41 von 1,8 h Geschwindigkeitsmessungen im ganzen Bundesgebiet durchgeführt werden. Die Aktivierungsanlage kann auch zur Aktivierung anderer Gase benutzt werden, und ist die erste derartige Einrichtung in Europa. Sie wurde im November 1974 fertiggestellt. Der erste Probebetrieb ist erfolgreich verlaufen, so daß die Anlage ab Januar 1975 betriebsbereit ist.

#### 2.1.2 Markierung\_der\_Flüssigphase

Zur Markierung der Flüssigphase wurde das Radionuklid Mn-56 ausgewählt, da es

- sich energetisch gut von Ar-41 trennen läßt
- eine ähnlich kurze Halbwertszeit (2,5 h) wie Ar-41 hat und
- eine hohe spezifische Aktivität besitzt.

Vorversuche haben gezeigt bzw. bestätigt, daß Mn-acetat eine für unsere Zwecke geeignete Manganverbindung ist, da es

1. sich in Wasser gut löst,
2. keine nennenswerten störenden Fremdaktivitäten aufweist und

### 3. die physikalischen und chemischen Eigenschaften des zu markierenden Wassers nicht entscheidend verändert.

Die zur Aktivierung und Markierung des Wassers mittels Mn-56 erforderlichen Einrichtungen wurden konstruiert und werden zur Zeit gefertigt. Die gesamte Anlage wird ab Januar 1975 zur Verfügung stehen und entspricht in ihrer Kapazität (bis zu 100 Ci Mn-56) und ihrer technischen Konzeption der Argonaktivierungsanlage. Sie kann ebenfalls zur Herstellung anderer Radiotracer benutzt werden. Zur Erprobung der Markierungs-technik im Bereich von  $p = 1$  bis 160 bar und  $t = 20$  bis  $350^{\circ}\text{C}$  wurden Vorbereitungsarbeiten zur Durchführung von Testversuchen an einer Autoklavenanlage des IRB (PNS 4123) begonnen.

Eine endgültige Aussage über die Eignung von Mangan-Verbindungen zur Markierung der Flüssigphase kann erst nach Abschluß der an der Autoklavenanlage geplanten Testversuche im Bereich niedriger bis hoher Drücke und Temperaturen gemacht werden.

## 2.2. Arbeiten zur Injektionstechnik

### 2.2.1 Gasinjektionstechnik

Zur Verbesserung der Gasinjektionstechnik wurde ein neues Injektionsventil entwickelt, das kürzere Injektionsimpulse ermöglicht und damit auch höhere Injektionsfrequenzen zuläßt. Dies wurde erreicht durch Neugestaltung des Ventilkörpers. Die bessere Arbeitsweise des neuen Ventils konnte durch folgende konstruktive Maßnahmen erzielt werden:

- Verbesserung der Gaszuführung zu Magnetanker und Dichtstempel
- Vermeidung von Toträumen im Ventil
- Vereinigung von Ventilkörper und Düse
- kürzere und gerade Gasführung an der Gasaustrittsseite

Außerdem wurden verschiedene Injektionsdüsen konstruiert und gefertigt, die sich insbesondere durch ihre geometrischen Abmessungen unterscheiden. Das neu entwickelte Ventil und verschiedene Injektionsdüsen werden in Abb. 4214-1 zusammen mit dem dazugehörigen Elektromagnetteil und dem Pufferspeicher gezeigt.

Zur Ermittlung der Öffnungszeiten der beiden Ventile - des bisher verwendeten und des neu entwickelten - wurden mit Hilfe schneller Druckaufnehmer die zeitlichen Druckverläufe vor und hinter dem Ventil synchron gemessen und zusammen mit dem Steuerimpuls aufgezeichnet. Der erste Druckaufnehmer war an der Gas-eintrittsseite im Pufferspeicher und der zweite an der Gasaus-trittsseite unmittelbar am Düsenende angebracht. In Abb. 4214-2 ist ein typisches Meßergebnis schematisch dargestellt.

Die an den beiden Ventilen durchgeführten Messungen ergaben, daß das von uns entwickelte Ventil doppelt so schnell wie das bisher verwendete war. Es erreichte Injektionsimpulse von 5 ms Dauer. Da das bisherige Ventil nur 10 ms Impulsdauer zuläßt, ermöglicht das neue Ventil eine Verdoppelung der Injektionsfrequenz und damit auch der Zeitauflösung des Geschwindigkeitsmeßverfahrens.

Außerdem zeigte sich, daß bei Verwendung des neuen Ventils auch aus langen Düsen noch Injektionsimpulse von 15 ms austreten. An dem Grundkonzept der Gasinjektionseinrichtung hat sich im Vergleich zu der bei MARVIKEN I eingesetzten Einrichtung nichts Wesentliches geändert. Sie besteht aus einem mit dem Radiotracer gefüllten Druckspeicher (Membran- oder Kolvenspeicher) und einem vorgesetzten schnellen Injektionsventil mit angepaßter Injektionsdüse. Die Injektionseinrichtung und die entsprechende Steuereinrichtung sind zusammen mit anderen Komponenten in Abb. 4214-3 und Abb. 4214-4 schematisch dargestellt.

### 2.2.2 Flüssiginjektionstechnik

Für die Flüssiginjektion wurden zwei verschiedene Verfahren gewählt. Das erste Verfahren entspricht dem der Gasinjektion. Das zu injizierende Medium (hier Wasser) wird unter hohem Druck in einem Kolbenspeicher vorgespannt und so dem Injektionsventil zugeführt, das mit den gewünschten Impulsbreiten und Impulsfrequenzen arbeitet. Das zweite Verfahren basiert auf dem Prinzip der Einspritzpumpe und ist nur für die Flüssiginjektion brauchbar. Vorläufig sollen beide Verfahren erprobt und angewendet werden. Injektionseinrichtungen beider Verfahren wurden konstruiert und werden Anfang 1975 fertiggestellt sein.

### 2.3. Arbeiten zur Meßtechnik

Es wurde eine Meßeinrichtung konzipiert, die in Abb. 4214-3 gezeigt ist. Eine Geschwindigkeitsmeßeinrichtung, bestehend aus 12 NaJ-Detektoren, 12 Hochspannungseinheiten, 24 Einkanal-diskriminatoren, 24 Frequenzspannungs-Convertern (F-V-Convertern) und einer Mehrkanalbandmaschine wird zur Zeit aufgebaut und soll ab Anfang 1975 bei den Blowdown-Experimenten RS 50 des BATTELLE-Instituts Frankfurt und an der Kaltwasserteststrecke eingesetzt werden. Erste Vorversuche an einer Behelfsteststrecke (Rohrpostanlage) haben gezeigt, daß eine Zweiphasengeschwindigkeitsmessung grundsätzlich möglich ist. Das in Abb. 4214-5 wiedergegebene Schemabild zeigt ein idealisiertes Meßergebnis, das man erhält, wenn es gelingt, durch entsprechenden Aufwand an Meß- und Auswertetechnik, Einstreueffekte zu eliminieren. Dazu werden 1975 weitere intensive Arbeiten notwendig. Bei den durchgeführten Vorversuchen traten jedoch zwei besondere Probleme auf:

1. Die Detektoren wiesen eine Energieshift mit negativer Tendenz bei zunehmender Impulsrate auf. Dies würde erhebliche Schwierigkeiten für die Energietrennung bringen.
2. Es wurden neben den erwarteten auch noch zusätzliche Einstreueffekte festgestellt, deren Ursache erst noch näher untersucht werden muß.

Es gelang inzwischen durch Modifikation der entsprechenden elektronischen Komponenten der Detektoren die Energieshift erheblich zu reduzieren, so daß sie nahezu vernachlässigt werden kann. Weitere Verbesserungsarbeiten werden dazu fortgeführt. Die beobachteten Einstreueffekte müssen detailliert untersucht werden, damit sie beseitigt oder zumindest reduziert werden können. Die durch meßtechnische Maßnahmen nicht verhinderbaren Einstreueffekte müssen schließlich mit Hilfe der Auswertetechnik eliminiert werden.

An einer weiteren Verbesserung (Optimierung und Automatisierung) der Meßeinrichtung vor allem im Hinblick auf hohe Zeitauflösung, minimale Meßfehler und eine für eine Auswertung der Ergebnisse gut geeignete Speicherung der Meßergebnisse wird intensiv gearbeitet. Dazu werden auch eingehende Gespräche mit Herstellern kernstrahlenmeßtechnischer Geräte geführt, da die auf dem Markt angebotenen Geräte u.U. modifiziert werden müssen. Dabei werden vorläufig noch beide Alternativlösungen - die digitale und analoge Aufzeichnung und Auswertung der Ergebnisse - diskutiert und geprüft.

Zur Unterscheidung der Meßsignale der beiden Phasen können neben der Energietrennung, die grundsätzlich als Hauptziel verfolgt wird, zusätzlich noch folgende Informationshilfen mittels der Injektionstechnik benutzt werden:

- intermittierende Injektion der beiden Radiotracer mit gleicher Frequenz
- Injektion beider Tracer mit unterschiedlicher Frequenz

- Eingabe unterschiedlicher Aktivitätsmengen
- Erzeugung unterschiedlicher Aktivitätsverteilungskurven ("Peakformen").

Außerdem ist in bestimmten Fällen eine Identifizierung und Zuordnung der Meßsignale unter Berücksichtigung von Schlupf, Geschwindigkeitsprofil und Vermischungsgrad möglich.

#### 2.4. Arbeiten zur Auswertetechnik

Die Auswertetechnik wurde in zwei verschiedene Bereiche unterteilt:

- a) Strömungstechnik
- b) Programmiertechnik

Beide Aufgabenbereiche werden in enger Verknüpfung und Wechselwirkung mit Markierungs-, Injektions- und Meßtechnik bearbeitet und entwickelt werden. Zwischen den Bereichen Strömungstechnik und Programmiertechnik ist die Abgrenzung aber auch die Kopplung gegeben durch folgende Aufgabenteilung:

- 1) Formulierung und Vorgabe der strömungstechnisch gestellten Aufgabe von a)
- 2) Übertragung der Aufgabe in die Programmiersprache, Erstellung entsprechender Auswerteprogramme und Ermittlung der erforderlichen Auswerteergebnisse (Geschwindigkeit, Dichte, Massenstrom etc.) von b)
- 3) Interpretation der gewonnenen Ergebnisse von a), beispielsweise auch hinsichtlich Geschwindigkeitsprofil, Strömungsform und Vermischungsgrad.

Die Arbeiten auf diesem Gebiet wurden begonnen und werden 1975 intensiv fortgeführt. Zur Zeit wird geprüft, ob und wie weit vorhandene Auswerteprogramme wie z.B. SEDAP verwendet werden können. Außerdem wird in Zusammenarbeit mit Universitätsinstituten (Berlin, Hannover und Karlsruhe) untersucht, ob Korre-

lationsanalysenverfahren benutzt werden können.

#### 2.5. Aufbau der Kaltwasserteststrecke

Für die Entwicklung und Erprobung des Radionuklidverfahrens wird eine Kaltwasserteststrecke aufgebaut, die schematisch zusammen mit der Injektionseinrichtung in Abb. 4214-4 dargestellt ist.

Die Teststrecke ist so ausgelegt, daß sie den Dimensionen sowohl der BATTELLE-Versuchseinrichtung als auch der HDR-Anlage möglichst nahekommt. Die Längen der einzelnen Teilstrecken betragen ca. 2 bis 3 m. Bei einer Nennweite von 100 mm und einem Massendurchsatz von 0 bis 80 kg/s ergeben sich damit Strömungsgeschwindigkeiten von 0 bis 10 m/s für ein Zweiphasengemisch Wasser/Luft. Der Luftvolumenanteil kann von 0 bis 50% geregelt werden. Die gewählte Anordnung hat den Vorteil, daß Blasen- und Schichtenströmungen erzeugt werden können.

#### 3. Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Markierungs- und Injektionstechnik soll im Bereich hoher Drücke und Temperaturen erprobt und weiterentwickelt werden. Hierzu sind zunächst Vorversuche an einer Autoklavenanlage vorgesehen. Der Aufbau der 12-Sonden-Geschwindigkeitsmeßeinrichtung wird im Februar 1975 abgeschlossen werden. Die Einstreu-effekte müssen gründlich untersucht werden, damit sie mit Hilfe eines noch zu erstellenden Auswerteprogramms eliminiert werden können. Die Arbeiten zur Auswertetechnik werden fortgesetzt. Dabei sollen verschiedene Auswerteprogramme gegebenenfalls auch unter Anwendung der Korrelationsanalyse erstellt werden. Eine Mitwirkung an den Blowdown-Experimenten RS 50 des BATTELLE-Instituts Frankfurt ist für das erste Halbjahr 1975 geplant.

Die weiteren Entwicklungsarbeiten können ab März 1975 an der Kaltwasserteststrecke begonnen werden. Die endgültige Erprobung des Verfahrens unter blowdown-ähnlichen Bedingungen erfolgt 1976 an dem "Gemeinsamen Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren" (PNS 4215/RS 145).

Literatur

- | 1 | KFK 1859, Halbjahresbericht 1/1973 des Projekts Nukleare Sicherheit
- | 2 | KFK 2050, Halbjahresbericht 1/74 des Projekts Nukleare Sicherheit

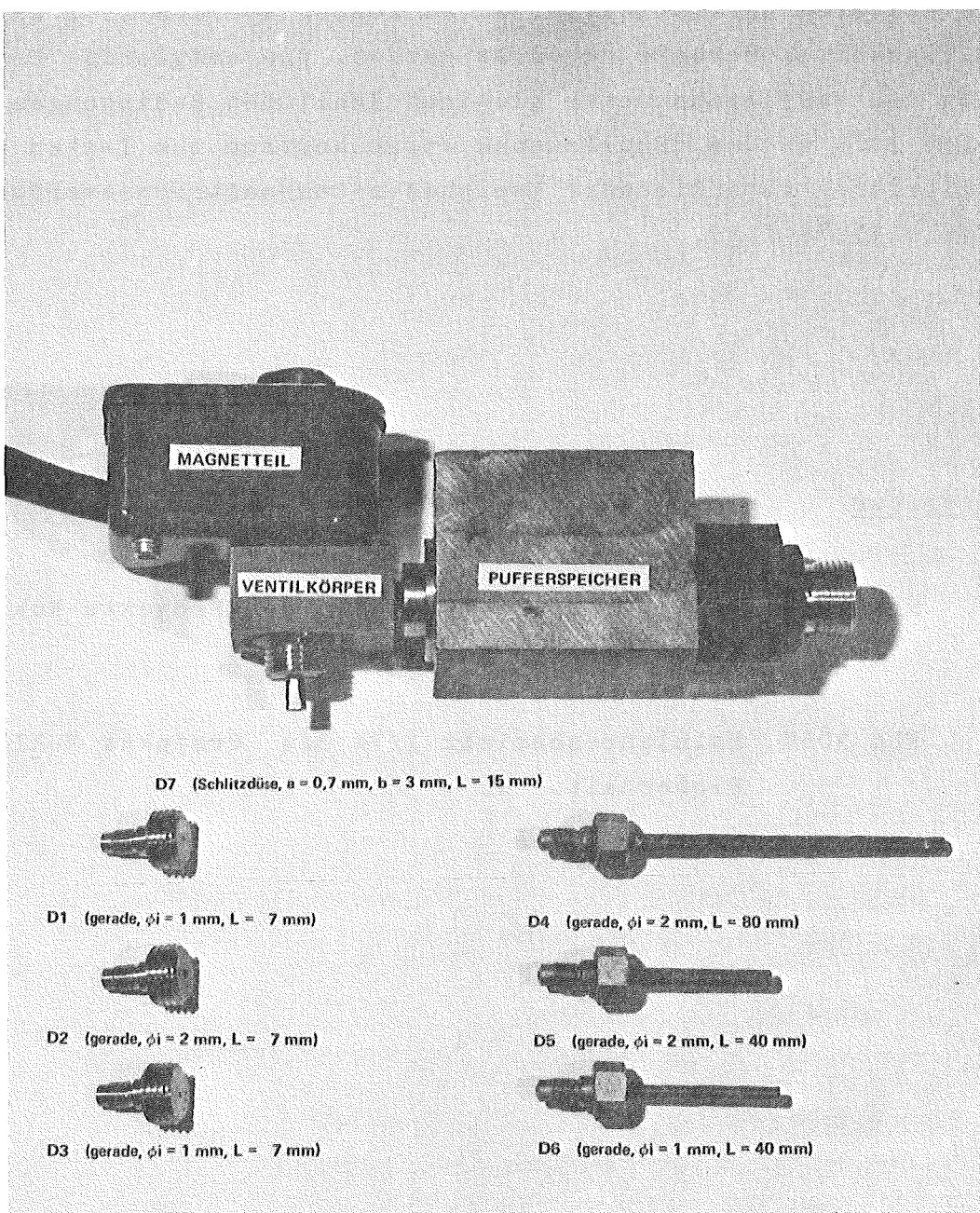


Abb. 4214-1: Selbstentwickeltes Injektionsventil mit verschiedenen dazu angepaßten Injektionsdüsen

Abb. 4214-2: QUALITATIVE DARSTELLUNG DES DRUCKVERLAUFES AM SELBSTENTWICKELTEN INJEKTIONSVENTIL ZUR ERMITTlung DER ÖFFNUNGSZEITEN

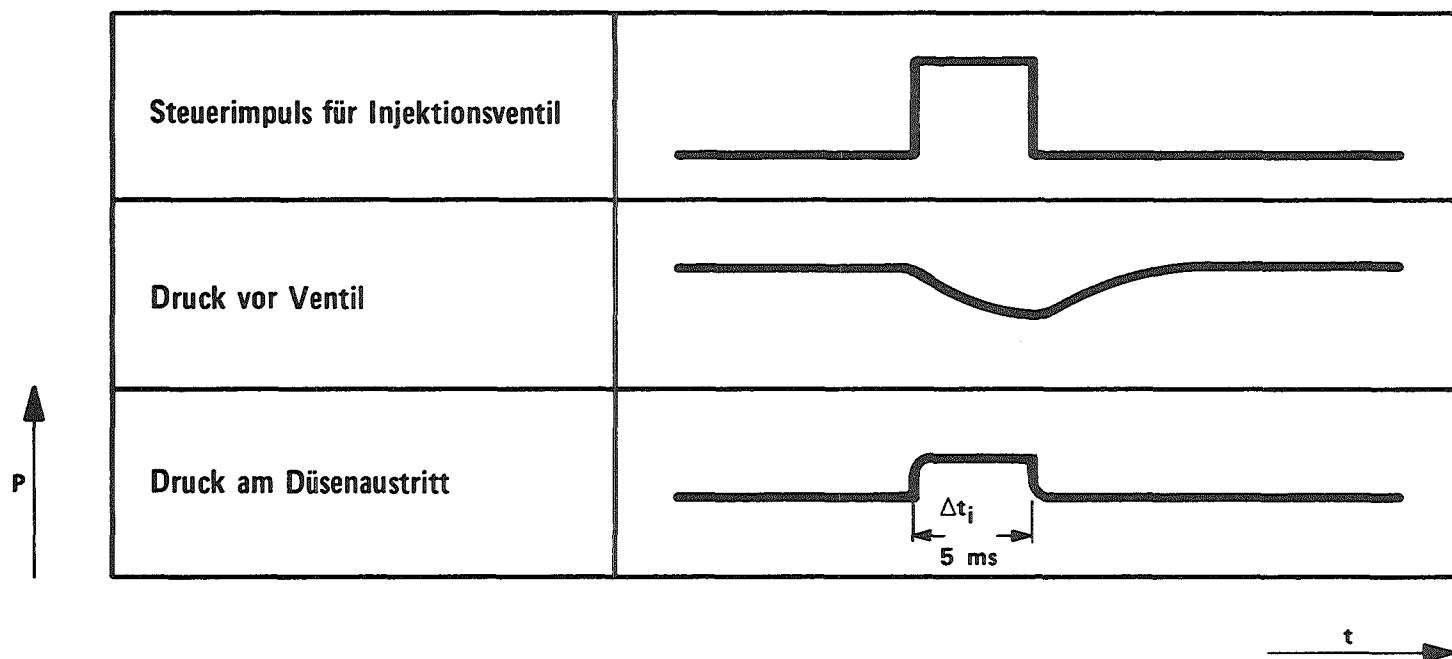
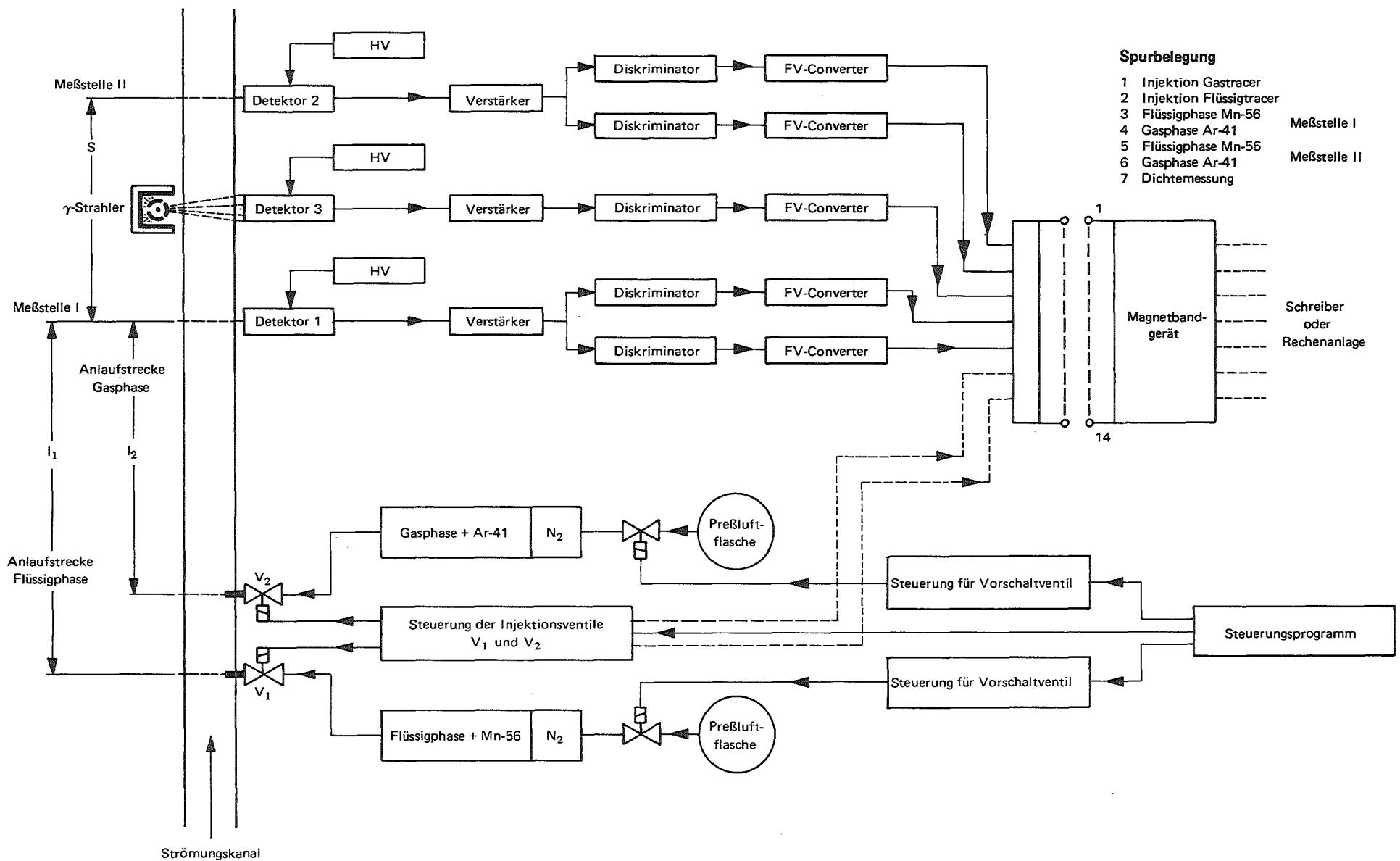


Abb. 4214-3: SCHEMATISCHE DARSTELLUNG DER INJEKTIONS- UND MESSEINRICHTUNG



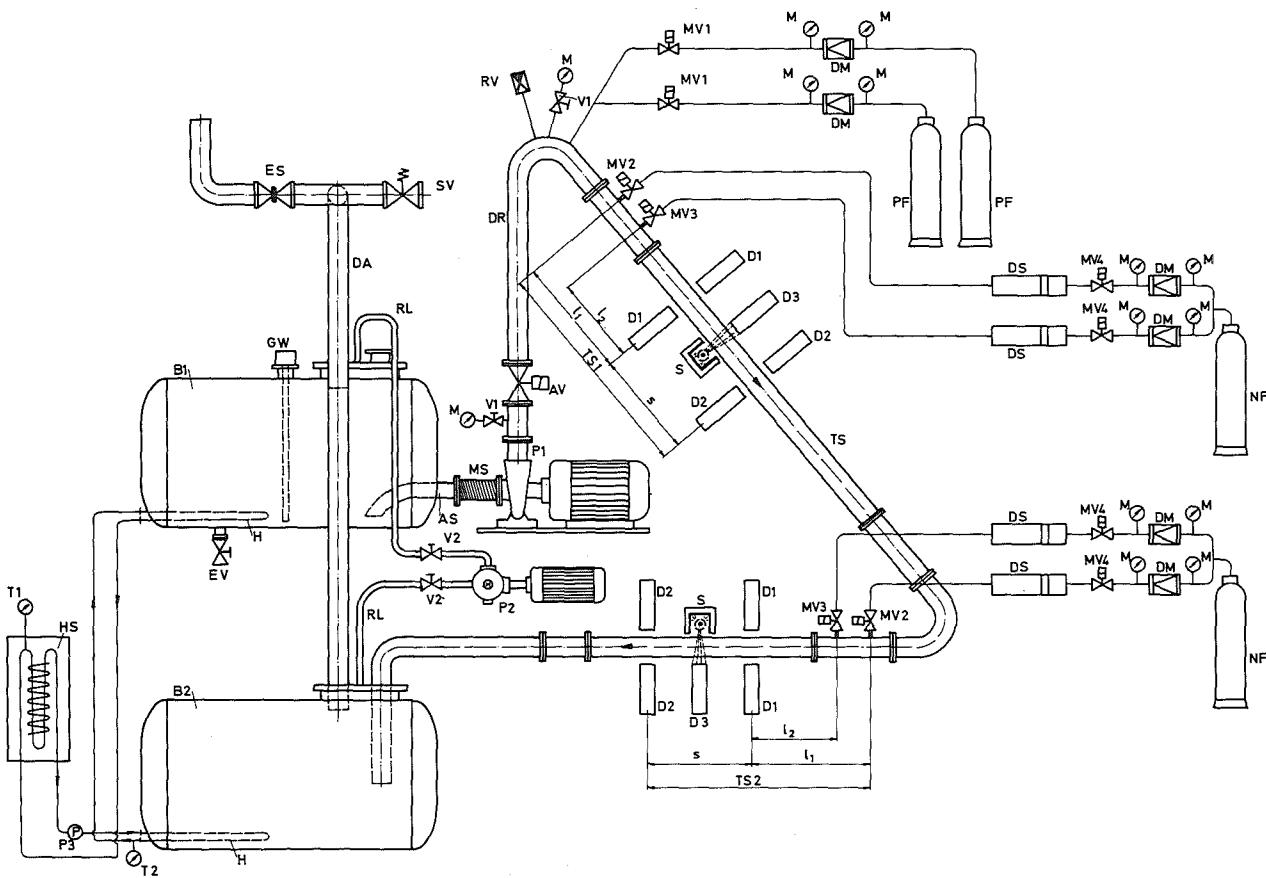
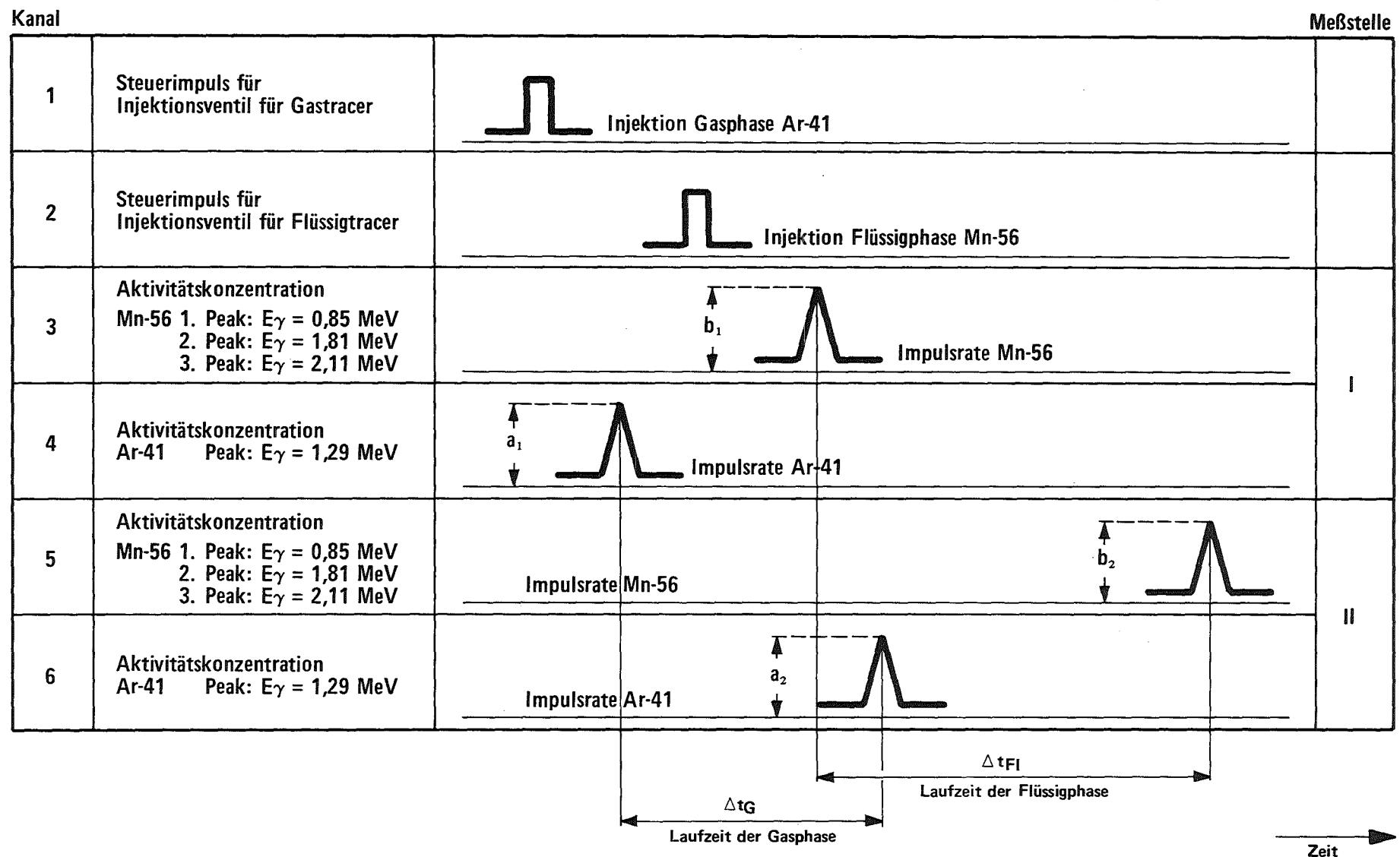


Abb. 4214-4: Darstellung der Versuchsanlage

1. B 1 oberer Speicherbehälter ( $V = 7 \text{ m}^3$ )
2. B 2 unterer Speicherbehälter ( $V = 7 \text{ m}^3$ )
3. DR Druckrohrleitung (NW 100)
4. AS Ansaugstutzen NW 150
5. MS Metallschlauch
6. P 1 Hauptpumpe mit Kupplung und Motor
7. GW Grenzwertgeber für Steuerung von P 1, gleichzeitig Füllstandsanzeige
8. AV Regulier- und Anfahrventil, elektrisch betätigt
9. RV Rückschlagventil
10. DA Druckausgleichsleitung
11. SV Sicherheitsventil
12. ES Entlüftungsschieber
13. EV Entleerventil
14. RL Rückförderleitung
15. P 2 Rückförderpumpe mit Kupplung und Motor
16. H Heizschlange
17. HS Warmwasserspeicher, elektroheizt ( $f = 50^\circ\text{C}$ )
18. P 3 Wasserpumpe
19. T 1 Temperaturregler für Warmwasserspeicher
20. T 2 Temperaturüberwachung für Warmwasserrücklauf von B 2
21. V 1 Vorschaltventile für Manometer
22. M - Manometer
23. MV 1 Magnetventile für Druckluft
24. DM Druckminderer
25. PF Preßluftflaschen
26. TS 1 Teststrecke 1
27. TS 2 Teststrecke 2
28. TS Gesamtteststrecke
29. MV 2 Injektionsventil für Gastracer, elektrisch betätigt
30. MV 3 Injektionsventil für Flüssigtracer, elektrisch betätigt
31. DS Druckspeicher
32. MV 4 Vorschaltventile für Druckspeicher
33. NF Stickstoffflaschen
34. D 1 Detektoren
35. D 2 Detektoren
36. D 3 Detektoren
37. S  $\gamma$ -Strahlenquelle

Abb. 4214-5: PRINZIP DES RADIONUKIDMESSVERFAHRENS ZUR ZWEIPHASENGESCHWINDIGKEITSMESSUNG



4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren  
(H. John, F. Erbacher, E. Wanner, IRB)

1. Zielsetzung:

Zu den notwendigen Voraussetzungen für die Auswertung einer Reihe von Reaktorsicherheitsexperimenten gehört ein zuverlässig und hinreichend genau arbeitendes Verfahren zur Messung von instationären Zweiphasen-Massenströmen. Sowohl für die Blowdown-Untersuchungen bei Euratom (Ispra), Battelle (Frankfurt), GfK (Karlsruhe) und am HDR sowie für das Marviken II-Programm wird ein solches Meßverfahren benötigt.

Da bisher ein derartiges Meßverfahren nicht verfügbar ist, werden an verschiedenen Forschungsstellen Entwicklungen in dieser Richtung betrieben:

- Drag-body-Methode / Battelle - Frankfurt
- True-mass-flow-meter / GfK - IRE
- Radionuklidmeßverfahren / GfK - LIT
- Messung mit magnetischer Kernspinresonanz / KWU-Erlangen
- Messung mit Temperatursignalkorrelation / TU-Berlin

Der Sachverständigenkreis Notkühlung hat empfohlen, diese Meßverfahren in einem gemeinsamen Versuchsstand zu testen und geeignete Verfahren auszuwählen. Am 19.9.74 wurde vom BMFT die Errichtung dieses Versuchsstandes im Institut für Reaktorbauelemente (IRB) der GfK genehmigt.

2. Aufgabenstellung

Aufgabe des Versuchsstandes ist es, die o.g. Meßverfahren unter blow-down-ähnlichen Bedingungen bei zunächst stationärem Betrieb zu testen.

Diese Betriebsbedingungen sind im wesentlichen durch die folgenden maximalen Daten gekennzeichnet:

Massenstromdichte	$\geq 10^4$ kg/m <sup>2</sup> s
Strömungsgeschwindigkeit	100 m/s
Temperatur	350 °C
Druck	160 ata

Die möglichst genaue Bestimmung der jeweils vorherrschenden Betriebsparameter, wie Massenstrom, Druck, Temperatur und die Kenntnis des jeweils vorherrschenden Phasenverteilungszustandes der Zweiphasenströmung gehören zu den wichtigsten Aufgaben.

### 3. Versuchsstand

Wie die Abb. 4215-1 zeigt, dienen 2 bereits vorhandene Dampferzeugungsanlagen dazu, den Versuchsstand zu versorgen. Ein Dampferzeuger liefert dabei jeweils Satt dampf und der andere siedendes Wasser bei maximal 160 ata. Die im einphasigen Zustand durch Meßblenden gemessenen Massenströme werden in einer Mischkammer vermischt und der Teststrecke zugeführt. Falls erforderlich, können zwischen Mischkammer und Teststrecke Rohrstrecken eingesetzt werden, die der Herstellung des thermodynamischen Gleichgewichtes bzw. zur gezielten Beeinflussung des Phasenverteilungszustandes dienen können. Durch ein der Teststrecke nachgeschaltetes automatisch geregeltes Druckhalteventil kann der Druck am Austritt der Teststrecke von ca. 150 ata bis 10 ata stationär eingestellt werden.

Bei normalem Betrieb strömt das entspannte Zweiphasengemisch den Kondensatoren zu und schließt damit den Kreislauf. Beim Radionuklidmeßverfahren wird während der Injektionszeit von radioaktiven Tracern der Dampf-Wasserstrom durch ein Wechselventil kurzzeitig in einen Abklingbehälter geleitet und in kaltes Wasser dispergiert. Die Tab. 4215-2 zeigt eine Zusammenstellung der mit dem Versuchsstand erreichbaren Zweiphasen-Massenströme in Abhängigkeit vom jeweils einstellbaren Dampf-Massengehalt. Ferner sind die für verschiedene Teststreckendurchmesser erreichbaren Massenstromdichten und mittleren Strömungsgeschwindigkeiten sowie die einzelnen einphasigen Kesseldurchsätze mit aufgeführt.

#### 4. Durchgeführte Arbeiten

Das Vorhaben hat im Herbst 1974 begonnen. Im Berichtszeitraum wurde das Konzept des Versuchsstandes im wesentlichen abgeschlossen und auf dem Markt erhältliche Komponenten, wie Druckhalteventile einschließlich Regeltechnik, ferner die Einphasen-Mengenmessung mit Elektronik und Druck- und Temperaturmessung mit Registrierung in Auftrag gegeben.

Arbeiten zur Entwicklung einer Mischkammer haben begonnen. Untersuchungen zur Auswahl einer geeigneten Identifikationsmethode des Phasenverteilungszustandes wurden ebenfalls in Angriff genommen.

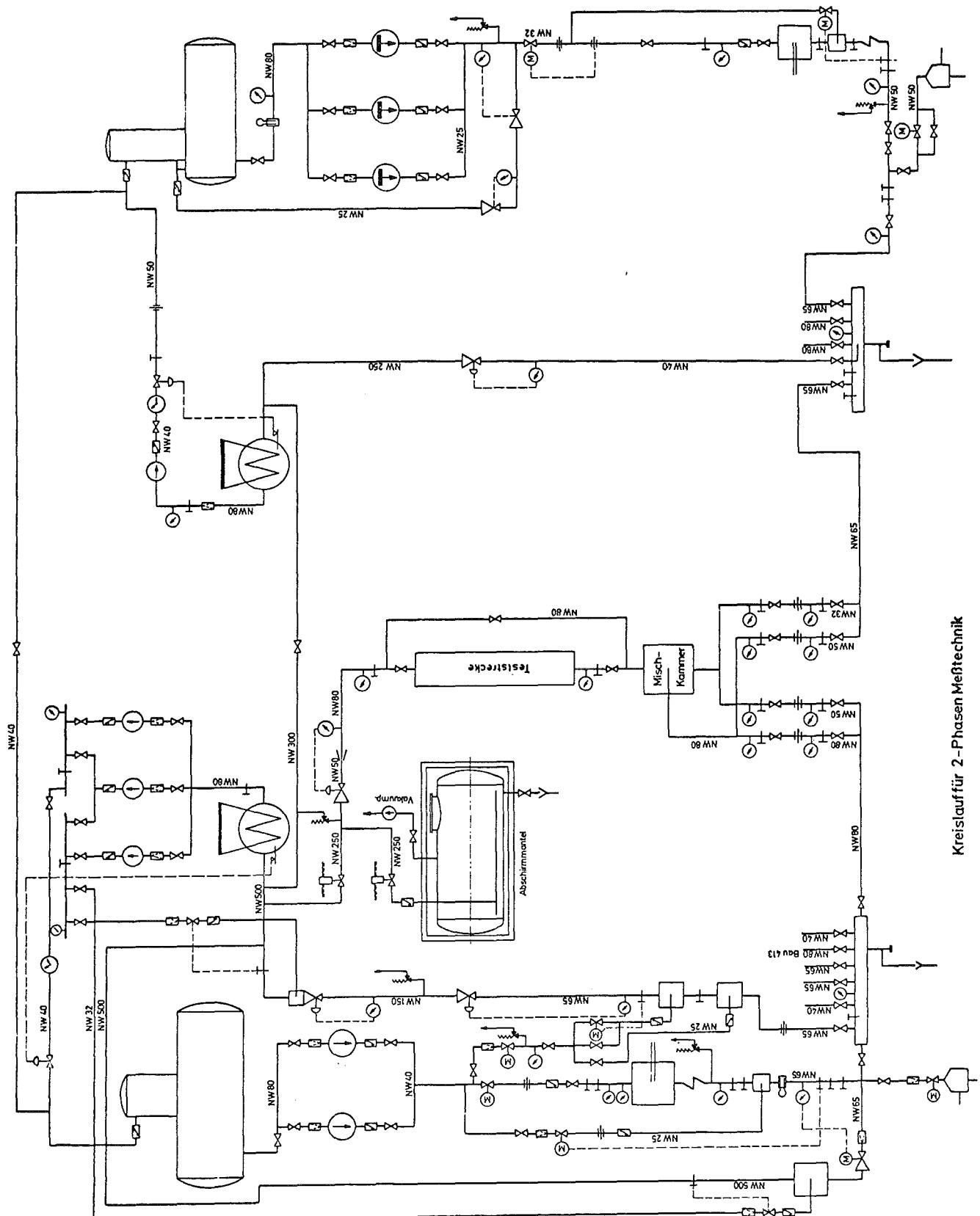


Abb. 4215-1

Kreislauf für 2-Phasen Meßtechnik

Dampf-Massen-Anteil X	Wasser (W) 0	Zwei phasen gemisch										Dampf (D) 1,0
		0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9		
Teilmassenstrom I W [t/h] (Bensonkessel)	14	14	14	9,33	6	-	-	-	-	-	-	-
D [t/h]	-	-	-	-	-	6	9	10	10	10	10	10
Teilmassenstrom II W [t/h] (Henschelkessel)	6	-	-	-	-	6	6	4,28	2,50	1,11	-	-
D [t/h]	-	1,55	3,50	4	8	-	-	-	-	-	-	4
Gesamter Massenstrom beider Dampferzeuger [t/h]	20	15,55	17,50	13,33	10	12	15	14,28	12,50	11,11	14	
[kg/sec]	5,55	4,32	4,86	3,70	2,78	3,33	4,17	3,97	3,47	3,09	3,89	
Massenstromdichte [kg/m <sup>2</sup> sec] -Rohr 20 mm Ø <sub>i</sub>	$1,77 \times 10^{-4}$	$1,37 \times 10^{-4}$	$1,55 \times 10^{-4}$	$1,18 \times 10^{-4}$	$0,88 \times 10^{-4}$	$1,06 \times 10^{-4}$	$1,33 \times 10^{-4}$	$1,26 \times 10^{-4}$	$1,10 \times 10^{-4}$	$0,98 \times 10^{-4}$	$1,24 \times 10^{-4}$	
-Rohr 30 mm Ø <sub>i</sub>	$0,78 \times 10^{-4}$	$0,61 \times 10^{-4}$	$0,69 \times 10^{-4}$	$0,52 \times 10^{-4}$	$0,30 \times 10^{-4}$	$0,47 \times 10^{-4}$	$0,59 \times 10^{-4}$	$0,56 \times 10^{-4}$	$0,49 \times 10^{-4}$	$0,44 \times 10^{-4}$	$0,55 \times 10^{-4}$	
-Rohr 40 mm Ø <sub>i</sub>	$0,44 \times 10^{-4}$	$0,34 \times 10^{-4}$	$0,30 \times 10^{-4}$	$0,29 \times 10^{-4}$	$0,22 \times 10^{-4}$	$0,26 \times 10^{-4}$	$0,33 \times 10^{-4}$	$0,32 \times 10^{-4}$	$0,28 \times 10^{-4}$	$0,25 \times 10^{-4}$	$0,31 \times 10^{-4}$	
-Rohr 50 mm Ø <sub>i</sub>	$0,28 \times 10^{-4}$	$0,22 \times 10^{-4}$	$0,25 \times 10^{-4}$	$0,19 \times 10^{-4}$	$0,14 \times 10^{-4}$	$0,17 \times 10^{-4}$	$0,21 \times 10^{-4}$	$0,20 \times 10^{-4}$	$0,18 \times 10^{-4}$	$0,16 \times 10^{-4}$	$0,20 \times 10^{-4}$	
Strömungsgeschwindigkeit bei 150 ata [m/sec] -Rohr 20 mm Ø <sub>i</sub>	29,1	34,9	53,4	51,3	46,2	65,2	93,8	100,2	97,4	95,6	132,2	
-Rohr 30 mm Ø <sub>i</sub>	12,8	15,5	23,8	22,6	20,5	28,9	41,6	44,5	43,4	42,9	58,6	
-Rohr 40 mm Ø <sub>i</sub>	7,2	8,6	13,4	12,6	11,5	16,0	23,3	25,5	24,8	24,4	33,0	
-Rohr 50 mm Ø <sub>i</sub>	4,6	5,6	8,6	8,3	7,3	10,5	14,8	15,9	15,9	15,6	21,3	
Mittelwerte, (Schlupf = 0)												

4215-2 Erreichbare maximale Werte für Versuchsstand für Zweiphasenmesstechnik

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 (R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE/Stuttgart)

Die Zielsetzung der theoretischen Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall von Leichtwasserreaktoren ist in KFK 1787 beschrieben. Diese Untersuchungen werden in enger Zusammenarbeit mit dem Institut für Kernenergetik (IKE)/Stuttgart durchgeführt.

Schwerpunkte der Arbeiten im Berichtszeitraum waren die Vorplanung und Fertigstellung von Modulen für das Programmsystem SSYST.

1. Verfügbarmachen von RELAP 4 (W. Sengpiel)

Die im IRE vorhandene Version von RELAP 4 wurde verfügbar gemacht und zur besseren Darstellung der Ergebnisse eine Plotmöglichkeit geschaffen. Erste Rechnungen mit dem Programm ergaben erhebliche Abweichungen in den Wärmeübergangszahlen im Vergleich zu RELAP 3. Die Fehlerhaftigkeit der von der USAEC erhaltenen IBM-Version von RELAP 4 ist inzwischen allgemein bekannt.

Die von der AEC zugesagte Zusendung von Korrekturblättern ist noch nicht erfolgt; es wurde jedoch eine verbesserte CDC-Version zur Verfügung gestellt, die zur Zeit beim IKE/Stuttgart zum Laufen gebracht wird.

2. Weiterentwicklung von Modulen

2.1 Die Aufbereitung der RELAP-Daten (W. Gulden)

für die Brennstabanalyse wird mit dem Modul RAND durchgeführt.

Mit der Einführung des Moduls STEP, d.h. mit der Festlegung anderer Zeit-

schritte als in RELAP, war es notwendig, eine entsprechend flexible Mitteilung der RELAP-Daten zu realisieren. Dies wurde durch Erweitern des Moduls RAND zum Modul RANDM erreicht, der jetzt die Randbedingungen für die Brennstabanalyse aus den RELAP-Daten entsprechend des von STEP berechneten Zeitschrittes mittelt.

2.2 Der Innendruckmodul (W. Gulden)

SPAGDR, der bisher nur zur Bestimmung des stationären Ausgangsdruckes im Brennstab herangezogen wurde, ist so umgestellt worden, daß er nun auch in der transienten Rechnung mitläuft und so die instationäre Spaltgasfreisetzung während des Aufheizens der Brennstoffmatrix beschreibt.

2.3 Die Druck- und Temperaturverteilung im Unterkanal (L. Ehnis)

wird mit dem Modul HYDRA bestimmt. Dieser Modul befindet sich in der Testphase. Verzögerungen ergaben sich aus Schwingungen mit hoher Frequenz und hoher Amplitude bei den Wärmeübergangszahlen. Die Ursache für diese Schwingungen liegt in den Auswahlkriterien für die Wärmeübergangsbeziehungen, die in enger Anlehnung an das Programm THETA-1B formuliert sind. Zwar führen diese Oszillationen nicht zu instabilen Gleichungssystemen, sie sind aber physikalisch nicht sinnvoll. Eine befriedigende Lösung des Problems konnte bislang noch nicht gefunden werden. Es wurde daher die Möglichkeit geschaffen, die Wärmeübergangszahlen alternativ nach den RSK-Richtlinien /1/ zu bestimmen.

2.4 Der Hilfsmodul zur Erzeugung von Datenfeldern (M. Schindler)

ZWERG dient zur besseren Darstellung von Ergebnissen. Mit den bisher verfügbaren Modulen hatte ein Benutzer nur die Möglichkeit, auf aktuelle Daten zuzugreifen. Der neue Modul stellt, für vom Benutzer vorzugebende Variable, Datenfelder auf, denen nach jedem Integrations-Schritt der aktuelle Wert hinzugefügt wird. Nach Abschluß einer Rechnung können die erstellten Dateien mit dem Zeitvektor einem Plotprogramm übergeben werden und so zeitabhängig, graphisch dargestellt werden.

2.5 Der zweidimensionale instationäre Wärmeleitmodul (L. Ehnis)

ZET-2D wurde erstellt, da insbesondere beim Fluten des Reaktors nicht nur in radialer Richtung, sondern auch in axialer Richtung

mit starken Temperaturgradienten gerechnet werden muß. Der Modul ZET-2D steht alternativ für den Modul ZET-1D zur Verfügung, berücksichtigt aber noch nicht die variable Geometrie des Hüllrohres. Diese Arbeit wird fortgesetzt.

### 3. Vorbereiten für neue Moduln.

#### 3.1 Unterkanalverhalten beim Fluten (R. Schützle)

Für die detaillierte Beschreibung des Hüllrohrblähens ist in der Phase, in der dieses Blähen erwartet wird, also in der Flutphase, eine genaue Kenntnis der Randbedingungen des Brennstabes notwendig. Rechenprogramme, die diese Analyse durchführen, z.B. FLIRA /2/ sind entweder nicht verfügbar, oder in ihrer physikalischen Beschreibung stark vereinfacht.

Wesentliche Elemente eines fortgeschrittenen Moduls für den Flutvorgang sind:

- Ermittlung der zeitabhängigen Benetzungsfront (Kriterien für den Benetzungspunkt).
- getrennte Betrachtung des Dampf- und Flüssigkeitsanteils der Strömung
- geeignete Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Dampf und Flüssigkeit (hydraulisch und thermodynamisch).
- Berücksichtigung der veränderlichen Geometrie durch Hüllrohrverformungen
- Darstellbarkeit von Heißeinspeisung

#### 3.2 Mechanik des Hüllrohres (H. Fabian, U. Krugmann, K. Laßmann, R. Schwarz, IRT Darmstadt; M. Schindler)

Die im letzten Halbjahresbericht (KFK 2050) erwähnte Studie zur Auswahl eines geeigneten Modells und numerischen Verfahrens für die Beschreibung der Hüllrohrverformungen wurde abgeschlossen. Es ergab sich /3/, daß die Schalentheorie in bezug auf Aufwand und Genauigkeit für die Fragestellung innerhalb von SSYST am besten geeignet ist. Mit der Erstellung eines entsprechenden Moduls wurde begonnen.

3.3 Formulierung der Gesetze für die Veränderung der Hüllrohreigenschaften während des Unfalls (S. Raff)

Die Veränderung der Hüllrohreigenschaften ist thermodynamisch wie mechanisch von großer Bedeutung. So wird z.B. durch Oxidation und durch Gitterumbauprozesse die Wärmeleitfähigkeit und das Materialverhalten (spröde-duktil) stark beeinflußt (siehe 4235). Die aus den Experimenten (4235) anfallenden Ergebnisse sind hier entsprechend den Anforderungen des Programmsystems zu formulieren und zur Verfügung zu stellen. Es wurde untersucht, welche Anforderungen an ein Stoffgesetz bezüglich der mechanischen und thermischen Belastung und der Oxidationseffekte gestellt werden müssen.

3.4 Statistik des Hüllrohrblähens (W. Sengpiel)

Die statistische Betrachtung des Hüllrohrblähens hat das Ziel, eine Aussage über die örtliche und zeitliche Verteilung der Eintrittswahrscheinlichkeit eines Balloonings zu erhalten. Dies ist insbesondere im Hinblick auf eine Reihe von Unsicherheiten (z.B. aktuelle Geometrie des Brennstabes zu Beginn des Unfalls) von Bedeutung. Es wurde bisher untersucht, welche Methoden für diese Fragestellung anwendbar sind; diese Untersuchungen sind noch nicht abgeschlossen.

4. Anwendung von SSYST-Modulen

4.1 Vergleichende Untersuchung zum Verhalten frischer und abgebrannter Brennstäbe für eine konservative Brennstab betrachtung (J. Esche, M. Schindler, R. Schützle)

Im Rahmen dieser Untersuchung soll geklärt werden, ob ein frischer Brennstab wegen seines höheren Leistungsformfaktors, oder ein abgebrannter Brennstab wegen seines höheren Innendruckes früher versagt. Zur Klärung dieser Frage wurden zunächst Randbedingungen für die Einzelstabanalyse mit RELAP-3 berechnet. Die Aufteilung der Corezone wurde so gewählt, daß bei vertretbarem Rechenaufwand maximale Hüllrohrtemperaturen berechnet wurden. Ein Schema zeigt Abb. 1

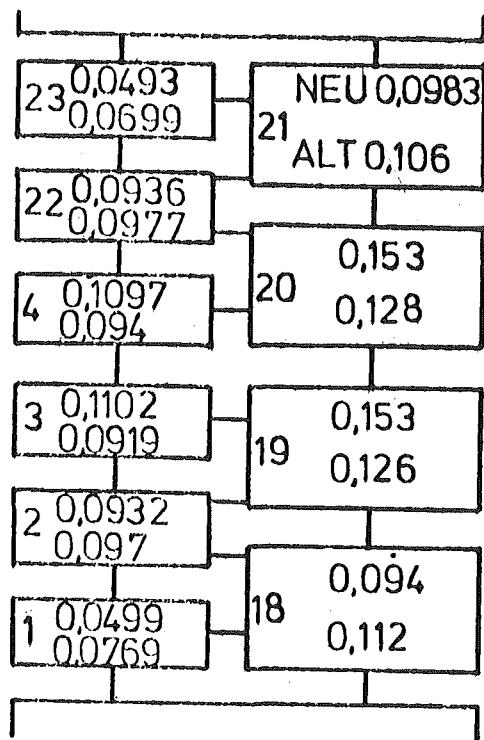


Abb. 1 Knotenaufteilung des Cores für die RELAP-3 Rechnung

Die Brennstabdehnungsanalyse wurde mit der Modulfolge entsprechend Abb. 2 durchgeführt.

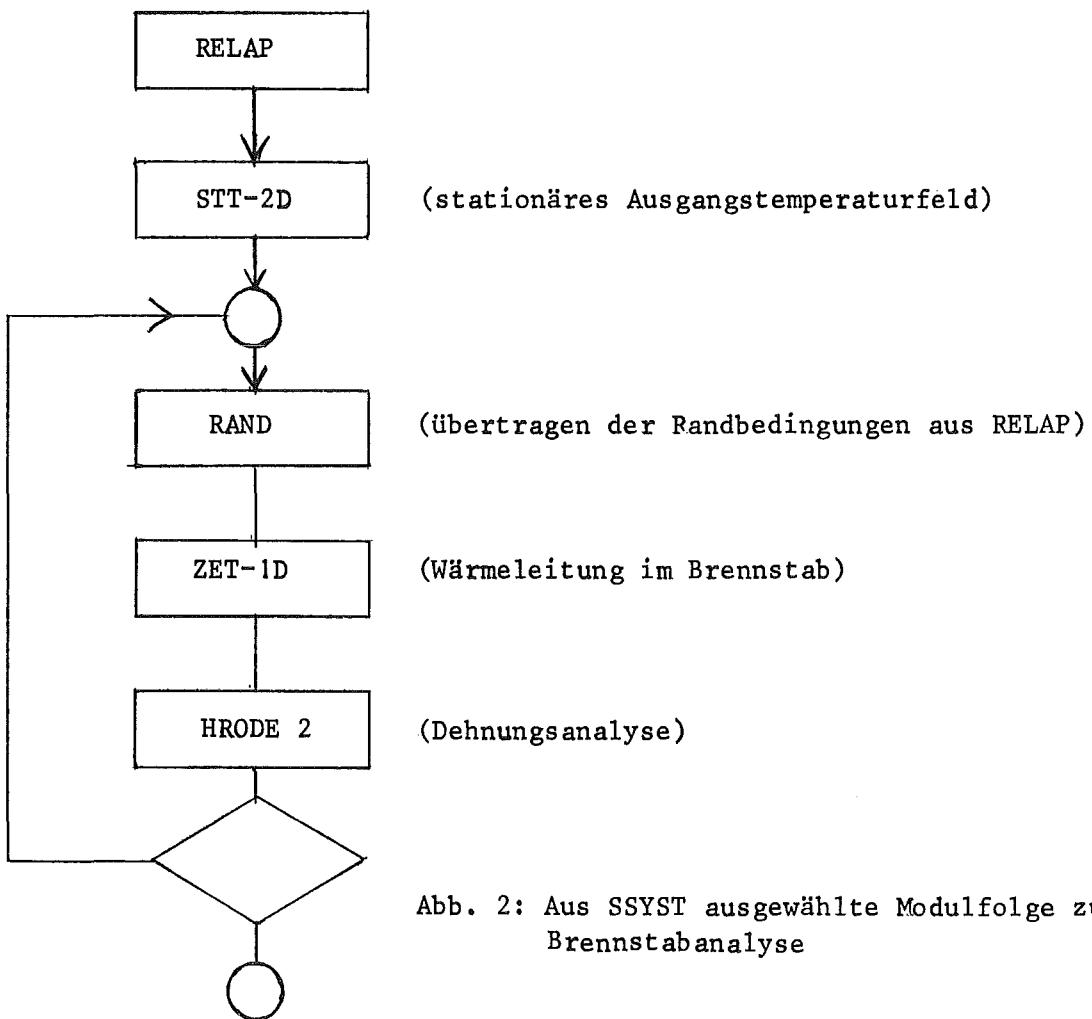


Abb. 2: Aus SSYST ausgewählte Modulfolge zur Brennstabanalyse

Die so gewonnenen Ergebnisse zeigen ein sehr rasches Versagen des frischen Brennstabes auf Grund sehr hoher Hüllrohr-Temperaturen. Damit erhöht sich die Kriechgeschwindigkeit stark und führt zu großen Verformungen, die zum Versagen führen. Der abgebrannte Brennstab hingegen zeigt wesentlich kleinere Verformungen und versagt nicht. Diese Ergebnisse können nur qualitativer Natur sein, da eine ganze Reihe weiterer Moduln, z.B. für die Wärmeübergangszahl im Spalt (WUEZ) oder für die Randbedingungen im Unterkanal (HYDRA), noch nicht eingesetzt wurden. Diese Arbeiten werden fortgeführt.

#### 4.2 Auslegungsrechnungen für geplante Versuche

(L. Ehnis, S. Raff, R. Schützle, W. Sengpiel, D. Steiner)

Für die Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverlustunfalls (PNS 4236) und für die in-pile Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Aufheizphase (PNS 4237) 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/ RSK-Leitlinien für Druckwasserreaktoren  
1. Ausgabe 24. April 1974
- /2/ M. Chabriallac, J.P. L'Heriteau  
FLIRA: Un modèle de calcul du remouillage après un accident de perte du fluide primaire.  
Thermal Reactor Safety Seminar at NEA-CPL, ISPRA, 23.-25. Okt. 1974
- /3/ H. Fabian, U. Krugmann, K. Laßmann, R. Schwarz  
Institut für Reaktortechnik, Darmstadt  
Studie zum Deformationsverhalten von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall  
wird veröffentlicht

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlustunfall

(M. Bocek, C. Petersen, IMF/II)

### 1. Einfluß der Textur auf das plastische Verhalten bei höheren Temperaturen

Es ist bekannt, daß bei relativ niedrigen Temperaturen die Textur das plastische Verhalten von anisotropen Werkstoffen sehr stark beeinflußt. Unbekannt ist dieser Textureinfluß bei hohen Temperaturen.

Dazu wurde das Verhalten von Streckgrenze  $\sigma_a$ , Zugfestigkeit  $\sigma_B$ , Gleichmaßdehnung  $\epsilon_{g1}$  und Gesamtdehnung  $\epsilon_{ges}$  bei höheren Temperaturen in Abhängigkeit von der Probenorientierung untersucht.

In den dazu verwendeten Flachzugproben aus Zircaloy-4-Blech wurde durch Kaltwalzen und anschließende Glühbehandlung eine Textur eingestellt, wie sie im Hüllrohr vorliegt (Abb. 4235-1). Die Proben wurden mit unterschiedlichen Winkeln zur Walzrichtung (WR) dem Blech entnommen und bei höheren Temperaturen in Luftatmosphäre bis zum Bruch verformt.

Vollständige Ergebnisse liegen für die Streckgrenze  $\sigma_a$  vor, deren Verlauf in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Probenorientierungen in Abb. 4235-2 dargestellt ist.

Unterhalb von  $650^\circ\text{C}$  besteht ein geringer Textureinfluß auf die Streckgrenze. Oberhalb dieser Temperatur ist die Streckgrenze unabhängig von der Textur.

Erste Ergebnisse über den Verlauf der Zugfestigkeit  $\sigma_B$ , Gleichmaßdehnung  $\epsilon_{g1}$  und Gesamtdehnung  $\epsilon_{ges}$  in Abhängigkeit vom Probenwinkel sind für die Temperaturen 22, 400 und  $600^\circ\text{C}$  in Abb. 4235-3 zusammengestellt. Aus diesen Dia-

grammen folgt, daß der Textureinfluß auf die Zugfestigkeit in ähnlicher Weise abnimmt wie bei der Streckgrenze. Aber bei den Verformungsverläufen ist eine starke Texturabhängigkeit zu beobachten, die auch keine abnehmende Tendenz zeigt. Dies ist ein wichtiger Sachverhalt für die Beurteilung des Materialverhaltens beim KVU. Die Untersuchungen werden im 1. Quartal 1975 abgeschlossen.

## 2. Superplastisches Verhalten

Im Temperaturbereich von RT bis 800° C in Luftatmosphäre und bei einer Verformungsgeschwindigkeit von  $\dot{\epsilon} = 1,3 \cdot 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$  zeigten die untersuchten Proben beim Bruch eine Einschnürung in der Bruchzone. Oberhalb von 800° C änderte sich das Verformungsverhalten unter sonst gleichen Bedingungen in der Weise, daß bei hohen Duktilitäten keine Einschnürung an der Bruchstelle mehr zu beobachten war. Dies sind einige Merkmale für das superplastische Verhalten. Eine Gegenüberstellung dieser unterschiedlichen Verformungsweisen ist schematisch in Abb. 4235-4 vorgenommen worden.

Auf Grund der Tatsache, daß das superplastische Verhalten von der Versuchsgeschwindigkeit und der Temperatur<sup>1)</sup> abhängig ist, wurde begonnen, den Einfluß der Verformungsgeschwindigkeit und der Temperatur auf dieses Verformungsverhalten zu untersuchen. Dazu wurden in Luftatmosphäre Geschwindigkeitswechselversuche durchgeführt. Die Verformungsgeschwindigkeit wurde dabei jeweils um einen gewissen Faktor erniedrigt.

Der gesamte Verformungsgeschwindigkeitsbereich umfaßte die Werte  $\dot{\epsilon} = (1,3 \cdot 10^{-5} \div 3,3 \cdot 10^{-2}) \text{ sec}^{-1}$ . Die Temperaturen wurden zwischen 800° C und 1000° C variiert. In allen Fällen trat superplastisches Verhalten auf.

## 3. Kriechversuche an Zircaloy-2

Um genauere Aussagen über das Verformungsverhalten des Zircaloy zu erhalten, wurden Kriechversuche unter konstanter Last im Temperaturbereich von 350° C bis 650° C im Vakuum durchgeführt und die Proben anschließend metallographisch untersucht.

In Abb. 4235-5 ist die Ausgangsspannung  $\sigma$  gegen die sekundäre Kriechgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}_{ss}$  logarithmisch aufgetragen.

Die Spannungsexponenten

$$\left( \frac{\delta \log \dot{\epsilon}_{ss}}{\delta \log \sigma} \right)_T = n$$

nehmen mit steigenden Temperaturen ab und erreichen bei  $650^\circ C$  einen Wert von  $n = 3,5$ . Der Spannungsexponent und der das superplastische Verformungsverhalten kennzeichnende Geschwindigkeitsexponent  $n$  sind über  $n = 1/m$  miteinander verknüpft.

Bei Superplastizität muß  $n$  im Bereich  $(0,5 \leq m < 1) \hat{=} (2 \geq n > 1)$  liegen.

Da in den Kriechversuchen der Wert von  $n = 3,5$  nicht unterschritten wurde, liegt im untersuchten Spannungs- und Temperaturbereich kein superplastisches Verformungsverhalten vor.

Die metallographische Untersuchung ergab, daß oberhalb von  $500^\circ C$  das Zircaloy rekristallisierte. Diese Rekristallisation der im Ausgangszustand kaltverformt vorliegenden Proben trat während des Versuches auf.

Wie aus der Abnahme des Spannungsexponenten  $n$  mit der Temperatur zu erkennen ist, hat diese Rekristallisation keinen Einfluß auf das Kriechverhalten.

##### 5. Metallographische Untersuchungen von aufgeschweißten Thermoelementen auf Zircaloy-4-Versuchsstäbe

Im Berichtszeitraum wurden von RBT/PC im Rahmen der In-pile-Versuche des PNS 4237.1 Vorversuche mit drei Probestäben durchgeführt. Die Nachuntersuchung der Stäbe in den Heißen Zellen, insbesondere die Beurteilung der Thermoelementbefestigungsstellen, wurde in Zusammenarbeit mit IMF/II durchgeführt. Dabei wurden die Stäbe makroskopisch und ausgewählte Schweiß-

stellen auch mikroskopisch untersucht. Die Präparation der Schliffe wurde abgeschlossen. Die Beurteilung der Schweißungen steht noch aus und soll im 1. Quartal 1975 vorgenommen werden.

Literatur:

1. D. LEE und W.A. BACKOFEN  
Trans. AIME 239 (1967) 1034

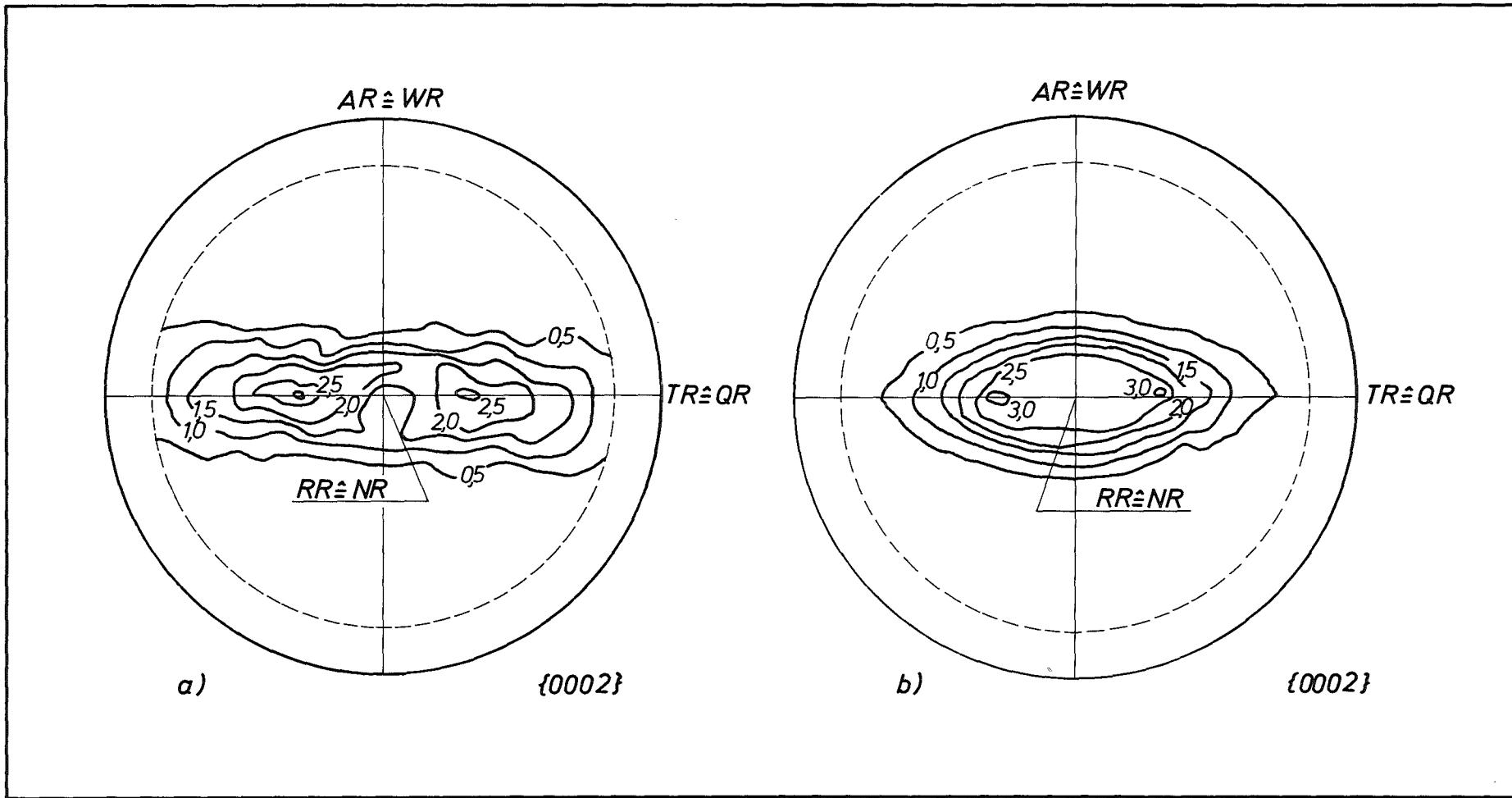


Abb. 4235-1:  $\{0002\}$ Polfiguren von Zircaloy-4 im Ausgangszustand

a) Hüllrohrsegment

b) Blechprobe

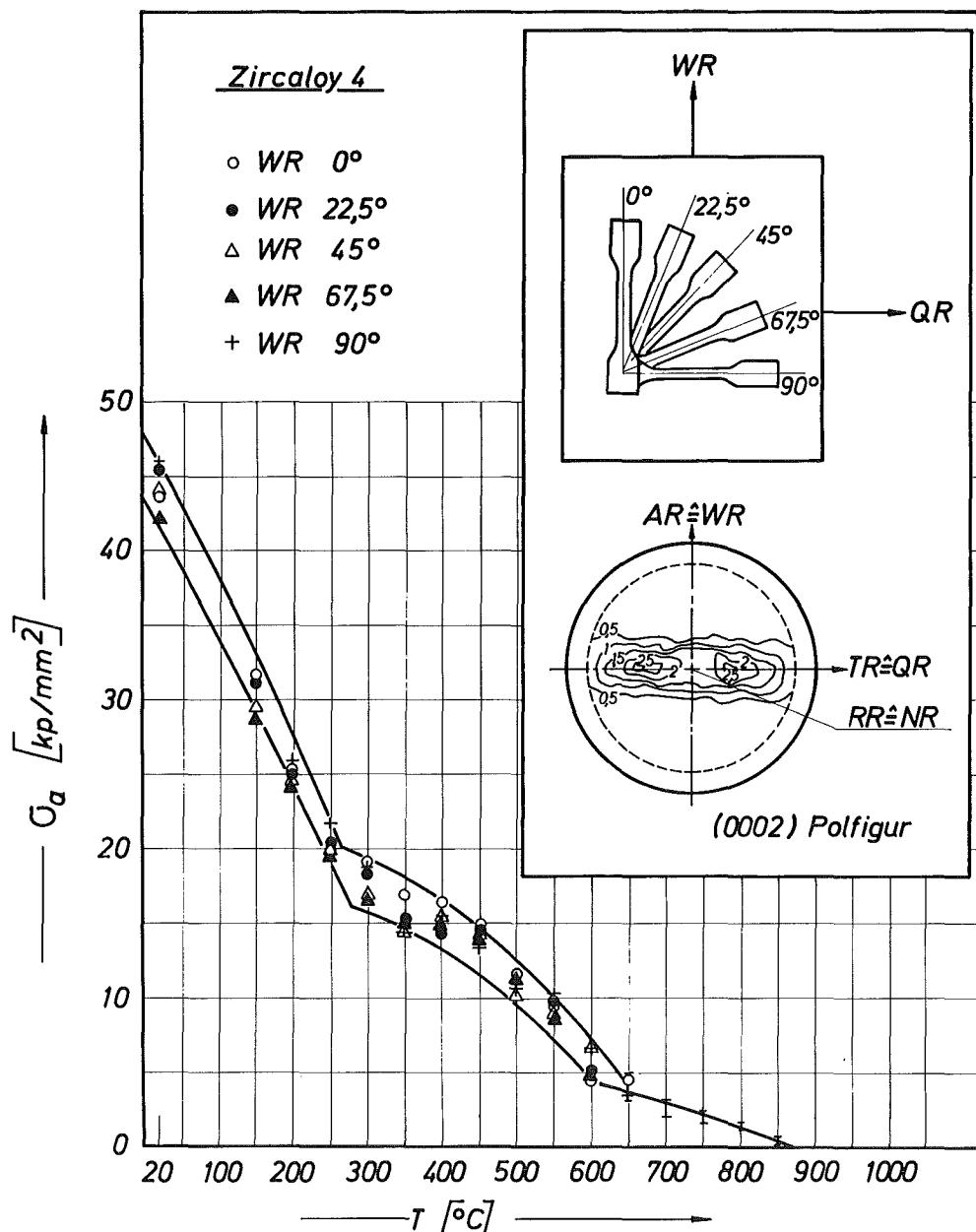


Abb. 4235-2: Temperaturabhängigkeit der Streckgrenze  $\sigma_a$  von Zircaloy-4-Flachzugproben mit unterschiedlicher Orientierung zur Walzrichtung.

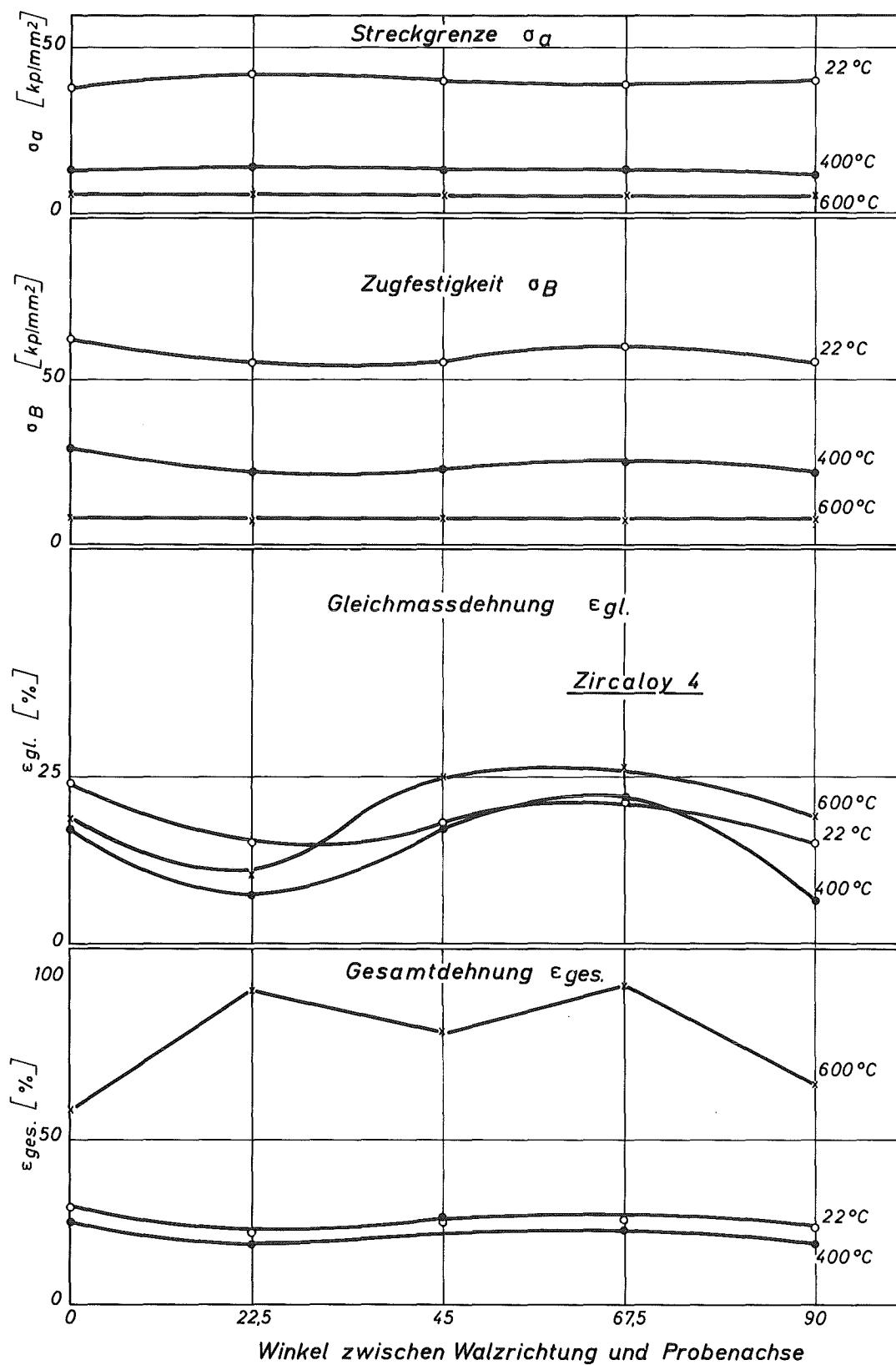


Abb. 4235-3: Temperaturabhängigkeit der Streckgrenze  $\sigma_a$ , Zugfestigkeit  $\sigma_B$ , Gleichmaßdehnung  $\epsilon_{gl}$  und Gesamtdehnung  $\epsilon_{ges}$  von der Probenorientierung für  $T = 22, 400, 600^\circ C$ .

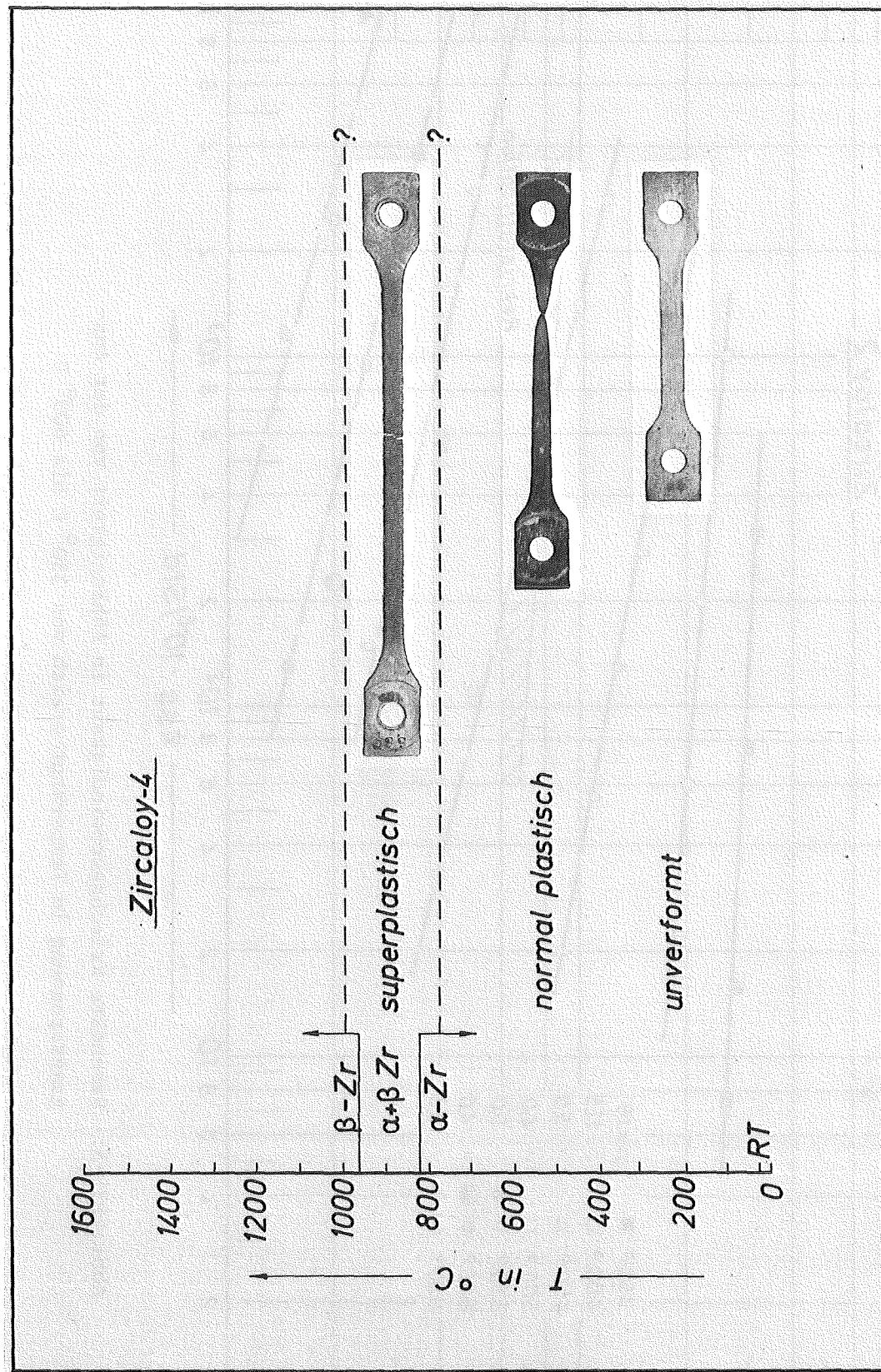


Abb. 4235-4: Zum Übergang Normalplastisch-Superplastisch.

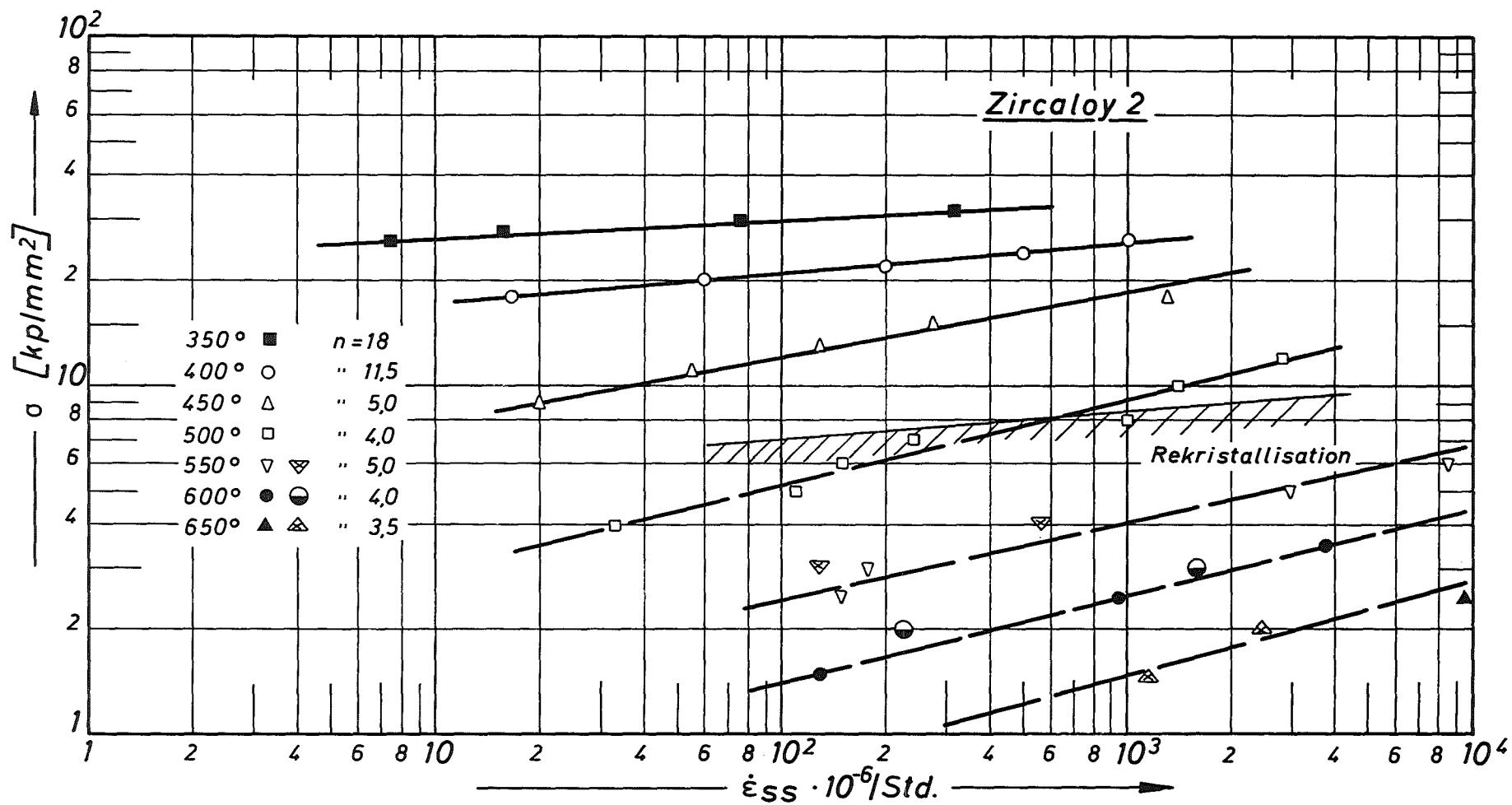


Abb. 4235-5: Sekundäre Kriechgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Ausgangsspannung im Temperaturbereich von 350 °C bis 600 °C

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von  
Zircaloy 4-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall  
(S. Leistikow, H. v. Berg, D. Jennert; IMF/II)

1. Untersuchung des Streubereichs der Gewichtszunahme durch Hochtemperatur-Oxidation von Zircaloy 4-Rohrmaterial in Wasserdampf

Zur Bestimmung des Streubereichs der Gewichtszunahme bei transienten Hochtemperatur-Oxidationsversuchen an Zircaloy 4-Rohrmaterial in Wasserdampf mit anschließendem Abschrecken in Wasser wurden weitere Versuche unter den bisher angewandten Bedingungen (2-15 min., 900-1300°C, 1 at, 1 m/sec) durchgeführt. Es zeigte sich dabei, daß der Streubereich mit zunehmender Sauerstoff-Aufnahme Werte bis zu  $\pm 8,4\%$  ( $\pm 9,5 \mu\text{m Zr}$ ) erreichen kann (Abb. 4235-6).

2. Vergleichende Untersuchungen über die Hochtemperatur-Oxidation von Zircaloy 2- und Zircaloy 4-Material unter transienten Versuchsbedingungen

Zur Versuchsdurchführung unter transienten Versuchsbedingungen (1 at, 1 m/sec) kamen jeweils Zircaloy 2-Blechproben während 5 und 15 min bei 900-1300°C (Abb. 4235-7) und Zircaloy 4-Blechproben während 2 und 15 min bei 900 und 1200°C zum Einsatz. Beim Vergleich der Ergebnisse mit denen von Zircaloy 4-Rohrproben ergab sich, daß sämtliche Werte innerhalb des Streubandes des Zircaloy 4-Rohrmaterials lagen. Auch die metallographischen Gefügebilder zeigten eine gute Übereinstimmung von Zircaloy 2- und Zircaloy 4-Material.

3. Oxidation bei induktiver Beheizung

Oxidationsversuche mit induktiv beheizten Rohrproben (30 mm Länge) in Heißdampf (1 at, 1 m/sec) wurden in transienten KVU-typischen Zeit-Temperatur-Verläufen mit Hilfe einer elektronisch gesteuerten Induktionsheizung durchgeführt. Bei im Prinzip guter Einstellung der geforderten Zeit-Temperatur-Verläufe ergaben sich Schwierigkeiten bei der Reproduzierbarkeit und der Temperaturverteilung über die Probenlänge und über den Probenumfang und damit auch hinsichtlich des Oxidationsangriffs. Mit 12 auf der Probenoberfläche angepunkteten Thermoelementen wurden bei 1200°C maximale Temperaturdifferenzen bis zu 100°C über die Probenlänge und bis zu 80°C über den Umfang der Probe gemessen. Um die Auswirkung der Temperaturdifferenz auf die Oxidation aufzuzeigen, wurde eine Zircaloy 4-Rohrprobe 5,5 Minuten bei lokal gemessen 1120°C der Korrosion unterworfen. Die da-

bei erzeugten Oxidschichten lagen bei 48 bis 72  $\mu\text{m}$ . Offensichtlich werden die Windungen der Induktionsspule als Temperaturschatten auf die Probe projiziert und dadurch ein lokales Temperaturprofil erzeugt. Es sind deshalb folgende Schritte zu einer gleichmäßigen Beheizung der Probe beabsichtigt:

- Zwischen der Probe und der Induktionsspule wird eine axial geschlitzte Kupferhülse als Ankopplungshilfe angebracht. Dadurch wird eine gleichmäßigere und stärkere Energieübertragung erwartet.
- Weiterhin ist ein Versuch mit einer Spule geplant, die mit einer einzigen sehr breiten Windung die gesamte Probenlänge abdeckt.

#### 4. Untersuchungen zur Sauerstoffverteilung in der metallischen Phase von Zircaloy 4-Hüllrohren nach der Wasserdampf-Oxidation

Nach der in dem 2. PNS-Halbjahresbericht 1973, KFK-1908 S. 112 beschriebenen Methode wurden temperaturtransiente Oxidationsversuche an Rohrabschnitten unter Variation von Temperatur und Zeit durchgeführt. Die Proben wurden auf einem Quarzschlitten im kälteren Teil des dampfdurchströmten Rezipienten exposiert und anschließend in die beheizte Zone des Ofens mit der gewählten Versuchstemperatur eingefahren. Nach Ablauf der vorgesehenen Versuchszeit wurde die Probe wieder in die Ausgangsposition gebracht und im stagnierenden Dampf abkühlen lassen. Zur Bestimmung der Sauerstoffaufnahme wurden an metallographischen Querschliffen der Proben (15 min, 900-1300°C) mit der Mikrosonde die Sauerstoffprofile gemessen. Parallel zu dieser Sauerstoffmessung wurden Härtemessungen in unmittelbarer Nähe der Meßspur über die korrodierte Rohrwandung durchgeführt (Abb. 4235-8).

Die Auswertung der Messungen (Abb. 4235-9) lässt sich wie folgt zusammenfassen:

- Der Überblick zeigt sehr klar, daß sich bei gleichbleibender Reaktionszeit mit um jeweils 100°C ansteigender Temperatur eine zunehmende Oxidation verbunden mit immer tieferer Eindiffusion von Sauerstoff und entsprechender Gefügeumwandlung vollzieht.
- Die Kurven zeigen den tendenziell gleichsinnigen Verlauf von Sauerstoffgehalt und Härte, wobei zu berücksichtigen ist, daß die wiedergegebenen Werte des Sauerstoffgehaltes (Imp./sec.) keinen Schluß auf die absoluten Prozentgehalte des Gefüges erlauben und somit nur qualitative Hinweise geben.

- Die zuverlässigeren Härtemessungen hingegen zeigen die Expansion der Diffusionszone von 40  $\mu\text{m}$  ( $900^\circ\text{C}$ ), 70  $\mu\text{m}$  ( $1000^\circ\text{C}$ ), 90  $\mu\text{m}$  ( $1100^\circ\text{C}$ ), 220  $\mu\text{m}$  ( $1200^\circ\text{C}$ ) auf 240  $\mu\text{m}$  ( $1300^\circ\text{C}$ ) Abstand von der Oxidschicht.
- Es zeigt sich damit, daß Härtemessungen zwar qualitative Hinweise auf eine stattgefundene oxidative Durchdringung geben können, daß aber eine quantitative Zuordnung von Härte und Sauerstoff nur durch Härtemessungen an Zircaloy-Proben bekannten homogen verteilten Sauerstoffgehaltes vorgenommen werden kann.

## 5. Weitere Versuchsvorhaben

### 5.1 Transiente Oxidationsversuche mit nachgeordneter mechanischer Prüfung

Hierzu wurden Flachzerreißproben bei  $900\text{--}1200^\circ\text{C}$  und bei verschiedenen Reaktionszeiten der Hochtemperatur-Oxidation in Wasserdampf ausgesetzt. Bei diesen Proben wird nach Fertigstellung der Zerreißmaschine die mechanische Prüfung auf Festigkeit und Duktilität bei  $370$  und  $900^\circ\text{C}$  durchgeführt.

### 5.2 Berstversuche unter Variation von Druck und Temperatur nach vorausgehen- der oder bei gleichzeitiger Oxidation in überhitztem Wasserdampf

Mit dem Bau einer Apparatur zur Durchführung von Berst-Testen unter gleichzeitiger Hochtemperatur-Oxidation ist begonnen worden. In dieser Apparatur werden Rohrkapseln mit verschiedenen Innendrücken den üblichen transienten Oxidationsbedingungen ( $900\text{--}1300^\circ\text{C}$ ) auf ihrer äußeren Oberfläche ausgesetzt.

### 5.3 Untersuchung der Oxidations-Kinetik von Zircaloy 4 mit Hilfe der Thermowaage

Versuche an Zircaloy-Material in verschiedenen Probeformen mit Hilfe der Thermowaage sollen den genauen zeitlichen Ablauf der Oxidation in Sauerstoff und Wasserdampf bei verschiedenen Temperaturen und einer Vielzahl anderer Parameter aufzeigen.

# TRANSIENTE ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

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

-186-

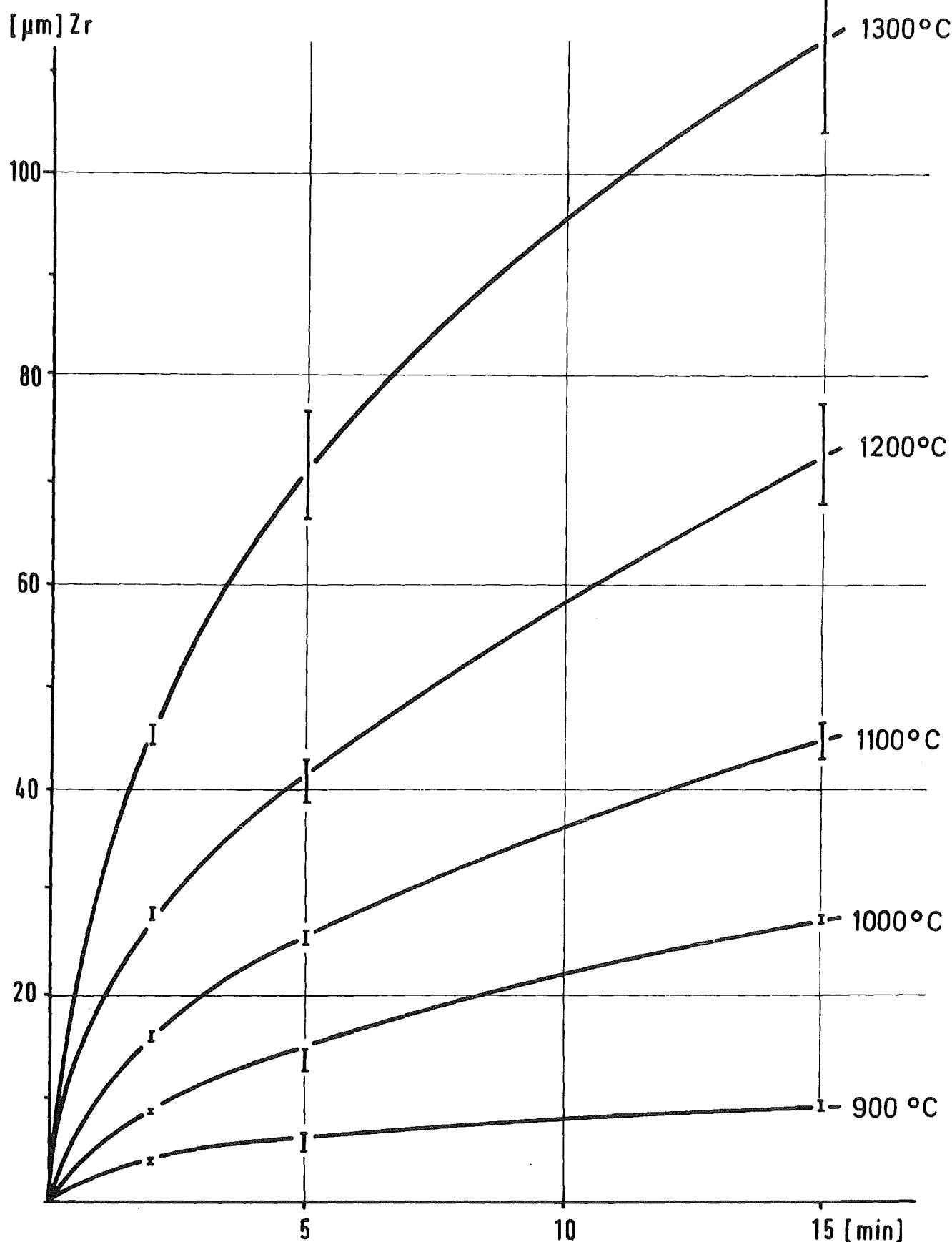
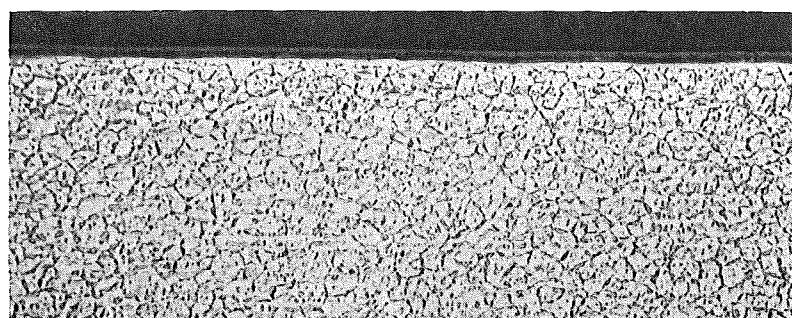


Abb. 4235-6

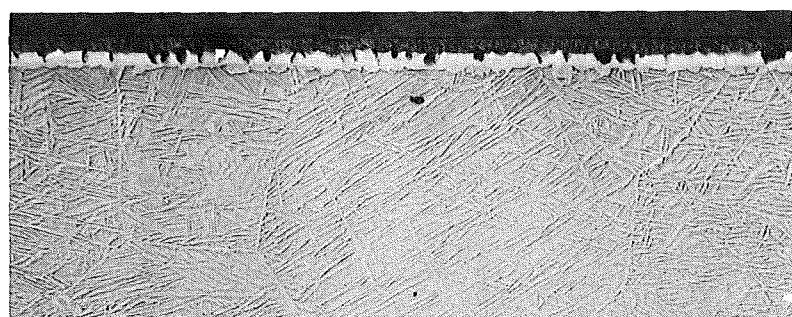
# TRANSIENTE ZIRCALOY 2/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

(5 min, 900 - 1300 °C, 1at, 1 m/sec)

-187-



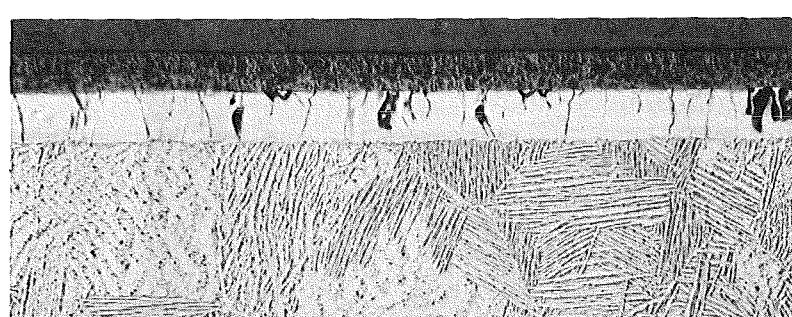
900 °C



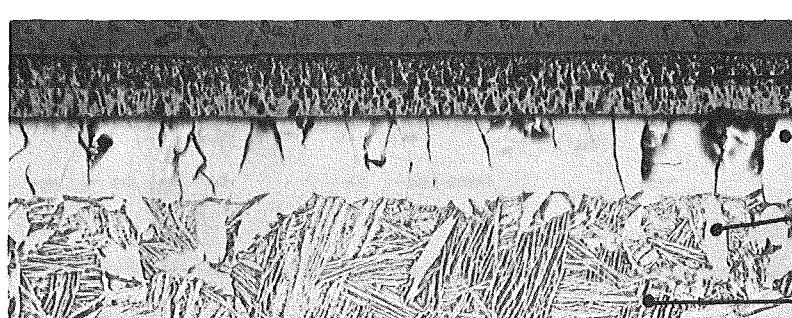
1000 °C



1100 °C



1200 °C



1300 °C  
 $ZrO_2$   
 $O_2$ -stab.  $\alpha$  - Phase  
 $O_2$ -stab.  $\alpha$  - Phase-  
Einwachslungen  
von  $\beta$ -transf. $\alpha$ -Phase  
geätzt, 100 X

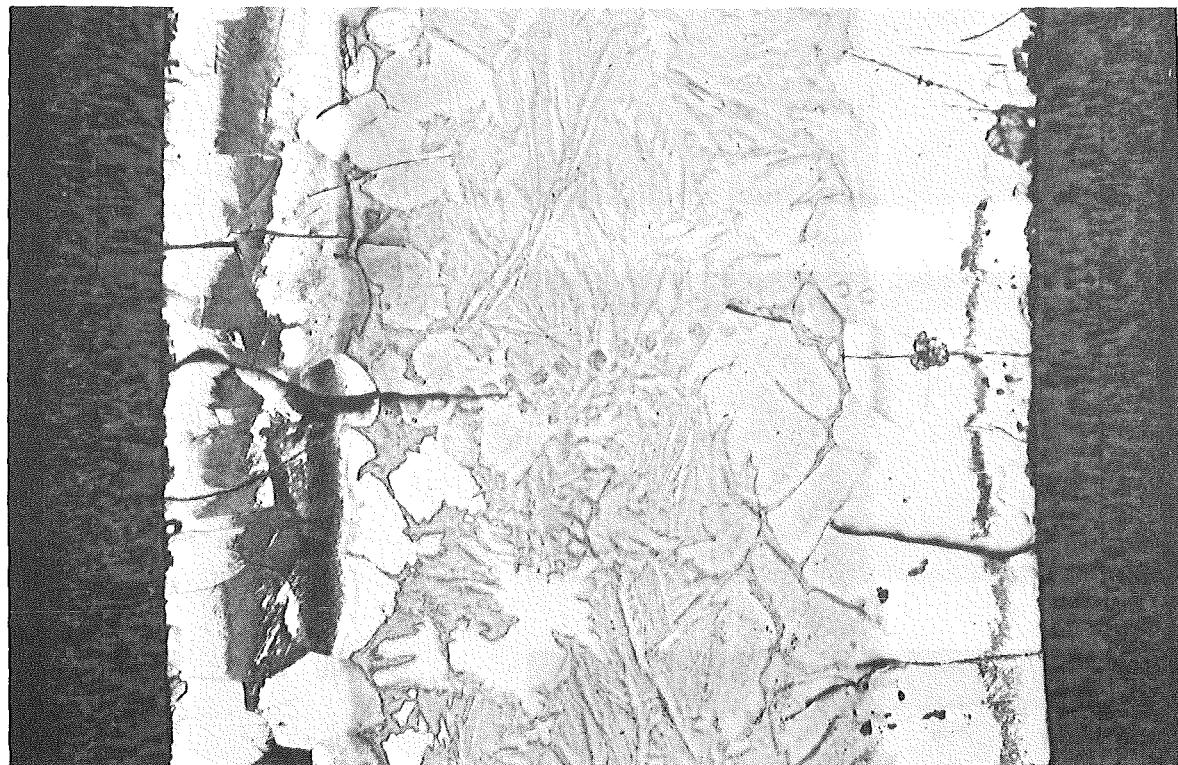
Abb.4235-7

# TRANSIENTE ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

(5 min, 1300 °C, 1at, 1m/sec)

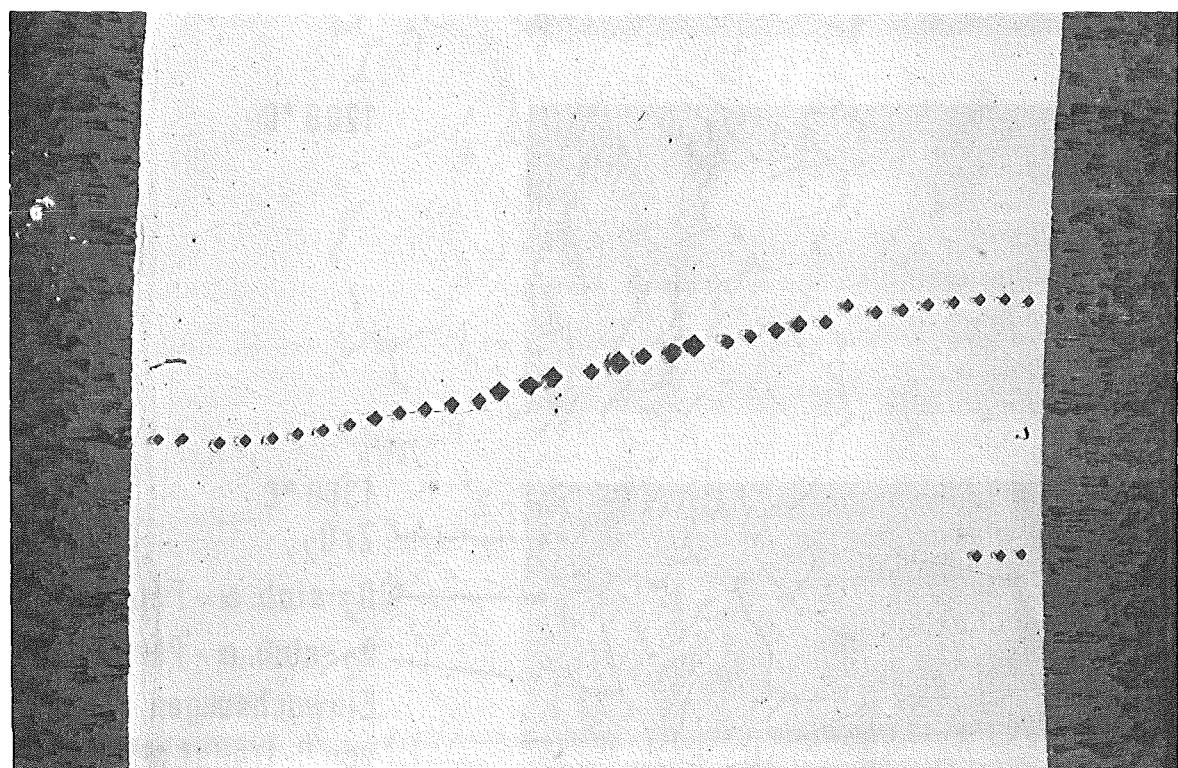
HÄRTEMESSUNG ÜBER DEN ROHRQUERSCHNITT

- 188 -



geätzt

200 X



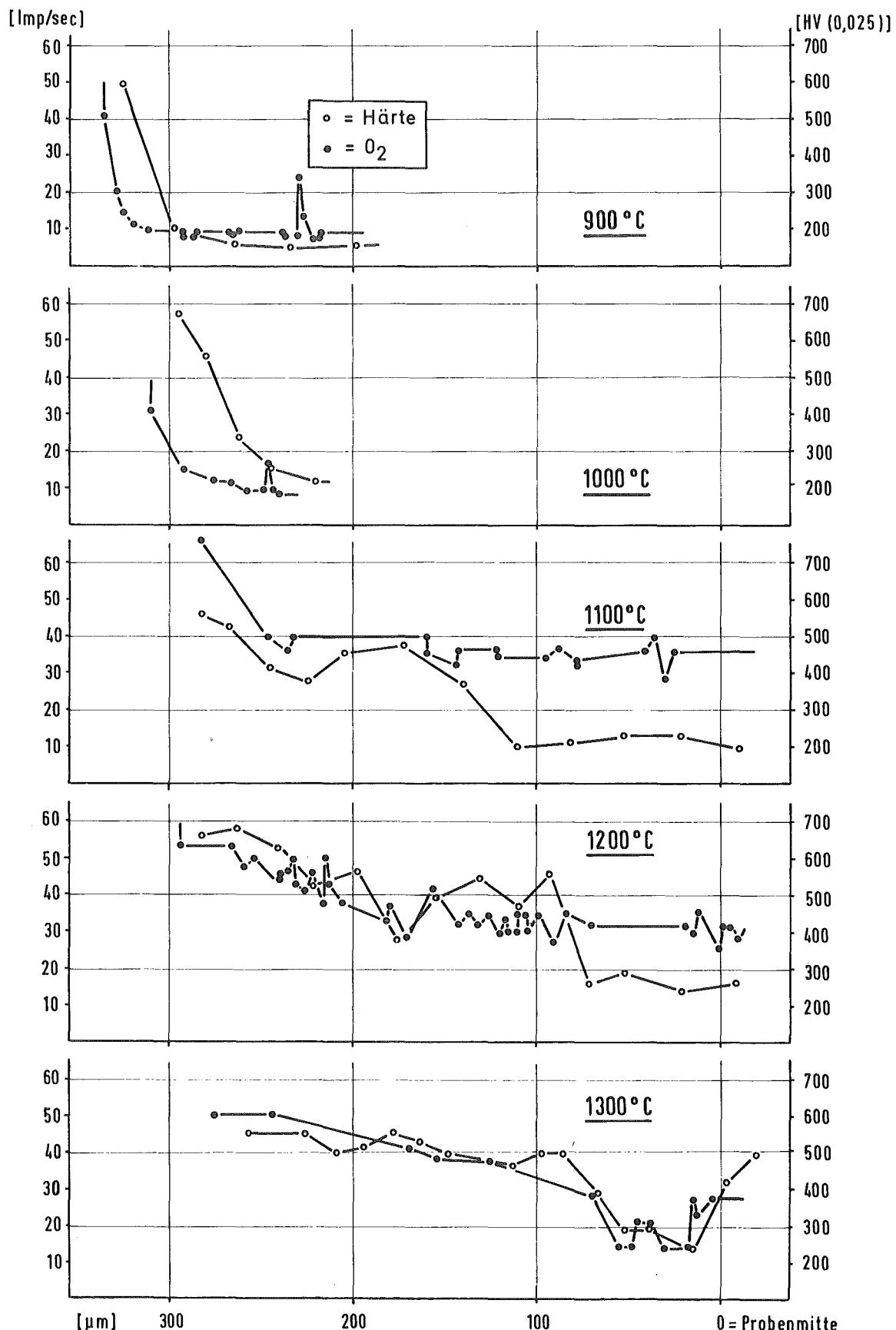
ungeätzt

200 X

Abb. 4235-8

## TRANSIENTE ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

### ZUSAMMENHANG VON HÄRTEVERLAUF UND SAUERSTOFFGEHALT ÜBER DEN QUERSCHLIFF (15 min, 900-1300 °C, 1at, 1m/sec)



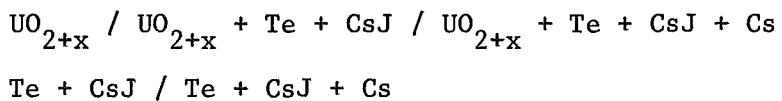
4235.3 Experimentelle Untersuchungen zur chemischen Wechselwirkung Brennstoff/Zircaloy-Hülle  
(P.Hofmann, IMF/I)

Die im letzten Halbjahresbericht (KFK 2050) beschriebenen Experimente mit kurzen Zircaloy-Hüllrohren zur Ermittlung des Reaktionsverhaltens von Zircaloy-4 gegenüber Oxidbrennstoff und simulierten Spaltprodukten und der damit verbundenen Änderung der mechanischen Eigenschaften wurden fortgesetzt. Parallel dazu wurden isotherme Versuch mit Zry-2-Näpfchen durchgeführt. Diese Experimente erwiesen sich als notwendig, da sich die Zry-Hüllrohre bereits beim Hochheizen aufblähten und z.T. platzten und dadurch die flüchtigen Spaltprodukte aus den Rohrproben austraten. Bei den Näpfchenproben bleibt aufgrund der grossen mechanischen Stabilität der Näpfchen der Festkörperdruck zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial während des Versuches erhalten, und die Spaltprodukte können nicht aus dem System entweichen.

Versuchsdurchführung

Die Experimente wurden mit reinem Uranoxid und mit spaltproduktdotiertem  $UO_2$  durchgeführt. Die verschiedenen simulierten Spaltprodukte wurden dem  $UO_2$  einzeln bzw. in Gruppen zugegeben, um so den Einfluss der einzelnen Spaltprodukte auf das Reaktionsverhalten besser feststellen zu können. Im Rahmen dieser out-of-pile Untersuchungen wurde nur das Reaktionsverhalten der flüchtigen Spaltprodukte Cs(Rb), Te(Se) und J(Br) gegenüber Zircaloy untersucht, da sich diese aufgrund thermodynamischer Abschätzungen als aggressiv gegenüber dem Zry erweisen. Dies gilt besonders für Jod und Tellur. Die übrigen während der Kernspaltung im Brennstoff entstehenden Spaltprodukte reagieren bevorzugt miteinander bzw. mit dem  $UO_2$  und sind daher als nicht reaktiv gegenüber dem Zry zu betrachten. Sie werden deshalb bei diesen Untersuchungen zunächst nicht berücksichtigt.

Das Reaktionsverhalten von Zircaloy-2 und -4 wurde gegenüber folgenden Brennstoff-Spaltprodukt-Mischungen untersucht:



Zum Vergleich wurden auch Experimente mit Argon-gefüllten Proben durchgeführt, um den Einfluss der die Proben umgebenden Versuchsatmosphäre auf das chemische und mechanische Verhalten des Zircaloy kennenzulernen. Jod reagiert bei

kleinen Sauerstoffpotentialen bevorzugt mit dem Cäsium und wurde deshalb in Form von CsJ eingesetzt. Der an das Jod gebundene Cs-Anteil beträgt etwa 5%. Das restliche Cs und das Te wurden den Proben elementar zugegeben.

Der simulierte Abbrand variierte zwischen 5 und 10 At.%, das O/M-Verhältnis des  $UO_2$  zwischen 2.00 und 2.08. Zur qualitativen Beurteilung der Innen-Korrosion der Zry-Hülle durch den Brennstoff und die Spaltprodukte sowie zur Festlegung von Verträglichkeitsgrenzen und zur besseren Identifizierung der entstehenden Reaktionsprodukte wurde ein Abbrand simuliert, der deutlich grösser ist als der in der Praxis bei LWR erreichbare max. Abbrand. Gleiches gilt für das O/M-Verhältnis des  $UO_2$  von 2.08.

Die Präparation der Proben erfolgte wegen der grossen Sauerstoff- und Feuchtigkeitsempfindlichkeit des Brennstoffs und der Spaltprodukte in Handschuhboxen unter hochreinem Schutzgas. Die Hüllohre und Näpfchen wurden nach dem Füllen in der Handschuhbox mit einem konischen Stöpsel gasdicht verschlossen und anschliessend in einer Elektronenstrahlschweissanlage verschweisst. Der Gasdruck in den Versuchsproben entsprach bei Raumtemperatur dem Atmosphärendruck.

Die Glühung der Versuchsproben erfolgte zwischen 800 und  $1200^{\circ}C$  in einem Rohrofen, oberhalb  $1200^{\circ}C$  in einem Ofen mit Wolfram-Heizleiter (Typ Balzer). Während beim Rohrofen die in einem Quarzrohr befindlichen Proben in den bereits auf die entsprechende Versuchstemperatur gebrachten Rohrofen geschoben wurden, erfolgte die Aufheizung beim Balzer-Ofen zusammen mit dem Ofen. Die max. Glühzeit betrug 1 h. Die Glühungen wurden unter Schutzgas durchgeführt. Die Temperaturmessung erfolgte mittels Thermoelemente an Vergleichsproben.

### Versuchsergebnisse

#### Hüllrohrproben

Der grösste Teil der Versuchsproben platzte bereits beim Hochheizen auf, und die flüchtigen Spaltprodukte traten aus der Probe aus. Nach dem Bersten der Zry-Hüllrohre wurde deshalb das Experiment abgebrochen. Diejenigen Hüllrohrproben, die nicht barsten, wurden bei den entsprechenden Temperaturen 1 h gegläuht.

Die Bersttemperatur ist ausser vom Innendruck sowohl vom O/M-Verhältnis des  $UO_2$  als auch vom Spaltproduktangebot abhängig. Die mit spaltproduktfreiem  $UO_{2.08}$  gefüllten Hüllrohre bersten bereits nach unterschiedlich starker Aufblähung zwischen 800 und  $900^{\circ}C$ . Die Brennelement-Proben, die nur Spaltpro-

dukte und kein  $UO_2$  enthalten, versagen erst oberhalb  $900^\circ C$ . Diejenigen Proben, die weder  $UO_2$  noch Spaltprodukte enthielten, sondern nur mit Argon gefüllt waren, liessen auch bei  $1100^\circ C$  nach 1 h Glühzeit keine Veränderungen erkennen. Ähnliches gilt für die Proben, die nur  $Te+CsJ$  und kein freies Cs enthielten. Der Einfluss des Sauerstoffpotentials des  $UO_2$  auf die mechanischen Eigenschaften des Zry-Hüllrohres ist demnach offenbar grösser als das Reaktionspotential der Spaltprodukte. Abb.4235-10 zeigt einen Teil der Hüllrohrproben nach der Glühbehandlung. Für die unterschiedliche Aufweitung der Zry-Rohre ist wahrscheinlich der Druckaufbau während des Hochheizens und damit die Verformungsgeschwindigkeit des Zry verantwortlich. Die max. Umfangsdehnung bis zum Bersten der Rohrprobe betrug  $\sim 100\%$  (Abb.4235-11).

Der Innendruck der Hüllrohre wird durch den Druck des Füllgases (Argon) und durch den Partialdruck der flüchtigen Spaltprodukte (Cs, J, Te) bestimmt. Die Temperaturabhängigkeit des Füllgasdruckes lässt sich über die allgemeine Gasgleichung abschätzen. Die Ermittlung des maximal möglichen Druckes der Spaltprodukte erfolgte anhand ihrer Dampfdrucke. Bei dieser Abschätzung wurde angenommen, dass das Jod in Form von Cäsiumjodid vorliegt, dass das restliche Cs und das Te weder miteinander noch mit dem  $UO_2$  bzw. dem Zry-4 reagieren und dass die Spaltprodukte bei allen Versuchstemperaturen z.T. noch in kondensierter Form vorliegen. Der Sauerstoffpartialdruck des  $UO_2$  ist zu vernachlässigen. Der unter diesen Randbedingungen berechnete maximale Innendruck variiert bei den Rohrproben, die mit  $UO_{2.08}$  bzw.  $UO_{2.08}+Te+CsJ$  gefüllt waren, zwischen etwa 3,7 ( $800^\circ C$ ) und ca. 5,4 bar ( $1000^\circ C$ ) und bei den Proben, die mit  $UO_{2.08}+Te+CsJ+Cs$  bzw. nur mit den simulierten Spaltprodukten  $Te+CsJ+Cs$  gefüllt waren, zwischen ca. 6,6 ( $800^\circ C$ ) und ungefähr 18 bar ( $1000^\circ C$ ). Der tatsächlich in den mit Brennstoff und/oder Spaltprodukten gefüllten Zry-4-Hüllrohren (Aussendurchmesser 10,75 mm; Wandstärke 0,73 mm) herrschende Berstdruck dürfte jedoch deutlich unterhalb den für  $1000^\circ C$  angegebenen Werten von 6,6 bzw. 18 bar liegen. Zum einen kommt es stets unterhalb  $1000^\circ C$  zum Bersten und zum anderen ist nicht auszuschliessen, dass die Spaltprodukte z.T. mit dem Brennstoff und dem Hüllmaterial reagieren. In allen Fällen ist der abgeschätzte Berstdruck deutlich kleiner als der experimentell ermittelte Berstdruck an unkorrodierten Zry-4-Rohrproben<sup>+) ).</sup> Das ist ein Hinweis darauf, dass sowohl der Oxidbrennstoff als auch die Spaltprodukte mit dem Hüllmaterial reagieren, und es dadurch zu einer Änderung der mechanischen Eigenschaften des Zry-4 kommt.

---

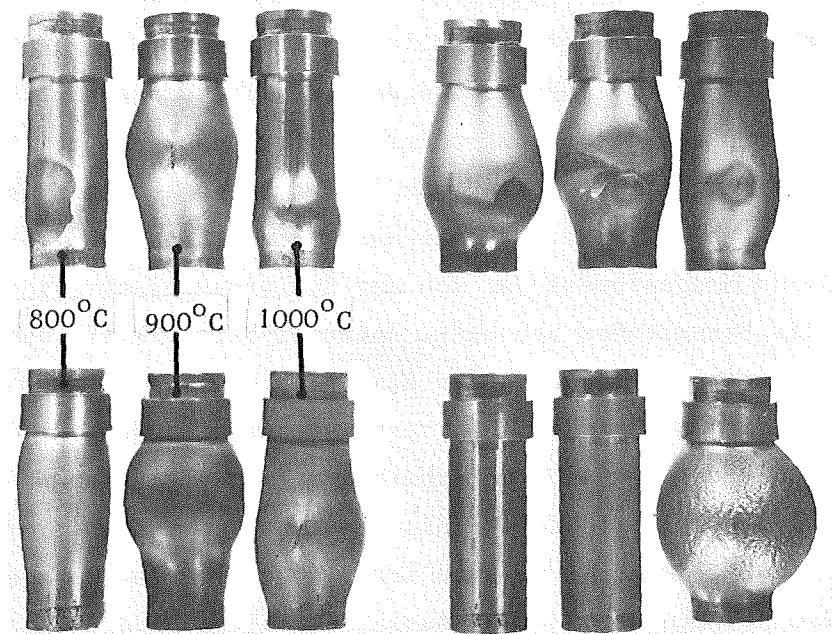
<sup>+) )</sup> D.O. Hobson, P.L. Rittenhouse ; ORNL 4758 (1972)

Die während eines Kühlmittelverlustunfalles tatsächlich auf das Hüllrohr einwirkenden Kräfte sind infolge der grösseren Druckdifferenzen in der Praxis erheblich grösser als bei diesen out-of-pile Untersuchungen. Bei Druckwasserreaktoren (DWR) beträgt der Vorinnendruck in den Brennelementen wegen des hohen Betriebsdruckes etwa 70 bar; bei Siedewasserreaktoren ca. 1 bar. Der weitere Druckaufbau im Brennelement ist von der Spaltgaskonzentration, d.h. vom Abbrandzustand des Brennstabes abhängig. Speziell beim DWR ist daher mit grossen Druckdifferenzen zu rechnen, da der Aussendruck in der Niederdruckphase eines LOCA nur einige bar beträgt. Die Versagenstemperaturen für die Zry-Hüllrohre werden deshalb deutlich unterhalb der hier angegebenen Bersttemperaturen liegen. Bei den weiterführenden Experimenten ist es daher erforderlich, in den Hüllrohrproben Gasdrücke zu simulieren, wie sie sehr wahrscheinlich in der Praxis im Brennelement herrschen. Ausserdem sollen Experimente unter gleichzeitiger Innen- und Aussenkorrosion durchgeführt werden.

#### Näpfchenproben

Die ersten Ergebnisse der isothermen Versuche mit dickwandigen, gasdichten Zry-Näpfchenproben zeigen, dass das Ausmass der chemischen Wechselwirkungen zwischen dem Zircaloy und dem Brennstoff sowie den Spaltprodukten stark vom Spaltprodukt-Angebot abhängig ist. Spaltproduktfreies  $UO_2$  reagiert erst bei Temperaturen oberhalb  $1000^\circ C$  und Glühzeiten von 1 h in stärkerem Masse metallographisch sichtbar mit dem Zry, wobei ein Teil des Zr in das  $UO_2$  und gleichzeitig ein Teil des Urans und des Sauerstoffs in das Zry diffundieren (Abb.4235-12). Es bildet sich im Zry eine U-Zr-O-Phase mit metallischem Charakter. Mikrohärteuntersuchungen des Zry zeigen aber, dass bei Temperaturen  $\leq 1000^\circ C/1$  h der eindiffundierende Sauerstoff zu einem starken Härteanstieg des Zry an der Phasengrenze  $UO_2/Zry$  führt, ohne dass metallographisch sichtbare Reaktionen erkennbar sind. Die Zunahme der Härte ist dabei vom O/M-Verhältnis des  $UO_2$  abhängig. Oberhalb  $1000^\circ C/1$  h bildet sich aufgrund der grossen Sauerstoffbeweglichkeit im Zry kein Härtegradient im Hüllmaterial mehr aus, die lokale Versprödung ist dadurch erheblich kleiner.

Spaltproduktdotiertes  $UO_2$  verursacht im Gegensatz zu reinem  $UO_2$  bei  $1000^\circ C/1$  h deutliche chemische Wechselwirkungen mit dem Zry (Abb.4235-13). Neben Sauerstoff diffundiert besonders Tellur in das Zry, wodurch es zu einem starken Härteanstieg im Hüllmaterial an der Phasengrenze  $UO_2/Zry$  kommt.

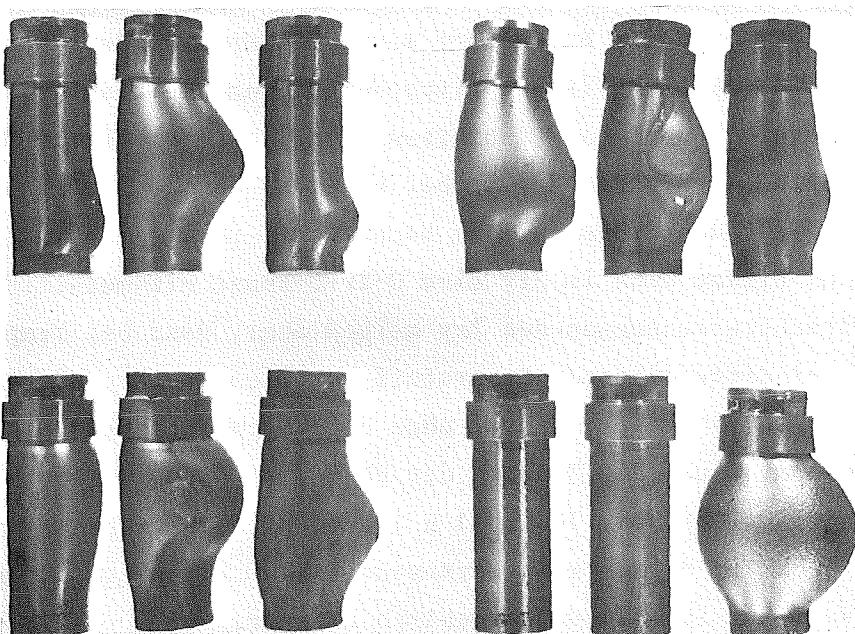


Hüllrohre gefüllt mit:

$\text{UO}_2\text{.08}$  ; links oben       $\text{UO}_2\text{.08} + \text{Te} + \text{CsJ}$ ; rechts oben  
 $\text{UO}_2\text{.08} + \text{Te} + \text{CsJ} + \text{Cs}$ ; l. unten       $\text{Te} + \text{CsJ} + \text{Cs}$  ; r. unten

Stationäre Temperatur des Ofens:

Links:  $800^\circ\text{C}$ ;      Mitte:  $900^\circ\text{C}$ ;      Rechts:  $1000^\circ\text{C}$



Hüllrohrproben gegenüber oben um  $90^\circ$  gedreht

Abb. 4235-10 : Zry-4-Hüllrohre, die mit Oxidbrennstoff und/oder simulierten Spaltprodukten gefüllt waren, nach der Wärmebehandlung unter Schutzgas. Der simulierte Abbrand betrug 5 At.%. Der grösste Teil der Rohrproben platzte bereits beim Hochheizen zwischen  $800$  und  $900^\circ\text{C}$  auf. Diejenigen Proben, die nicht barsten, wurden bei der entsprechenden Ofentemperatur 1 h geglüht.

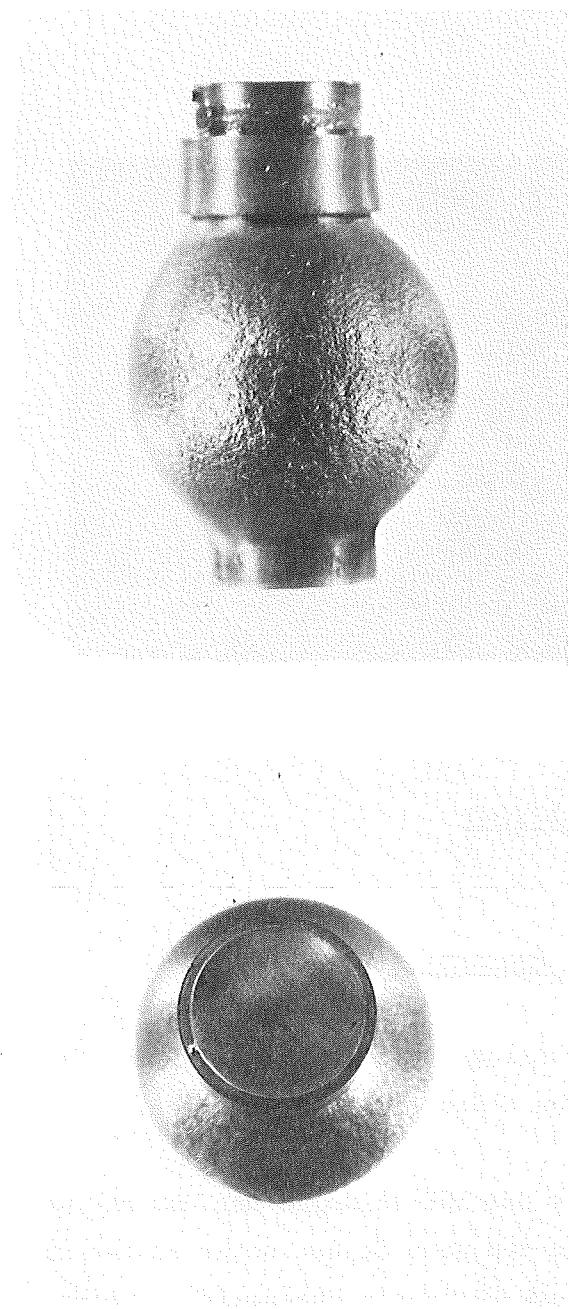


Abb. 4235-11 : Zry-4-Rohrprobe nach dem Bersten bei etwa 900°C; Aufheizgeschwindigkeit ca. 3°/s. Die Rohrprobe war nur mit den simulierten Spaltprodukten Cs, J und Te gefüllt (sim. Abbr. 5 At.-%). Der Innendruck im Hüllrohr entsprach bei Raumtemperatur dem Atmosphärendruck; Berstdruck ca. 10 bar, Zunahme des Rohrumfanges: ~ 100 %.

durchgeführt. Die Arbeiten sollen vor Beginn der Hauptversuche (siehe Punkt 4.) abgeschlossen werden.

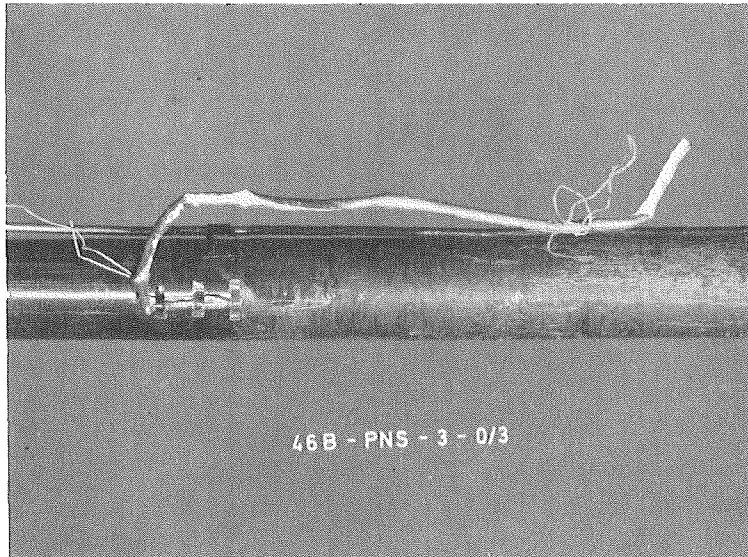


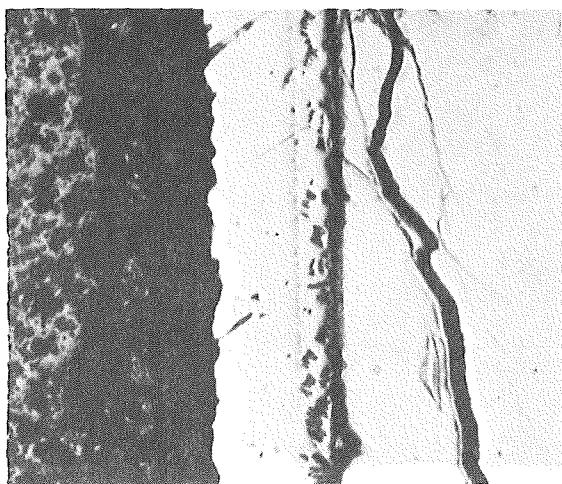
Abb. 4237-3

## 2. Zur Vorbestrahlung der Brennstäbe

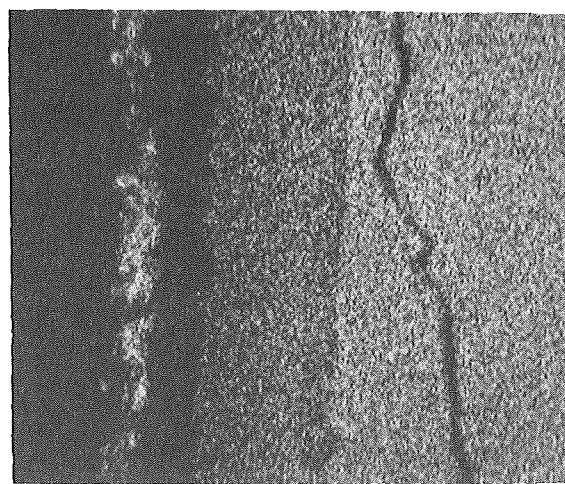
Die Vorbestrahlung der Prüflinge soll im FR2 erfolgen. Dabei sollen in einem Brennelement sechs Stäbe eingesetzt werden.

In mehreren Gesprächen mit der KWU Erlangen und dem KWO war geprüft worden, ob die Bestrahlung von neun Stäben unter echten Druckwasserreaktorbedingungen im Kernkraftwerk Obrigheim durchgeführt werden kann.

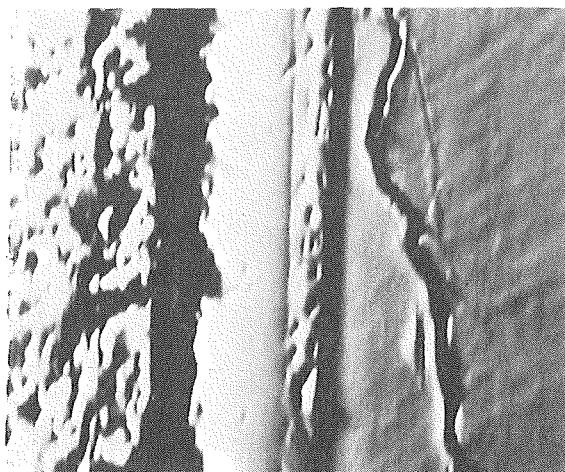
Es ergab sich die Möglichkeit, jeweils drei Stäbe übereinander als segmentierten Brennstab auszuführen. Doch bei der Bestrahlungsdauer von mehr als einem Zyklus (entsprechend 1 Jahr) ist, durch die höhere Anreicherung von 4,7 % U-235 bedingt, ein sehr großer Aufwand nötig, um die maximal zulässige Leistung an keiner Stelle zu überschreiten (Neutronenabsorber). Daraus ergeben sich nicht nur sehr hohe Kosten, es ist auch notwendig, eine Risikobeteiligung für Reaktorausfall oder Leistungsreduktion einzugehen.



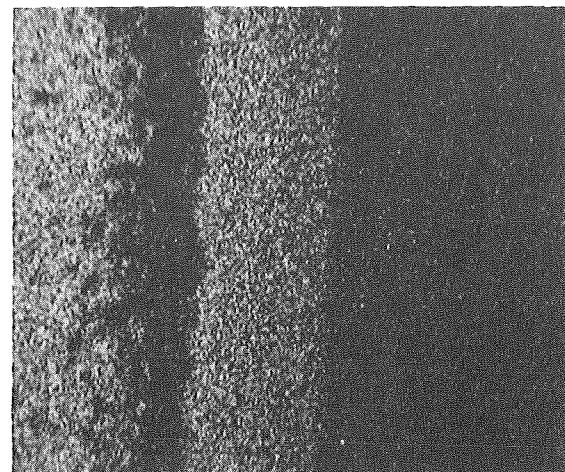
Schliffbildaufnahme; 40  $\mu\text{m}$  



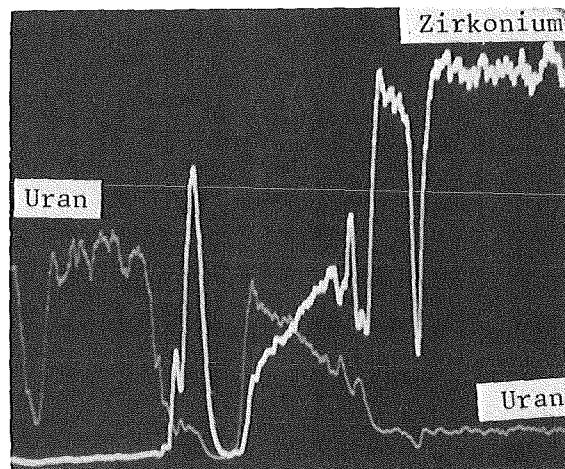
Zr-Röntgenstrahlung



Elektronenrückstrebild

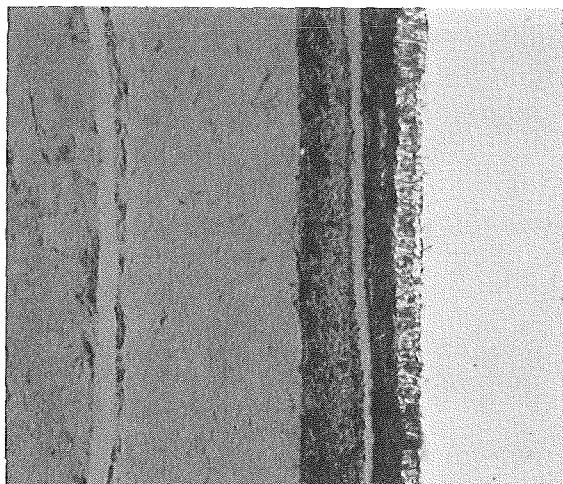


U-Röntgenstrahlung

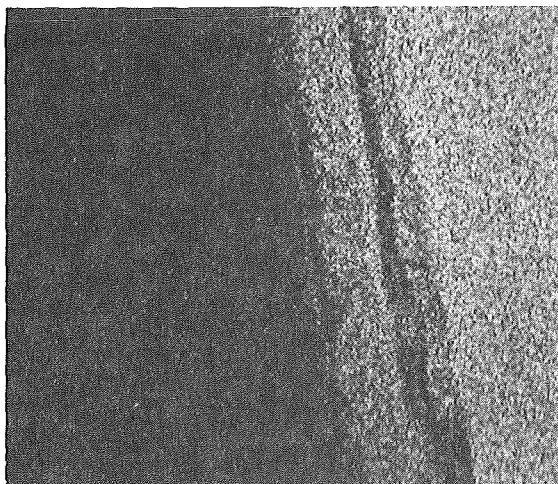


Konzentrationsprofile

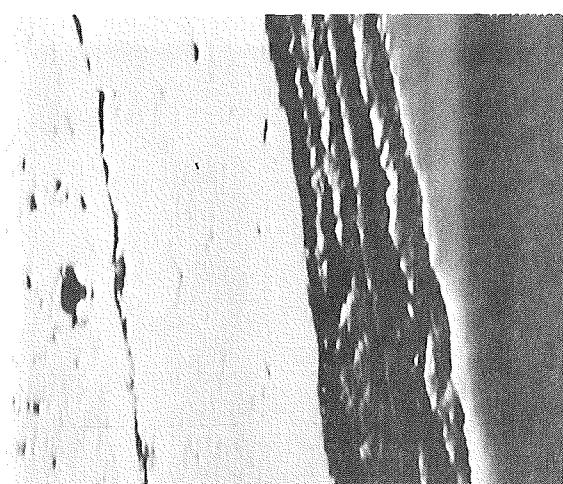
Abb. 4235-12 : Mikrosonden-Aufnahmen des Systems Zry-2/UO<sub>2.00</sub> nach 1300°C/1 h. Das Uran diffundiert bis zu 80  $\mu\text{m}$  in das Zry.



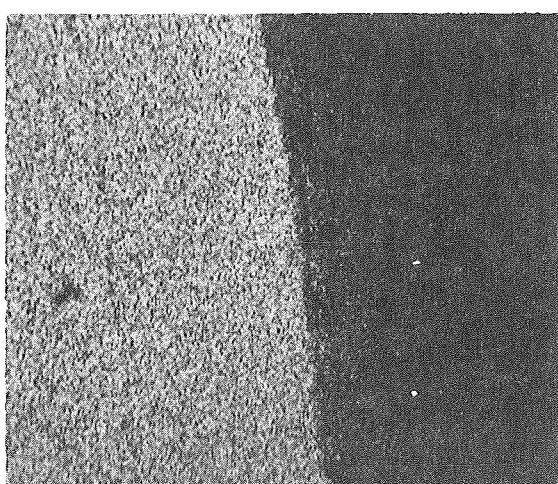
Schliffbildaufnahme; 40  $\mu\text{m}$  



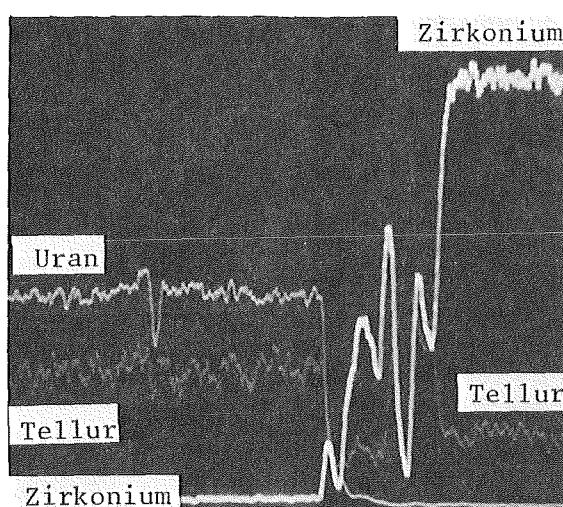
Zr-Röntgenstrahlung



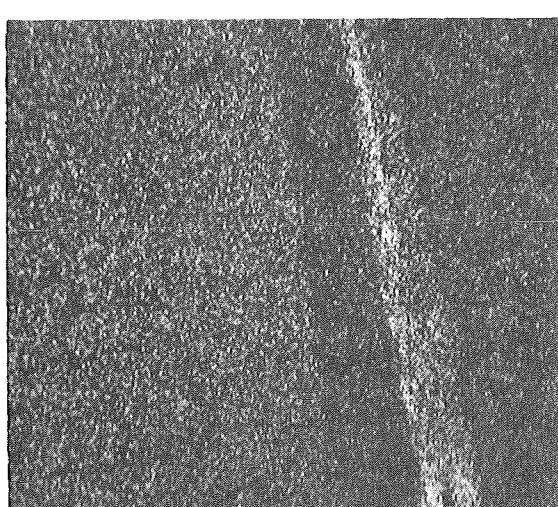
Elektronenrückstrebild



U-Röntgenstrahlung



Konzentrationsprofile



Te-Röntgenstrahlung

Abb. 4235-13: Mikrosondenaufnahmen des Systems Zry-2/UO<sub>2.08</sub>+Cs+J+Te (simulierter Abbrand  $\sim 6$  At.-%) nach 1000°C/1 h. Tellur diffundiert in das Zry; Cäsium und Jod waren in der Reaktionszone nicht nachzuweisen.

4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines  
Kühlmittelverlustunfalles

Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben

(G.Class, D.Fömpel, M.Cramer, IRE; K.Hain, F.Brüderle, H.Naschwitz,  
T.Vollmer, K.Wagner, RBT/IT)

### 1. Brennstabsimulator

Zum Vergleich der wärmetechnischen Eigenschaften des elektrisch beheizten Simulationsbrennstabes mit denen eines DWR-Reaktorbrennstabes wurde das eindimensionale Wärmeleit-Rechenprogramm RESIM erstellt. Die damit durchgeführten Rechnungen dienten der Optimierung des Teststab-Heizleistungsverlaufes im Sinne einer guten Simulationsqualität der Blowdown-Versuche und der Feststellung der sich daraus ergebenden Anforderungen an die elektrischen Versorgungseinrichtungen.

Die Ergebnisse zeigen eine gute Simulation der Stableistung des Referenzstabes während der Blowdown-Phase und eine ausreichende Nachbildung des Speicherwärmeverlaufes (Abb. 4236-1). Zur Simulation der Nachwärmeverzweigung sind 2 Abstufungen der Teststab-Heizleistung im Bereich von 0-25 % ausreichend. Durch Verwendung von Stelltrafos kann hier jeder beliebige Wert angesteuert werden, wodurch das Verhalten von Referenzbrennstäben unterschiedlicher Leistung simuliert werden kann. Weitere Optimierungsrechnungen mittels RESIM werden durchgeführt, sobald aufgrund assemblierter Simulationsbrennstäbe genauere thermodynamische Daten verfügbar sind.

Die Außenbeschichtung der  $UO_2$ -Ringpellets des Simulationsstabes mit einer elektrisch nicht leitenden Sperrsicht zur Erzielung einer ausreichend hohen Durchschlagsfestigkeit bei höheren Temperaturen zur Seite des auf Masse liegenden Hüllrohres hin - das Problem wurde schon im Halbjahresbericht I/74 angezogen - wurde nach verschiedenen Beschichtungsverfahren untersucht. So wurde u.a. angestrebt, eine chemische Abscheidung von  $Al_2O_3$  aus der Gasphase nach dem CVD-Verfahren (Chemical-Vapor-Deposition) zu realisieren, zum anderen eine Sperrsicht ebenfalls aus  $Al_2O_3$  mittels Plasmaspritzverfahren zu erzielen.

Mit befriedigendem Ergebnis konnten im Berichtszeitraum die Betriebswerte für die Beschichtung der Pellets nach dem Plasmaspritzverfahren erarbeitet werden, wobei eine Durchmessertoleranz von  $\pm 0,01$  mm bei einer Schichtstärke von 0,1 mm eingehalten werden kann.

## 2. Versuchsanlage

Bereits im vorigen Halbjahresbericht war das Konzept der Versuchsanlage dargestellt worden. Die für die Blowdown-Phase wesentliche Betriebsweise ist folgende:

Durch rasches Abtrennen der Teststrecke einschließlich der beiden Kühlmittelplana vom Heißwasserkreislauf und durch vorprogrammiertes zeitabhängiges Steuern der Abblaseventile sollen die im Reaktor von den Primärkreisschleifen beeinflußten Bedingungen im Kernbereich simuliert werden. Die Steuerprogramme für die Abblaseventile sollen mit Hilfe von RELAP-3-Rechnungen (später RELAP-4) erstellt werden.

Von diesen theoretischen Arbeiten (PNS 4231) liegen inzwischen erste Ergebnisse vor, die die Durchführbarkeit dieser Simulation des Primärkreiseinfusses mit Hilfe des beschriebenen Anlagekonzeptes bestätigen. Die in den folgenden Abbildungen dargestellten Kurven stammen jedoch nur aus Testrechnungen; die den Experimenten zugrunde zu legenden Transienten sind bisher noch nicht festgelegt.

In Abb. 4236-2 sind die relativen Massendurchsätze durch den Reaktorkern (nach einer BRUCH-D- und RELAP-3-Rechnung von J. Keusenhoff, IRS, Köln) und durch die Teststrecke der Versuchsapparatur miteinander verglichen. Im oberen Bildteil ist das Stellprogramm der Abblaseventile dargestellt, wobei die technisch realisierbaren Stellgeschwindigkeiten berücksichtigt sind. Dieses Stellprogramm ist noch relativ einfach und bietet sicherlich das Potential für weitere Verbesserungen. Aus dem Verlauf der Massendurchsätze kann eine bereits in diesem frühen Stadium der Testrechnungen gute Übereinstimmung zwischen Ist- und Sollkurve entnommen werden.

In Abb. 4236-3 sind die Druckverläufe einander gegenübergestellt. Auch hier können weitere Verbesserungen erreicht werden. Wesentlich dürfte sein, daß die rasche Druckabsenkung zu Beginn des Blowdown realisierbar ist. Auch der Vergleich des Dampfgehaltes in Abb. 4236-4 fällt bereits jetzt recht befriedigend aus. Sicherlich dürfte eine noch bessere Übereinstimmung erzielt werden, wenn durch Änderung des Ventilstellprogramms der kleine positive Kerndurchsatz im Bereich von 2 bis 5 Sekunden noch verringert wird, so daß bei der Strömungsumkehr das Kühlmittel mit höherer Enthalpie vorliegt.

Neben der Fertigungsverfolgung der apparativen Hauptkomponenten - die Bestellung der letzten größeren Anlagenteile konnte abgeschlossen werden -

wurde als Hauptaufgabe die konstruktive Ausführung der Teststrecke in Angriff genommen. Nach verschiedenen Vorentwürfen wurde entschieden, eine mit 8 elektrisch beheizten Umgebungsheizstäben zum Simulationsbrennstab ausgestattete und mit 2 Kugelplena versehene Teststrecke zu verwenden. Das Teststreckenrohr zwischen den Plena ist dabei mit 8 Saphirfenstern zur pyrometrischen Hülltemperaturmessung ausgestattet.

Die Konstruktion (s. Abb. 4236-5) der Teststrecke konnte im wesentlichen abgeschlossen werden. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt erfolgen die Vorprüfung durch den TÜV nach den Druckbehälterrichtlinien sowie die Anfragen zu Herstellung.

### 3. Instrumentierung und Meßwerterfassung

Zur berührungslosen und damit das Hüllrohr nicht beeinflussenden Messung der Hüllrohroberflächentemperatur im Temperaturbereich 550 bis etwa 900 °C, wurde eine auf die Geometrie der Teststrecke abgestimmte Meßanordnung, bestehend aus Saphirfenster, Lichtleiter und Teilstrahlungsparameter IS2 der Fa. Gulton entworfen und diese Meßkette in Vorversuchen bezüglich der Einflüsse der besonderen Betriebsverhältnisse, wie z.B. Zweiphasengemisch Dampf/Wasser, in einer Testanordnung erprobt. Obwohl noch einiger Optimierungsspielraum gegeben ist, kann aufgrund der bislang durchgeführten Arbeiten bereits eine Meßgenauigkeit der Anordnung von etwa 3 % erwartet werden.

Die Arbeiten für die instationären Dichtemessungen in den Kühlmittelplena befinden sich im Angebotsstadium für die Meßeinrichtungen.

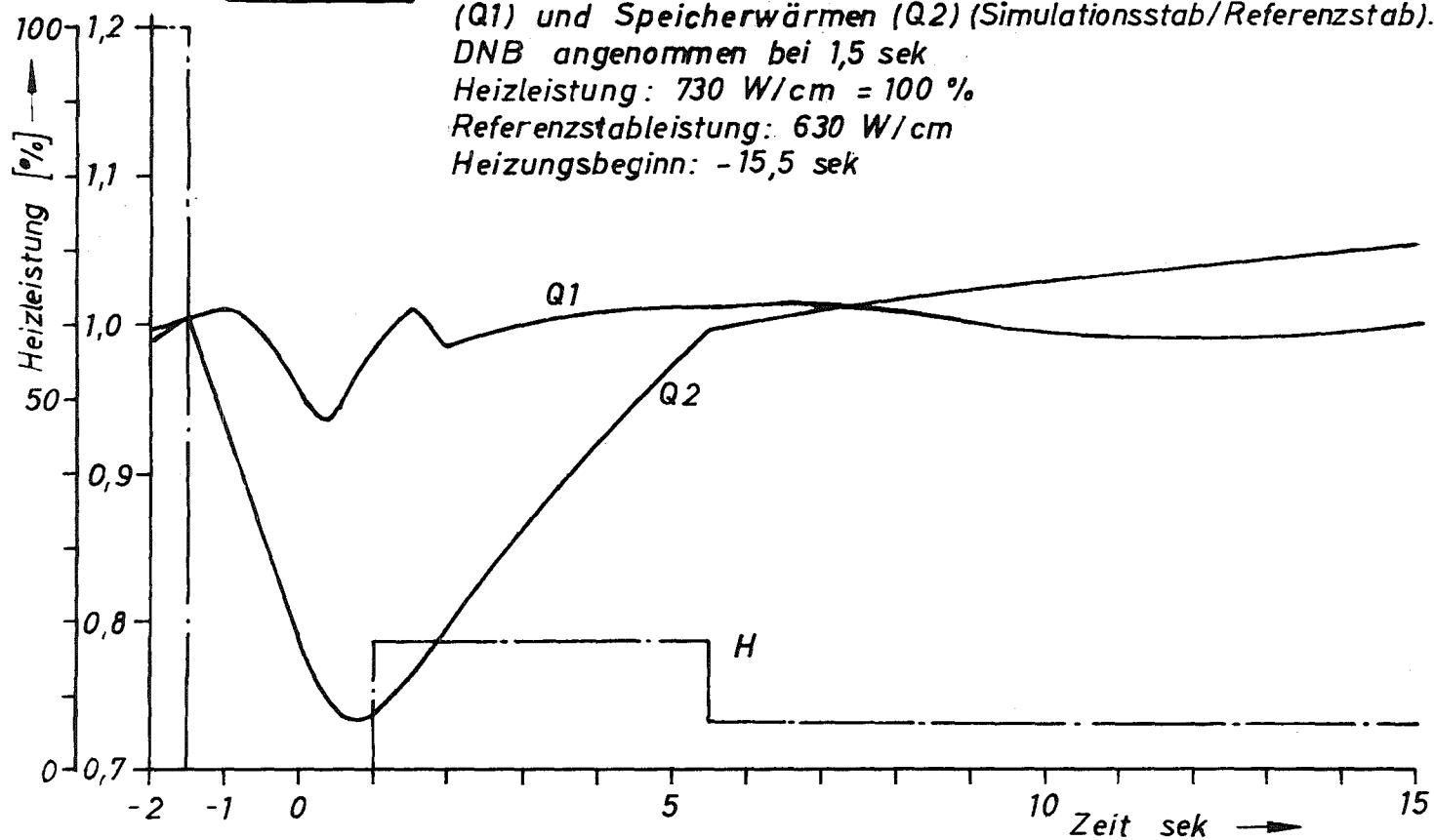
Die Entwicklung des "true mass flow meter" zur Messung instationärer Zweiphasenmassenströme wurde weitergetrieben. Das erste Versuchsmodell, mit dem das Funktionsprinzip demonstriert worden war, wurde im Berichtszeitraum weiterentwickelt. Durch Änderung der Durchströmung (Strömungsumlenkung jetzt außerhalb) des Leitrades konnte eine vom Volumenstrom abhängige Querempfindlichkeit der Anzeige eliminiert werden. Durch Verwendung gekapselter Dehnmeßstreifen als Meßfühler ergaben sich Konsequenzen hinsichtlich der Konstruktion und der zeitlichen Auflösung. Weiterhin wurden die Rotordrehzahl erhöht und weitere Fertigungsverfahren für die Schaufelräder erprobt.

Die mit dem so entstandenen neuen Versuchsmodell aufgenommene Eichkurve zeigt eine Fehlerbreite von maximal  $\pm 6\%$  des Endwertes. Hierbei wurde das Meßsignal in Abhängigkeit vom gegebenen Gesamtmassenstrom dargestellt. Das Verhältnis der Volumenströme des Gasdurchsatzes (Luft) zum Wasserdurchsatz wurde im Bereich 0 bis ca. 300 variiert.

Bedingt durch die kurze Zeitspanne des eigentlichen Blowdown-Ablaufes und der der darin anfallenden Vielzahl von Meßinformationen ist eine elektronische Meßwertaufzeichnung mit einer Abfragefrequenz von 100 Hz pro Einzelmeßstelle erforderlich. Ebenfalls ist die Steuerung des Versuchsablaufes, z.B. der Verlauf der Heizleistung des Simulationsstabes oder die zeitliche Hubeinstellung der Abblaseventile, nicht mehr manuell möglich und muß ebenfalls nach einem versuchsspezifischen Steuerprogramm vom Rechner vorgenommen werden. Ein entsprechendes Meßwerterfassungs- und Steuersystem, das gleichzeitig die primär interessierenden Meßwerte in ihrem zeitlichen Verlauf über die Blowdown-Phase in Realwerten und in Kurvendarstellungen unmittelbar nach Versuchsende zur Verfügung stellt, wurde projektiert, wobei weitgehend das bereits bestehende CALAS-Meßwerterfassungssystem integriert wurde (Abb. 4236-6).

Abb. 4236-1

Heizleistungsverlauf ( $H$ ) und Verhältnis der Stableistungen  
( $Q_1$ ) und Speicherwärmen ( $Q_2$ ) (Simulationsstab/Referenzstab).  
DNB angenommen bei 1,5 sek  
Heizleistung:  $730 \text{ W/cm} = 100 \%$   
Referenzstabileistung:  $630 \text{ W/cm}$   
Heizungsbeginn: -15,5 sek



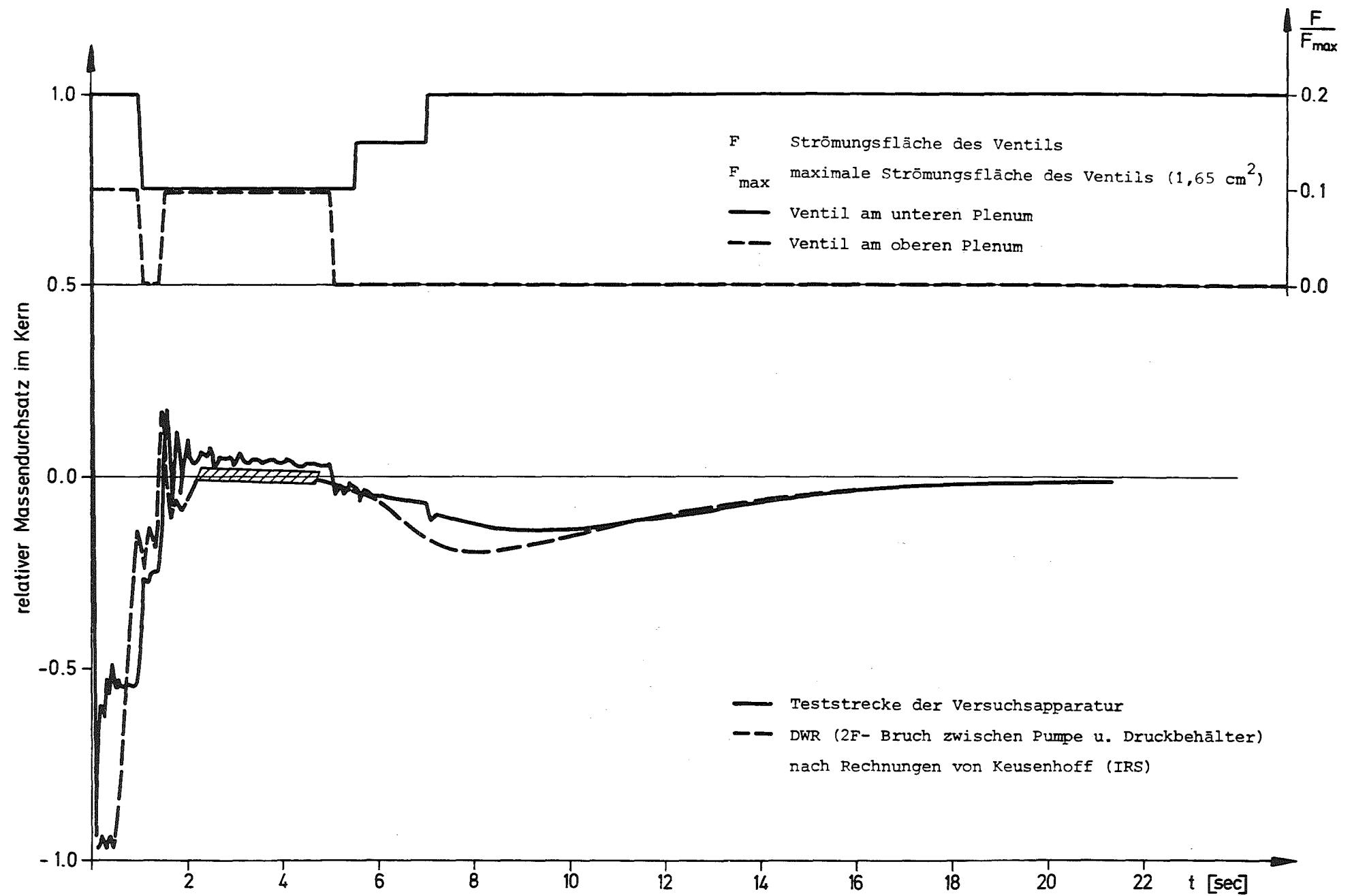


Abb. 4236-2: Relativer Massendurchsatz und Stellprogramm der Abblaseventile

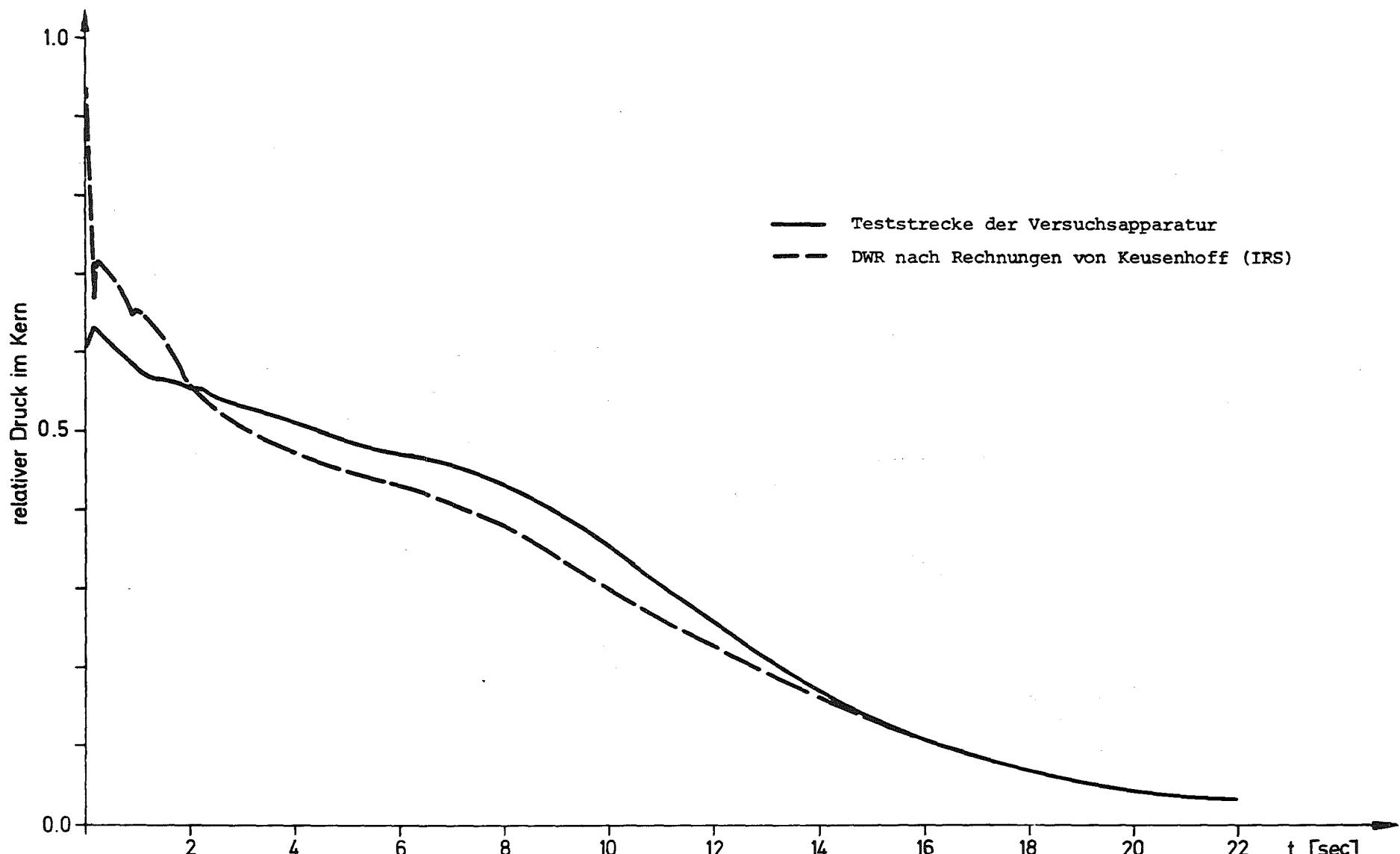
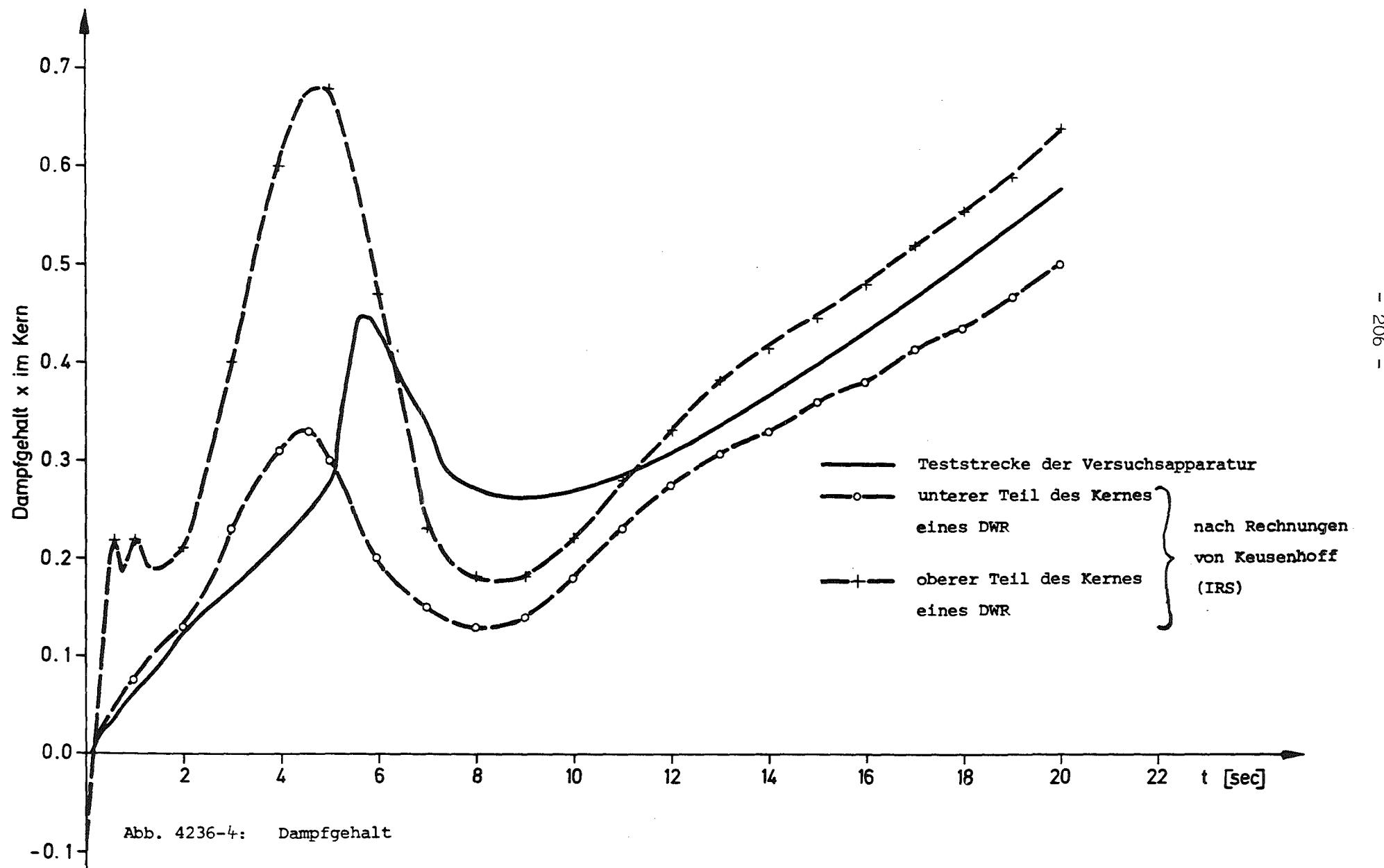


Abb. 4236-3: Relativer Druckverlauf



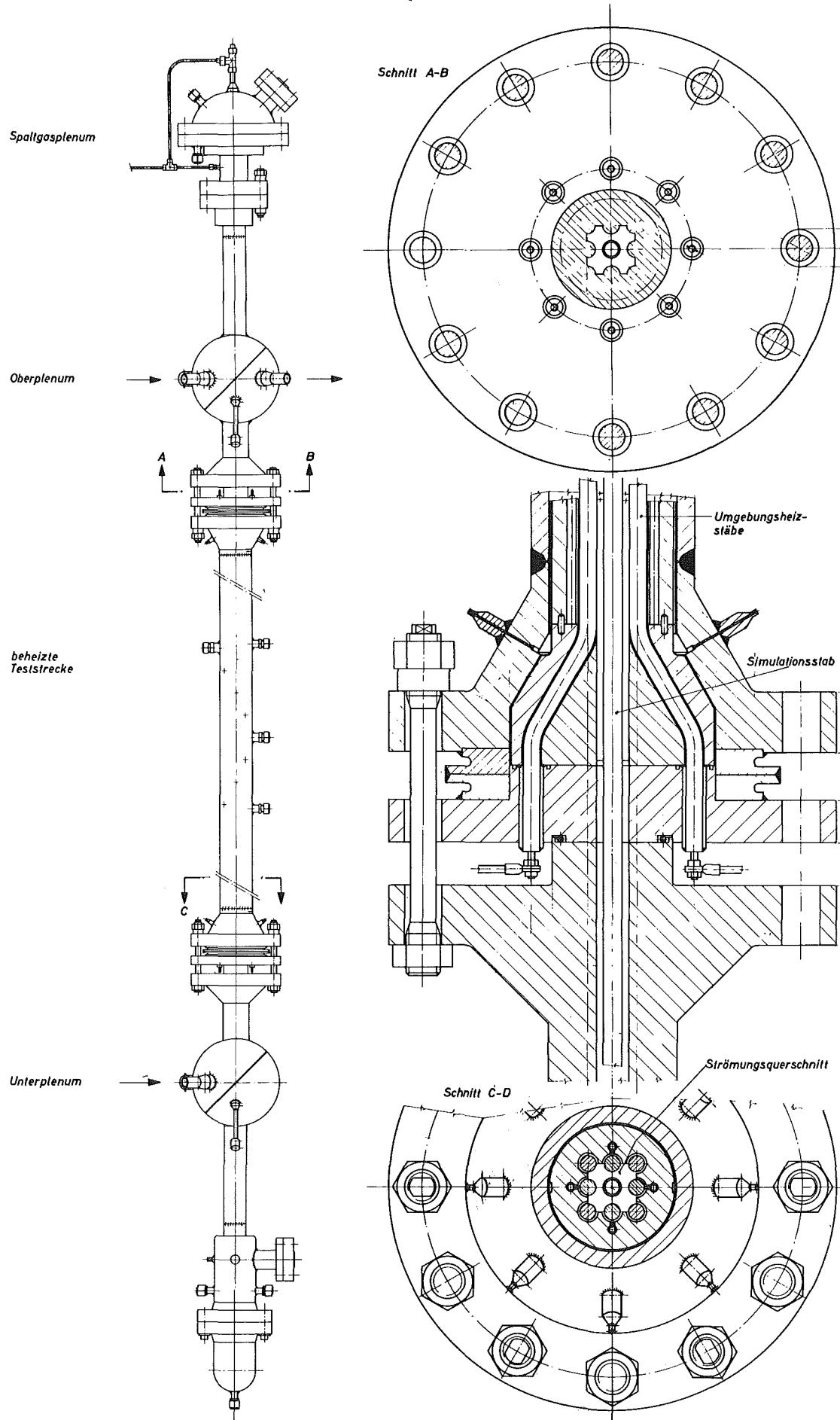
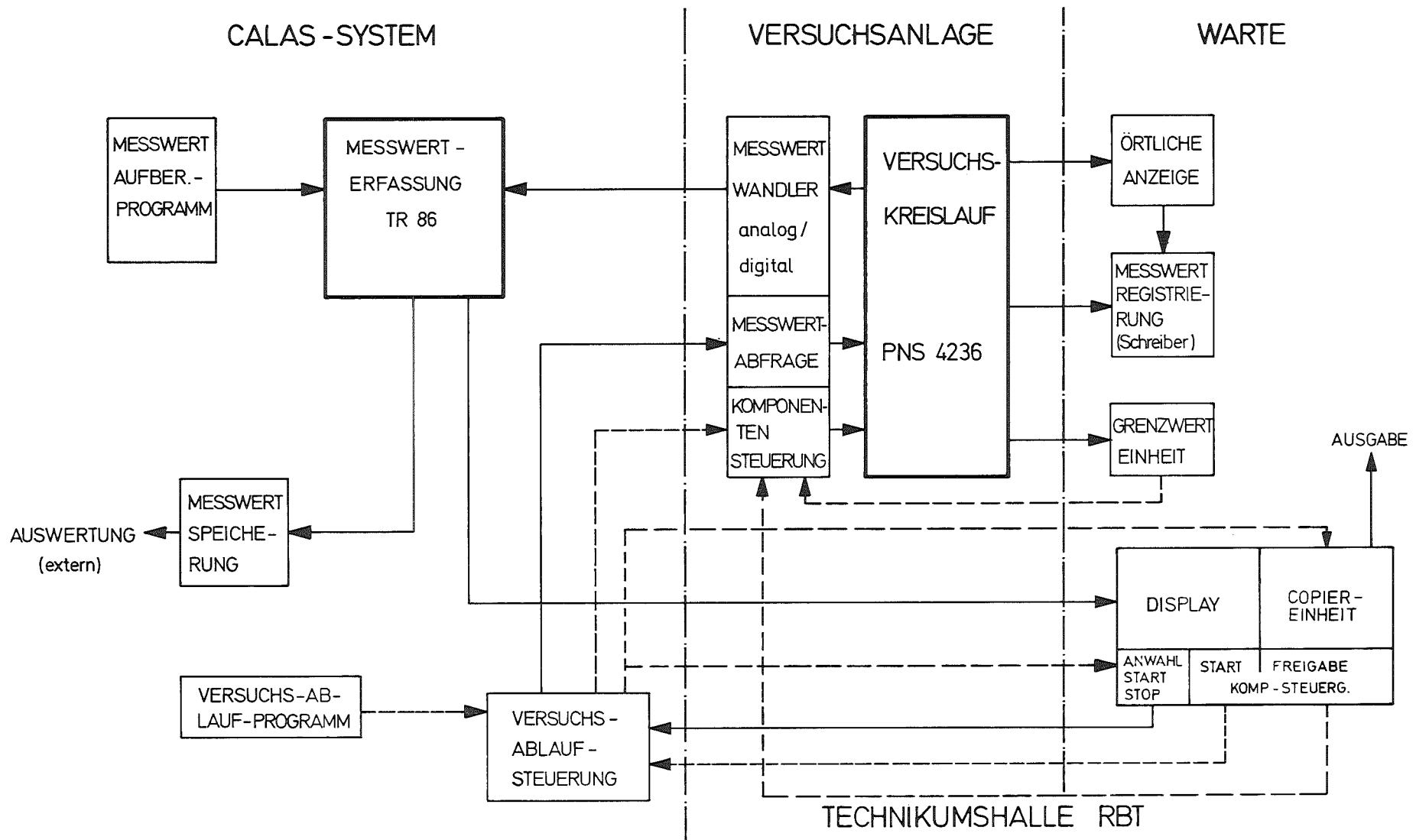


Abb. 4236-5



ADI BAU 442

Abb. 4236-6: Grundkonzeption für den Meßdatenfluß und die Versuchsablaufsteuerung PNS 4236

4237.1 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfallen. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2 (E. Karb, L. Sepold, K. Baumgärtner, G. Harbauer, W. Leiling, H. Lukitsch, K. Wagner, RBT)

Im September 1974 wurde das Forschungsvorhaben zusammen mit den anderen Vorhaben PNS 4230 dem Sachverständigenkreis "Notkühlung" des BMFT vorgetragen. Versuchsaufbau und -ablauf sowie Stand der Arbeiten sind in einem Statusbericht /1/ dargelegt. Die Vorgehensweise wurde akzeptiert.

Auf die Notwendigkeit der in-pile-Experimente zur Untersuchung des Brennstabversagens war in einem Vortrag auf dem Jahrestreffen des PNS am 19.11.1974 eingegangen worden /2/.

#### 1. Vorversuche im DK-Loop des FR2

Die im 1. Halbjahr 1974 begonnenen Versuche wurden programmgemäß weitergeführt und im Juli abgeschlossen. Insgesamt bestanden die Vorversuche aus 11 Versuchen mit der Brennstabattrappe (Stationärversuche) und 18 Transientenversuchen mit 3 nuklear beheizten Prüflingen.

Auswertung: Die aufgenommenen Temperaturmeßkurven wurden mit den vorberechneten Werten verglichen bzw. mit den Stationärdaten aus dem Versuch nachgerechnet. Zum Vergleich wurden zwei voneinander unabhängige Rechenprogramme benutzt: das RELAX-Programm des IRB und das Wärmeleitprogramm (WL) des IKE Stuttgart. Als zeitlicher Verlauf der Wärmeübergangszahlen in den Kühlkanälen lagen beiden Programmen RELAP-Rechenergebnisse zugrunde.

Nach neuestem Stand zeigen beiden Programme untereinander eine recht gute, mit den Temperaturmeßkurven eine genügend genaue Übereinstimmung. Schwierigkeiten im Vergleich Messung - Rechnung zeigten sich bei den Prüflingsleistungen.

Die Leistung wurde nach zwei Methoden bestimmt:

1. thermisch, über die Aufheizspanne  $\Delta T$  des Dampfes,
2. durch reaktorphysikalische Berechnung auf der Basis von Neutronenflußmessungen.

Es ist angestrebt, die 1. Methode im Hinblick auf die Genauigkeit zu verbessern (siehe dazu Punkt 4.).

Das Hauptziel der Vorversuche konnte erreicht werden: Es galt die Prüflingsleistung zu ermitteln, mit der der Temperaturanstieg der LOCA-(Referenz-)kurve in der 2. Aufheizphase am besten erreicht wird. Ergebnis: 40 W/cm.

Mit Hilfe dieses Wertes für die axiale Stelle der Maximalleistung konnte die Anfangsanreicherung, die für jede Abbrandstufe und damit für alle Stäbe gleich sein soll, berechnet werden. Sie ergab sich zu 4,6 % U-235.

In Abb. 4237-1 ist die Aufheizkurve mit der 2. Aufheizphase des LOCA verglichen. Einen gemessenen Hülltemperaturverlauf mit Stationärbetrieb, Aufheiz- und Abkühlphase zeigt Abb. 4237-2.

Nicht nur zur Kontrolle der Rechnungen, sondern auch für die Verbesserung der Leistungsbestimmung haben sich die Vorversuche als bedeutungsvoll erwiesen. Erkenntnisse bezüglich der Thermoelementbefestigung und des Stabverhaltens unter transienten Bedingungen (Oxidation, bleibende Längung des Stabes) konnten gewonnen werden.

In Abb. 4327-3 ist ein aufgeplatztes Thermoelement mit PtRh-Mantel zu sehen. Die Adern (PtRh-Pt) sind nicht mehr isoliert. Eine mögliche Ursache für das Versagen des Elements ist das Isolationsmaterial MgO, das schon bei geringer Feuchtigkeitsaufnahme quillt. Bei den Versuchen 1975 (Punkt 4.) soll statt dessen  $\text{Al}_2\text{O}_3$  verwendet werden.

Die Arbeiten zur Ermittlung eines geeigneten TE-Materials und der Anbringung an die Zry-Hülle bestrahlter Stäbe werden 1975 fortgesetzt. Die dazu notwendigen metallographischen Untersuchungen werden zusammen mit dem IMF

Der sehr große Aufwand ließ sich nicht rechtfertigen, da die Stableistung und das Temperaturprofil im Brennstoff bei einer Vorbestrahlung im FR2 weitgehend mit den Verhältnissen in einem DWR übereinstimmen. Die Spaltverkleinerung zwischen Brennstoff und Hülle, durch den Kühlmitteldruck eines DWR bedingt, kann durch entsprechend enge Einfüllspiele simuliert werden. Vorgesehen ist ein um  $40 \mu\text{m}$  kleinerer Spalt bei der höchsten Abbrandstufe von  $35 \text{ Gwd/t}_u$ .

Der Kriecheinfluß auf die Zircaloy-Hülle durch den Kühlmitteldruck eines DWR wird aufgrund des hexagonalen Kristallgitters der  $\alpha$ -Phase ähnlich wie beim Titan (stark reduzierte Gleitsysteme gegenüber dem kubischen Metall) als gering angesehen. Bei Aufheizversuchen (Transiente) über  $800^\circ\text{C}$  wird dieser Einfluß durch den Phasenwechsel ( $\alpha \rightarrow \alpha + \beta$ ) überdeckt.

### 3. Konstruktion und Prototypenprobung von Vorbestrahlungs- und Versuchseinsatz

Die Konstruktion des Vorbestrahlungseinsatzes für jeweils sechs Brennstäbe konnte abgeschlossen werden. Der Einsatz ermöglicht das Entnehmen der Brennstäbe einzeln, wie sie für den Versuch benötigt werden. Ferner können die bewährten FR2-Brennelementausführungen mit einigen Modifikationen übernommen werden. Um die Vorbestrahlungszeit gering zu halten, ist ein öfteres Umsetzen der Brennstäbe innerhalb des Reaktorkerns notwendig. Der Einsatz ist deshalb so ausgeführt, daß er sowohl auf BE- als auch auf Zwischengitterposition eingesetzt werden kann.

#### Zum Versuchseinsatz:

Die Versuche zur Erprobung mehrerer Endstopfenausführungen sind erfolgreich abgeschlossen. Eine Ausführung erwies sich bei den eingestellten Betriebsbedingungen und bei Zyklenbetrieb als besonders dicht und wurde deshalb ausgewählt.

Der obere Endstopfen des Stabes mußte so konstruiert werden, daß beim Ankoppelvorgang der Meßkapillare kein Spaltgas aus dem Stab verlorengeht. Nach der Ankoppelung muß der gewünschte Innendruck durch Heliumzugabe eingestellt werden können.

In Abb. 4327-4 ist der Ankoppelvorgang dargestellt. Bevor metallisch gedichtet wird, übernimmt ein O-Ring die Dichtfunktion. Nach dem Durchstich der Membrane hat er keine Funktion mehr. Dieser Ankoppelvorgang muß vor dem Versuch am bestrahlten Prüfling in der Abschirmzelle des FR2 erfolgen.

Am oberen Ende der Meßkapillare sitzt der Druckaufnehmer (DMS-Prinzip). Der Kopf des Einsatzes, der den Druckaufnehmer enthält, konnte so konstruiert werden, daß eine Druckaufgabe vor und eine kontinuierliche Druckmessung während des Versuchs möglich ist. Die Konstruktion des Kopfstückes steht unmittelbar vor dem Abschluß.

#### 4. Zum Versuchsprogramm 1975

Die komplette Innendruckmeßvorrichtung (Endstopfen - Meßkapillare - Kopfstück mit Druckaufnehmer) soll als Prototyp gefertigt und in mehreren Versuchsreihen geprüft werden.

Ein Prototyp des Vorbestrahlungseinsatzes soll im BE-Prüfstand getestet werden.

Aus den Vorversuchen Juni/Juli 1974 hat sich, wie schon unter Punkt 1. angeführt, ergeben, daß eine Verbesserung zur Bestimmung der Prüflingsleistung unumgänglich ist.

Es sollen deshalb im Frühjahr 1975 Prüfungen bzw. Eichungen der Meßgeräte (Temperatur, Druck, Durchsatz) des Versuchskreislaufes durchgeführt werden. Zur Prüfung der Meßgeräte ist geplant, die dann schon erstellte Datenerfassungsanlage einzusetzen.

Zum Vergleich der Bestimmungsarten der Prüflingsleistung (reatorphysikalisch, thermisch) sowie zur Eichung von Temperaturmeßfehlern durch verschiedene TE-Anbringungsweisen auf der Stabhlle sollen im Frühjahr 1975 Versuche mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (BSS) durchgeführt werden. Diese Versuche sind mit dem Vorhaben 4237.2 kombiniert.

Die Bestellphase der Brennstäbe für die Hauptversuche ist eingeleitet. Die Bestellung soll im Februar 1975 erfolgen, so daß sie für den Beginn der Hauptversuche im September 1975 zur Verfügung stehen. Gleichzeitig soll die Vorbestrahlung beginnen.

5. Veröffentlichungen

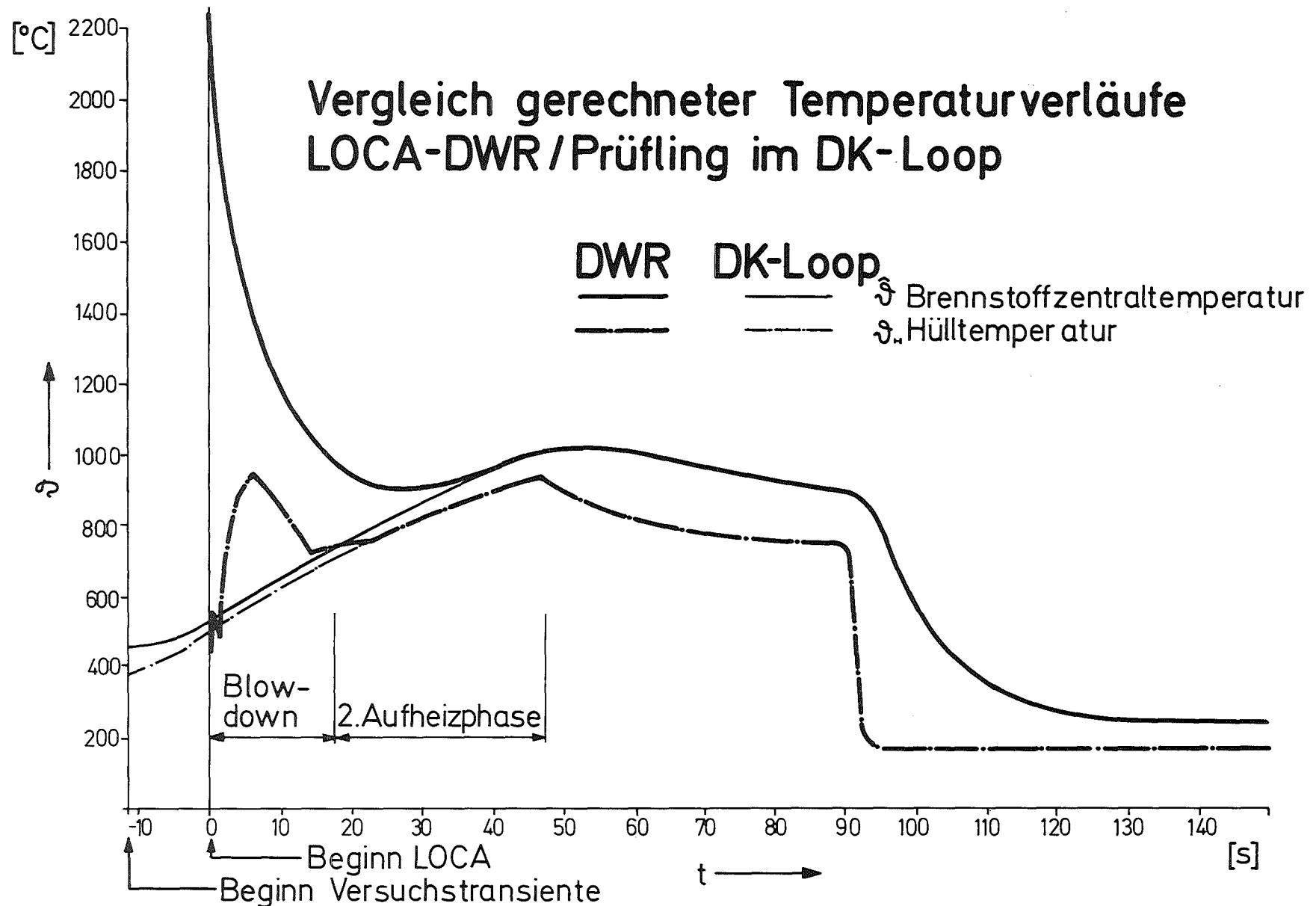
/1/ Statusbericht über die Untersuchungen des PNS zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall, PNS-Arbeitsbericht 34/74, Sept. 1974, S. 86 ff

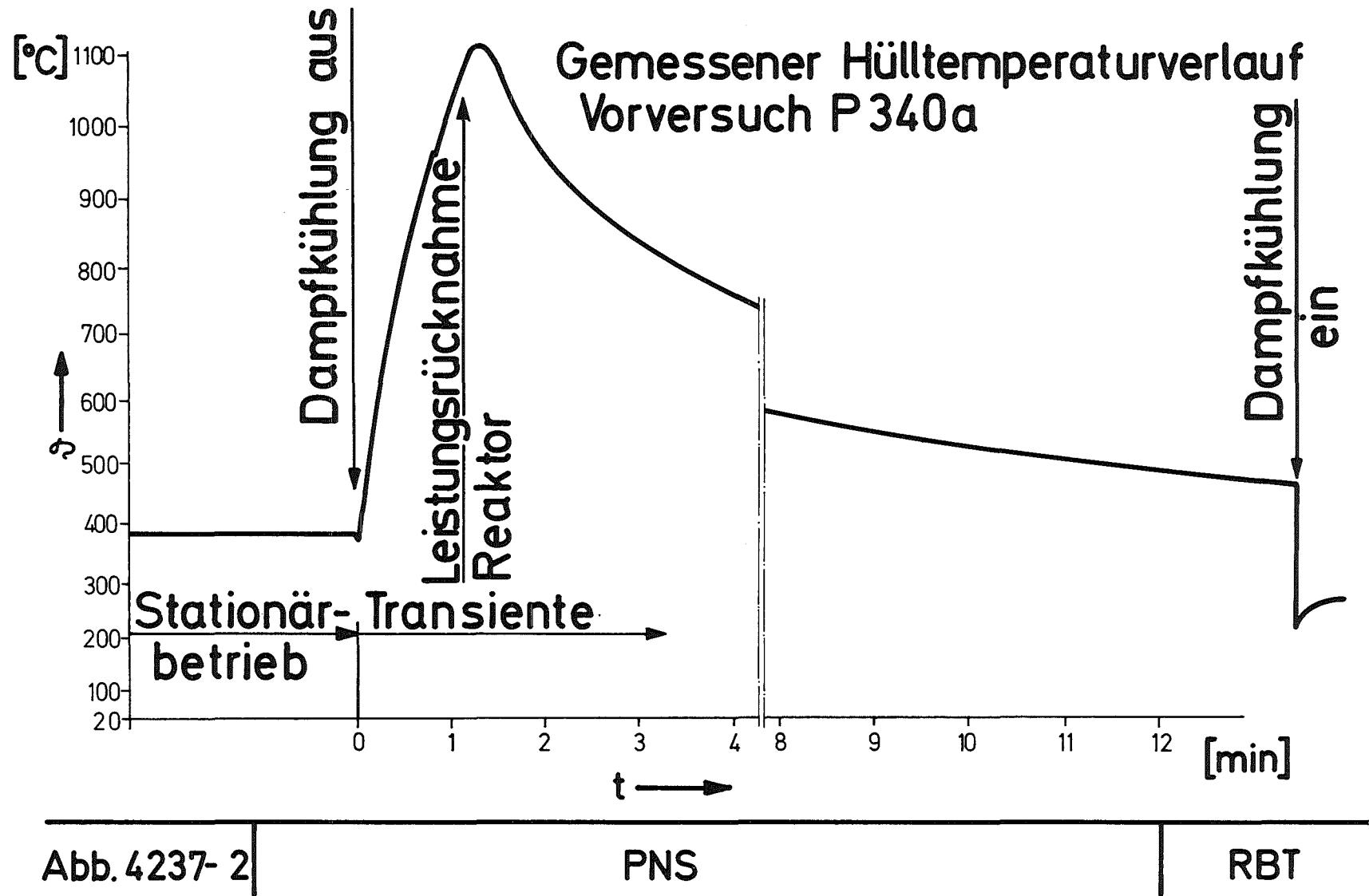
/2/ E. Karb, L. Sepold,

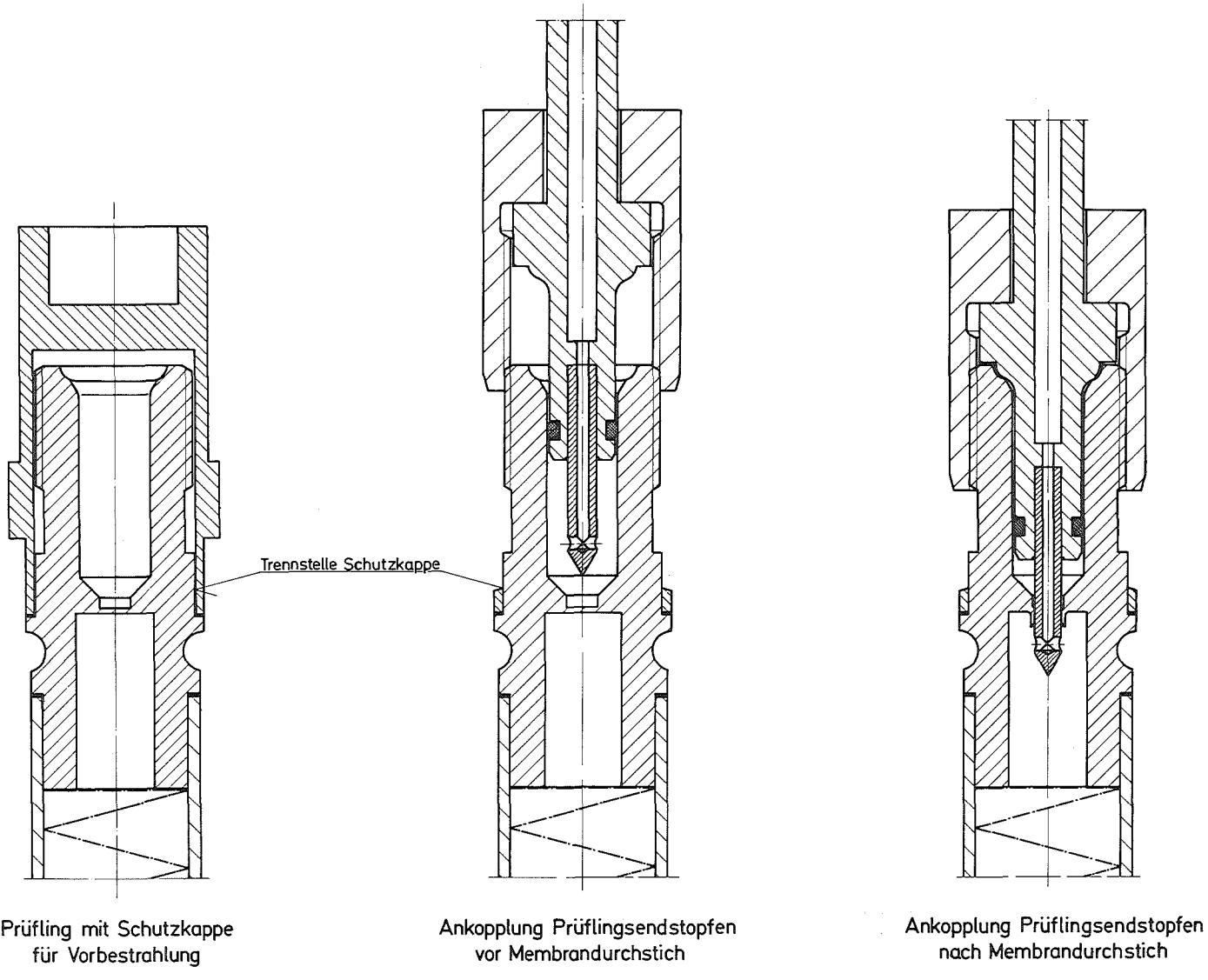
"In-pile-Experimente zur Untersuchung des Brennstabversagens",

Vortrag auf dem PNS-Jahreskolloquium am 19.11.1974,

KFK-Bericht Nr. 2101, RBT-IT-Arbeitsbericht Nr. 1/75 (Nov. 1974)







Zur Messung des Stabinnendruckes

Abb. 4237-4

4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten PNS 4237.1  
mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (Einzelstäbe)  
(B. Räpple, RBT)

Das Vorhaben wurde 1974 mit zunächst geringem Personalaufwand begonnen. Dabei lag der Schwerpunkt der Arbeiten auf der Untersuchung verschiedener Anlagenvarianten auf ihre Durchführbarkeit bzw. der damit erzielbaren Vergleichsmöglichkeiten zu den Versuchen PNS 4237.1.

Von drei möglichen Konzepten

- separate Anlage mit eigenem Dampferzeuger und -kreislauf
- out-of-pile-Teststrecke am FR2 unter Benutzung des vorhandenen, vom in-pile-Experiment benutzten DK-Kreislaufes
- Anordnung des Referenzstabes in der in-pile-Teststrecke des DK-Loops

wurde die separate Anlage aus Kosten- und Zeitgründen bereits früher aufgegeben. Ein Vergleich wurde daher lediglich für die beiden übrigen Versionen angestellt.

Die Probleme der Nachbildung stabinterner Verhältnisse (des nuklearen Prüflings) im elektrisch beheizten Referenzstab stellen sich durch den zwangsläufig abweichenden inneren Aufbau bei beiden Linien in gleicher Weise. Infolgedessen kommt der Simulation der einflußreichen äußerer Versuchsbedingungen, insbesondere

- des Dampfzustandes und Massenstromverlaufes in der Teststrecke
- der äußeren Wärmeabfuhrbedingungen
- der Wärmeleistung umgebender Strukturmaterialien

eine erhöhte Bedeutung zu.

Auf definitiv bekannte äußere Daten ließe sich eine out-of-pile-Anlage durch die Möglichkeit umfangreicherer Instrumentierung befriedigend genaue einstellen. Die Umgebungsbedingungen des nuklearen Prüflings

müßten hierzu noch präziser erfaßt werden, was meßtechnisch jedoch außerordentlich schwer und nur unter großem Aufwand möglich ist.

Bei einer in-pile-Anordnung des Referenzstabes dagegen werden - gleiche Reaktorleistung vorausgesetzt - weniger die Daten der Randbedingungen als diese selbst geliefert. Aus diesem Grunde wurde die in-pile-Version vorrangig weiterverfolgt und in Zusammenarbeit mit dem IRB ein Referenzstab entworfen, mit dem - gemeinsam für PNS 4237.1 und 4237.2 - ein Vorversuchsprogramm zur

- Meßstellenanordnung und -eichung
- Instrumentierung
- Leistungsbestimmung
- Referenzstabauslegung

durchgeführt werden soll.

Das Programm für die Vorversuche wurde ausgearbeitet, die Konstruktion der Vorversuchsanordnung begonnen.

Die weitere Planung sieht vor, 1975 die Vorversuche mit Hilfe von 13 zu beschaffenden Heizstäben durchzuführen. Anhand der Auswertung wird das Heizstabkonzept überarbeitet und ggfs. verbessert, vor allem in Hinsicht auf die Plenumsauslegung. Daneben wird als back-up-Lösung die out-of-pile-Anlage am FR2 bis zur Aufwandschätzung und zum Kostenvergleich mit der in-pile-Anlage weiterverfolgt.

PNS 4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung

(K. Wiehr; S. Barth, F. Erbacher, W. Hame, U. Harten, W. Just, A. Megerle, St. Müller, H.J. Neitzel, P. Schäffner, He. Schmidt, IRB)

Zielsetzung des Vorhabens ist die Untersuchung des Aufblähvorganges von Zircaloyhüllen bei reaktortypischen Versuchsbedingungen während der Niederdruckphase eines Kühlmittelverlustunfallen. Aus Einzelstab- und Bündelexperimenten sollen Informationen zur Erstellung und Überprüfung von Rechenprogramm-Ansätzen eines Brennstabverhaltens - Codes - gewonnen werden.

Zur Vorbereitung der Experimente wurden im 2. Halbjahr 1974 folgende Arbeiten durchgeführt:

#### 1. Brennstabsimulatoren

Das cosinusförmige axiale Leistungsprofil wird durch sieben Leistungsstufen simuliert. Zur Herstellung des gewünschten Leistungsprofils wird ein dickwandiges Inconel-Rohr mit MgO-Pulver gefüllt und von aussen stufenförmig ein Profil eingeschliffen, wobei die Mitte am dünnwandigsten wird. Das so bearbeitete Rohr wird nun über die gesamte Länge auf einen konstanten Durchmesser gehämmert. Dieser vorgefertigte Heizleiter wird in die Heizerhülle gesteckt, der Ringspalt mit BN gefüllt und der Heizer auf 6 mm Ø heruntergehämmert. Um das Profilschleifen und Umhämtern zu überprüfen, wurde nach verschiedenen Versuchen an kurzen Rohrstücken ein Stab in voller Länge gefertigt und vermessen. - Zur Herstellung von Brennstabsimulatoren mit 3,9 m elektrisch beheizter Länge war es notwendig, die Geradheit der Heizleiter beim Hämmervorgang zu erhöhen. Dies konnte durch genauere Führungen der aus den Hämmerbacken austretenden Werkstücke, und zwar für jede Hämmerstufe, erreicht werden. - Anfängliche Schwierigkeiten mit exzentrischer Endlage des Heizleiters gegenüber der Heizerhülle konnten behoben werden. - Für das

Zwischenglühen der Heizleiter- und der Heizerhüllrohre wurde eine Durchlaufglühvorrichtung aufgebaut und erprobt. - Zum Einfüllen und Einvibrieren von MgO- und BN-Pulver wurde eine Vorrichtung erstellt, mittels der Brennstabsimulatoren bis 5 m Länge hergestellt werden können. Dazu wurden spezielle Rüttelrohre mit Zentrierkolben entwickelt. - Ein Teil der angelieferten  $Al_2O_3$ -Ringpellets wurde vermesssen und auf Toleranzehinhaltung überprüft. - Die Endmontage, d.h. der Zusammenbau von Heizstab, Ringpellets und Zry-4-Hüllrohr konnte an einem 4 m langen Prototypbrennstabsimulator erfolgreich durchgeführt werden.

Bei der Schweißverbindung zwischen Zircaloy und Inconel stellten sich bei der 2. Serie von Versuchsschweißungen Undichtigkeiten von bis zu  $10^{-2}$  Torr Liter/sec. heraus. Auch der Versuch, Vanadium als Zwischenmaterial (beim Elektronenstrahlschweißen) zu verwenden, führte nicht zum Erfolg. Vorversuchsserien, eine brauchbare Verbindung von Zircaloy mit Inconel durch Explosionsverschweißung zu erhalten, sind angelaufen. Das Verfahren des Coextrudierens sowie das Diffusionsschweißen werden ebenfalls geprüft. Die Abb. 4238-1 zeigt den beschriebenen Brennstabsimulator.

Bei den Experimenten soll der Aufblähvorgang der Zircaloyhülle messtechnisch erfasst werden. Dazu muss jedoch der Ort des Hüllrohrversagens genau lokalisiert werden können. - Ein Vorversuchsprogramm an verkürzten, indirekt beheizten Brennstabsimulatoren mit Innendruck und Zircaloyhülle soll die axiale Lokalisierungsmöglichkeit der Aufblähstelle durch Verschwägung der Hülle zeigen. Diese Vorversuche dienen dazu, erste Informationen über den Aufblähvorgang zu gewinnen, den Einfluss der Verschwägungsstelle bei verschiedenen Parameterkonstellationen gegenüber unbehandelten Rohren festzustellen und geeignete Verschwägungsmethoden, die keinen Einfluss auf die Beule zeigen, zu finden sowie eine Reihe von Messverfahren zu erproben.

Die Röntgeneinrichtung wird bei diesen Vorversuchen erprobt. Hochfrequenzfilmaufnahmen, möglicherweise mit Infrarot-film, Temperaturmessungen mit Pyrometern, insbesondere dem neu entwickelten Quotientenpyrometer und Thermoele-menterprobungen auf Zry4-Hüllen werden durchgeführt. Druck-messungen in der Beule über eine Kappilare mit DMS-Druck- bzw. Differenzdruckaufnehmern werden erprobt.

Bei diesen Vorversuchen werden folgende Parameter variiert: Innendruck, Aufheizgeschwindigkeit, Temperaturhaltezeit, Einfluss der Plenagrößen, Oxydationseinfluss, Art und Grösse der Verschärfungsstelle, Einfluss des Temperaturprofils durch Variation der beheizten Länge bzw. des Leistungspro-fils.

In ersten Versuchen konnte gezeigt werden, dass eine geringe Schwächung des Hüllrohres an der gewünschten Stelle, die weit geringer als der zulässige Toleranzbereich nach Reaktorhüll-rohrspezifikation war, dazu geführt hat, die entstehende Beule zu lokalisieren. Von dem Aufblähvorgang konnten erste Hochgeschwindigkeitsfilmaufnahmen gemacht werden.

## 2. Versuchsstand

Der im 1. Halbjahresbericht 1974 ausführlich beschriebene Entwurf des Versuchsstandes wurde überarbeitet. Die Abb. 4238-2 zeigt das Schaltbild der Versuchsanlage. Der Aufstel-lungsplan sowie der Rohrleitungsplan wurden fertiggestellt und die entsprechenden Bestellungen aufgegeben. Bauliche Vorarbeiten am Aufstellungsort wurden durchgeführt. Die für die Brennstabsimulierung erforderliche elektrische Leistungssteuerung wurde geplant und gebaut. Der Schaltungs-entwurf für die Thyristorsteuerung wurde fertiggestellt.

Um mit der vorhandenen Thyristor-Regelungs-Anlage kompati-bel zu sein, werden spezielle Verstärker mit eingeprägtem Ausgangstrom benötigt. Die Herstellung dieser Verstärker

wurde von ADI übernommen, nachdem die Zuverlässigkeit zunächst an einem Exemplar getestet wurde.

Für die Simulierung der ANS-Standard-Nachwärme-Kurve wurde ein lichtelektrischer Zeitplangeber der Fa. Siemens überprüft. Die Einsatzmöglichkeit dieses Gerätes wurde durch einen Verstärker erreicht, welcher die gesteuerte Ausgangsimpedanz des Gerätes in eine Spannung umsetzt.

### 3. Instrumentierung

Für das direkte Beobachten bzw. filmtechnische Erfassen von Hüllrohrerweiterungen durch Aufblähen in geschlossenen Reaktionsbehältern wurde die Röntgendifurchleuchtung als geeignetes Verfahren ermittelt.

Innerhalb der Röntgendifurchleuchtungstechnik wiederum wurden verschiedene auf dem Markt befindliche Methoden auf deren Brauchbarkeit untersucht. Hierzu wurden Beobachtungen und Probeaufnahmen an einem die Aufblähbewegung simulierenden Modell durchgeführt. Die besten und zufriedenstellendsten Ergebnisse brachten die Kombinationen: Gleichstrom-Röntgenröhre - Röntgenbildverstärker-Filmkamera, wobei gleichzeitiges Verfolgen des Vorganges über Fernseh-Monitor möglich ist. Eine solche Anlage wurde bestellt.

Zur berührungslosen Temperaturmessung der aufblähenden Hülle wird ein neueres Quotientenpyrometer durch einen Umbau den Versuchsanforderungen angepasst. Bei der Anfertigung des Schaltplanes ergab sich, dass nur 20 % vom ursprünglichen Quotientenpyrometer für den Umbau verwendet u. beschafft werden müssen. Alle anderen Teile wurden neu ausgelegt und bestellt. Zur Reduzierung des Dunkelstromes wurden zusätzlich 2 Kühler bestellt, die die Fotomultiplier auf -30 °C konstant halten. Die in Vorversuchen auf ihre Brauchbarkeit als Lichtleiter getesteten Quarzglasstäbe wurden thermischen, mechanischen und korrosiven Beanspruchungen in vollentsalztem Wasserdampf ausgesetzt. Die bisher erzielten Ergebnisse lassen ihren Einsatz als Lichtleiter erwarten.

#### 4. Messdatenerfassung und -verarbeitung

Für das Experiment ist der Einsatz eines Messdatenerfassungssystems mit folgenden Spezifikationen erforderlich: 128 Messwerte im mV-Pegel (Thermoelemente, Druckaufnehmer, Differenzdruckaufnehmer für Durchfluss- und Niveaumessungen etc.) sollen zur Realisierung einer Kollektivmessung - Zeitkorrelation von Messdaten - in möglichst schneller Folge (maximal 12,8 Millisekunden Abfragezeit, das entspricht einer Kanalfolgefrequenz von 10 kHz) abgetastet, aufbereitet und zur Aufnahme im zentralen Messdatenverarbeitungssystem CALAS bereitgestellt werden.

Im Berichtszeitraum wurden ein Konzept für die Anlage entwickelt, Angebote eingeholt und technische Detailfragen geklärt. Dabei erwies sich das Messdatenerfassungssystem Digizet B der Firma Siemens für die anstehenden Aufgaben als besonders geeignet, da der Aufbau dieses Systems unter Berücksichtigung aller denkbaren Störeinflüsse eine optimale Sicherheit beim Betrieb gewährleistet. Die Datenerfassung erfolgt entsprechend dem in Abb. 4238-3 dargestellten Blockschaltbild.

Die 128 Meßsignale werden zunächst auf passive RC-Filter gegeben und anschliessend in Eingangsverstärkern auf einen Signalpegel bis max. 4V angehoben. Als Eingangsverstärker wurden Chopperverstärker mit separater, gefloateter Spannungsversorgung vorgesehen, um durch diese galvanische Trennung zulässige Gleichtaktspannungen von  $\pm 500$  V zu erreichen. Die zu erwartenden hohen Störspannungen - für die Beheizung des Bündels (ca. 700 kW) werden phasenanschnittgesteuerte Thyristoren eingesetzt - werden durch den Verstärkern nachgeschaltete aktive 3-polige Filter von den Nutzsignalen getrennt. Die auf diese Weise normierten Signale werden von einem Halbleitermultiplexer mit einer Frequenz bis zu 10 kHz abgefragt und in dem nachgeschalteten Analog-Digital-Converter (ADC) mit einer Auflösung von 12 bit digitalisiert. Das Zusammenwirken von Multiplexer und ADC erfolgt durch

eine Steuereinheit, die gleichzeitig die Meßstellenadresierung und Zeitsignale zur Verfügung stellt. Dies erleichtert das spätere Auswerten der Daten erheblich.

Das beschriebene System bietet folgende Möglichkeiten:

- Beschränkung der herkömmlichen Verdrahtung auf ein Minimum. Statt dessen der Einsatz von Leiterplatten und Wire-Wrap-Technik und zwar so, dass weitgehendste Flexibilität durch Austausch von Modulen gewährleistet ist (sog. Bussystem).
- Vorbereitung des Systems zum Einbau von Sample- and Holdverstärkern, d.h. Gleichzeitigkeit der Erfassung aller Meßstellen möglich.
- Austauschbarkeit der Steuerzentrale durch einen Mikro-Processor. Man erhält dadurch eine frei programmierbare Messanlage, d.h. Anwahl der Meßstellen in beliebiger Reihenfolge, Zusammenfassen der Meßstellen zu Gruppen, Möglichkeiten zum Setzen von Prioritäten, Hinzufügen von Faktoren usw.
- Einsatz eines Ausgabepuffers statt eines Ausgaberegisters, d.h. bei Anschluss eines digitalen Magnetbandgerätes weitgehendste Datensicherung bei Rechnerausfall.
- Anschlussmöglichkeit einer Datensichtstation.
- Möglichkeit der Einzelanwahl jeder beliebigen Meßstelle und Überprüfung derselben auf einwandfreie Funktion bezüglich des Systems vom Frontpanel aus.

Zur Messdatenverarbeitung wurde ein schneller Datenweg (SDW) vom Experimentort (Bau 413) zum ADI installiert. Über diesen Datenweg werden die digitalisierten Messdaten der Messdatenerfassungsanlage, Steuersignale und Systembefehle zum Rechner übertragen. In umgekehrter Richtung werden aufbereitete Daten und Steuerinformationen zu den Kontroll- und Steuereinrichtungen in der Schaltwarte zurückgemeldet. Die Installation dieser Kontroll- und Steuereinheiten in der Schaltwarte ist im Gange. Sie umfassen folgende Geräte: 2 Terminals und 2 Bildschirme mit zugehörigen Steuereinheiten, sowie einen Kontrollbildschirm mit Kopiergerät zur Erstellung von Kopien der Bildschirminhalte. Die Anordnung der Terminals, Bildschirme sowie das Zusammenspiel der einzelnen Komponenten ist in Abb. 4238-4 schematisch dargestellt.

## 5. Theoretische Arbeiten

Die thermodynamische Auslegung bzw. Überprüfung der bläfährigen Brennstabsimulatoren wurde abgeschlossen. Der Aufbau der nicht bläfährigen Simulatoren wurde zur Erreichung einer besseren Anpassung dahingehend geändert, dass die MgO-Schicht zwischen dem Heizleiter und der Inconel-Hülle durch eine dünne BN-Schicht (elektrische Isolierung) und ein Zry-4-Rohr, welches eine entscheidend niedrigere Wärmekapazität aufweist, ersetzt wurde. - Zur Auslegung des Simulators für PNS 4237.2 wurden erste Rechnungen mit dem 1-dimensionalen Wärmeleit-Code durchgeführt.

Um den Einfluss der axialen Wärmeleitung bei Brennstab und Brennstab-Simulatoren kennenzulernen, wurde ein 2-dimensionales Wärmeleit-Programm entwickelt. Das Programm befindet sich in der Testphase. Mit Hilfe dieses Programmes sollen insbesondere folgende Probleme erklärt werden:

- Infolge der axialen Heizleistungsverteilung im Brennstab bzw. im Simulator ergibt sich eine axiale Temperaturverteilung in der Hülle. Es soll geklärt werden, ob sich ein wesentlicher Unterschied zwischen einer 1-dimensionalen Rechnung (Vernachlässigung der axialen Wärmeleitung) und einer 2-dimensionalen Rechnung (Berücksichtigung der axialen Wärmeleitung) ergibt.
- Während des lokalen Aufblähens der Hülle ist an dieser Stelle eine erhebliche Erhöhung des Wärmewiderstandes infolge der Vergrösserung des Spaltes zu erwarten, welcher den radialen Abfluss der im Innern erzeugten Wärme stark behindern wird. Der daraus resultierende erhöhte Wärmestau im Innern des Stabes wird zu verstärkten axialen Wärmeflüssen führen. Der Wärmefluss wird dennoch dem erhöhten Widerstand axial ausweichen und an axial benachbarten Stellen in die Hülle fliessen. - Durch eine in der Rechnung angenommene sprungartige, definierte Spaltwiderstandserhöhung soll geklärt werden, wie sich dieser Vorgang auf den zeitlichen und axialen Verlauf der Temperaturen auswirkt.

Nachdem mit Hilfe des 2-dimensionalen Wärmeleit-Programmes geklärt ist, ob eine sprungartige Spaltwiderstandserhöhung eine wesentliche Änderung der Temperaturverläufe ergibt, wird für den Fall, dass dies so ist, geplant, die Änderung des Spaltwärmewiderstandes aus Temperaturmessungen zu bestimmen. Dies ist mit Hilfe eines neu zu erstellenden Rechenprogrammes möglich, falls die zeitlichen Temperaturverläufe auf der Hülle einerseits und auf einem beliebigen Radius im Stabinnern andererseits gemessen werden. - Dieses neue Rechenprogramm besteht aus zwei Teilen, nämlich aus dem schon fertiggestellten 2-dimensionalen Wärmeleitprogramm (Lösung des Anfangs-Randwert-Problems) und einem noch zu erstellenden neuen Teil, welcher - mathematisch gesehen - eine Lösung des Anfangswert-Problems darstellen muss. Der neu zu erstellende Teil ist inzwischen für den 1-dimensionalen Fall als einem Zwischenstadium programmiert und getestet. Er muss nunmehr auf den 2-dimensionalen Fall erweitert werden.

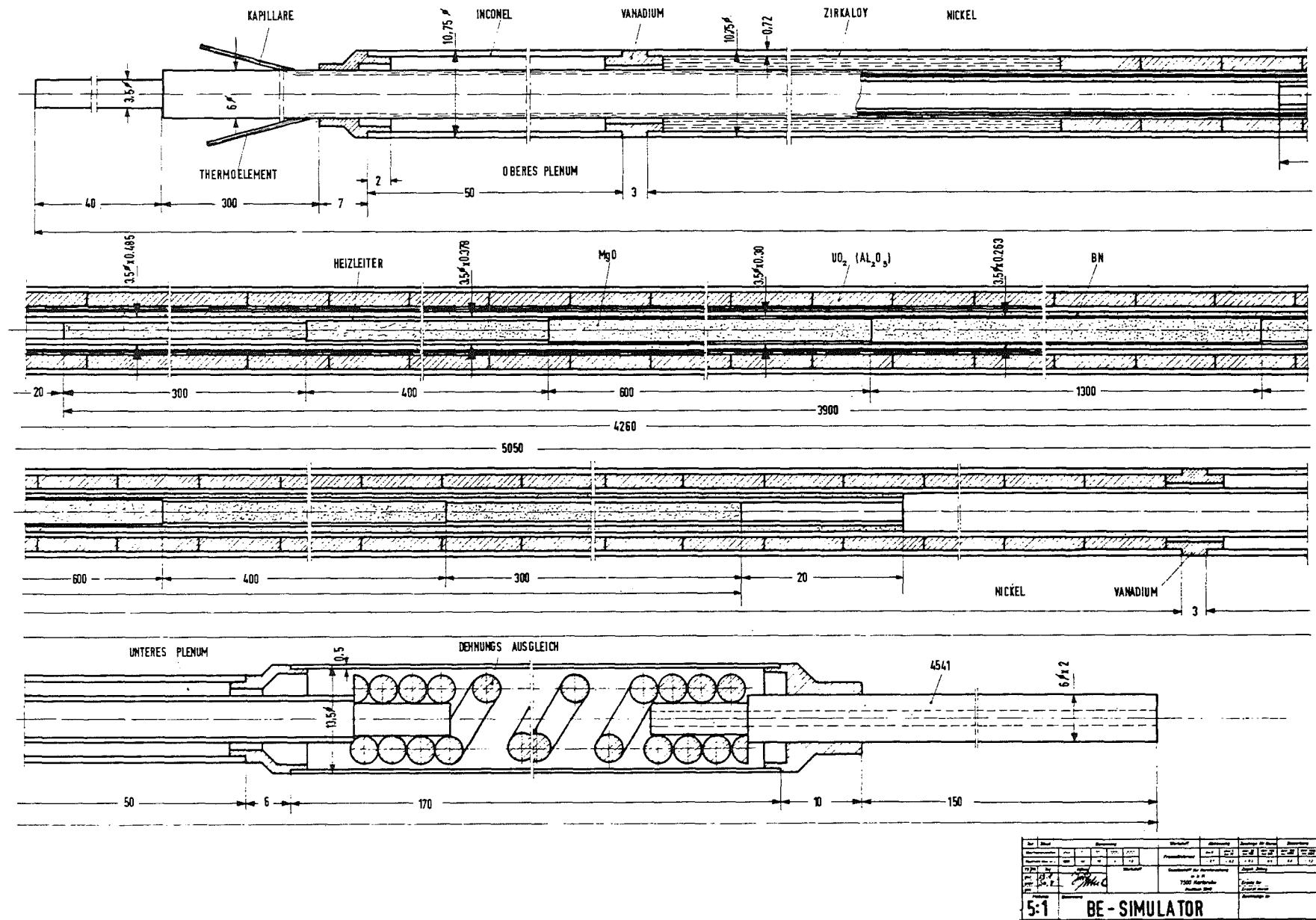


Abb. 4238 - 1

## Brennstabsimulator

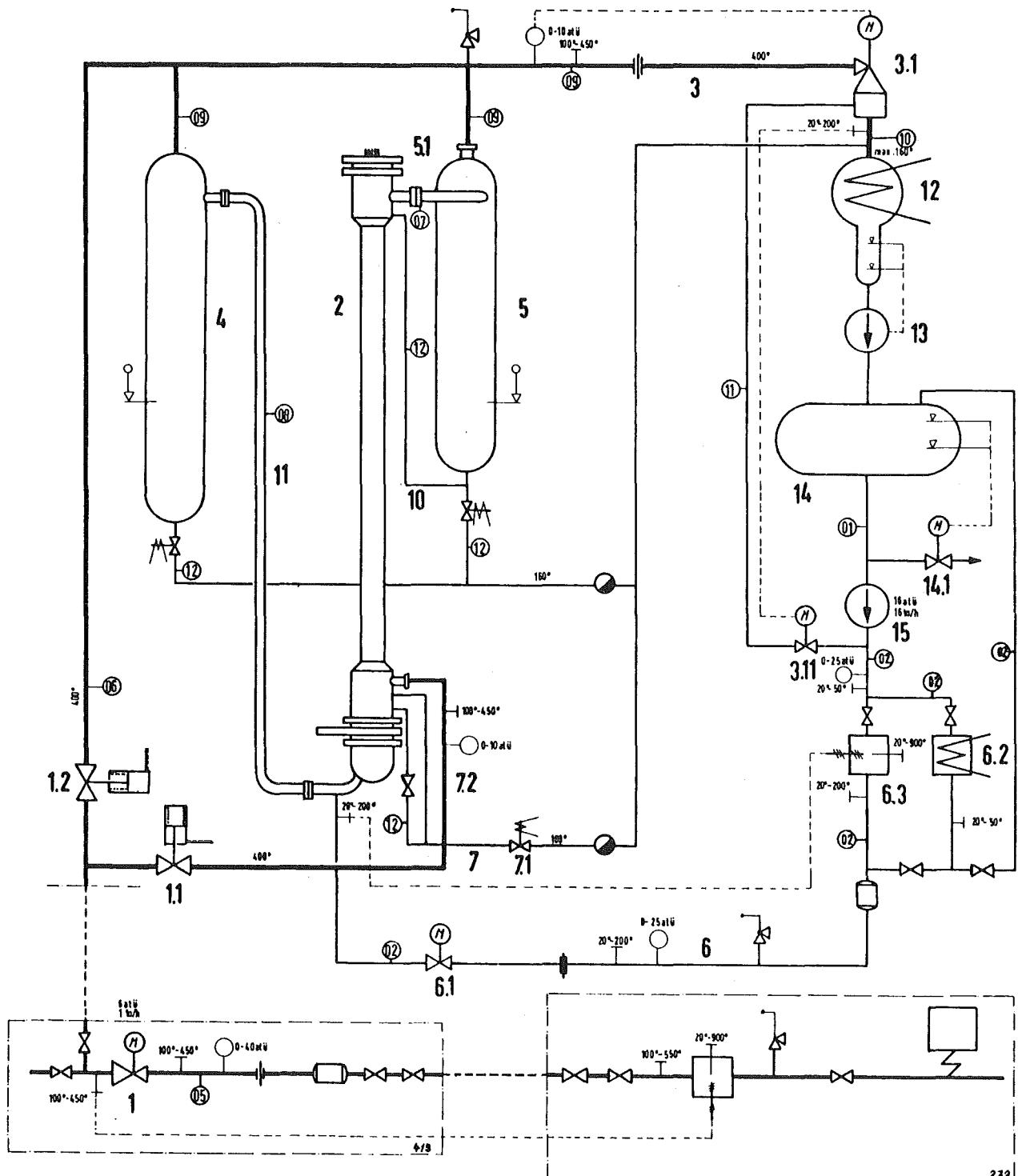


Abb. 4238 -2 Schaltbild der Teststrecke

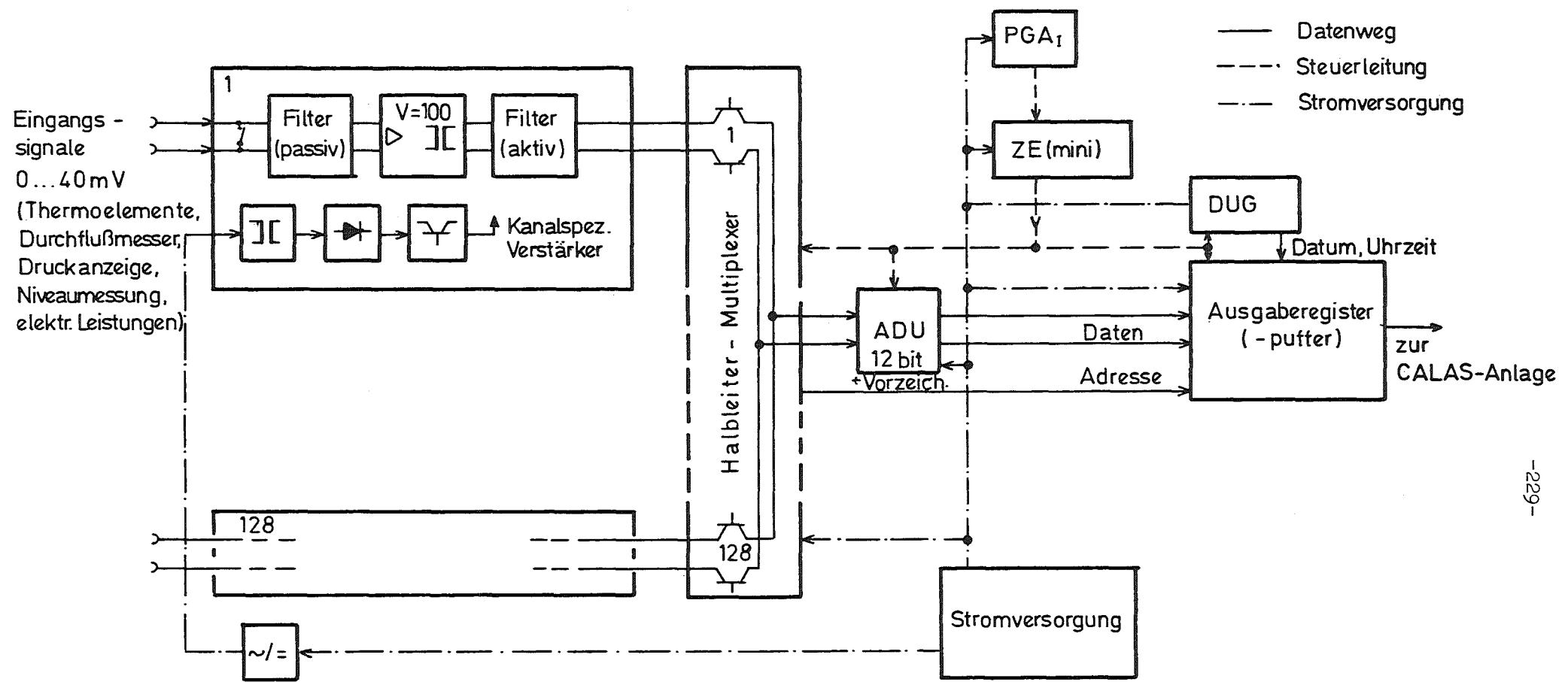


Abb. 4238-3 Blockschaltbild für das Datenerfassungssystem zum Vorhaben Brennstabversagen

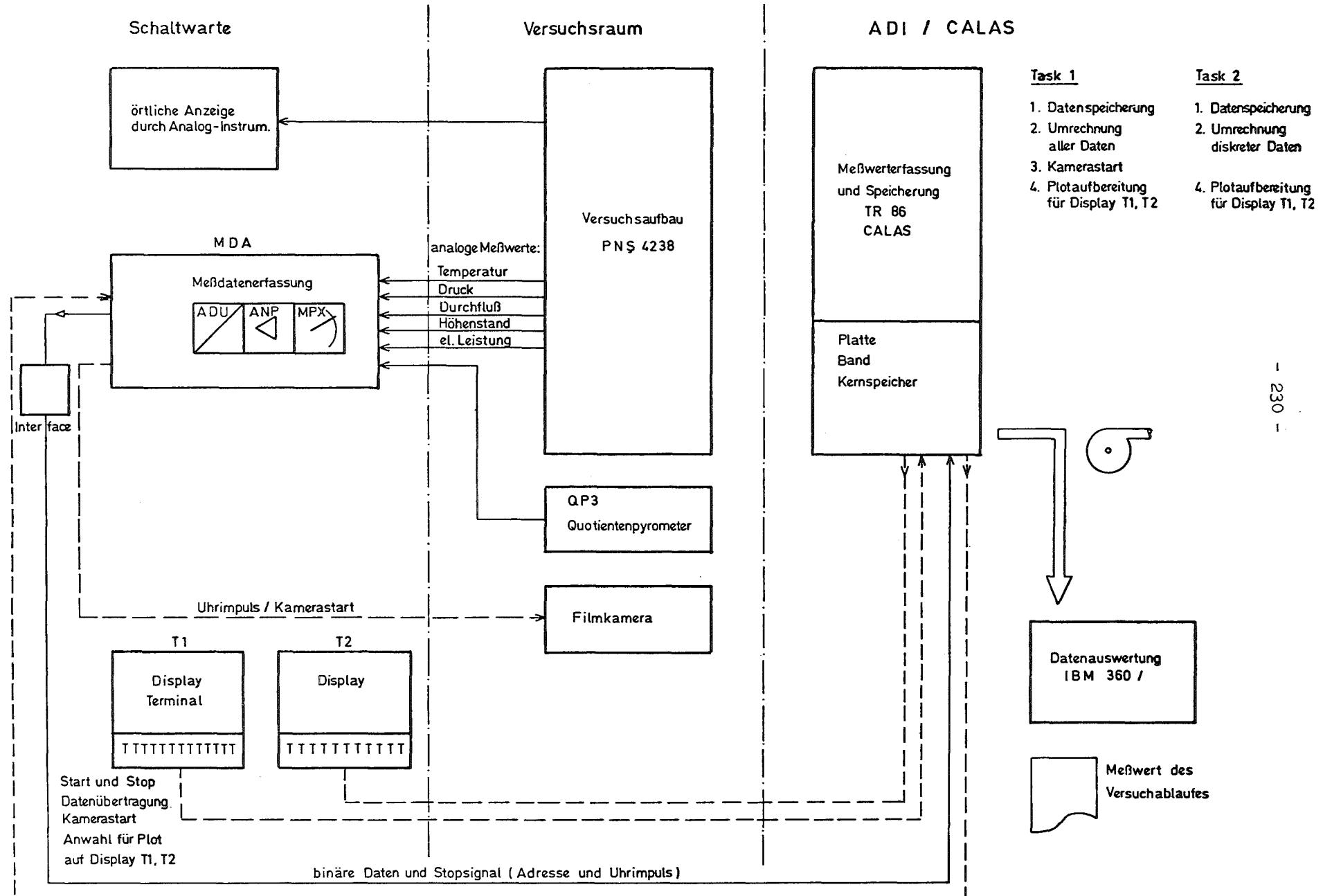


Abb. 4238-4 Schematische Darstellung der Meßwerterfassung und der Datenübertragung

4239 Untersuchungen zum Einfluss der Grösse und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles  
(H. Hofmann, P. Ihle, H. Kreuzinger, H. Politzky, K. Rust, H. Schneider, B. Schöffler, IRB)

Es ist das Ziel dieser Arbeit, den Einfluss einer durch aufgeblähte Brennstabhüllen entstandenen Kühlkanalblockade auf die Strömungsform des Dampf-Wassergemisches in der Flutphase zu beobachten und den Einfluss auf die Kühlwirkung hinter der Blockade zu messen, wobei die Grösse und die Form der Blockade variiert werden sollen.

Die zur Vorbereitung der Experimente dienenden 5 Teilaufgaben haben folgenden Stand erreicht:

1. Kreislauf:

Der Aufbau des Kreislaufs wurde in Auftrag gegeben. Noch fehlende Armaturen und die Messgeräte sind ausgewählt und bestellt. Die längsten Lieferfristen der bestellten Teile (Armaturen) betragen 4 - 5 Monate. Zur Beheizung der Stäbe wird die vorhandene Stromversorgung mit Thyristorsteuerung herangezogen. Eine programmierbare Steuereinheit wurde ausgelegt und befindet sich im Bau. Die Aufheizung des Kreislaufs und die Druckhaltung während des Versuchs erfolgen über einen vorhandenen Dampferzeuger. Überhitzer, Filter, Mengenmessung, Drossel und Verteiler werden aus vorhandenen Anlagen entnommen und zur gemeinsamen Nutzung für dieses Vorhaben und PNS 4238 zwischen den Dampferzeuger und die Kreisläufe geschaltet. Ebenfalls gemeinsam benutzt wird die in 4238 näher beschriebene Datenerfassungsanlage für die Versuchsdaten und die wesentlichen Daten des Anfahrvorgangs. Die Datenspeicherung und teilweise Verarbeitung wird über CALAS erfolgen.

2. Teststrecken:

Die Konstruktion der Teststrecke für die erste Versuchsanordnung, der Stabreihe mit 5 Stäben, ist im wesentlichen abgeschlossen. Die fertigungstechnisch schwierigen Details sind

mit dem Hersteller abgesprochen. Konstruktion, Dichtungsart und Glassorte der Fenster wurden in Vorversuchen getestet. Zur Vereinfachung der Stabmontage ist die seitliche Begrenzung der Stabreihe im Mittelstück der Teststrecke längs geteilt und durch Spannklammern gehalten. Die Stäbe hängen in einer oben liegenden Gitterplatte und können sich nach unten frei dehnen: Die Konstruktion der Stabauhängung wurde in Anlehnung an die Anordnung der Brennstäbe und der Gitterplatte im DWR gewählt, um ähnliche Abströmverhältnisse oberhalb des Bündels zu erhalten. Die zu isolierenden Heizleiteranschlüsse liegen unten, ausserhalb der Teststrecke in freier Atmosphäre. Als Abstandshalter werden Originalabstandshalter-Stege für DWR-Brennelemente verwendet.

Für die nächste Versuchsanordnung, das 25-Stabbündel, sind die gleichen Endstücke der Teststrecke vorgesehen. Das Mittelteil kann nach dem Prinzip der ersten Teststrecke gefertigt werden.

Während des Flutens werden die Teststreckenwände nicht beheizt. Ihr Wärmeinhalt wird angenähert jeweils dem der halben umliegenden Stabreihe eines unendlichen Bündels plus der den Stäben während des Flutens zugeführten Wärme entsprechen. Im Aufheizprogramm vor dem jeweiligen Flutbeginn wird die notwendige Temperatur der Seitenwände entsprechend der für den jeweiligen Versuch vorgesehenen Flutdauer angefahren.

### 3. Auswahl, Beschaffung und Instrumentierung geeigneter Heizstäbe und Blockadekonfigurationen:

Die Heizstäbe für die erste Versuchsanordnung werden nach einer Lieferverzögerung vermutlich im Februar 1975 eintreffen.

Als Vorbereitung für ihre Instrumentierung mit bis zu 8 Thermoelementen je Stab wurden Vorversuche zur Einbettung der Thermoelemente in eine von aussen in die Heizstabhülle gefräste Nut durchgeführt. Da die Stabanordnung für den Wechsel der aufgesteckten Blockadebuchsen leicht demontierbar sein muss, wurde vorgesehen, das Thermoelement bis zum Stabende in die Nut einzubetten und nicht frei durch den Kühlkanal zu führen, um den

instrumentierten Stab als kompakte Einheit handhaben zu können und die Gefahr der Thermoelementbeschädigung klein zu halten. Es kommt hinzu, dass es aus einem Vorversuch, bei dem die Elemente zur Vereinfachung nur bis 30 mm hinter die Spitze einge-lötet waren, Hinweise dafür gibt, dass sich eine Benetzungsinsel von der Stelle, an der das Thermoelement die Nut verlässt, aus-breiten kann; das könnte zu einer vorzeitigen Benetzung der Mess-stelle führen, die vermieden werden muss. Es wurde ein Probestab angefertigt, der zeigt, dass die Einbettung von zunächst vier Mantel-Thermoelementen (0,5 mm Durchmesser) am Stabumfang ver-teilt, über die nötige Länge möglich ist; die Nuten wurden mit hochschmelzendem Nickelbasislot geschlossen und so überarbeitet, dass wieder eine glatte Oberfläche vorliegt. Es sind allerdings Messungen bekannt, bei denen eine erhebliche Verfälschung der Thermospannung festgestellt wurde, wenn das Thermoelement zwi-schen Meßspitze und Spannungsabgriff durch Zonen führt, deren Temperatur über 900 °C liegt, insbesondere dann, wenn die Mess-stelle eine geringere Temperatur hat; das wird auf den mit wach-sender Temperatur schnell fallenden, spezifischen Widerstand der Isolierstoffe MgO und  $Al_2O_3$  zurückgeführt. Da ein Teil der Ther-moelemente im Versuch die Zone höchster Temperatur in Stabmitte passieren wird, muss dieser Fehler unter den gegebenen Randbe-dingungen und für das verwendete Thermoelementmaterial noch un-tersucht werden.

Es wurden Entwürfe zur Form der Blockadekonfigurationen und zur konstruktiven Ausführung ausgearbeitet. Die Form der Blockade (axiale Stabkontur) soll in drei Ausführungen untersucht werden, die in Abb. 4239-1 dargestellt sind. Die in der Mitte dargestell-te Form orientiert sich an der Kontur der im in-pile-Experiment FRF-2 an Stab 16 entstandenen Beule. Ausserdem wurden die links dargestellte schlankere Form (willkürlich gewählter Radius  $R_1 = 100$  mm) und die rechts dargestellte Lochplatte vorgesehen. Die Kontur der Beulen setzt sich jeweils aus drei Kreisbogenstücken zusammen. Jede Form soll mit drei verschiedenen Blockadefaktoren (versperrter Anteil des Kühlkanals) untersucht werden (Abb. 4239-2 am Beispiel der schlanken Beule). Bei der kleinsten Blockade von

61,5 % des Kanalquerschnitts berühren sich die symmetrisch gebeulten Hälften; für diesen Fall werden gleiche Radien für die drei Kreisbogenstücke der Kontur angenommen. Bei den beiden grösseren Blockaden sind 75 % bzw. 90 % des Kühlkanals versperrt. Insgesamt ergeben sich 9 verschiedene Blockadekonfigurationen. Die konstruktive Ausführung der Blockade muss zwei Forderungen berücksichtigen: die Blockade muss auswechselbar sein, um mit Rücksicht auf Kosten und Messgenauigkeit alle Konfigurationen möglichst mit einem Bündel untersuchen zu können, und die Blockade muss guten thermischen Kontakt zum Heizstab haben, um eine Überhitzung und Zerstörung des Stabes unter der Blockade zu vermeiden. Es ist geplant, die Blockaden als Buchsen herzustellen und auf einen schlanken Kegel, der auf dem Heizstab aufgelötet ist, aufzustecken. Die gleichmässige Lötung zwischen Heizstab und Kegel bereitet noch Schwierigkeiten, und es werden daher alternative Verbindungsmöglichkeiten untersucht. Ob diese konstruktive Lösung unter der Temperaturwechselbeanspruchung des Versuchs standhält, wird in einem Vorversuch geklärt, der vorbereitet wurde.

Der augenblickliche Stand aller o.g. Arbeiten und Bestellungen lässt darauf schliessen, dass der Versuchsbetrieb Mitte 1975 aufgenommen werden kann.

#### 4. Vorprüfung von Mess- und Beobachtungsverfahren:

Zu einer Anordnung aus zwei Heizstäben in einem rechteckigen Kanal mit Wasserzulauf am unteren Ende und freier Dampfabströmung oben wurden neben dem Test der Fensterkonstruktion Filmaufnahmen von der Zweiphasenströmung gemacht. Der Flutvorgang lässt sich mit Auf- und Durchlicht und einer Bildfrequenz von 1000 bis 7000 Bildern pro Sekunde für den zeitlich grössten Teil des Vorgangs qualitativ beobachten. Die erste Phase des Flutvorgangs, der Abschnitt der Nebelkühlung mit sehr kleinen Tröpfchen und hoher Dampfgeschwindigkeit, erfordert jedoch eine kürzere Belichtungszeit als sie sich bei der maximalen Bildfrequenz von 7000 Bildern pro Sekunde (Hycam, 16 mm, volles Bildformat) durch die Kamera

ergibt, um schärfere Konturen der sich laufend verformenden Wassertröpfchen zu erhalten. Hierzu reicht das vorhandene Dauerlicht nicht aus; es soll zunächst versuchsweise eine Synchronblitz-Anlage eingesetzt werden.

Um die Bildaussage über diesen Abschnitt des Vorgangs weiter zu verbessern, muss das Problem der Scheibenbenetzung noch gelöst werden. Zwei konstruktive Lösungen, die auch kombiniert anwendbar sind, werden im nächsten Berichtszeitraum untersucht: eine elektrisch beheizte Scheibe und ein mechanischer Wasserfilm-Abweiser.

Für eine über die Beobachtung des Tropfenspektrums hinausgehende quantitative Auswertung der Filmaufnahmen aus der Nebelkühlphase ist eine Information über die Geschwindigkeit der Dampfphase, die sich aus Photos nicht gewinnen lässt, und damit über den Schlupf erforderlich. Die Realisierung dieser Messung in einer Weise, die auch in einem grossen Bündel mit Teilblockade möglich ist, ist ausserdem wichtig für die Übertragung der Ergebnisse dieser Untersuchung auf die Verhältnisse bei Teilblockade, wo wegen der Strömungsumverteilung nicht aus dem Gesamtdurchsatz auf den örtlichen Durchsatz in den blockierten Kanälen geschlossen werden kann. In den Strömungskanal der obengenannten Vorversuchs-Anordnung wurden handelsübliche Mantelthermoelemente von 0,5 und 0,25 mm Durchmesser mit isolierter Meßspitze eingebaut, um zu prüfen, ob sich in einer für Flutvorgänge typischen Zweiphasenströmung bei verschiedenen Wassergehalten ausreichende Temperaturschwankungen messen lassen, um auf der Kreuzkorrelation zweier Temperatursignale eine Geschwindigkeitsmessung aufzubauen zu können. Nach dem jetzigen Stand der Prüfung kann gesagt werden, dass zumindest während eines Teils des Flutvorganges mit mittlerem Wasseranteil korrelierbare Temperatursignale gemessen werden können; augenblicklich wird versucht, ob sich auch in der Anfangsphase mit kleinem Wasseranteil verwertbare Signale gewinnen lassen.

## 5. Rechnungen zur Vorbereitung, Auslegung und Auswertung des Experimentes:

Der Stromleiter des Heizstabes mit angenähert axial cosinusförmiger Leistungsverteilung hat die Form einer Bandwendel mit axial verschiedener Wendelbreite und Steigung; das bedeutet eine axial diskontinuierliche Wärmefreisetzung unter einer Mantellinie des Stabes. Es wurde überprüft, wie gross die axialen Temperaturunterschiede sind, die dadurch bei stationärem Wärmestrom an der Hüllenoberfläche entstehen. Dazu wurde die Heizstabgeometrie so idealisiert, dass mit dem Rechenprogramm RELAX ein zweidimensionales Temperaturfeld berechnet werden konnte.

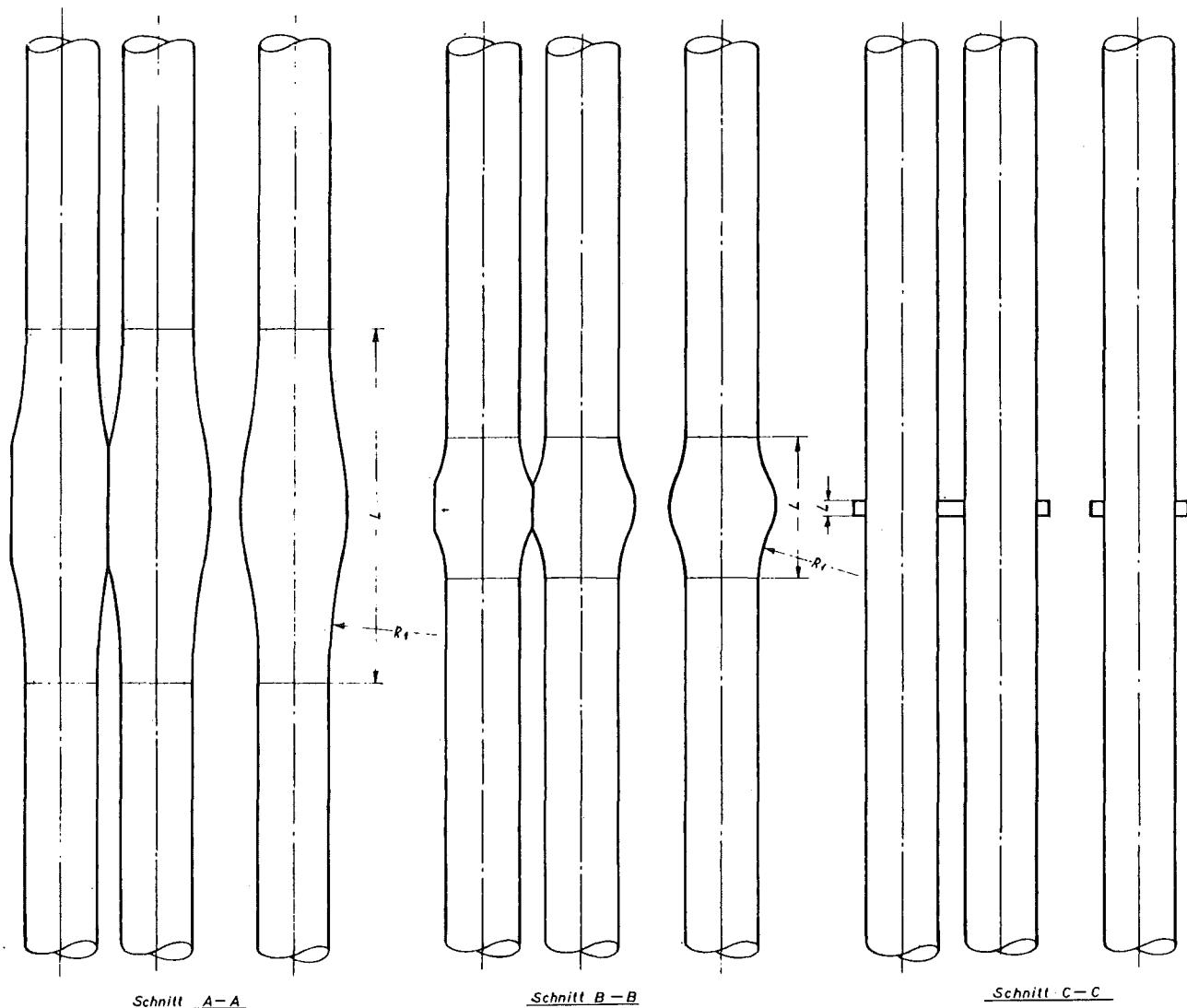
Bei vorgegebener Geometrie treten die grössten Temperaturunterschiede auf der Hülle dann auf, wenn im quasi-stationären Bereich des instationären Vorgangs an der Hülle genau die Wärmeleistung abgegeben wird, die in der Bandwendel freigesetzt wird. Für diesen Fall wurden die örtlichen Temperaturunterschiede für zwei Stabzonen berechnet, wobei die Wärmefreisetzung zu Beginn des Flutvorganges zugrunde gelegt wurde. Die maximalen Temperaturunterschiede betragen dafür:

- in Stabmitte (kleine Wendelsteigung und kleiner Wendelabstand) für  $q'' = 8,15 \text{ W/cm}^2$  ist  $\Delta T = 0,4 \text{ }^\circ\text{C}$ ,
- am Stabende (grosse Wendelsteigung und grosser Wendelabstand) und für  $4,04 \text{ W/cm}^2$  ist  $\Delta T = 9,5 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Die Idealisierung der Stabgeometrie wirkt sich in Richtung auf eine gewisse Überschätzung der Temperaturunterschiede aus. Daraus ergibt sich, dass im interessanten Bereich der Stabmitte der Einfluss der Wendel auf die Temperaturverteilung an der Hülle vernachlässigbar ist. Für die Stabenden werden die Temperaturen nach dem Versuch mit den Leistungsdichten nachgerechnet, die dem Turnaround-Punkt zuzuordnen sind.

Im Bereich einer künstlichen Blockade auf dem Heizstab macht die Bestimmung der örtlichen Wärmestromdichte an der Staboberfläche Schwierigkeiten, weil der Wärmestromdichtegradient im Stab in

axialer Richtung nicht mehr vernachlässigbar klein sein wird. Da es ein Ziel ist, die Wärmeübergangszahlen auch möglichst dicht hinter der Blockade zu bestimmen, wurde eine Rechnung vorbereitet, die ergeben soll, in welchem Abstand von der Blockademitte die axiale Komponente der Wärmestromdichte so klein geworden ist, dass der Fehler, der durch ihre Vernachlässigung entsteht, in der Größenordnung anderer Fehler, die in die Wärmeübergangszahl eingehen, bleibt. Diese Rechnung wird im nächsten Berichtszeitraum durchgeführt.



Schnitt A-A

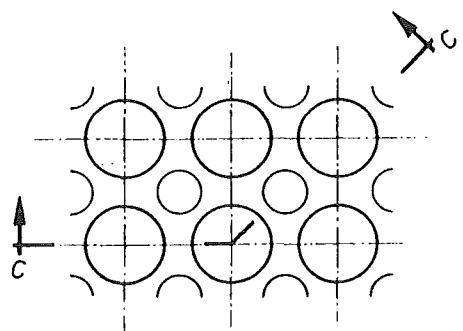
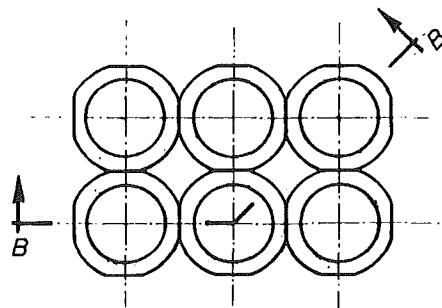
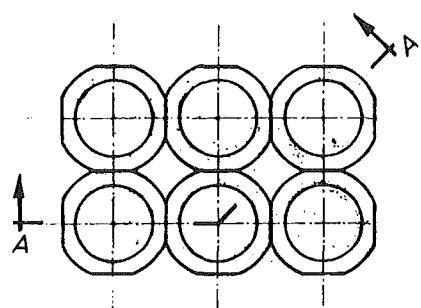
Schnitt B-B

Schnitt C-C

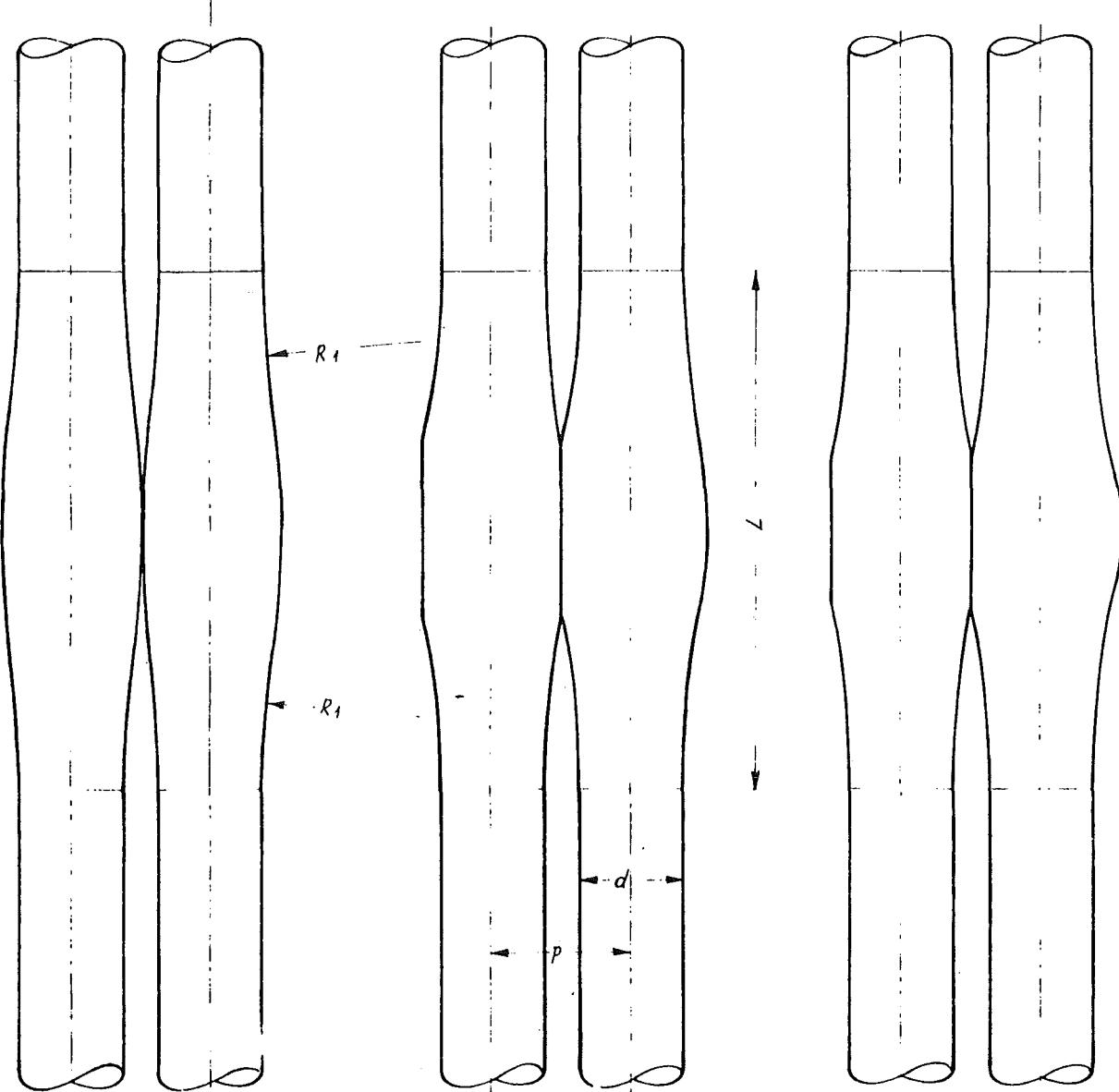
*lange Beule*  
 $L = 53,2 \text{ mm}$   
 $R_f = 100 \text{ mm}$

*kurze Beule*  
 $L = 21 \text{ mm}$   
 $R_f = 16 \text{ mm}$

*Platte*  
 $L = 9 \text{ mm}$



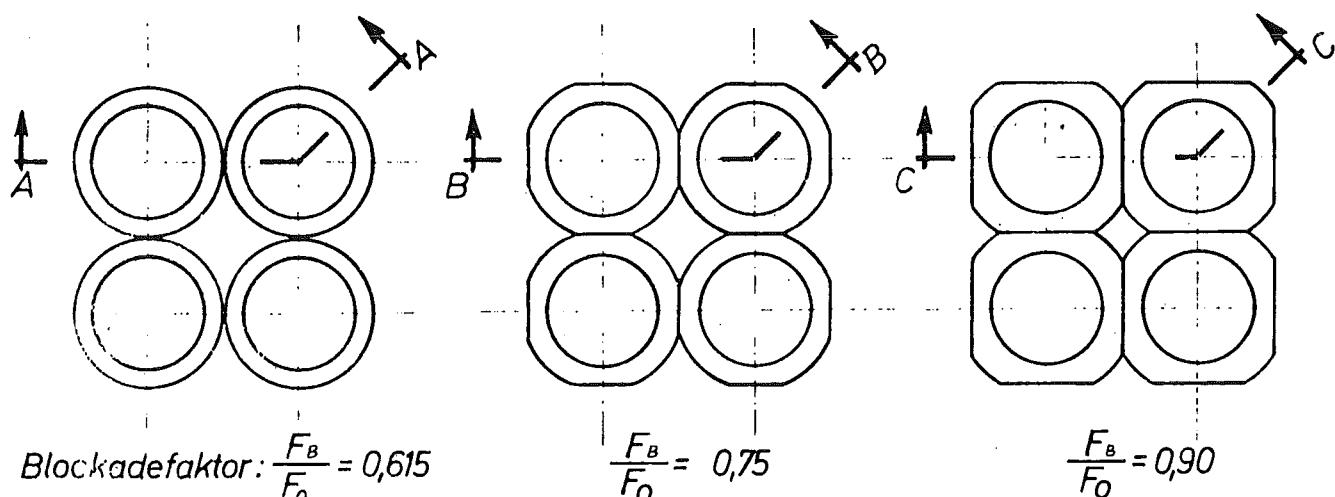
**BLOCKADEFORMEN**  
Blockadefaktor 0,75



Schnitt A-A

Schnitt B-B

Schnitt C-C



$$\text{Blockadefaktor: } \frac{F_B}{F_0} = 0,615$$

$$\frac{F_B}{F_0} = 0,75$$

$$\frac{F_B}{F_0} = 0,90$$

*Lange Beule mit verschiedenen Blockadefaktoren*

$$d = 10,75 \text{ mm}$$

$$p = 14,3 \text{ mm}$$

$$L = 53,2 \text{ mm}$$

$$R_f = 100 \text{ mm}$$

4240 Coreschmelzen von LWR

4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von  $UO_2$ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung  
(S. Hagen, A. Mack, H. Malauscheck, K. Wallenfels, RBT)

### 1. Einleitung

Das Ziel der Untersuchungen sowie der Versuchsaufbau und der Brennstabsimulator sind in den früheren Halbjahresberichten (1) schon beschrieben worden. Es wird daher hier nur über die im 2. Halbjahr 1974 durchgeföhrten Experimente berichtet.

Wie Modellrechnungen (2) zum Coreschmelzen gezeigt haben, kann der nach der Blowdownphase durch das Core strömende Dampf mit dem Hüllmaterial mit steigender Temperatur so heftig reagieren, daß der gesamte Wasserdampf vor Durchströmen des Cores verbraucht wird. Es können also im Core Bereiche mit unterschiedlichem oxidativem Verhalten auftreten. Um die beiden Grenzfälle - fehlender Dampf und Dampf im Überschuß - zu simulieren, haben wir das Abschmelzverhalten in Schutzgas und in Luft untersucht. Das Schutzgas simuliert die fehlende Oxidation bei fehlendem Wasserdampf, während in Luft das Zircaloy sogar noch etwas stärker oxidiert wird als im Wasserdampf.

Da in den verschiedenen Bereichen des Cores vermutlich eine unterschiedliche Temperaturanstiegs geschwindigkeit auftreten wird, haben wir das Abschmelzverhalten bei unterschiedlichen Temperaturanstiegen untersucht. Entsprechend den Erwartungen nach Modellrechnungen (2) für das Core unter Störfallbedingungen wurde der Temperaturanstieg zwischen  $0,5$   $^{\circ}\text{C/s}$  und  $6$   $^{\circ}\text{C/s}$  verändert. In Schutzgas wurde zusätzlich das radiale Temperaturprofil variiert. Wir wollten mit diesen Versuchen sehen, ob eine systematische Abhängigkeit des Abschmelzverhaltens vom radialen Profil vorhanden ist. Die Abflachung des radialen Temperaturprofils nach außen haben wir durch Verwendung einer steigenden Zahl von Strahlenschirmen aus Tantal erreicht.

## 2. Versuche mit Schutzgas

Als Atmosphäre wurde bei den Versuchen mit Schutzgas Helium unter Normaldruck verwendet. Abbildung 1 zeigt vier in Schutzgas abgeschmolzene Stäbe. Beim ersten Stab wurde die Temperatur mit  $0,5^{\circ}\text{C/s}$  gesteigert, während die drei weiteren mit  $1^{\circ}\text{C/s}$  aufgeheizt wurden. Hierbei war der dritte Stab mit einem Strahlenschirm, und der ganz rechts stehende Stab mit 5 Strahlenschirmen umgeben.

Der Temperaturanstieg wurde pyrometrisch verfolgt. Bei allen Stäben erfolgt eine Abflachung der Temperaturanstiegskurven im Bereich von  $1700^{\circ}\text{C} - 1780^{\circ}\text{C}$ , und das erste sichtbare Aufschmelzen erfolgte zwischen  $1800^{\circ}\text{C}$  und  $1900^{\circ}\text{C}$ .

Beim Vergleich der Stäbe sieht man, daß die äußereren Formen dieser mit verschiedenen Temperaturanstiegen und unterschiedlichen radialen Profilen abgeschmolzenen Stäbe einander ähnlich sind: Das im oberen Bereich abgeschmolzene Material hat sich tropfenförmig im unteren Bereich angesammelt. Dies ist auch beim 1. Stab der Fall, von dem man hier in der Abbildung nur den unteren Bereich sieht.

Interessant ist, daß bei allen Stäben zusammen mit dem Zircaloy auch das  $\text{UO}_2$  abgeschmolzen ist.

Abbildung 2 zeigt drei weitere Stäbe, die ohne Strahlenschirm mit 2, 4 und  $6^{\circ}\text{C/s}$  aufgeheizt wurden. Man erkennt auch bei ihnen das prinzipiell gleiche Verhalten, nur daß sich die Tropfnasen wegen der höheren Aufheizgeschwindigkeit stärker ausgebildet haben.

Bis jetzt haben wir nur die Endergebnisse des Abschmelzens gesehen. Bilder vom Abschmelzverlauf zeigt die Abbildung 3. Es wurde hier ein Stab bei einer Aufheizgeschwindigkeit von  $3^{\circ}\text{C/s}$  abgeschmolzen. Es handelt sich um Ausschnitte aus einem 16 mm-Film:

Das 1. Bild zeigt den intakten Stab. Beim 2. Bild sieht man, daß es in der oberen Hälfte zu einer Veränderung des Hüllrohres kommt, die ihre Ursache in der Wechselwirkung zwischen dem Zircaloy und  $\text{UO}_2$  hat, das zum Schmelzen dieser Grenzschicht führt. Die entstehende Schmelze läuft nach unten und dringt durch ein

für Temperaturmessungen im Hüllrohr angebrachtes Loch von 3 mm Durchmesser nach außen. Im 3. Bild wird dies sichtbar. Für die Annahme, daß das Schmelzen im Wechselwirkungsbereich von Pellet und Hülle beginnt, sprechen auch die metallurgischen Schliffbilder (3), die zeigen, daß das außen heruntergelaufene Schmelzgut aus  $UO_2$ ,  $\alpha$ -Zr und  $\alpha$ -U besteht.

In den folgenden Bildern sieht man, wie immer mehr Schmelzgut austritt und der Tropfen schließlich erstarrt, was sein dunkles Aussehen anzeigt.

Die zweite Bildreihe zeigt das Versagen der Hülle im oberen Bereich. Die äußere Schicht, die aus dem Schutzgas den Restsauerstoff aufgenommen hat, platzt in Form einer dünnen Pelle ab, während das restliche schmelzenförmige Material tropfenförmig abläuft und dann wieder erstarrt. In der dritten Bildreihe erkennt man eine lange Schmelzspur auf der linken Rückseite in der Mitte des Stabes. Aus den letzten Bildern geht auch noch hervor, wie sich in der Mitte der Vorderseite eine Schmelznase ausbildet.

### 3. Versuche in Luft

Bevor wir im folgenden auf die in Luft abgeschmolzenen Stäbe eingehen, soll kurz das erwartete Oxidationsverhalten betrachtet werden. In Abbildung 4 ist die Dicke der oxidierten Schicht in  $mg/cm^2$  als Funktion der Temperatur für verschiedene Temperaturanstiegs geschwindigkeiten wiedergegeben. Es handelt sich hierbei um Berechnungen nach der Baker-Just-Beziehung unter der Annahme von ausreichendem Dampfangebot. Man sieht, daß für eine bestimmte Temperatur die Oxidschicht um so stärker ist, je langsamer die Temperatur ansteigt. Für Temperaturen oberhalb der Schmelztemperatur des Zircaloys ist der Kurvenverlauf gestrichelt wiedergegeben.

Die Stärke der Zircaloy-Hülle von ca.  $480 mg/cm^2$  ist als waagerechter Strich eingetragen. Nur wenn dieser Strich von dem ausgezogenen Teil der Oxidationskurve erreicht wird, ist die Hülle beim Erreichen der Schmelztemperatur des Zircaloys voll durchoxidiert. Wie die Kurven zeigen, ist dies nur für die Anstiegs geschwindigkeit von  $0,5 {}^\circ C/s$  der Fall. Bei  $10 {}^\circ C/s$  sind nur ca. 20 % durchoxidiert.

Die Abbildung 5 zeigt die Versuche in Luft. Hierbei wurde die Temperatur mit  $0,5$ ,  $1$  und  $5 {}^\circ C/s$  gesteigert. Man sieht, daß die äußere Form sich wesentlich von dem Aussehen der in Schutzgas abgeschmolzenen Stäbe unterscheidet.

Das Zircaloy-Hüllrohr ist hier mehr oder weniger zu einer relativ festen Schicht durchoxidiert. Daß hierbei die Schichtdicke entsprechend der in voriger Abbildung gemachten Rechnungen mit zunehmender Aufheizgeschwindigkeit stetig abnimmt, ist in einer späteren Abbildung mit Vergrößerungen dieser Stäbe deutlich zu sehen.

Der Abschmelzverlauf ist insgesamt in Luft viel heftiger. Während das Schmelzgut in Schutzgas langsam am Stab herunterfloß, werden in Luft, zumindest bei den beiden kleinen Anstiegsgeschwindigkeiten ab ca. 1800 °C, durch die sich im Innern bildende Schmelze Stücke aus der oxidierten Hülle herausgesprengt, wobei die Schmelztropfen über den ganzen Versuchskessel verspritzt werden und an dessen Wandung haften bleiben.

Bei dem ganz rechten Stab mit der höchsten Aufheizgeschwindigkeit ist die Hülle anscheinend weniger spröde, da hier keine Einzelstücke herausgesprengt wurden, sondern die Hülle nur der Länge nach aufgetrennt wurde.

Während bei den Stäben in Schutzgas die ganze Zircaloy-Hülle und die UO<sub>2</sub>-Pellets gleichzeitig abschmelzen, schmilzt hier in Luft zuerst das mit dem Restzircaloy reagierte UO<sub>2</sub> ab, wobei die durchoxidierte Hülle noch stehen bleibt. Beim 2. und 3. Stab sieht man die bevorzugt im unteren Bereich ausgetretene und später erstarrte Schmelzmasse.

In der Abbildung 6 sind Ausschnittsvergrößerungen der drei in Luft aufgeheizten Stäbe wiedergegeben. An ihnen kann man deutlich sehen, wie die durchoxidierte Schichtdicke mit der Aufheizgeschwindigkeit abnimmt. Am Stab ganz links mit 0,5 °C/s Aufheizung sieht man im Bereich der abgeplatzten Hülle, daß sie praktisch ganz durchoxidiert ist. Der mittlere Stab läßt an den Abplatzstellen im unteren Bereich erkennen, daß die durchoxidierte Schicht schon merklich dünner als die Hüllstärke ist.

Bei dem am schnellsten aufgeheizten rechten Stab sieht man nur noch eine mehr pellenartige dünne Schicht, die noch eine gewisse Elastizität zeigt. Eine gewisse Verformbarkeit ist auch beim mittleren Stab zu erkennen, wenn man bei ihm die Risse im oberen Bereich des Stabes betrachtet.

4. Zusammenfassung der Ergebnisse

- 1) In Schutzgas, das Bereiche mit nicht oxidierender Atmosphäre im Core simulieren soll, kommt es bei ca. 2000 °C zum Abschmelzen der Hülle und des Urandioxids bei allen untersuchten Temperaturanstiegsgeschwindigkeiten und radialen Temperaturgradienten. Dieses Verhalten hat seine Ursache in der starken Wechselwirkung zwischen  $\text{UO}_2$  und Zircaloy.
- 2) Bei den Versuchen in Luft, die das Verhalten von Wasserdampf im Überschuß simulieren sollen, wird die Hülle mit abfallender Aufheizgeschwindigkeit zunehmend stärker durchoxidiert. Dieser Zirkonoxid-Mantel bleibt bei den betrachteten Temperaturen von über 2000 °C fest, während auch hier das nicht durchoxidierte Zircaloy zusammen mit dem  $\text{UO}_2$  abschmilzt.

Literatur

1. KFK-Bericht 2050, Seite 196
2. IKE-Bericht K-33
3. Siehe diesen Halbjahresbericht: PNS 4244

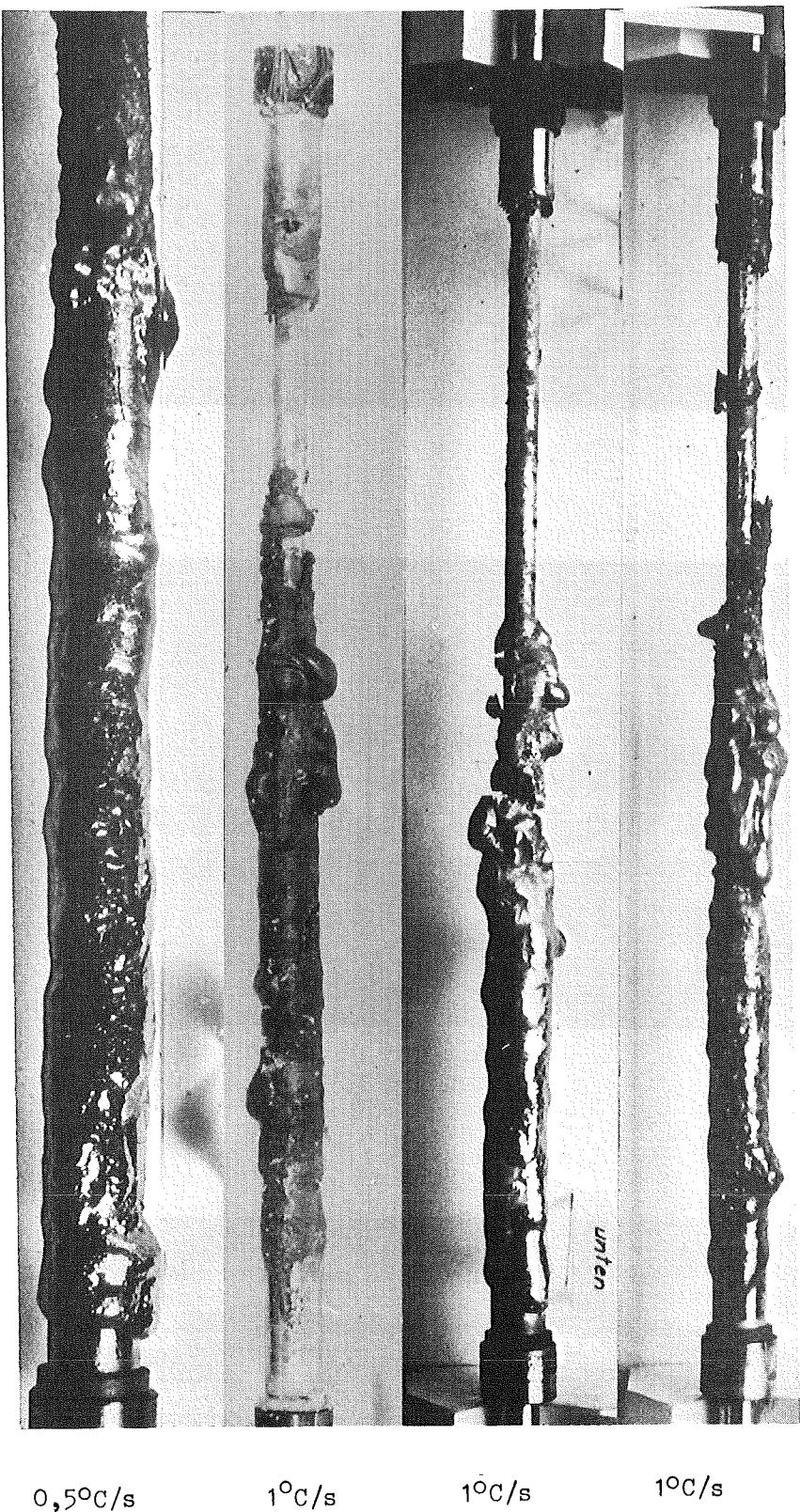
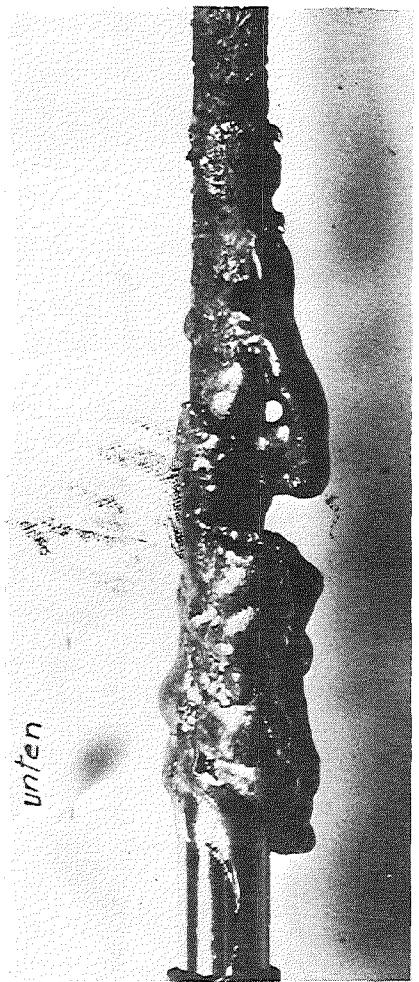
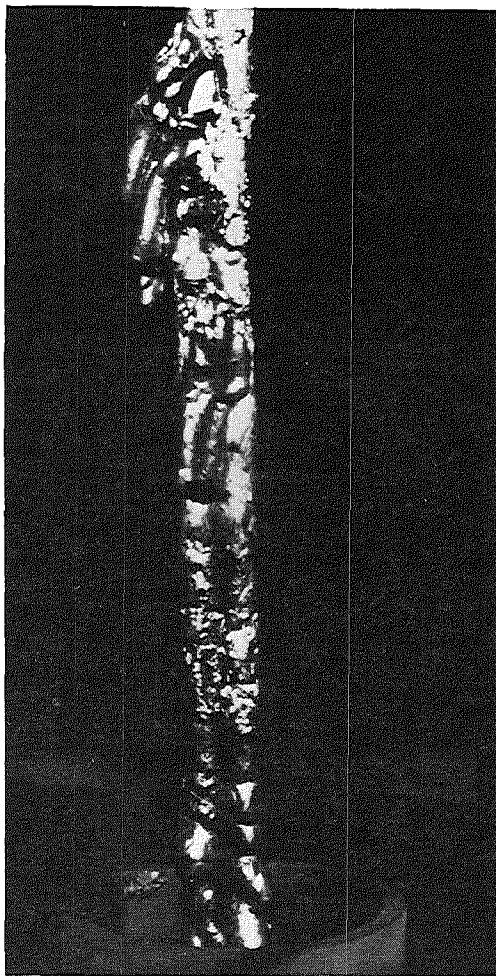


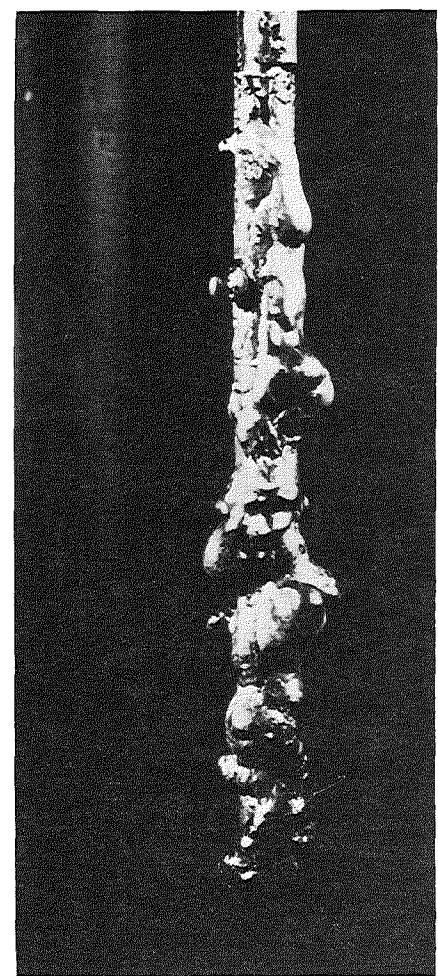
Abb. 4241-1 In Schutzgas abgeschmolzene Stäbe



$2^{\circ}\text{C/s}$



$4^{\circ}\text{C/s}$



$6^{\circ}\text{C/s}$

Abb. 4241-2. In Schutzgas abgeschmolzene Stäbe

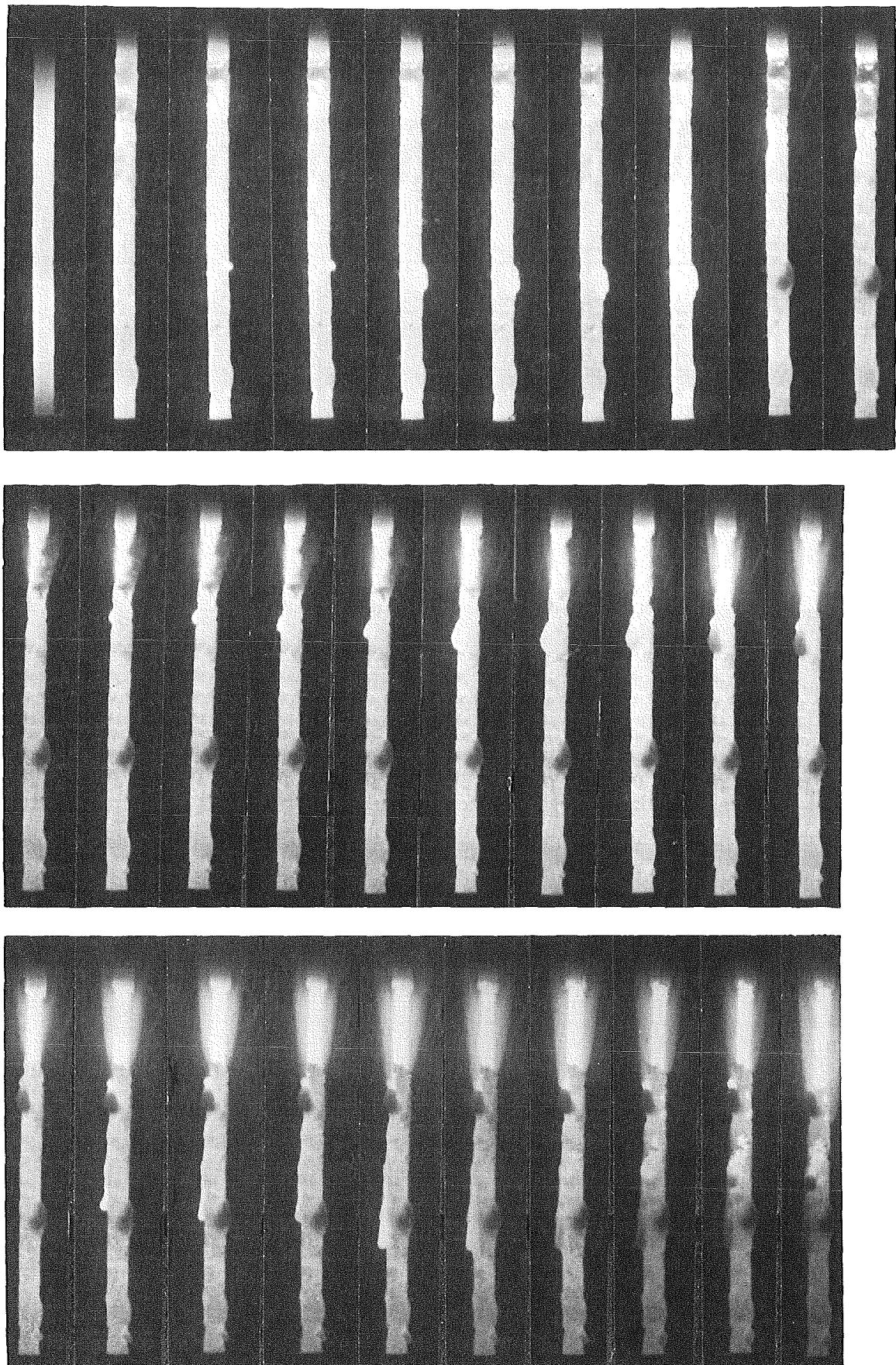


Abb. 4241-3. Verlauf des Abschmelzens in Schutzgas (3°C/s )

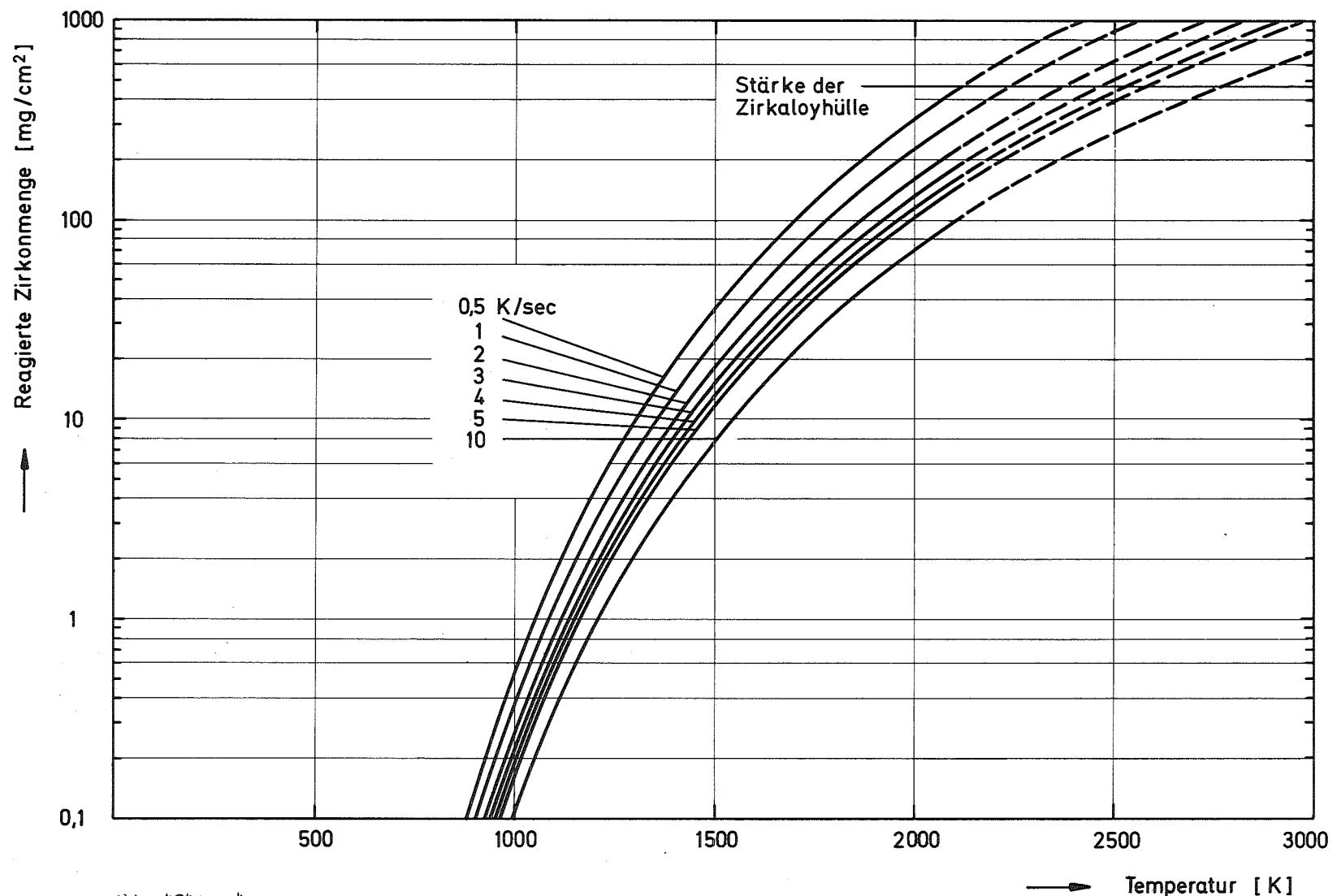
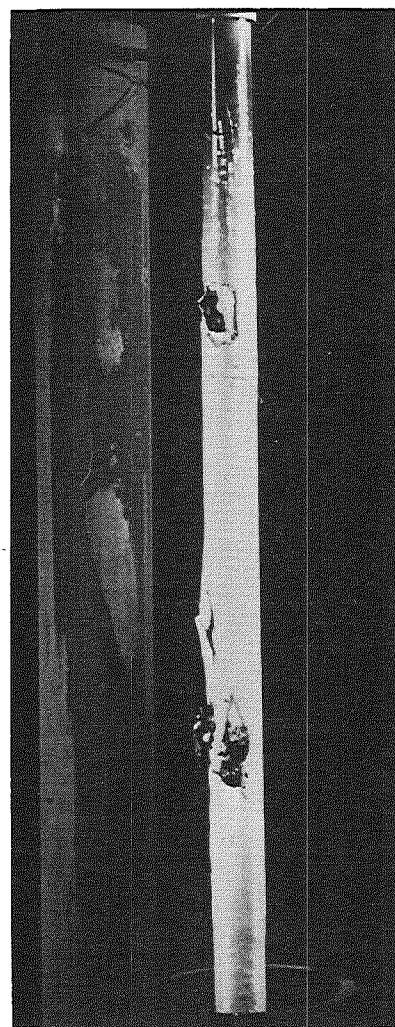


Abb. 4241 - 4

Verlauf der Zirkon-Wasserdampfreaktion in Abhängigkeit von der Temperatur bei verschiedenen Anstiegs geschwindigkeiten der Temperatur. (—) : Verlauf im festen Zirkon. (---): Fortsetzung des Reaktionsverlaufs unter der Annahme, daß die Baker-Just-Beziehung auch oberhalb der Schmelztemperatur noch gültig ist.

0,5°C/s



1°C/s



5°C/s

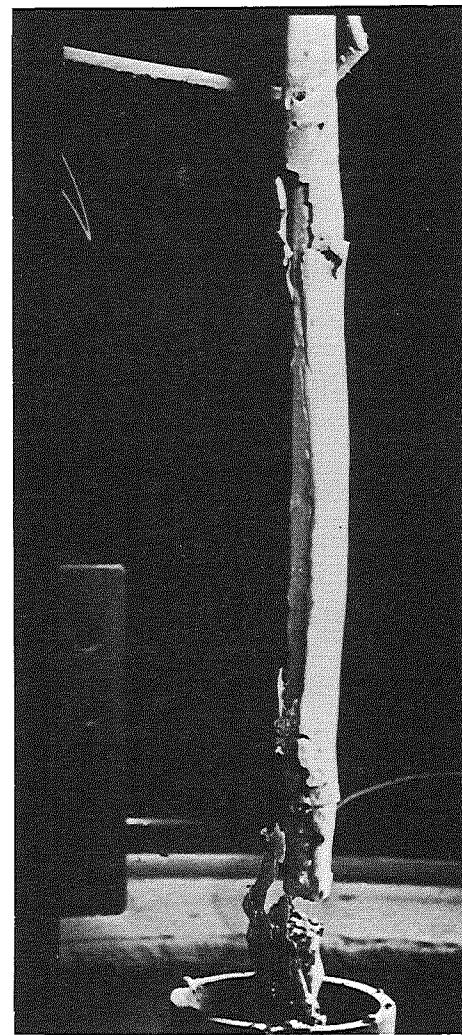


Abb.4241-5. In Luft abgeschmolzene Stäbe

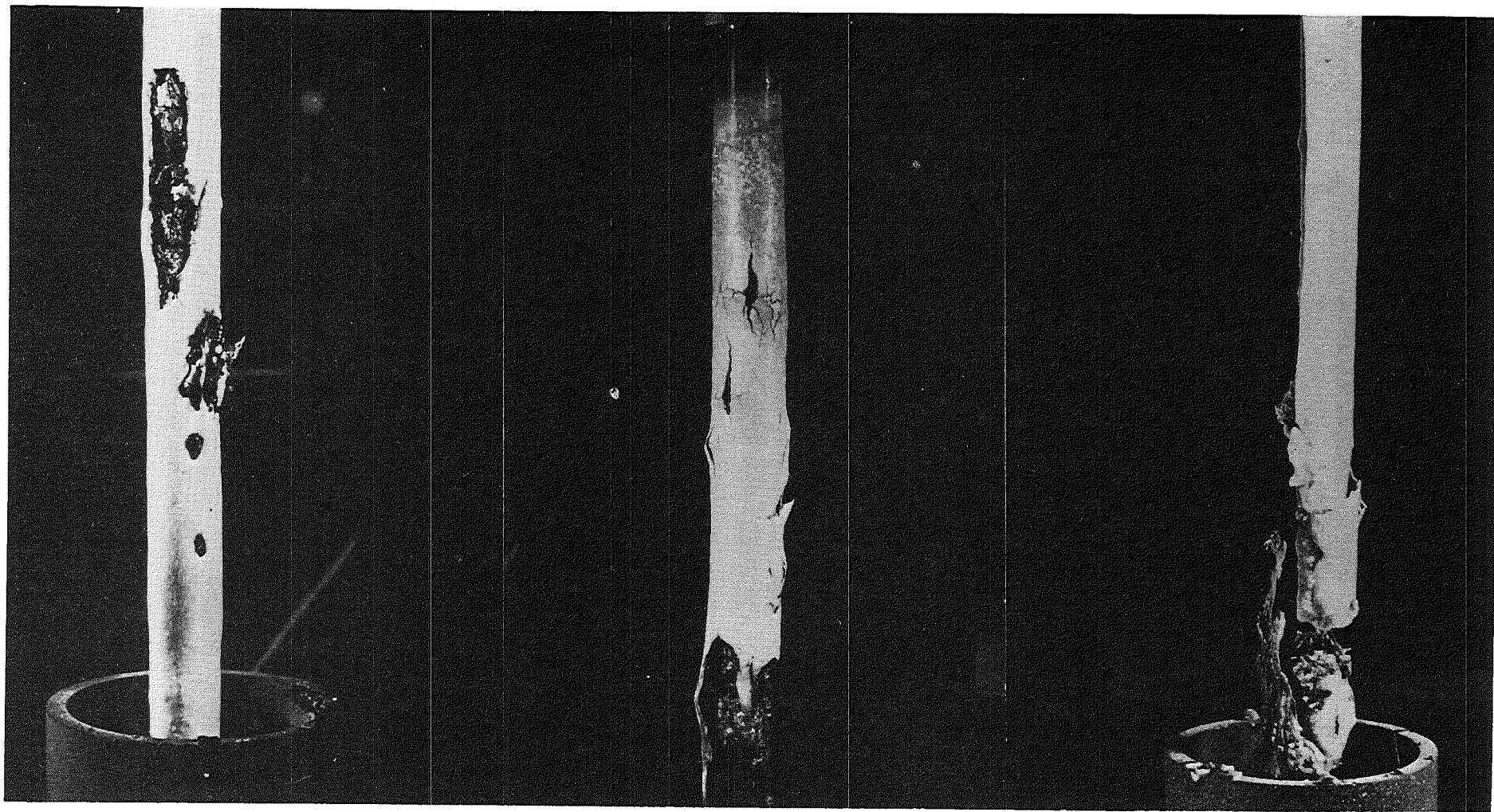


Abb. 4241-6. Vergrößerung der in Luft abgeschmolzenen Stäbe

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen  
(H. Albrecht, C. Keller, H. Wild, IRCH; D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT; P. Hofmann, H. Metzger, IMF I)

### 1. Schmelzanlage und Temperaturmeßtechnik

Die bei einer Industriefirma in Auftrag gegebene Schmelzanlage für Corium-Proben mit schwacher Aktivität, SASCHA (1, 2), wurde weitgehend fertiggestellt. Zur Zeit läuft ein längeres Versuchsprogramm zur Abnahme der Anlage, mit dem der Nachweis erbracht werden soll, daß insbesondere die folgenden Spezifikationen erfüllt sind (vgl. auch Abb. 4243.1).

- der Schwingkreis der Hochfrequenz-Anlage liefert eine Dauerleistung von mindestens 40 KW;
- die Kesselwand des Öfens und alle Einbauten lassen sich bei dieser Dauerleistung auf eine Temperatur zwischen 80°C und 130°C halten, wodurch bei Versuchen unter Wasserdampf-Atmosphären bis zu Drücken von 2,5 ata eine Dampf-Kondensation verhindert wird;
- der Wasserdampf-Generator liefert eine regelbare Dampfmenge bis zu max. 400 g/h.

Beim Betrieb mit voller Nennleistung und gleichzeitiger Thermalisierung des Kessels auf 120 °C muß vor allem sichergestellt sein, daß das Thermalöl in der Induktionsspule auch nicht lokal so stark aufgeheizt wird, daß eine Crackung eintreten kann.

Um Aufschluß über das längerfristige Verhalten des Öls und über möglicherweise auftretende Ablagerungen von Cracking-Produkten zu gewinnen, soll ein Dauerversuch mit 40 KW Leistung gefahren werden.

Eichmessungen mit dem Quotienten-Pyrometer, die von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig durchgeführt wurden, zeigten starke Drifterscheinungen, die im Widerspruch zu Untersuchungsergebnissen bei Pyrometern ähnlichen Typs standen. Vergleichsmessungen im

Herstellerwerk bestätigen dieses Ergebnis. Als Ursache konnte das Einlaufverhalten des Photomultipliers bei den geänderten Referenzwellenlängen ermittelt werden, die sich durch die Verwendung eines strahlenresistenten Lichtleiters ergaben.

Aufgrund dieser Ergebnisse wird nun das Pyrometer mit dem vom Hersteller empfohlenen Lichtleiter und zu den zugehörigen Standardwellenlängen benutzt. Beim Einsatz in aktiver Umgebung muß der Lichtleiter dann so gut wie möglich abgeschirmt und nach Veränderung seiner Durchlaßcharakteristik ausgetauscht werden.

Zur Messung der Innentemperatur der Schmelze wurden Versuche mit Fingerhutrohren durchgeführt, die in das flüssige Schmelzgut eingetaucht wurden. Diese Rohre bestanden aus  $\text{ThO}_2$  bzw. aus  $\text{ZrO}_2$ . Sie sollten einerseits als Glührohre für die pyrometrische Messung dienen, andererseits als Schutzrohre für die Hochtemperatur-Thermoelemente. Leider zeigte es sich, daß die Rohre bereits bei Temperaturen unterhalb von  $2000^\circ\text{C}$  in Höhe der Schmelzenoberfläche zerstört wurden.

Die Funktion der Thermoelemente blieb nach der Zerstörung der Rohre jeweils noch einige Minuten erhalten.

## 2. Schmelzversuche mit Corium unter Luft

In früheren Versuchen (2) hatte es sich gezeigt, daß Luft den Ablauf des Schmelzens in ähnlicher Weise beeinflußt wie Wasserdampf. Zur Vereinfachung der Experimentiertechnik wurden daher die weiteren Vorversuche zum Schmelzen unter oxidativer Atmosphäre nur unter Luft durchgeführt. Sie sollten im wesentlichen dazu dienen,

- die geometrische Anordnung von Induktionsspule, Tiegel und Schmelzgut zu optimieren,
- die mit der Temperaturmessung verbundenen Probleme weiter zu untersuchen,
- das Verhalten des Schmelzgutes unter verschiedenen Aufheizbedingungen sowie die Wechselwirkung mit dem Tiegelmaterial zu beobachten.

Die Schmelzvorrichtung bestand aus einem 12 KW Hf-Generator und einer einfachen, über Schwebstofffilter abgesaugten Blechbox, in der sich die Induktionsspule und die Tiegelkonstruktion befanden. Die geometrische Anordnung von Tiegel und Schmelzgut waren die gleiche, wie sie zunächst

in der bestellten Schmelzanlage SASCHA vorgesehen ist: Ein  $\text{ThO}_2$ -Schmelztiegel von 2,5 cm Durchmesser und 5 cm Höhe befand sich - eingebettet in eine 5 mm dicke Isolationsschicht aus  $\text{ThO}_2$ -Pulver - in einem äußeren Schutztiegel aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bzw.  $\text{MgO}$ . Das Schmelzgut bestand aus einer Corium E-Mischung ( $\text{UO}_2$  + Zircaloy 4 + Stahl W.Nr.1.4550) und wurde mit einer Gesamtmasse von 30 g in Form von konzentrischen Teilen eingesetzt.

Da die Auswertung der Versuche noch nicht abgeschlossen ist, sollen hier zunächst die wichtigsten Beobachtungen während der Experimente geschildert werden. Die Wechselwirkung der Schmelze mit dem Tiegelmaterial sowie erste Untersuchungsergebnisse der Schmelzproben werden dann in den beiden folgenden Abschnitten behandelt.

- a) Bei einer Temperatur von ca.  $2400^\circ\text{C}$  lag stets das gesamte Schmelzgut in flüssiger Form vor. Eine weitere Temperatur-Erhöhung war trotz Steigerung der Anodenleistung des Generators nicht möglich. Als Ursache dafür ist vermutlich das Einsetzen von Siedevorgängen in der Schmelze anzusehen.
- b) Bei Temperaturen um  $2200^\circ\text{C}$  bildeten sich Flammen und heftige Rauchschwaden über dem Schmelzgut. Außerdem waren vulkanartige Eruptionen zu beobachten, bei denen Partikel mit einer Größe bis zu einigen mm Durchmesser aus dem Tiegel geschleudert wurden.  
Daneben kam es bei einigen Versuchen zum Hochquellen der Schmelze bis über den Tiegelrand, obwohl sich die Schmelzenoberfläche zunächst in der unteren Tiegelhälfte befunden hatte.

Sowohl der Effekt des Aufquellens als auch das Herausschleudern von Schmelzgut aus dem Tiegel ließ sich dadurch verringern, daß für die Induktionsspule eine Position gewählt wurde, in der sich die Spulenmitte um ca. 3 mm oberhalb der Schmelzenoberfläche befand.

- c) Die aufgequollenen Teile des Schmelzguts koppelten nicht mehr an das Induktionsfeld an und erstarrten in kurzer Zeit. Dadurch bildete sich eine schlackenähnliche Kruste, die den Einblick auf die Schmelze versperrte und so die pyrometrische Temperatur-Messung erschwerte bzw. sogar unmöglich machte (vgl. Abb. 4243.2).

### 3. Tiegelmaterialuntersuchungen

In (2) wurde über erste systematische Untersuchungen der Wechselwirkung zwischen dem  $\text{ThO}_2$ -Tiegelmaterial und teil-oxidiertem Corium-E unter Schutzgas berichtet. Das Zircaloy wurde dabei in oxidischer und der Stahl in metallischer Form eingesetzt. Mikrosonden-Untersuchungen und chemische Analysen der erstarrten Corium-Proben ergaben, daß nur schwache chemische Wechselwirkungen zwischen der Schmelze und dem  $\text{ThO}_2$  stattfinden. Der maximale  $\text{ThO}_2$ -Gehalt in der Schmelze betrug etwa 1.5 Gew. %. Das Thorium trat vorwiegend zusammen mit dem Uran und Zirkonium als oxidische Ausscheidung in der Metallschmelze auf.

Weiterführende Experimente in  $\text{ThO}_2$ -Tiegeln mit vollständig oxidiertem Corium-E (alle Komponenten wurden oxidisch eingesetzt) zeigten jedoch, daß die Schmelze relativ schlecht mit dem  $\text{ThO}_2$  verträglich ist. Bereits bei Temperaturen  $\geq 1800$  °C und Glühzeiten  $> 5$  min kam es zu stärkeren Reaktionen und Auflösungerscheinungen des  $\text{ThO}_2$  in der Schmelze.

Die im vorigen Abschnitt beschriebenen Versuche mit Corium-E unter Luft bestätigen diesen Sachverhalt. Die Abb. 4243.3 und 4 zeigen das Reaktionsverhalten von Corium-E in Abhängigkeit von Temperatur und Zeit.

Bei 1700 °C zeigt der  $\text{ThO}_2$ -Tiegel gegenüber der entstehenden Schmelze noch ein relativ gutes Verträglichkeitsverhalten. Nach längerer Haltezeit ( $> 5$  min) oxidieren neben dem Zircaloy, das bereits beim Hochheizen mit dem Sauerstoff reagiert, auch die Bestandteile des Stahls, Cr, Fe und Ni. Die entstehenden Oxidphasen reagieren mit dem  $\text{ThO}_2$ -Tiegel, und es ist eine mit der Temperatur und der Zeit stark zunehmende Auswaschung der Tiegelwand festzustellen (vgl. Abb. 4243.4, unten).

Aufgrund dieser Ergebnisse ist es wahrscheinlich nicht möglich, die Corium-E-Schmelze wesentlich länger als ca. 15 min in  $\text{ThO}_2$ -Tiegeln unter Luft zu halten. Selbst dann, wenn es nicht zum Versagen des Tiegels kommt, sind die Reaktionen zwischen dem  $\text{ThO}_2$  und der Schmelze so stark, daß diese in ihren chemischen Eigenschaften erheblich verändert wird.

Als weitere zeitbegrenzende Faktoren für die erreichbare Haltzeit der Schmelze kommen das bereits erwähnte Nachlassen der induktiven Ankopplung und das starke Abdampfen des Schmelzguts hinzu.

Ein ähnliches Verhalten wie die  $\text{ThO}_2$ -Tiegel zeigen auch Tiegel aus  $\text{UO}_2$  und  $\text{ZrO}_2$ ; sie werden von der Schmelze sogar noch stärker angegriffen als das  $\text{ThO}_2$ . Eine Reduzierung der chemischen Wechselwirkungen läßt sich eventuell durch den Einsatz gekühlter Tiegel erreichen.

Dieser Frage kann jedoch erst nachgegangen werden, wenn die neue Schmelzanlage und damit eine höhere Generatorleistung zur Verfügung steht.

#### 4. Untersuchung der Schmelzproben

Ein Teil der unter Luft in  $\text{ThO}_2$ -Tiegeln geschmolzenen Corium-E-Proben wurde metallographisch, mit der Mikrosonde und durch chemische Analysen untersucht. Dabei ergab sich, daß es während des Hochheizens und unmittelbar nach Erreichen der Schmelztemperatur zur Ausbildung einer metallischen Phase (Stahl) und einer oxidischen Phase ( $\text{UO}_2/\text{ZrO}_2$ ) kommt (vgl. Abb. 4243.3 und 4 oben). Diese getrennten Phasen bleiben jedoch nicht erhalten, da der chemische Zustand der Phasen unter Luft auch stark zeitabhängig ist. Während sich das Zircaloy bereits beim Hochheizen aufoxidiert, sind stärkere Oxidationsreaktionen des Stahls erst bei Glühzeiten  $> 5$  min festzustellen. Dabei wird zunächst bevorzugt das Chrom, dann das Eisen und Nickel oxidiert. Bei ca.  $2350^\circ\text{C}$  war nach etwa 13 min der überwiegende Teil des Stahls oxidiert (Abb. 4243.4 unten).

Die qualitativen und quantitativen Untersuchungen der erstarrten Proben zeigen, daß die metallische Phase nur aus den Komponenten des Stahls (Fe, Cr, Ni) besteht und kein Uran und Zirkon oder Sauerstoff enthält. Die keramische Phase ist nicht homogen zusammengesetzt; sie besteht aus U, Zr und Sauerstoff und enthält z.T. auch Th, besonders an den Phasengrenzen zum  $\text{ThO}_2$ -Tiegelmaterial. Nach der partiellen Oxidation des Stahls sind auch dessen Oxidationsprodukte (Cr- und Fe-Oxide sowie Mischoxide) in der keramischen Phase zu finden. Die verschiedenen Oxidphasen sind nach dem Erstarren statistisch über den Querschnitt der Schmelzprobe verteilt.

Der Ablauf dieser Vorgänge ist also der Grund für die Unverträglichkeitsreaktionen zwischen der Schmelze und dem  $\text{ThO}_2$ , die schließlich zum Versagen des Tiegelmaterials führen.

## 5. Vorversuche zur Abscheidung und quantitativen Bestimmung von Spaltprodukt-Aerosolen

Zur Auswahl geeigneter Filtermaterialien für die Abscheidung von Spaltprodukt-Aerosolen wurden erste Versuche mit inaktiven Testaerosolen durchgeführt. Ihre Herstellung erfolgte durch Vernebelung einer 0.1-molaren  $\text{La}^{3+}$ -Milchsäurelösung bzw. einer 0.03 molaren  $\text{Zr}^{4+}$ -Oxalsäurelösung in einem Ultraschall-Generator. Die dabei gebildeten Flüssigkeits-Aerosole wurden durch eine 30 cm lange Heizstrecke von 1200 °C geleitet, in der sich die zunächst vorhandenen Chelatkomplexe über mehrere Zwischenstufen in die Metalloxide umwandeln. Auf diese Weise entstanden Feststoff-Aerosole von der gleichen chemischen Form wie die Spaltprodukte-Aerosole.

Zur Abscheidung wurden Filter mit 50 mm Durchmesser aus Zellulose-Acetat bzw. regenerierter Zellulose (Sartorius Typen 11106/11607) verwendet, die sich besonders durch ihre Beständigkeit gegen Feuchtigkeit und hohe Temperaturen (bis 180 °C) auszeichnen. Die quantitative Bestimmung der Niederschläge erfolgte aktivierungsanalytisch durch Bestrahlung der in Polyäthylen-Folie eingeschweißten Filter im FR2 (0.5 h mit  $\phi = 8 \cdot 10^{14}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> · s). Dabei ergab sich durch Vergleich der Aktivitäten auf dem VersuchsfILTER und einem nachgeschalteten Kontrollfilter, daß das Rückhaltevermögen des ersten Filters über 99,9 % betrug. Gleichzeitig mitbestrahlte Leerfilter lieferten eine Untergrundaktivität, die vorwiegend von den Nukliden  $\text{Na-24}$ ,  $\text{Mn-56}$  und  $\text{Br-82}$  herrührte. Diese Aktivitäten hatten jedoch - besonders nach 1-2 Tagen Abklingzeit - keinen Einfluß auf die Analysierbarkeit der Niederschläge auf den Filtern.

Grundsätzlich kommen für die Abscheidung der Spaltprodukt-Aerosole auch Glasfaser-Membranfilter in Frage, da diese sogar ein noch besseres Temperatur- und Feuchtigkeitsverhalten aufweisen als die Zellulosefilter. Doch aufgrund ihres hohen Na- und K-Gehaltes liefern sie bei der Bestrahlung im Reaktor eine mehr als 1000-fache Untergrundaktivität, so daß die aktivierungsanalytische Bestimmung der Niederschläge durch Bestrahlung des ganzen Filters nicht möglich ist. Es soll daher versucht werden, die quantitative Analyse solcher Filterproben mit Hilfe der Röntgenfloureszenz durchzuführen.

Außerdem sind mit den inaktiven Testaerosolen noch folgende Versuche vorgesehen:

- a) Elektronenmikroskopische Bestimmung der Größenverteilung. Diese Messung soll einen Vergleich mit dem bisher bekannten Teilchengrößenspektrum freigesetzter Spaltprodukte ermöglichen.
- b) Einschaltung einer Transportstrecke von ca. 50 cm Länge zwischen dem Heizrohr und den Meßfiltern zur Ermittlung der Transportverluste an Aerosolen aufgrund der Ablagerung an den Rohrwänden; gleichzeitig sollen dabei verschiedene Nachweismethoden für die abgeschiedenen Aerosole erprobt werden.
- c) Transport und Abscheidung der Aerosole im Wasserdampf.

Die in diesen Versuchen gewonnenen Erfahrungen bzgl. der meßtechnischen Erfassung inaktiver Aerosole sollen ferner zur Klärung der Frage beitragen, welche Vor- und Nachteile mit dem Einsatz von inaktiven Fissium-Proben bei den Schmelzversuchen zur Spaltprodukt-Freisetzung verbunden sind.

#### Literatur

/1/ 2. Halbjahresbericht 1973 des PNS, KFK 1908, S. 141 - 147

/2/ 1. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK 2050, S. 216 - 227

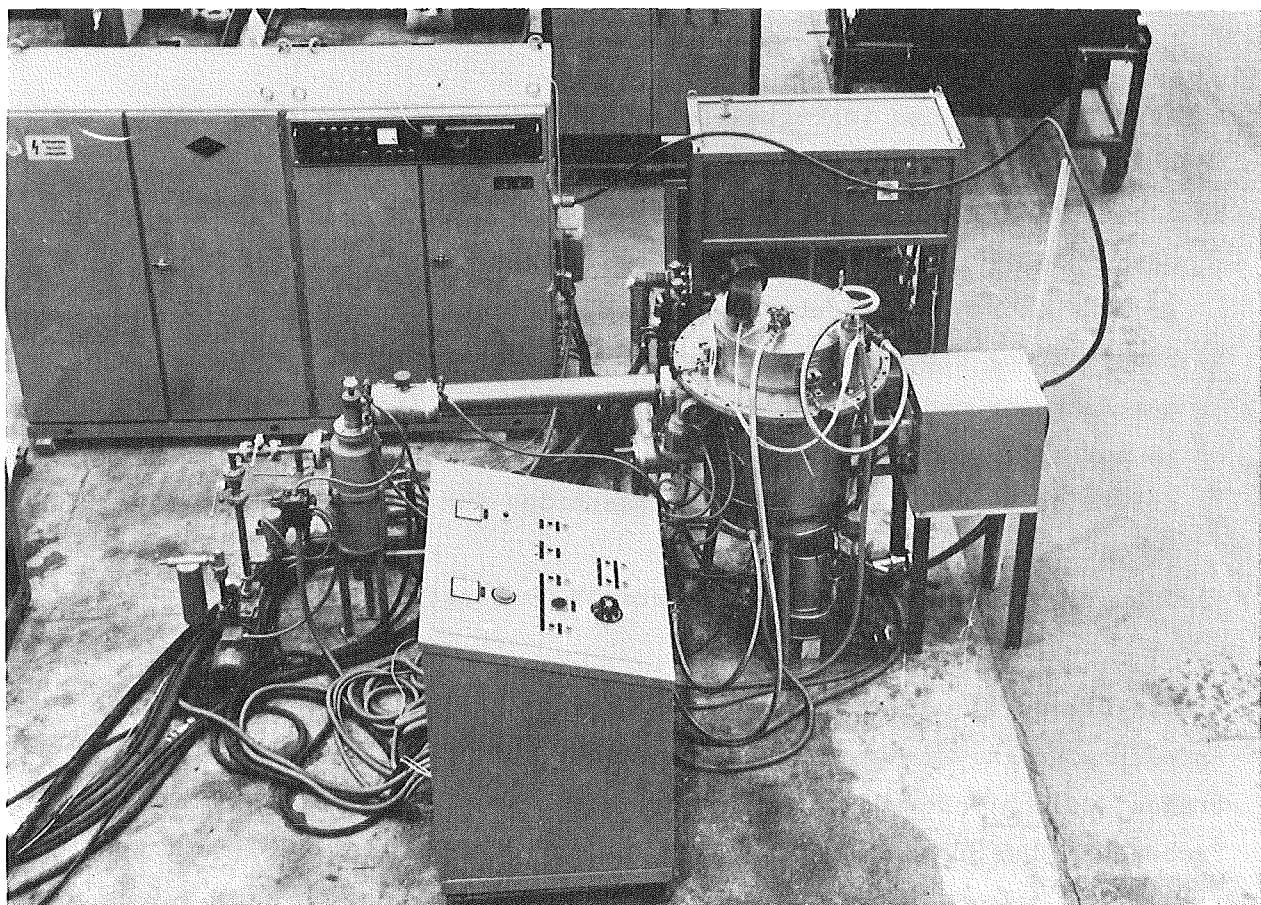
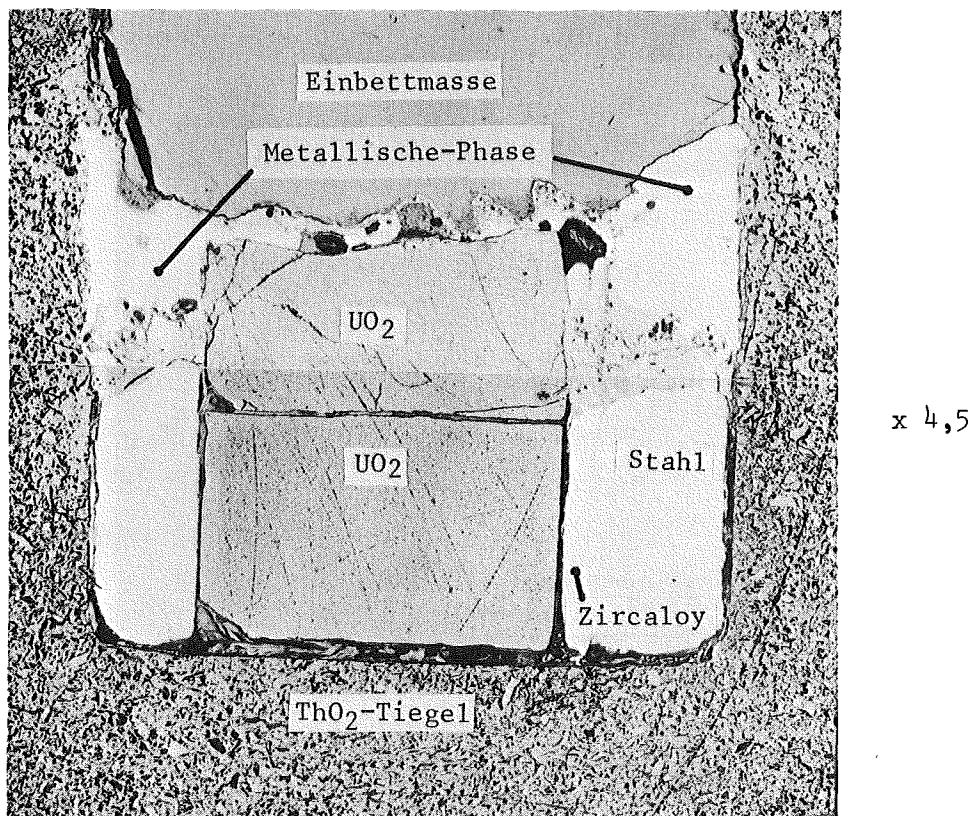


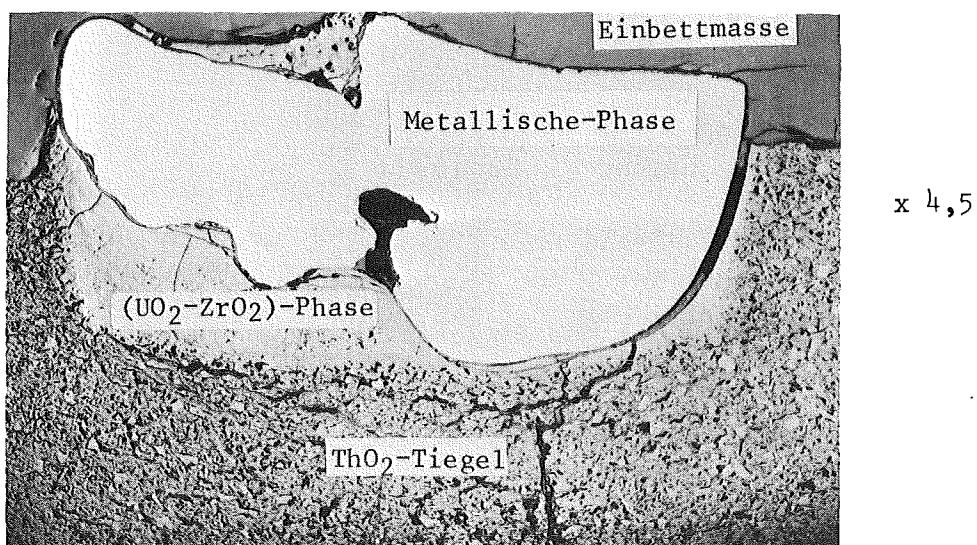
Abb. 4243.1: Schmelzanlage SASCHA für Schmelzversuche mit schwach aktiven Corium-Proben in oxidierender Atmosphäre



Abb. 4243.2: Beispiel für einen Tiegel mit stark aufgequollenem und verkrustetem Schmelzgut

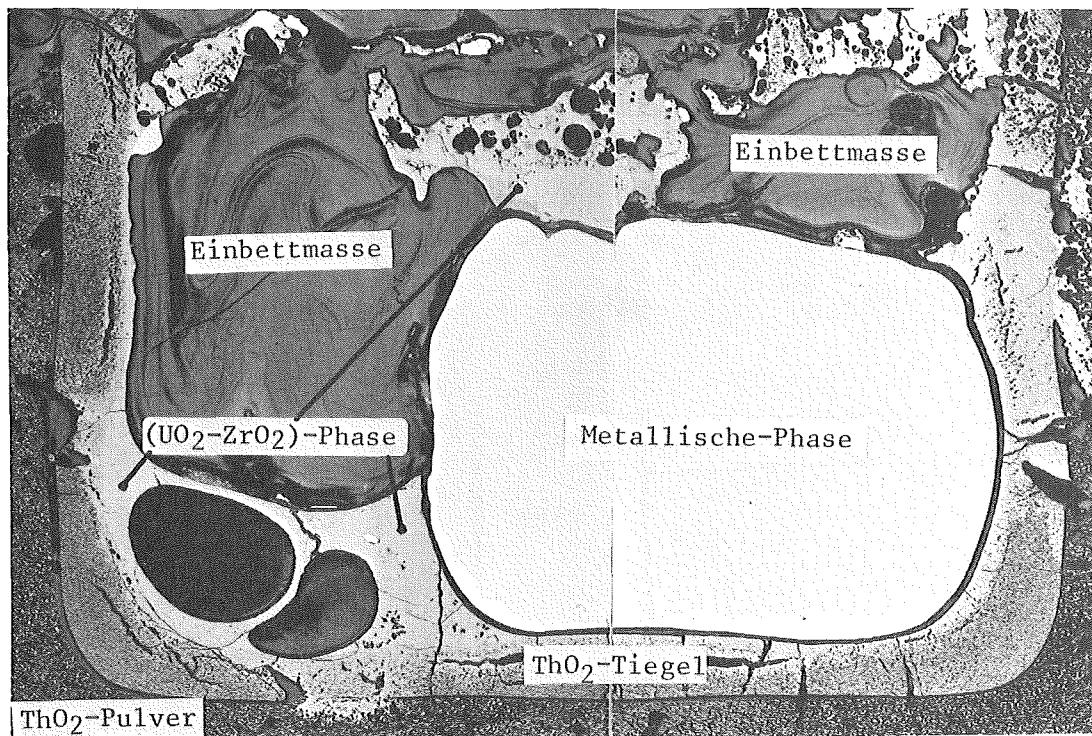


1700 °C / 2 min  
Tiegelmaterial: ThO<sub>2</sub> (75 % TD)

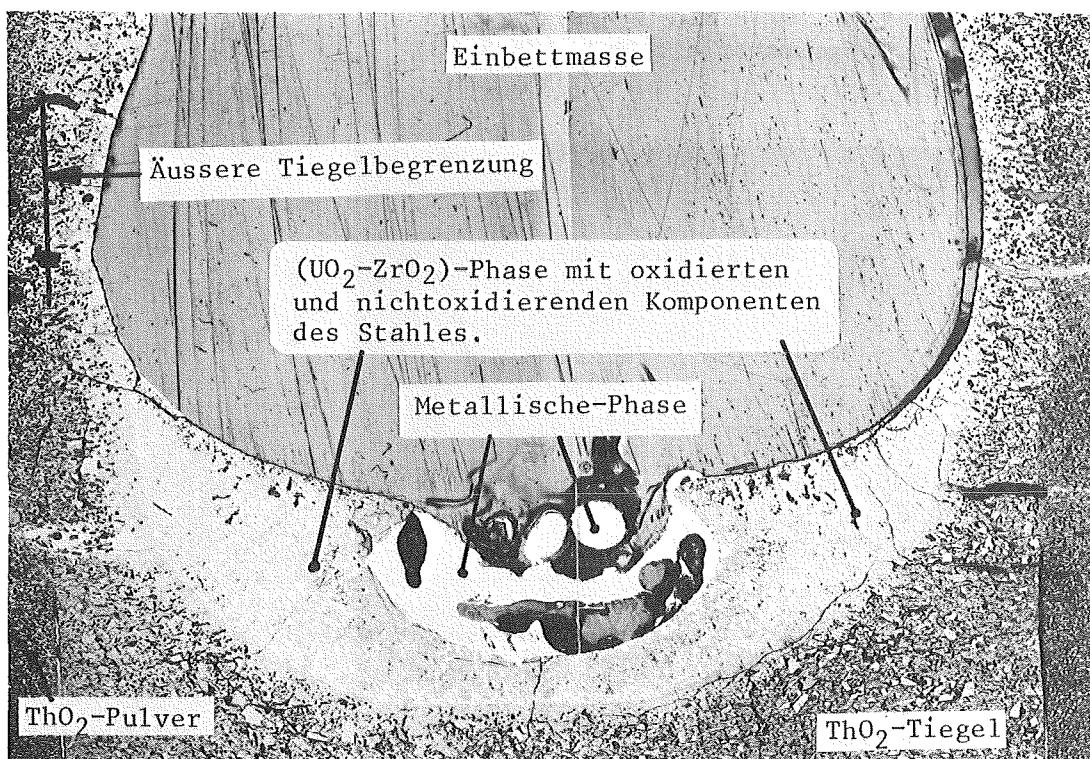


2200 °C / 3 min  
Tiegelmaterial: ThO<sub>2</sub> (75 % TD)

Abb. 4243.3: Reaktionsverhalten von Corium-E unter Luft bei kurzen Glühzeiten. Die entstehende metallische und oxidische Phase reagieren nur schwach mit dem ThO<sub>2</sub>-Tiegelmaterial.



2300 °C/3 min  
Tiegelmaterial: ThO<sub>2</sub> (90 % TD)



2350 °C / 13 min  
Tiegelmaterial: ThO<sub>2</sub> (75 % TD)

Abb. 4243.4: Reaktionsverhalten von Corium-E unter Luft gegenüber dem ThO<sub>2</sub>-Tiegel. Die entstehenden Oxidationsprodukte reagieren z.T. mit dem ThO<sub>2</sub> und lösen dieses auf. Der dichte Tiegel (oben) zeigt geringere mechanische Stabilität als der poröse Tiegel (unten).

4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen

(P.Hofmann, H.Holleck, C.Politis, A.Skokan, IMF)

Ziele unserer Untersuchungen sind die Kenntnis der Phasenzusammensetzung, der thermodynamischen Aktivitäten und der Schmelztemperaturen einer Kernschmelze in Gleichgewichts- und Ungleichgewichtszuständen in Abhängigkeit von Ort, Zeit, Temperatur, Abbrand und vom Abschmelzvorgang.

Die Arbeiten gliedern sich in drei Teile:

1. Konstitutionsuntersuchungen in definierten Systemen zur Kenntnis der Phasengleichgewichte zwischen LWR-Corekomponenten,
2. Reaktionsuntersuchungen zur Kenntnis der Wechselwirkung zwischen LWR-Corekomponenten,
3. Metallkundliche Untersuchungen an niedergeschmolzenen simulierten LWR-Brennstäben (vgl. auch PNS 4241).

1. Konstitutionsuntersuchungen

Im Berichtszeitraum wurden Gleichgewichtsuntersuchungen in den drei ternären Systemen U-Zr-O, U-Fe-O und Zr-Fe-O durchgeführt. Die Versuche wurden an homogenen Proben, entweder Pulverpresslingen oder Lichtbogen-Schmelzkörpern, vorgenommen. Zur Einstellung des thermodynamischen Gleichgewichts wurden die Proben - je nach Dampfdruck der beteiligten Komponenten - in Hochvakuum bei 1000, 1500 und z.T. 2000°C oder in zugeschweissten Quarzglasampullen bei 1000°C bis zu 100 h geäugt. Die Versuchszeiten reichten nicht in allen Fällen aus, um bei 1000°C Gleichgewicht zu erreichen. Nach dem Abkühlen bzw. Abschrecken wurden die Proben röntgenographisch und z.T. metallographisch untersucht. Der überwiegende Teil der Proben wurde chemisch analysiert; hierbei wurden geringfügige Konzentrationsveränderungen gegenüber den Einwaagen aufgezeigt. Die Phasenverhältnisse, die aufgrund dieser Versuchsergebnisse für die drei Systeme U-Zr-O, U-Fe-O und Zr-Fe-O bei den Temperaturen 1000, 1500 und 2000°C erwartet werden, sind in Abb. 4244-1 als isotherme Schnitte dargestellt. Diese vorläufigen Phasendiagramme, insbesondere der Systeme U-Fe-O und Zr-Fe-O sowie der 2000°C-Schnitt des Systems U-Zr-O, beruhen z.T. noch auf erheblichen Abschätzungen, die durch gestrichelte, d.h. nicht voll gesicherte Linien gekennzeichnet sind.

Die wichtigsten Folgerungen aus den Versuchsergebnissen für das System U-Zr-O (vgl. Abb. 4244-1a) sind:

- $\text{UO}_2$  und Zr befinden sich bei den hohen Versuchstemperaturen nicht miteinander im Gleichgewicht.
- Auf dem Schnitt  $\text{UO}_2$ -Zr bildet sich schon unterhalb  $1500^\circ\text{C}$  eine metallische U(Zr)-Schmelze.

Damit werden frühere Vermutungen (vgl. 1. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK 2050, S.228) über die Existenz eines zentralen 3-Phasenfeldes, in dem sich der Schnitt  $\text{UO}_2$ -Zr befindet, bestätigt.

Zirkonium ist zwischen 1000 und  $1800^\circ\text{C}$  nur dann neben  $\text{UO}_2$  stabil, wenn es in der  $\alpha$ -Form vorliegt und die für die jeweilige Temperatur gültige Sättigungskonzentration an Sauerstoff (für  $1000^\circ\text{C} \sim 30$  at.% O) enthält. Eine Grenzlinie des 3-Phasenfeldes  $\text{UO}_2$ ,  $\alpha$ -Zr(0), U(Zr), der quasibinäre Schnitt zwischen  $\text{UO}_2$  und sauerstoffgesättigtem  $\alpha$ -Zr(0), ist in Abb. 4244-2 dargestellt. Die Gleichgewichtslien sind teilweise gestrichelt, weil die Schmelztemperaturen zum Teil noch nicht exakt bestimmt sind und auch nicht für alle Proben bestimmt werden können. Die bisher im System U-Zr-O gemessenen Schmelztemperaturen (Solidustemperaturen) sind in Abb. 4244-3 angegeben.

Das System U-Fe-O (vgl. Abb. 4244-1b), dessen isotherme Schnitte noch weitgehend ungesichert sind, zeigt als charakteristisches Merkmal Gleichgewichte zwischen  $\text{UO}_2$  einerseits und Fe, Fe-Oxiden und U-Fe-Phasen andererseits. Schon bei  $1000^\circ\text{C}$  tritt Schmelze in einem weiten Bereich zwischen Fe und U auf der U-Seite auf. Das metallische Schmelzfeld weitet sich bei  $1500^\circ\text{C}$  erheblich aus, eine oxidische Schmelze tritt hinzu.

Im System Zr-Fe-O (vgl. Abb. 4244-1c) sind die Phasenverhältnisse komplizierter. Bei  $1000^\circ\text{C}$  beobachtet man eine ternäre Phase ( $\eta$ -Phase,  $\sim \text{Zr}_2\text{FeO}_x$ ), die zur Verbindungsgruppe der sogenannten Nichtmetall-stabilisierten Phasen zählt; ihr Sauerstoffgehalt liegt bei 5 bis 10 at.%. Diese  $\eta$ -Phase, eine Art Bindeglied zwischen metallischen Phasen und den keramischen Oxidphasen, steht neben anderen Zr-Fe-Verbindungen ( $\text{Fe}_2\text{Zr}$ ,  $\text{Fe}_3\text{Zr}$ ) und Fe sowie den Fe-Oxiden mit  $\text{ZrO}_2$  im Gleichgewicht. Bei  $1500^\circ\text{C}$  verringert sich die Phasenzahl durch hinzutretende bzw. sich vergrößernde Schmelzfelder, von denen eines das Stabilitätsgebiet der  $\eta$ -Phase überdeckt und bis zu O-Gehalten von  $\sim 20$  at.% vordringt. Bei  $2000^\circ\text{C}$  existiert ein durchgehender Bereich metallischer Schmelze, der sich auch in das ternäre Gebiet ausdehnt und auf der Zr-Seite nahe an die Zusammensetzung ( $\text{ZrO}$ ) heranreicht.

Von besonderer Bedeutung sind die Konzentrationsschnitte Oxid-Metall in allen drei Systemen. Sie spielen eine wichtige Rolle bei Entmischungerscheinungen in der Coreschmelze. Die Abb. 4244-4 und 4244-5 zeigen Schliffbilder von Schmelzproben aus den Systemen  $ZrO_2$ -Fe und  $UO_2$ -Fe. Nach Aussage dieser Schliffbilder sind die Schmelzen sowohl makroskopisch (oberes Bild: Eisen-einschluss in Oxid) als auch mikroskopisch (unteres Bild: tropfenförmige Oxid-einschlüsse in Eisen) heterogen. Aufgrund dieser Befunde und der bislang bekannten Daten kann man für beide Oxid-Metall-Systeme im Prinzip ein Zustandsdiagramm erwarten, wie es in Abb. 4244-6 exemplarisch für das System  $ZrO_2$ -Fe angedeutet wird. Die Aussage der Unmischbarkeit von Oxid- und Metallschmelzen lässt sich jedoch nicht ohne weiteres von diesen einfachen ternären Systemen auf das 4-Stoffsystem U-Zr-Fe-O oder auf das komplexe System "Corium" verallgemeinern.

## 2. Reaktionsuntersuchungen

Die Reaktionsuntersuchungen wurden mit den drei hauptsächlichen LWR-Corekomponenten  $UO_2$ , Zircaloy (Zry) und Stahl (1.4550) durchgeführt. Die Ausgangskonzentration der Komponenten entsprach der des Coriums-E mit einer Zusammensetzung von 35 Gew.%  $UO_2$ , 10 Gew.% Zry und 55 Gew.% Stahl<sup>+</sup>.

Die Komponenten des Coriums waren bei diesen Experimenten ringförmig angeordnet (Abb. 4244-7, Bild a). Um den  $UO_2$ -Kern herum befand sich ein Zry-Rohr, das von einem äusseren Stahlring umgeben war. Zum Vergleich wurden auch Versuche mit pulverförmigen Corium durchgeführt. Die Versuche mit Corium wurden in einem Induktionsofen unter Schutzgas, Luft und Wasserdampf durchgeführt. Ein Teil der Proben wurde im Lichtbogenofen unter 5 bar Argon geschmolzen.

Die Untersuchung der Proben erfolgte metallographisch, röntgenographisch, mit Hilfe der Mikrosonde sowie durch quantitative chemische Analysen.

Beim Aufheizen der Corium-Proben ist festzustellen, dass das Reaktionsverhalten der Komponenten stark vom Oxidationsgrad der Coriumkomponenten abhängt.

$UO_2$  oxidisch, Zircaloy und Stahl metallisch (inerte Versuchsatmosphäre)

(vgl. Abb. 4244-7):

- Bei ca. 1000°C finden erste chemische Wechselwirkungen zwischen dem Zry und dem Stahl statt (Bild b). Bei etwa 1350°C kommt es, infolge einer eutekti-

---

<sup>+</sup>) M. Peehs; IAEA-SM-190/10, Wien (1974)

schen Reaktion des Zircaloys mit dem Stahl, zur Bildung flüssiger Phasen (Bild c). Die Komponenten des Stahles reagieren mit dem Zry in unterschiedlicher Weise, wodurch es zu einer Entmischung des Stahles kommt. Als hauptsächliche Reaktionsprodukte entstehen eine (Cr,Fe)-Phase die kein Zr aber etwas Ni enthält sowie einer (Ni,Fe,Zr)-Phase. Bei  $1350^{\circ}\text{C}$  reagiert auch ein Teil des Zry bzw. der entstehenden Zry/Stahl-Schmelze mit dem  $\text{UO}_2$  (Bild d). Bei höheren Temperaturen erfolgt die Reaktion der metallischen Zry/Stahl-Schmelze mit dem  $\text{UO}_2$  erheblich schneller (Bild. e,f). Bei  $2350^{\circ}\text{C}$  war das  $\text{UO}_2$  bereits nach 2 Minuten vollständig aufgelöst (Bild. g,h). Beim erneuten Hochheizen der erstarrten Corium-Proben schmelzen diese bereits bei etwa  $2000^{\circ}\text{C}$ .

- Die Mikrosondenuntersuchungen ergeben im wesentlichen drei Phasen (Bild h): eine helle (Fe,Cr)-Phase mit geringen Ni-Gehalten, eine gelbliche uranhaltige (U,Fe,Ni,Zr)-Phase und eine keramische Zirkon/Sauerstoff-Phase, die in Form von gerichteten primären Ausscheidungen auftritt (Bild h).
- In der erstarrten Corium-Schmelze sind die verschiedenen Phasen statistisch über den Probenquerschnitt verteilt (Bild h), d.h. es sind keine Entmischungen festzustellen. Der überwiegende Teil der Phasen besitzt metallischen Charakter. Bei diesen Versuchen war in keinem Fall eine Schichtenbildung in der erstarrten Schmelze festzustellen.
- Chemische Analysen der Schmelzproben zeigen, dass mehr als 60% des Sauerstoffs, sowie in erheblichen Mengen Uran und Zirkonium abgedampft sind. Generell waren bei den Schmelzexperimenten Gewichtsverluste bis zu 30% zu beobachten. Die im Lichtbogenofen geschmolzenen Proben verhalten sich bezüglich der Abdampfraten ähnlich wie die im Induktionsofen geschmolzenen Corium-Proben.

$\text{UO}_2$ , Zircaloy oxidiert, Stahl metallisch (schwach oxidierende Versuchsatmosphäre):

- Beim Aufheizen der teiloxidierten Corium-Proben unter Schutzgas wird die erste flüssige Phase durch den Schmelzpunkt des Stahles bestimmt (ca.  $1450^{\circ}\text{C}$ ). Erst oberhalb  $2000^{\circ}\text{C}$  finden stärkere chemische Wechselwirkungen des  $\text{ZrO}_2$  mit dem Stahl und dem  $\text{UO}_2$  statt. Bei etwa  $2400^{\circ}\text{C}$  sind alle Phasen flüssig. Der überwiegende Teil der erstarrten Probe besitzt aufgrund der starken Sauerstoffverluste beim Glühen metallischen Charakter. Z.T. werden noch Reste einer keramischen Phase festgestellt.

$\text{UO}_2$ , Zircaloy oxidiert und Stahl oxidiert (stark oxidierende Versuchsatmosphäre):

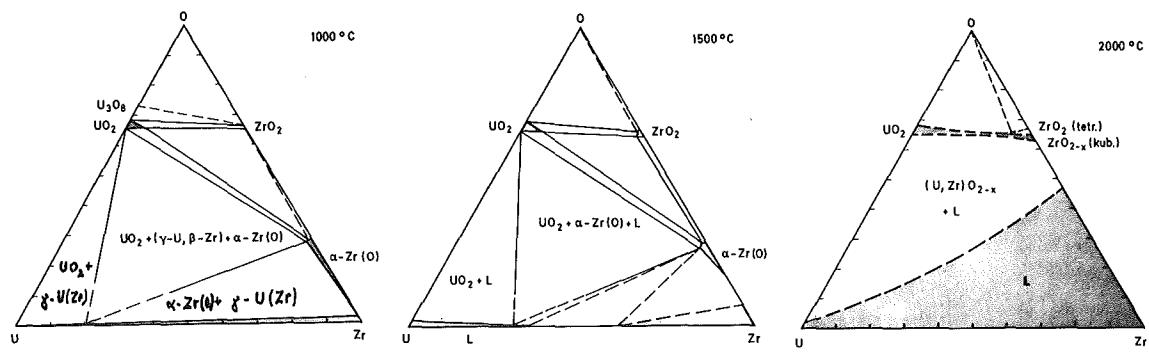
- Bei ca.  $1300^\circ\text{C}$  kann man erste flüssige Phasen beobachten, und bereits bei etwa  $1600^\circ\text{C}$  bildet sich eine homogene Schmelze, unabhängig davon, ob die Experimente unter Schutzgas oder Luft bzw. Wasserdampf durchgeführt werden.

### 3. Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben

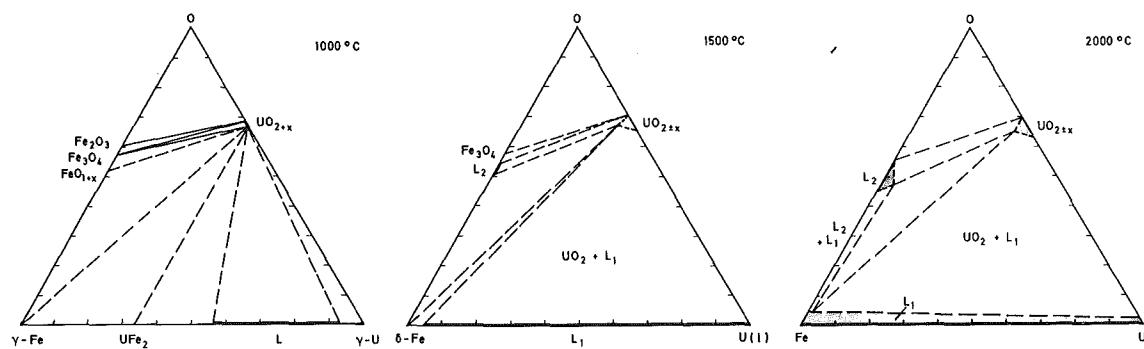
Von Stäben, die in inerter Atmosphäre angeschmolzen worden waren (vgl. auch Beitrag PNS 4241), wurden in verschiedener Stabhöhe Querschnitte entnommen und metallographisch präpariert sowie durch Abfeilen einzelner Schichten bzw. mikroskopisches Herauspräparieren kleiner Bereiche Proben für die röntgenographische Untersuchung gewonnen. Die Abb. 4244-8 und 4244-9 geben Schliffbilder von zwei Proben des gleichen Stabes wieder. Abb. 4244-8 zeigt einen Querschnitt aus dem unteren Stabteil. Die Übersichtsaufnahme (a) lässt die ursprüngliche ringförmige Anordnung, innen Wolframstab, umgeben von einem  $\text{UO}_2$ - und einem Zry-Ring, sowie Verdickungen durch herabgelaufene Schmelze erkennen. Die vergrößerte Teilansicht (b) gibt die Positionen der mikroskopischen Detailaufnahmen c bis f an. Am Kontakt Wolfram/ $\text{UO}_2$ -Ring (Position c) finden sich Schmelzanteile mit freiem Uran, die durch einen breiten Riss im  $\text{UO}_2$ -Ring (Position e) eingedrungen sind. Durch chemische Wechselwirkung dieser Schmelze mit dem Wolfram-Heizstab bildete sich die Phase  $\text{ZrW}_2$ . Position d liegt im ungeschmolzenen Teil des  $\text{UO}_2$ -Ringes; auch hier wird freies Uran nachgewiesen. Die erstarrte Schmelze (Positionen e und f) enthält die Phasen  $\text{UO}_2$ ,  $\alpha$ -Zr(O) und U(Zr), die aufgrund der Konstitutionsuntersuchungen als die Gleichgewichtsphasen des Schnittes  $\text{UO}_2$ -Zr anzusehen sind.

Abb. 4244-9 enthält Schliffbilder eines Querschnittes vom oberen Teil des gleichen Stabes. Hier werden in der erstarrten Schmelze zwar die gleichen Phasen beobachtet, jedoch in anderen Mengenverhältnissen. Auffallend ist der grösse Anteil an  $\text{UO}_2$  in der Schmelze bei stark verringerten Anteilen an U(Zr) und geringeren Mengen an  $\alpha$ -Zr(O). Die metallischen Phasen sind also im unteren Teil des Stabes angereichert. Es ist daher anzunehmen, dass zu verschiedenen Zeiten Schmelzen verschiedener Zusammensetzung und verschiedener Temperatur abfliessen, wie auch erwartet werden musste.

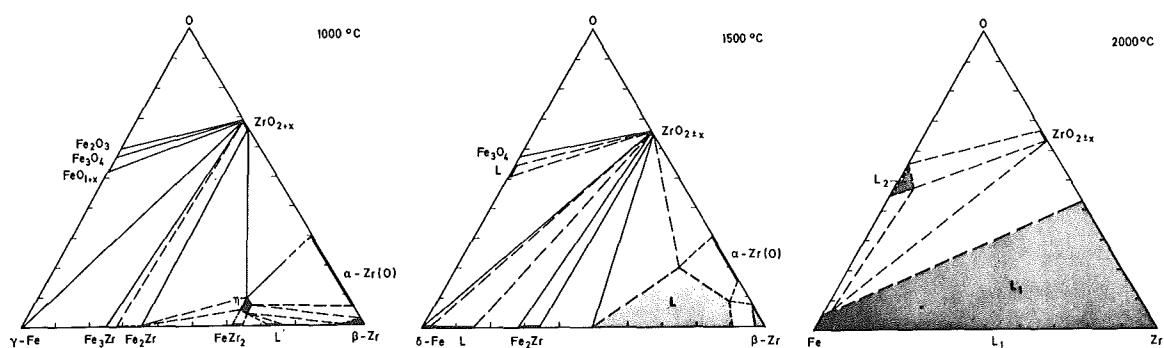
Die röntgenographische Bestätigung der metallographischen Phasenbefunde liefert Abb. 4244-10, die Guinier-Filmaufnahmen ( $\text{CuK}\alpha_1$ ) verschiedener herauspräparierter Zonen in Gegenüberstellung mit den Referenzphasen  $\text{UO}_2$ ,  $\alpha\text{-Zr}$ ,  $\alpha\text{-U}$ , W und  $\text{ZrW}_2$  zeigt.



a)



b)



c)

Abb. 4244-1 Isotherme Schnitte in ternären Systemen mit Corekomponenten  
a) Uran - Zirkon - Sauerstoff  
b) Eisen - Uran - Sauerstoff  
c) Eisen - Zirkon - Sauerstoff

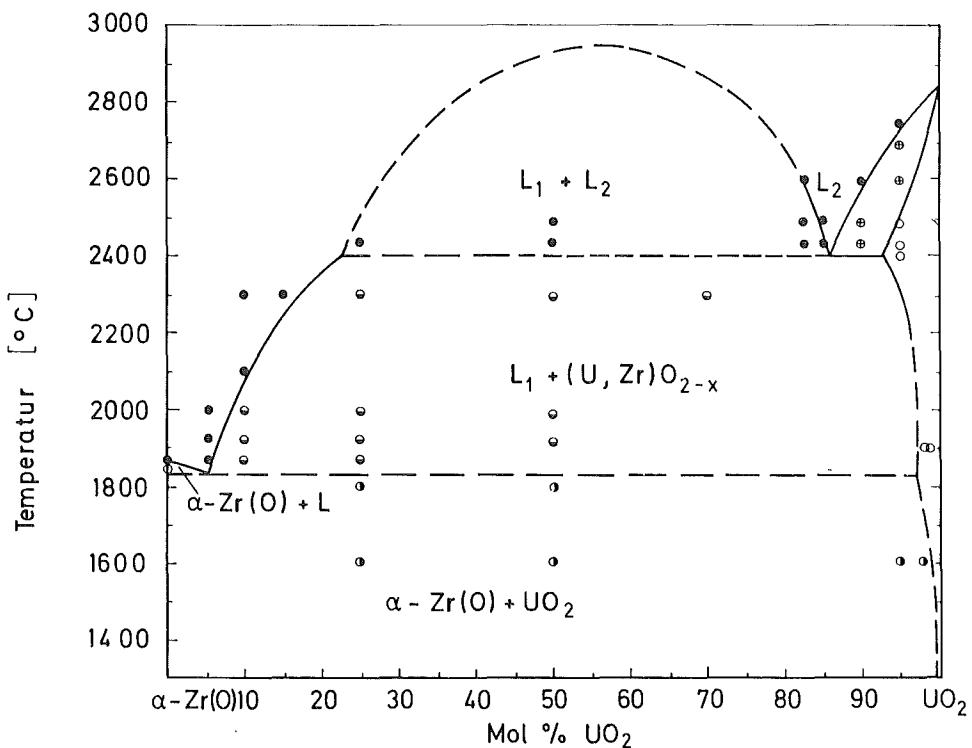


Abb. 4244-2 Konzentrationsschnitt  $\alpha\text{-Zr(O)}$  -  $\text{UO}_2$  im System  $\text{U} - \text{Zr} - \text{O}$

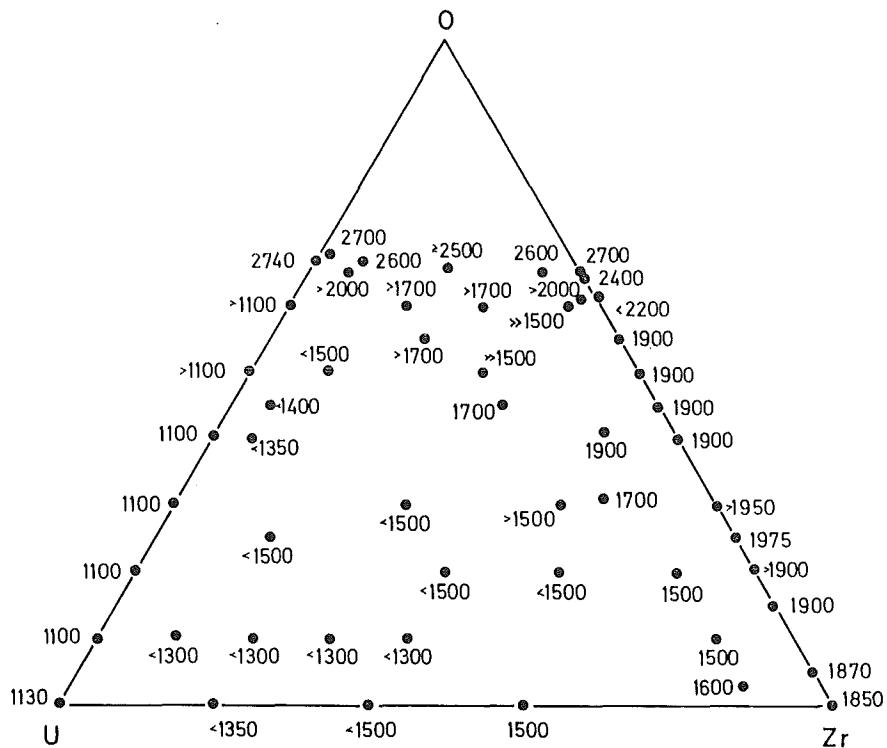


Abb. 4244-3 Schmelztemperaturen im System  $\text{U} - \text{Zr} - \text{O}$  in  $^{\circ}\text{C}$

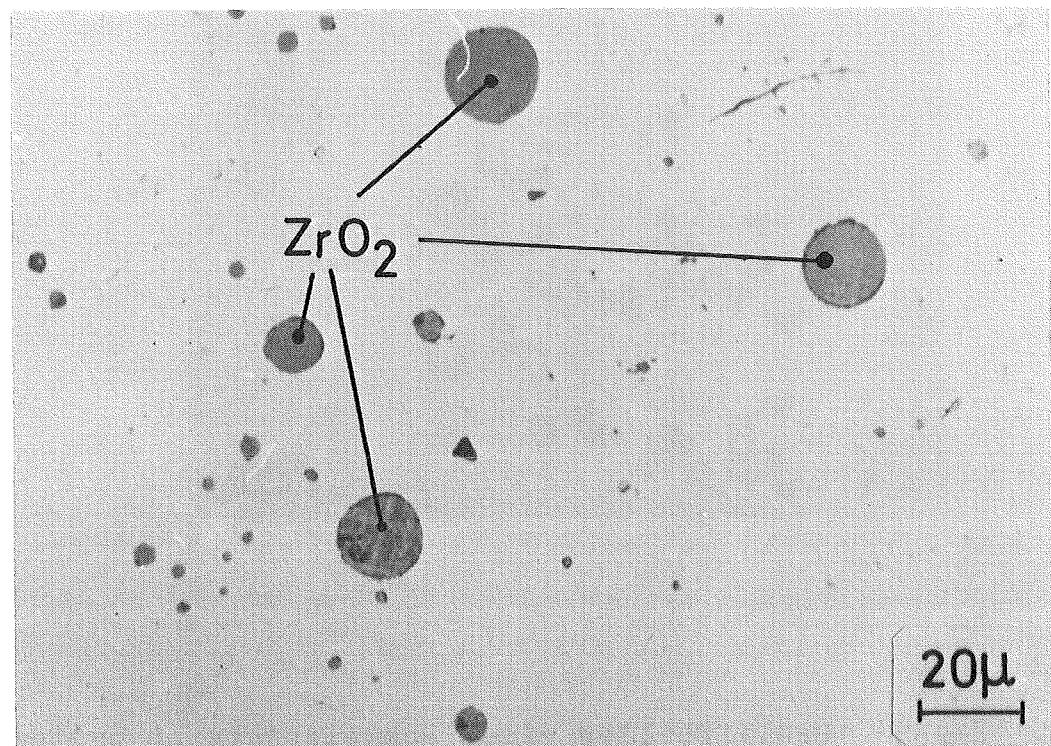
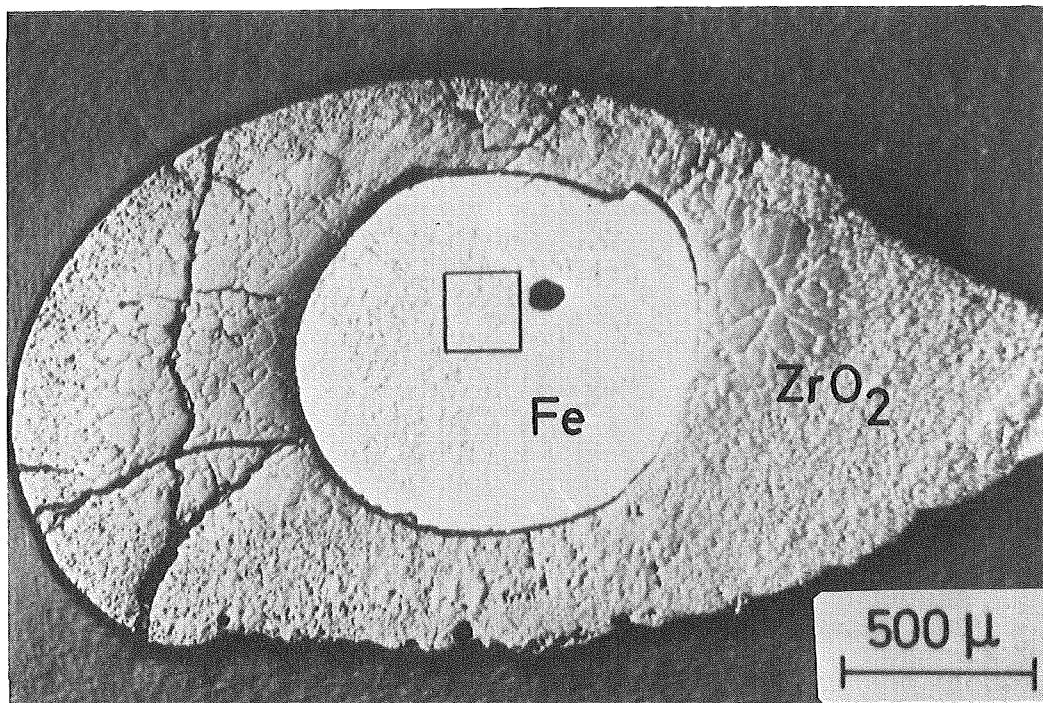


Abb. 4244-4 Schliffbilder einer Schmelzprobe im System  $ZrO_2$  - Fe (oben: Gesamtansicht; unten: Detail aus dem umrandeten Quadrat)

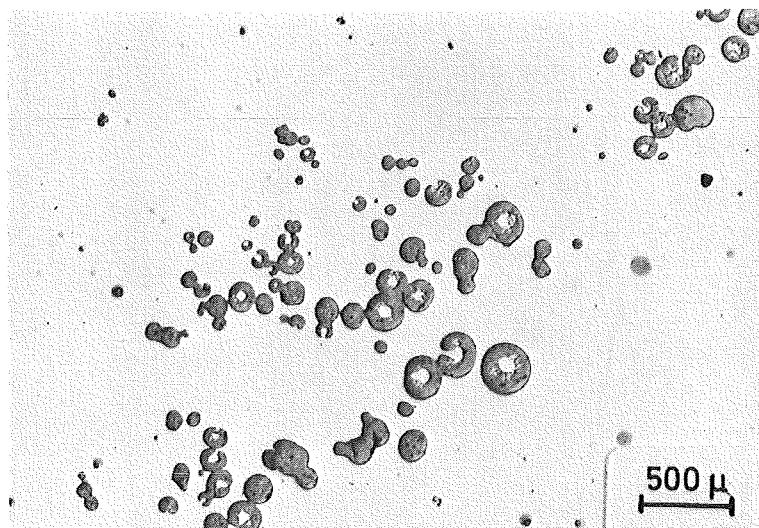
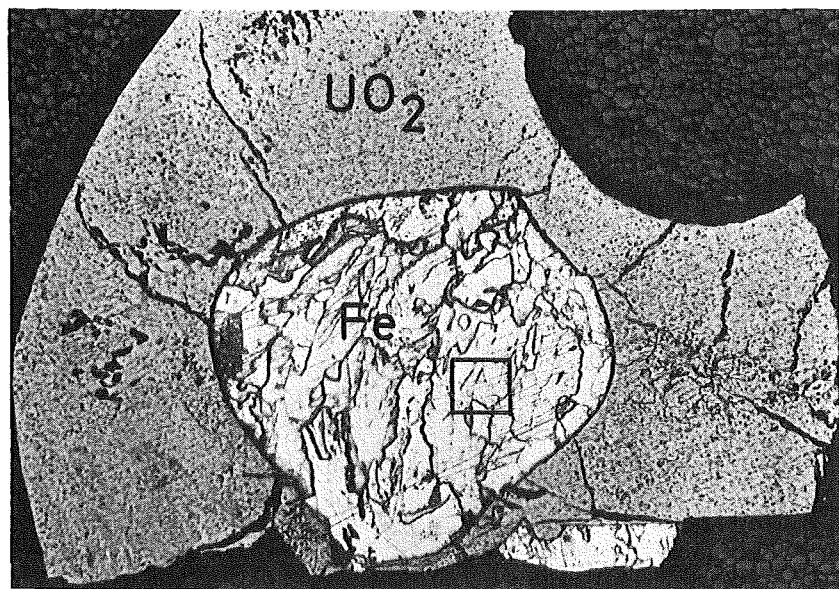


Abb. 4244-5 Schliffbilder einer Schmelzprobe im System UO<sub>2</sub> - Fe (oben: Gesamtansicht; unten: Detail aus dem umrandeten Quadrat)

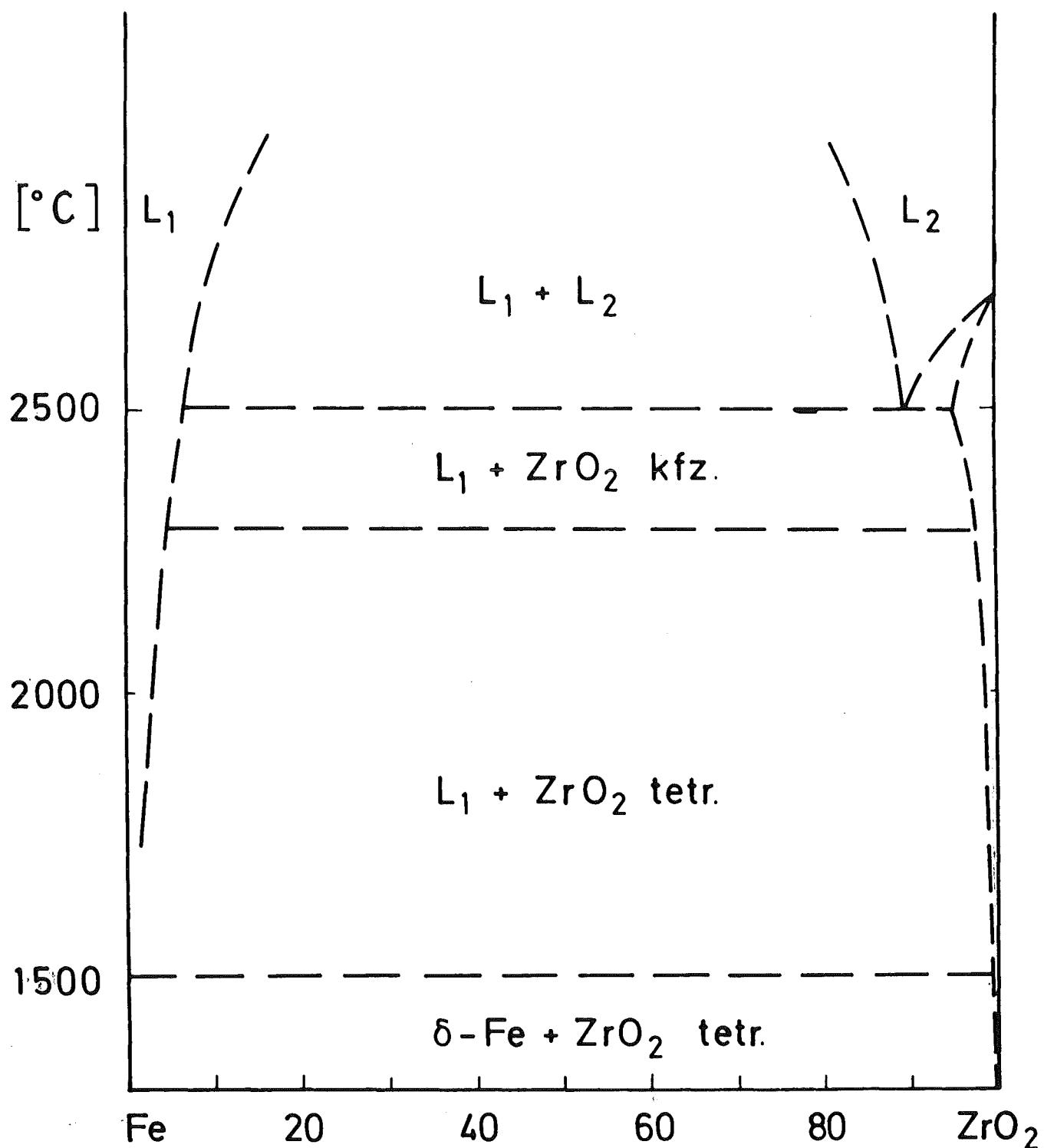
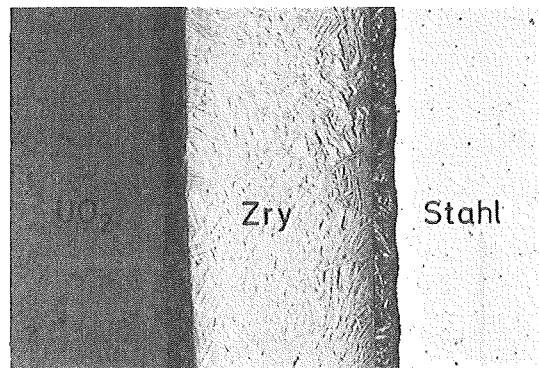
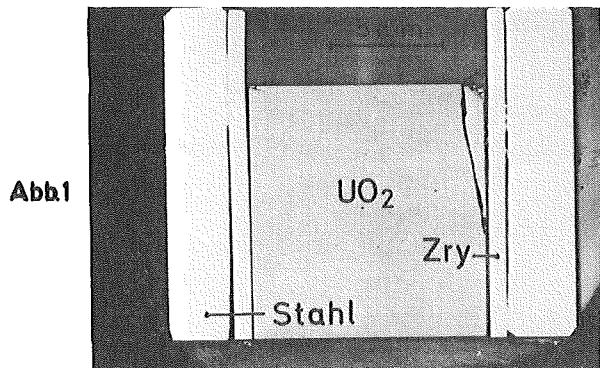
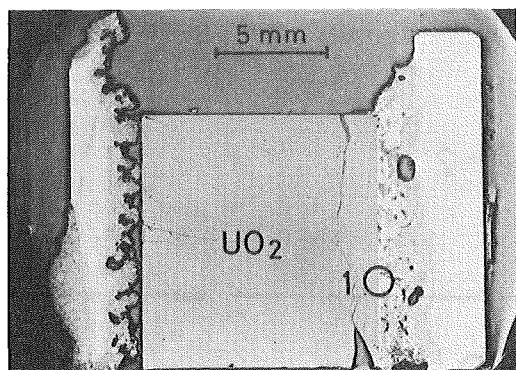


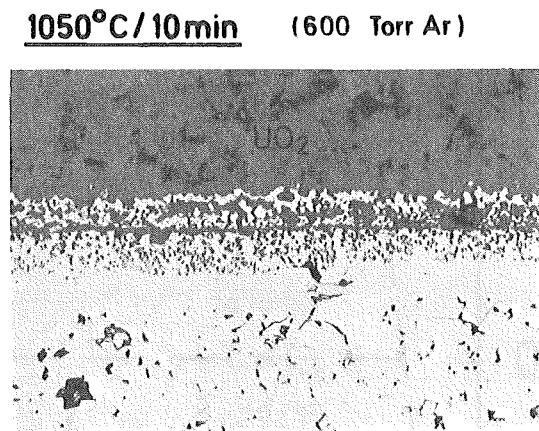
Abb. 4244-6 Konzentrationsschnitt Fe - ZrO<sub>2</sub> im System  
Fe - Zr - O



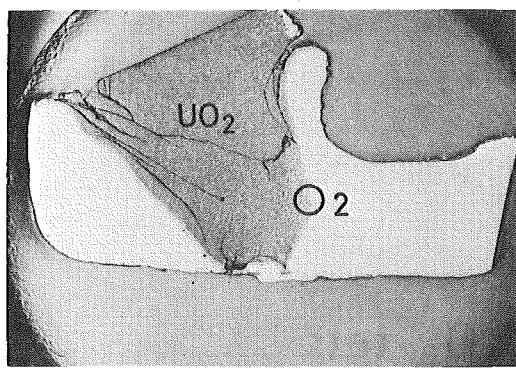
Corium - E



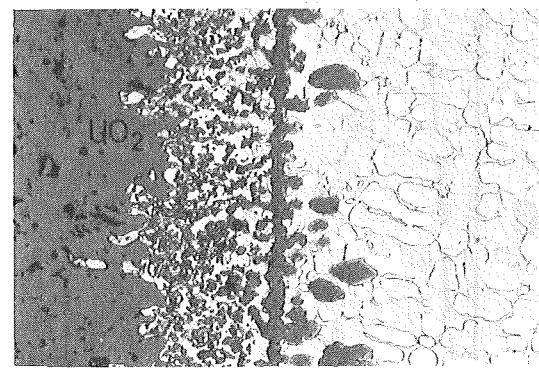
1330°C / 1min (600 Torr Ar)



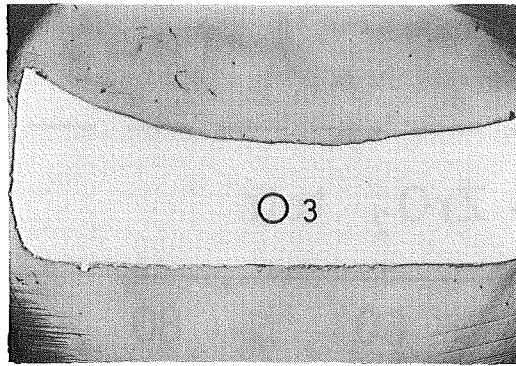
Position 1



2300°C / 4min (600 Torr Ar)



Position 2 (geätzt)



2350°C / 2min (600 Torr Ar)



Position 3 (geätzt)

Abb. 4244-7

Schliffbilder von "Corium E"-Proben nach Glühen bzw. Schmelzen in inerter Atmosphäre

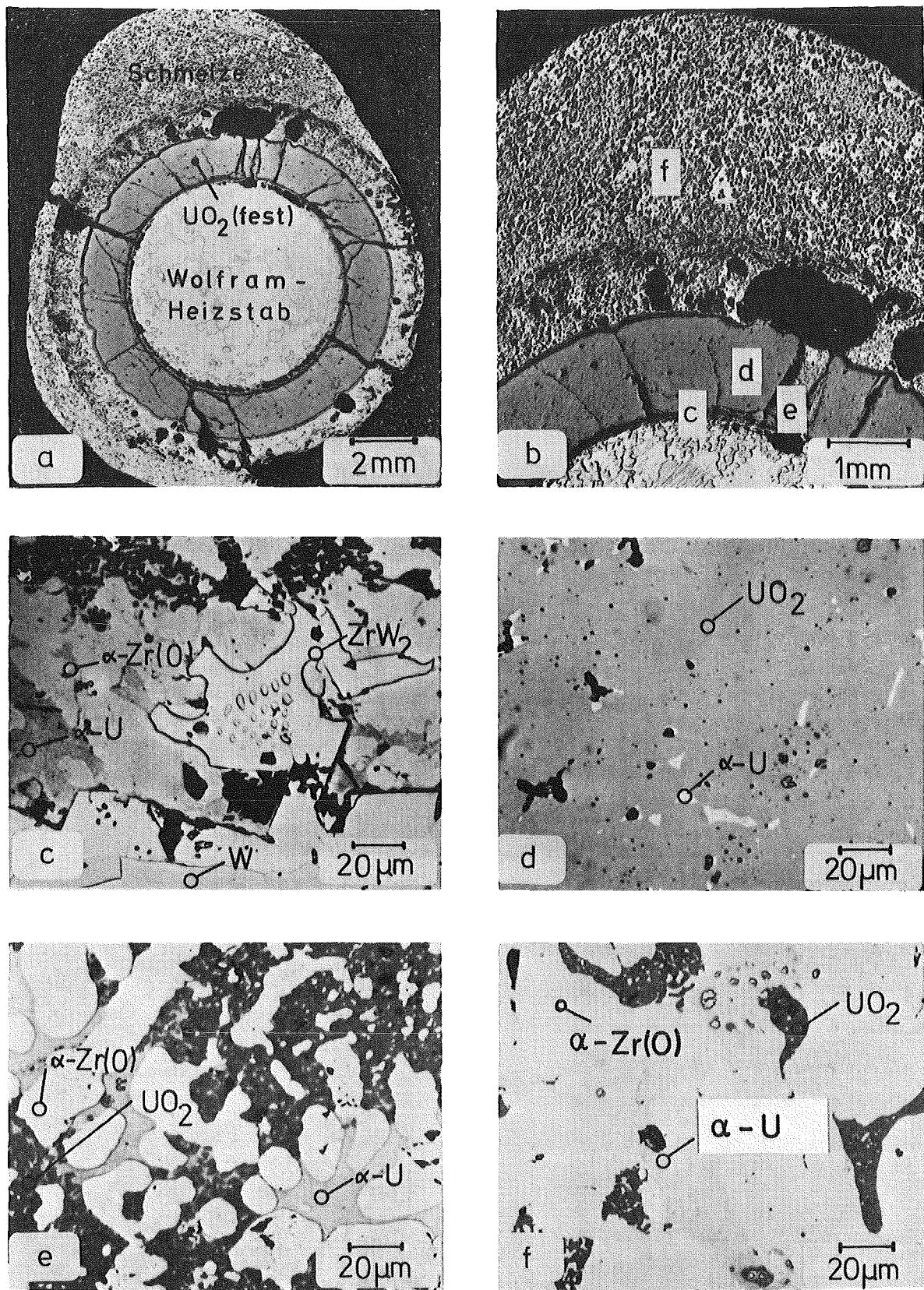


Abb. 4244-8      Schliffbilder eines angeschmolzenen simulierten LWR-Brennstabs (unterer Stabteil)  
a) Querschnitt als Übersichtsaufnahme  
b) Teilansicht mit Zuordnung der mikroskopischen Detailaufnahmen c, d, e und f

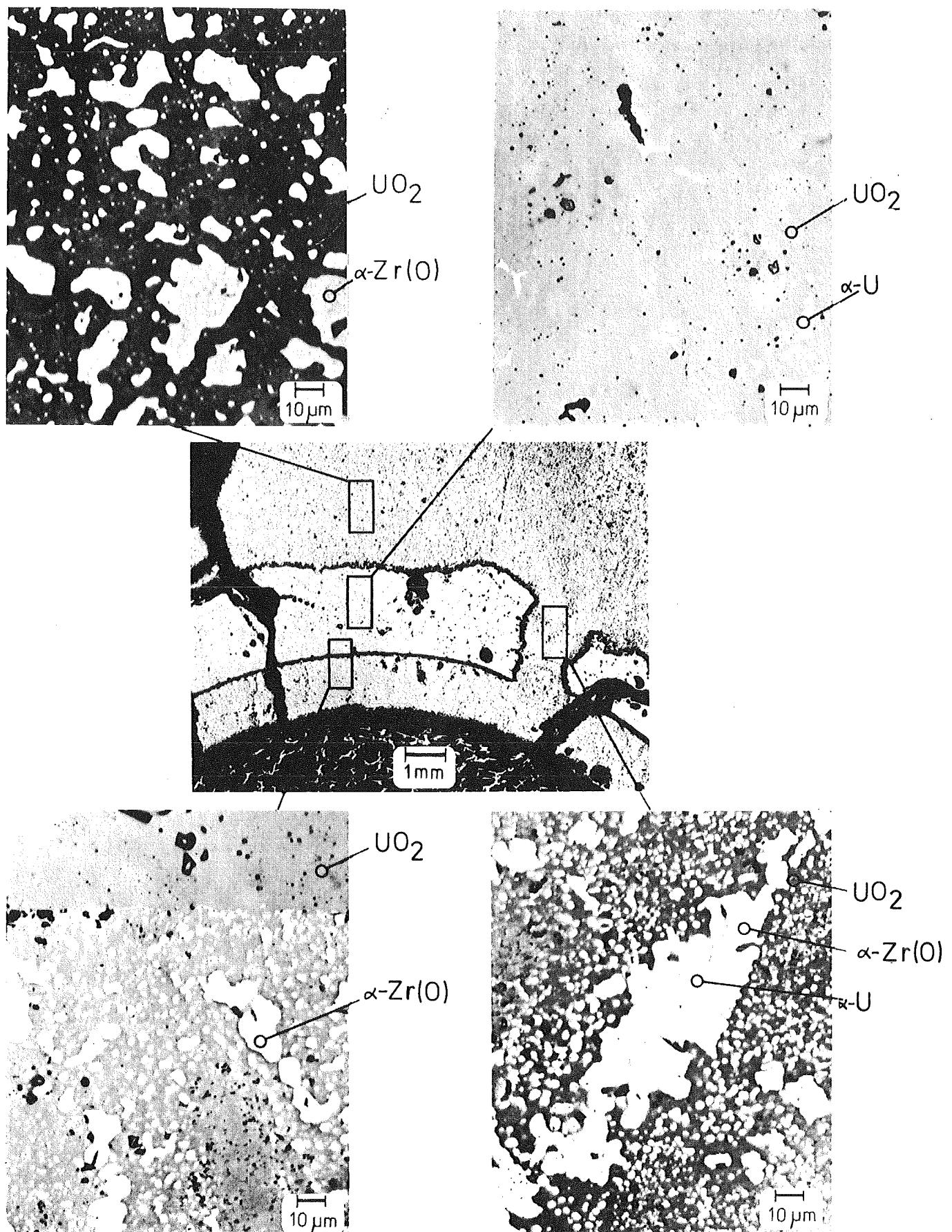


Abb. 4244-9

Schliffbilder eines angeschmolzenen simulierten LWR-Brennstabs (oberer Stabteil, gleicher Stab wie Abb. 4244-8)

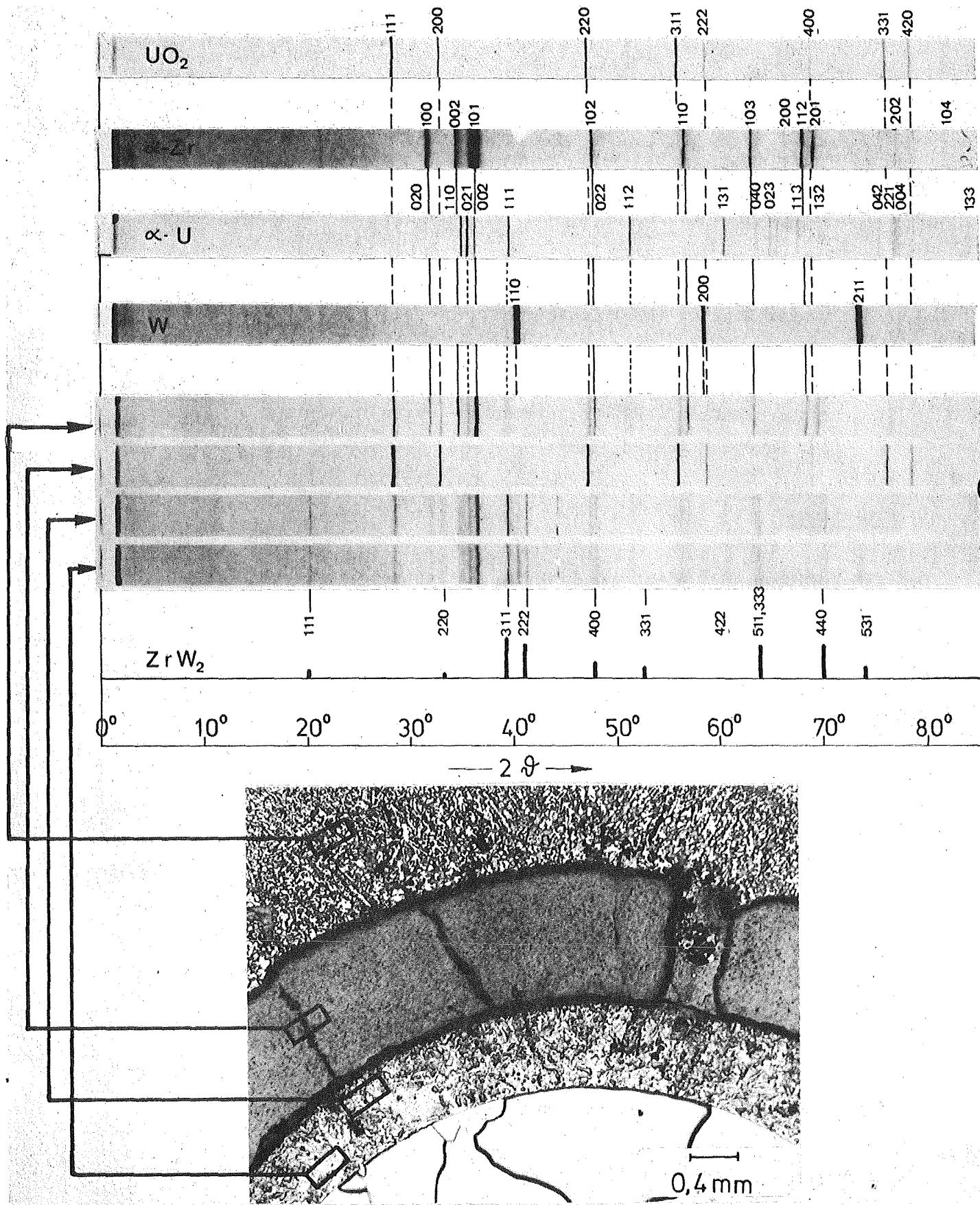


Abb. 4244-10 Röntgenographische Phasenanalyse (Guinier-  
aufnahmen,  $\text{CuK}\alpha_1$ ) an Proben eines angeschmol-  
zenen simulierten LWR-Brennstabs mit Zu-  
ordnung der Probeentnahme

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVERGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN  
BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

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

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

Beschreibung von Modellen der Nachunfall-Atmosphäre eines Leicht-  
wasser-Reaktor (LWR)-Containments - erste Ergebnisse.

(G. Haury, H. Jordan, IASR)

### I. Einleitung

Das PNS-Vorhaben 4311 dient der Erweiterung des physikalischen Verständnisses über das Verhalten von luftgetragenen radioaktiven Partikeln in LWR-Containments nach einem schweren hypothetischen Störfall. Ziel ist die Entwicklung eines Computer-Codes, der die Aktivität partikelförmiger Spalt- und Aktivierungsprodukte in einem beliebigen Zeitpunkt nach einem solchen Störfall berechnet.

Die Berechnung des Aerosolverhaltens im LWR-Containment stellt somit die notwendige Verknüpfung zwischen Aktivitätsfreisetzung aus der Schmelze und Ausbreitung in die Atmosphäre dar. Die wichtige Rolle, die luftgetragene Partikeln für die Gesamtstrahlungsbelaistung einer Person durch Inkorporation in der Umgebung einer Unfallstelle spielen, wird in /1/ nachdrücklich betont, wo gezeigt wird, daß von den 12 wichtigsten Nukliden nur  $J^{131}$  nicht partikelförmig vorliegt. Darüber hinaus zeigen vergleichende Dosisberechnungen, die die Ergebnisse von großen blow-down Simulationsexperimenten benutzen /1/ sehr klar den starken Einfluß, den Wasserdampf und Sprühsystem in der Containment-Atmosphäre als Dosisverminderungsfaktoren haben.

Die zu Beginn der Arbeiten durchgeführte Literaturstudie /2/ ergab, daß zwar eine Reihe von Modellen existiert, die den Partikelabbau in Wasserdampfatmosphäre mit und ohne Sprühsystem behandeln. All diesen Modellen ist jedoch gemeinsam, daß sie entweder Untersysteme behandeln, die für sich allein das Gesamtsystem nicht repräsentieren können, oder daß sie stark vereinfachende

Annahmen beinhalten, für die es nur ungenügende theoretische oder experimentelle Begründungen gibt.

Eine Beschreibung des Gesamtsystems in Teilmodellen kann nur so erfolgen, daß getroffene Annahmen jeweils experimentell bestätigt werden müssen, bevor sie in weiteren Schritten verbessert und verfeinert werden.

In Abschnitt 3 dieses Berichtes stellen wir vier Modelle mit zunehmender Komplexität vor. Das letzte sehen wir vorläufig als hinreichend genaue Näherung an. Wir begründen die in diesen Modellen enthaltenen vereinfachenden Annahmen mit Hilfe der Ergebnisse detaillierter Untersuchungen der beteiligten Einzelprozesse /3/.

Insbesondere stützen wir uns auf eine in /3/ vorgenommene Untersuchung des empfindlichen Einflusses der Wasserdampfkondensation an Partikeln auf den Auswasch-Mechanismus sowie auf eine im Detail in Abschnitt 4 dieses Berichtes diskutierte Berechnung zur Kondensation, wie sie im ersten Modell auftritt. Die vorgeschlagenen Modelle müssen so geartet sein, daß sie ohne zu großen Aufwand experimentell verifiziert werden können. Sie wurden daher unter verschiedenen Gesichtspunkten ausgewählt:

1. Jedes der vier Modelle eignet sich für die experimentelle Überprüfung, wobei die experimentell einstellbaren Parameter auch Eingabegrößen für das Modell sind.
2. Die Modelle werden in der Reihenfolge zunehmender Komplexität entwickelt. Ergebnisse und experimentelle Bestätigung jedes Modells sind notwendige Voraussetzung für die Entwicklung des nachfolgenden Modells.
3. Jedes Modell kann numerisch gelöst werden.
4. Das letzte Modell spiegelt die Natur der tatsächlichen Atmosphäre eines LWR-Containments nach einem Störfall genügend gut wieder.

## II. Generelle Anforderungen an ein Modell der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments

Das System, welches in den Containments eines Leichtwasserreaktors nach einem theoretischen Coreschmelzunfall erwartet wird, besteht sehr wahrscheinlich aus einem gemischten Kondensationsaerosol, aus Gasen, Wasserdampf, Tropfen aus kondensiertem Wasserdampf und Sprühtröpfen mit chemischen Zusätzen. Die genaue Natur des Systems hängt sicherlich ab vom Verlauf des Unfalls, insbesondere vom zeitlichen Verlauf der Aktivitäts-

freisetzung und der Dampferzeugung, vom Druckverlauf und von räumlichen Inhomogenitäten. Eine allgemeine mathematische Beschreibung eines solchen Systems ist schon wegen der Vielfalt der möglichen Unfallabläufe nicht durchführbar. Beschränkt man sich auf einen spezifischen Ablauf, so verliert die Beschreibung an Generalität. Darüber hinaus ist selbst in diesem Fall zu erwarten, daß die zur Systembeschreibung nötigen Gleichungen nicht lösbar sind. Deshalb ist es a priori notwendig, das System durch ein physikalisches Modell darzustellen. Dieses Modell muß die Anforderungen erfüllen, daß es lösbar ist und daß es genügend genau die Bedingungen der Containmentatmosphäre wiedergibt.

Ähnliche Bedingungen gelten für Atmosphären ohne Wasserdampfanteil für die umfassende Erfahrung in Zusammenhang mit der Sicherheitsforschung für schnelle Brutreaktoren zur Verfügung stehen. Hierbei ist die grundlegendste Modellannahme, daß im betrachteten System eine homogene Durchmischung stattfinden muß. Diese Annahme scheint durch die gute Übereinstimmung zwischen Modellrechnungen und Experimenten /4/ zumindest für trockene Atmosphären gerechtfertigt zu sein. Containments, von denen man weiß, daß in ihnen aufgrund von Zwangsumlauf keine homogene Durchmischung stattfindet, können trotzdem mit homogenen Modellen behandelt werden, indem man beispielsweise homogene Zellen einzeln und nur als schwach untereinander abhängig betrachtet. Bei der Atmosphäre des Leichtwasserreaktors kann sich dieses Vorgehen in jedem Fall als notwendig erweisen, da zu erwarten ist, daß der in diese Atmosphäre eintretende Wasserdampf im Verlauf der Vermischungsvorgänge einer Phasenänderung unterliegt und der wichtigste Mechanismus der Kondensation im Gegensatz zu den anderen elementaren Mechanismen eine im Vergleich zur Durchmischungszeit der Containmentatmosphäre kurze Relaxationszeit besitzt. Die Annahme der homogenen Durchmischung stellt auf jeden Fall eine starke Vereinfachung für die Mathematik dar, der sich zum gegenwärtigen Zeitpunkt für "trockene" Modelle als notwendig erweist und deswegen für das komplexere "nasse" Modell noch weitaus notwendiger ist.

Abgesehen von der recht starken Vereinfachung, die die Einschränkung auf Homogenität mit sich bringt, wird im derzeit entwickelten Modell der Nachunfall-Atmosphäre (NAUA) für LWRs eine zweite Gruppe von Vereinfachungen

vorgenommen, die im folgenden beschrieben werden. (Wir greifen auf eine zweite Gruppe von Vereinfachungen zurück, da sie sich für die experimentelle Überprüfung im kleinen Maßstab eignen, während räumliche Inhomogenitäten Experimente im großen Maßstab erfordern würden, die für das NAUA-Programm nicht vorgesehen sind). Wir möchten insbesondere ins Feld führen, daß die nachstehend zu behandelnden Vereinfachungen zumindest in einer ersten Phase notwendig sind, um die Basis für eine begründete Hoffnung auf Erfolg bei der numerischen Behandlung des Modells zu schaffen. Selbst mit diesen Vereinfachungen, deren Anwendbarkeit im Experiment noch geprüft werden muß, wird der Gültigkeitsbereich des Modells weitaus größer sein als der bereits bestehender Modelle /2/.

Das Ziel des Modells besteht grundsätzlich in der Vorhersage der zeitlichen Abhängigkeit der in der Luft befindlichen radioaktiven Massenkonzentration  $M(t)$ . Diese ist ableitbar von der Verteilung der Teilchengröße  $n(r_e, t)dr_e$  mit

$$M(t) = \int_0^{\infty} \frac{4\pi}{3} \rho r_e^3 n(r_e, t) dr_e \quad (1)$$

$n(r_e, t)dr_e$  ist die Anzahl der Teilchen zum Zeitpunkt  $t$  mit dem massenäquivalenten Radius  $r_e$  in  $dr_e$ .  $\rho$  ist die Dichte der primären radioaktiven Kondensationspartikeln, die als inneres Gemisch angenommen werden und aus der Schmelze freigesetzt werden. Wenn kein Wasserdampf und keine Sprüh-tropfen vorhanden sind, kann die zeitliche Entwicklung von  $n(r_e, t)$  wie folgt beschrieben werden /4/:

$$\frac{\partial n}{\partial t}(r_e, t) = S(r_e, t) - \alpha(r_e) n(r_e, t) + \int_0^{r_e/\sqrt[3]{2}} K(r_e'', r_e') n(r_e'', t) \cdot \int_{r_e''}^{\infty} K(r_e, r_e') n(r_e', t) dr_e' \quad (2)$$

$S(r_e, t)$  ist eine willkürliche Partikelquelle.

$\alpha(r_e)$	ist der Koeffizient für die elementaren Ablagerungsprozesse
$K(r_e, r_e')$	ist die Kollisionshäufigkeit zwischen einer Partikel mit Radius $r_e$ und einer anderen mit Radius $r_e'$
$r_e'' = \sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3}$	

Die Kondensation von Wasserdampf kann auf mindestens zwei Arten in. Gl. (2) aufgenommen werden. Man kann den Kern K so erweitern, daß er die Molekulardiffusion der Wassermoleküle als zweiter Partikelspezies einschließt. Die zweite Möglichkeit ist die Addition des Glieds

$$\frac{\partial}{\partial r_e} (n(r_e, t) \frac{dr_e}{dt})$$

wobei  $dr_e/dt$  die Geschwindigkeit des Kondensationswachstums des Teilchenradius aus der rechten Seite der Gl. (2) ist. Der wichtige Punkt besteht hier darin, daß man bei beiden Möglichkeiten eine neue kontinuierliche Variable (die Dichte) als Argument zu der Funktion hinzunehmen muß: im ersten Fall, weil  $n(r, t)$  nun zwei unabhängige Partikel-Spezies (Teilchen und Wassermoleküle) und verschiedene Kombinationen beider mit jeweils unterschiedlicher Dichte enthält; im zweiten Fall gilt dasselbe, weil die Massendichte eine Funktion des Wassergehaltes der Partikeln ist. Unter dem Gesichtspunkt der numerischen Behandlung des Modells könnte man unter Außerachtlassung der zeitlichen Abhängigkeit sagen, daß die Dimension der unendlichen Matrix  $n(r, t)$  von eins auf zwei erhöht wurde.

Während die Temperaturgeschichte eines Kondensationströpfchens im wesentlichen als die Temperaturgeschichte der Atmosphäre des Containments angesehen werden kann, gilt das nicht für die viel größeren, kalten Sprühtröpfen, für die Thermophorese und Diffusiophorese von Partikeln bedeutend sind. Deshalb müssen die Sprühtröpfen zusätzlich gekennzeichnet werden, was zu einer dritten unendlichen Dimension für  $n(r, t)$  führt.

Innerhalb der Genauigkeit der ursprünglichen Annahme der Homogenität und der mathematischen Beschreibung der Elemtarprozesse könnte eine vollständige Gleichung für die zeitliche Entwicklung dieses dreidimensionalen  $n(r,t)$  in Analogie zu Gl. (2) geschrieben werden. Aufgrund derselben Analogie ist es jedoch ersichtlich, daß die numerische Lösung undurchführbar ist. Wir haben die Erfahrung gemacht, daß unter einigen Bedingungen von praktischem Interesse die numerische Behandlung von Gl. (2) zu Instabilitäten in Zusammenhang mit den erforderlichen, sehr langen Rechenzeiten führt. (Es sind Arbeiten zur Lösung dieser Instabilitäten geplant). Man muß daher davon ausgehen, daß ähnliche Schwierigkeiten bei der Behandlung eines dreidimensionalen  $n$  auftreten. Da aufgrund einer groben Schätzung die Rechenzeit proportional zu  $2^{(\dim(n))}$  ist, würden sich diese Schwierigkeiten entsprechend vergrößern. Außerdem kann damit gerechnet werden, daß die Rechenzeiten prohibitiv lang wären. Aus diesen Gründen werden im NAUA-Modell die oben erwähnten Vereinfachungen der zweiten Gruppe vorgenommen. Ihr Ziel besteht im wesentlichen darin, die Dimension von  $n(r,t)$  nach Möglichkeit zu reduzieren oder, wenn das nicht möglich ist, das Kontinuum einer Dimension von  $n(r,t)$  auf den kleinstmöglichen diskreten Satz zu reduzieren. Da dies für das einfachste System am leichtesten durchgeführt werden kann, haben wir uns entschlossen, das Modell in vier Stufen mit zunehmender Komplexität zu entwickeln, wobei jede Stufe ein allgemeineres System beschreibt. Jede Stufe muß für sich experimentell auf die Anwendbarkeit der in ihr gemachten Annahmen geprüft werden. Die Modellergebnisse von jeder Stufe sollen in die folgende Stufe eingearbeitet werden. Die vier Stufen sind:

Modell I: Am Anfang vorhanden: Partikeln, Wasserdampf.  
Weitere Partikeln oder Dampf werden nicht freigesetzt.  
Kein Sprühsystem.

Modell II: Modell I mit kontinuierlichem Sprayeinsatz.

Modell III: Am Anfang vorhanden: Partikeln, Wasserdampf.  
Weitere Partikeln werden nicht freigesetzt. Kontinuierliche Freisetzung von Wasserdampf, Kein Sprühsystem.

Modell IV: Modell III mit kontinuierlichem Sprayeinsatz.

### III. Beschreibung und Begründung der vier NAUA-Modelle

#### Modell I:

##### Anfangsbedingungen

- a) Ein definierter Grad der Anfangsübersättigung von Wasserdampf.
- b) Keine Quelle für Wasserdampf.
- c) Sämtliche Partikeln sind am Anfang vorhanden.
- d) Kein Sprühsystem.
- e) Schnelle Durchmischung.

##### Dynamik

Wir nehmen die instantane Zugabe von Partikeln mit logarithmisch normaler Verteilung in einer Atmosphäre mit vorher festgelegter Wasserdampfübersättigung an. Berechnungen zur Aufstellung dieses Modells, die in Abschnitt 4 behandelt werden, zeigen, daß diejenigen Teilchen, deren Radien einen kritischen Radius übersteigen, fast spontan durch Kondensation auf eine stabile Endgröße anwachsen, die für sämtliche beteiligten Teilchen nahezu dieselbe ist und vom Grad der Übersättigung abhängt. Die Zeit, in der sich das System stabilisiert, ist so klein, daß sich die übrigen Prozesse, die eine Rolle spielen, praktisch noch nicht auswirken können. Die Kondensation kann daher tatsächlich als spontan angesehen werden.

Modell I verwendet daher als Anfangsbedingung eine Größenverteilung  $n(r,t)$ , die identisch mit der Anfangsverteilung der Partikel bis zu einem kritischen, durch den Grad der Übersättigung bestimmten Radius ist. Über diesen Radius hinaus ist sie gleich Null, mit Ausnahme einer monodispersen Fraktion, die bei der Endgröße der Kondensationströpfchen auftritt. Nach Festlegung dieser Verteilung wird angenommen, daß die Atmosphäre nicht mehr übersättigt ist und daher keine weitere Kondensation auftritt.

Die Dichte der Kondensationströpfchen wird gleich der Dichte des Wassers gesetzt. Das stimmt innerhalb einer Genauigkeit von 1 %, wenn das Verhältnis des Radius des Wassertröpfchens  $r_d$  zu dem des festen Kerns  $r_s$  mindestens

$$\frac{r_d}{r_s} \geq \sqrt[3]{\frac{1 - \rho_w/\rho_s}{0.01 \rho_w/\rho_s}}$$

$\rho_w$  = Dichte des Wassers,  $\rho_s$  = Dichte des festen Kerns. Für  $\rho_s = 10 \text{ g/cm}^3$  gilt deshalb

$$r_d \geq 10 r_s$$

Unsere bisherigen Berechnungen (Abschnitt 4) deuten darauf hin, daß derartige Radiusverhältnisse durchaus auftreten können.

Unter diesen vereinfachenden Annahmen wird die Dimension von  $n$  auf zwei gehalten, wobei die Dichtedimension ein diskreter Satz der beiden Elemente, nämlich Dichte der Schmelze und Dichte des Wassers ist.

Da die monodispersen Tröpfchen so groß sind, daß sie schnell sedimentieren, kann man Koagulation der Tröpfchen untereinander außer Acht lassen. Die Tröpfchen-Partikel Koagulation erfolgt überwiegend durch Diffusion, da die Wirkungsgrade der Impaktion und der Interzeption für Teilchen  $< 2 \mu\text{m}$  vernachlässigbar klein sind. Für Teilchen  $> 2 \mu\text{m}$  können diese beiden letztgenannten Mechanismen in den Kern des Integrals von Gl. (2) eingearbeitet werden.

Da die Kondensation sehr schnell aufhört, spielen Thermophorese und Diffusionsphorese bei den Kondensationströpfchen eine vernachlässigbar kleine Rolle. Sie können an den Wänden eine Rolle spielen, an denen der Wärmetransport zu einem Temperaturgradienten und einem Dampfgradienten führt. Diese Effekte können leicht in das Glied  $\alpha (r_e)$  von Gl. (2) eingearbeitet werden. Der Wärmetransport durch die Wände zusammen mit der homogenen Durchmischung bedingen auch eine kontinuierliche Quelle der Übersättigung, von der jedoch erwartet wird, daß sie einen geringfügigen Effekt auf das Teilchenwachstum hat und daher zunächst vernachlässigt wird.

Neben der Abscheidung durch Thermophorese und Diffusiophorese tritt eine Verminderung der luftgetragenen Massenkonzentration durch Diffusion der Partikeln an die Wände und Sedimentation der Partikeln und Tröpfchen am Boden auf.

Modell II:

Anfangsbedingungen

- a) Ein definierter Grad der Anfangsübersättigung von Wasserdampf.
- b) Keine Quelle für Wasserdampf.
- c) Sämtliche Teilchen sind zu Beginn vorhanden.
- d) Eine kontinuierliche Quelle kalter Sprühtröpfen mit gegebener Größenverteilung.
- e) Schnelle homogene Durchmischung.

Dynamik

Die Annahme ist vernünftig, daß eine gewisse Dampfatmosphäre vor Beginn des Sprühvorgangs vorhanden ist. Als Anfangsbedingungen dieser Atmosphäre werden die Bedingungen für Modell I angenommen, vorausgesetzt, daß ihre Berechnung experimentell bestätigt ist.

Dieser Atmosphäre werden große ( $> 100\mu\text{m}$ ) kalte Sprühtröpfen zugeführt, um den Druck im Containment durch Abkühlung zu verringern. Diese Abkühlung impliziert eine ständige Erneuerung der Übersättigung und daraus folgende Kondensation, nun jedoch hauptsächlich an den Sprühtröpfen, weil sie den größten Temperaturgradienten aufweisen. Die für kleine Partikeln besonders wirksame Thermophorese und Diffusiophorese findet nun an den Sprühtröpfen statt, bis sie das Temperaturlgleichgewicht mit ihrer Umgebung erreichen oder bis die gesamte Übersättigung abgebaut worden ist. Wegen der Existenz der kalten Sprühtröpfen findet der hauptsächliche Wärmetransport nicht mehr zu den Wänden statt, so daß Kondensation und die daraus folgende Thermophorese und Diffusiophorese an den Wänden vernachlässigbar werden.

Die Wirksamkeit des Auswaschens (Impaktion und Interzeption) durch die Sprühtröpfen ist nur für Teilchen  $> 2\mu\text{m}$  bedeutend /3/. Das bedeutet, daß Sprühtröpfen praktisch nur Kondensationströpfchen einfangen. Es kann daher erwartet werden, daß die Kondensationströpfchen nach kurzer Zeit verschwunden sind und ihre Rolle beim Einfang der Partikeln durch Diffusion

(Partikel-Tröpfchen Koagulation) von den polydispersen Sprühtropfen übernommen wird.

Aus diesem Grund betrachtet Modell II nur zwei Arten von Wechselwirkungen: Partikel-Partikel-Koagulation und Wechselwirkung zwischen Partikeln und Sprühtropfen durch Diffusiophorese und Thermophorese sowie durch Diffusion. Sie können in den Kern des Integrals von Gl. (2) eingearbeitet werden. Der Abbau der luftgetragenen Massenkonzentration durch Diffusion und Sedimentation findet wie bei Modell I statt.

### Modell III:

#### Anfangsbedingungen

- a) Ein definierter Anfangsgrad der Übersättigung von Wasserdampf.
- b) Eine kontinuierliche Quelle für Wasserdampf.
- c) Sämtliche Teilchen sind zu Beginn vorhanden.
- d) Kein Sprühsystem.
- e) Schnelle homogene Durchmischung.

#### Dynamik

Die Anfangsbedingungen für dieses Modell unterscheiden sich von denen des Modell I hauptsächlich darin, daß die Fraktion der monodispersen Kondensationströpfchen wegen der ständig erneuerten Übersättigung nun im Laufe der Zeit zu größeren Tröpfchengrößen hin wandert. Diese Situation ist noch komplizierter, wenn so viel Wasserdampf zugeführt wird, daß der kritische Radius für die Kondensation durch Brown'sche Koagulation zwischen den Teilchen erreicht wird, die nach der ursprünglichen Bildung des Peaks der Verteilung der Kondensationströpfchen "zurückgelassen werden". Dieser zweite Effekt wird vom Modell zunächst ignoriert.

Aufgrund des langfristigen Kondensationsprozesses spielt nun der Partikeleinfang durch Diffusiophorese durch die Kondensationströpfchen eine Rolle. Die Thermophorese ist unbedeutend, da kein merklicher Temperaturgradient am Teilchen auftritt. Davon abgesehen ist die Dynamik von Modell III identisch mit der von Modell I.

Modell IV:

Anfangsbedingungen

- a) Ein definierter Anfangsgrad der Übersättigung von Wasserdampf.
- b) Eine kontinuierliche Quelle für den Wasserdampf.
- c) Sämtliche Partikeln sind zu Beginn vorhanden.
- d) Eine kontinuierliche Quelle kalter Sprühtropfen mit gegebener Größenverteilung.
- e) Rasche homogene Durchmischung.

Dynamik

Unter der Annahme, daß der über einen langen Zeitraum hinweg aufrechterhaltene Übersättigungsgrad so gering ist, daß keine neuen Partikeln kritischer Größe gebildet werden, gelten auch hier die Argumente, die zu der Eliminierung des Kondensationströpfchen-Peak in Modell II führen. Das bedeutet, daß der Hauptunterschied zwischen den Modellen II und IV im kontinuierlichen Wachstum der Sprühtropfen von Modell IV liegt und damit in dem Vergleich zu Modell II vergrößerten Partikeleinfang durch Diffusionophorese und Thermophorese.

Die übrige Dynamik von Modell IV ist identisch mit der von Modell II.

4. Erste Rechnungen zu Modell I und III

Von den in /3/ aufgeführten physikalischen Effekten, die am Abbau eines Aerosolsystems beteiligt sind, wurde zunächst im Rahmen der Modellannahmen von Modell I und III die Kondensation an einem System von festen Partikeln näher untersucht. In /3/ wurden die wichtigsten Schritte und Annahmen für die Herleitung der Kondensationsgleichung von Mason aufgeführt und das Wachstum einzelner Teilchen bei verschiedenen Übersättigungen und einer Atmosphärentemperatur von 130 °C berechnet. Die Rückwirkung der Kondensation am Tropfen auf den Zustand der Gasphase blieb dabei unberücksichtigt. Der Einfluß dieser Rückwirkung sowie die Betrachtung einer ganzen Aerosolverteilung ist Gegenstand der Rechnungen, deren erste Ergebnisse hier mitgeteilt werden sollen.

Die Mason'sche Gleichung zur Beschreibung des Größenwachstums einer kugelförmigen, stationären Partikel unter dem Einfluß einer übersättigten Wasserdampfatmosphäre wurde unter verschiedenen Annahmen hergeleitet.

$$r \frac{dr}{dt} = \frac{S - \exp \{2\sigma M(\rho_w RT_r) \cdot 1/r\}}{\frac{L\rho_w}{KT_\infty} \left( \frac{LM}{RT_\infty} - 1 \right) + \frac{\rho_w RT_\infty}{MDP_s(T_\infty)}}$$

mit  $S$  = Dampfsättigungsgrad

$\sigma$  = Oberflächenspannung der Flüssigkeit (Wasser)

$M$  = Molekulargewicht

$\rho_w$  = Spez. Dichte des kondensierenden Stoffes (Wasser)

$R$  = Gaskonstante

$T_r, T_\infty$  = Tropfen- bzw. Gastemperatur

$L$  = Latente Wärme von Wasser

$r$  = Tropfenradius

$K$  = Wärmeleitfähigkeit des Dampfes

$P_S(T_\infty)$  = Sättigungsdampfdruck bei der Temperatur  $T_\infty$

Die wichtigsten dieser Annahmen sind folgende:

- a) die makroskopischen Transportgleichungen (Gln. 29, 30, 31 in /3/) gelten auch für kleine Teilchen.
- b) Das ideale Gasgesetz gilt auch für eine wasserdampfgesättigte Atmosphäre.
- c)  $T_\infty \sim T_r$  und  $\frac{ML}{R} \left( \frac{1}{T_\infty} - \frac{1}{T_r} \right) \ll 1$

In Abhängigkeit von der gewünschten Genauigkeit sind diese Annahmen nur zum Teil haltbar. Die empfindlichen Größen in Gleichung (3) sind  $r$ ,  $T$  und  $S$ . Sind sie nur grob bekannt, können auch verbesserte Annahmen bei der Herleitung der Gleichung keine sinnvolle Verbesserung der Rechnung bringen. Mögliche Verbesserungen in den Annahmen sind folgende:

Zu Annahme a: Ersetzen der Transportgleichungen für das Kontinuumsgebiet ( $r \rightarrow \infty$ ,  $Kn \rightarrow 0$ ; Kundenzahl  $Kn = \lambda/r$  mit  $\lambda$  freie Weglänge des Gases) durch Transportgleichungen für Übergangsgebiete, z.B. für das Slip-flow Gebiet

Folge: Korrekturen in den beiden Termen im Nenner von Gleichung (3). Dadurch wird eine Verlangsamung des Tropfenwachstums in der Größenordnung von einigen Prozent bedingt.

Zu Annahme c: Diese Annahme mußte gemacht werden, um eine explizite Lösung für die Wachstumsgeschwindigkeit zu erhalten. Wir erhielten ohne diese Annahme Gleichung (4) für die Tropfenwachstumsgeschwindigkeit, die nicht explizit lösbar ist.

$$r \frac{dr}{dt} = \frac{DM}{R\rho_L} \cdot \frac{P_S(T_\infty)}{T_\infty} \cdot \left\{ S - A \cdot \exp \left[ -A \left( \frac{ML^2 \rho_L}{RKT_\infty^2} r \frac{dr}{dt} \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + \frac{2\pi M}{\rho_L RT_\infty} \cdot \frac{1}{r} \right) \right] \right\} \quad (4)$$

mit

$$A = \frac{1}{1 + \frac{L\rho_L}{T_\infty K} r \frac{dr}{dt}}$$

Wir untersuchten, ob der Nachteil der nicht mehr expliziten Lösbarkeit von Gleichung (3) aufgewogen wird durch einen Gewinn an Genauigkeit der Ergebnisse. Wir lösten daher Gleichung (4) durch ein iteratives Verfahren für

verschiedene Übersättigungen  $S$  und Temperaturen  $T_\infty$  und verglichen die Lösungen für das Anfangswachstum ( $t < 10^{-2}$  sec) mit den entsprechenden Werten, wie sie aus der Masongleichung mit Annahme  $c$  erhalten wurden. Wir erhielten maximale Abweichungen der Iterationslösung von der Lösung der Masongleichung in der Größenordnung zwischen 0,1 % ( $T_\infty = 293$  °C) und 1,6 % ( $T_\infty = 130$  °C).

Die Abweichungen der Ergebnisse der Iterationslösung von denen der expliziten Masongleichung sind also so gering, daß es selbst für den vom physikalischen Gleichgewicht am weitesten entfernten Anfangszustand der Kondensation nicht sinnvoll erscheint, den größeren Rechenaufwand einer Iterationslösung zu betreiben.

Insgesamt läßt sich feststellen, daß, vorbehaltlich des noch zu untersuchenden Einflusses einer Van-der-Waals Korrektur (zu Annahme  $b$ ), die Mansongleichung benutzt werden kann, solange nicht für die anderen Eingabegrößen ( $S$ ,  $T$ , Größenverteilung) ein hohes Maß an Genauigkeit erreicht werden kann. Unter Umständen wird es dann sinnvoll werden, direkt die eigentlichen Transportgleichungen statt der daraus abgeleiteten Masongleichung in einem Rechenprogramm zu benutzen, insbesondere dann, wenn man die Annahme ruhender Tropfen fallen läßt.

#### Kondensation an einer Partikelverteilung

Ausgehend von einer Verteilung trockener Partikeln der Dichte 1 wurde die zeitliche Veränderung der daraus entstehenden Tropfen- und Partikelverteilung berechnet, wobei außer der Kondensation auch die Sedimentation und Diffusion der Partikeln und Tropfen berücksichtigt wurde. Als Anfangsverteilung wurde eine Log-Normalverteilung der Form

$$n(r, t = 0) = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi} \sigma_L} \cdot \frac{1}{r} \exp \left( -\frac{1}{2} \left( \frac{\ln r - \ln r_g}{\sigma_L} \right)^2 \right) \quad (5)$$

gewählt. Die Parameter  $N_0$ ,  $\sigma_L$  und  $r_g$  wurden so gewählt, wie sie in den TUNA-Experimenten /4/ gemessen wurden. Für die Berechnung der Diffusion und Sedimentation wurden die Größen der TUNA-Gefäßgeometrie benutzt.

Benutzte Gleichungen:

1. Kondensation

$$\frac{dr}{dt} = \frac{1}{r} \cdot C(r) \quad \text{entsprechend Gl. (3)}$$

Integration ergibt

$$r(t) = M(r_0, t) \quad (6)$$

Damit ergibt sich für zwei verschiedene Radien  $r_1$  und  $r_2$

$$\begin{aligned} r_1' (0 + \Delta t) &= M(r_1, \Delta t) \\ r_2' (0 + \Delta t) &= M(r_2, \Delta t) \end{aligned}$$

oder

$$r_2' - r_1' = M(r_2, \Delta t) - M(r_1, \Delta t) \quad (7)$$

für  $r_1' \rightarrow r_2'$  gilt

$$M(r_2, \Delta t) = M(r_1, \Delta t) + \frac{\partial M(r_1, \Delta t)}{\partial r} \cdot (r_2 - r_1)$$

Mit  $r_2' - r_1' \rightarrow dr'$  und (5) ergibt sich

daraus

$$dr' = \frac{\partial M(r, \Delta t)}{\partial r} dr \quad (8)$$

Da durch die Kondensation die Partikelzahl erhalten bleibt gilt

$$n(r) dr = n(r') dr'. \quad (9)$$

Mit (6) folgt:

$$n(r') = n(r) \left( \frac{dr'}{dr} \right)^{-1} = n(r) \left( \frac{\partial M(r, \Delta t)}{\partial r} \right)^{-1} \quad (10)$$

2. Sedimentation und Diffusion ohne Quellterm für Aerosole und homogene Durchmischung :

$$\frac{\partial n(r,t)}{\partial t} = - (\alpha_D(r) + \alpha_s(r)) \cdot n(r,t) \quad (11)$$

bzw. integriert

$$n(r,t + \Delta t) = n(r,t) - (\alpha_D(r) + \alpha_s(r)) n(r,t) \Delta t \quad (12)$$

für  $\alpha_D(r)$  gilt:

$$\alpha_D(r) = v_D \cdot \frac{F_D}{V} = \frac{k T}{6\pi\eta r} \cdot \frac{1}{\delta_D} \cdot \frac{F_D}{V} \quad (13a)$$

und für  $\alpha_s(r)$ :

$$\alpha_s(r) = v_s \frac{F_s}{V} = \frac{2 \rho r^2}{9\eta} \cdot g \cdot \frac{F_s}{V} \quad (13b)$$

Die in 13 a und 13 b benutzten Größen haben folgende Bedeutung

$\rho$  : Dichte des Partikelmaterials

$k$  : Boltzmann Konstante

$T$  : Temperatur des Gases

$\eta$  : dynam. Zähigkeit des Gases

$\delta_D$  : Dichte der Diffusionsgrenzschicht

$F_D$  : Oberfläche der Gefäßinnenwand

$F_S$  : Bodenfläche des Gefäßes

$V$  : Volumen des Gefäßes

$g$  : Erdbeschleunigung

Insgesamt ergibt sich aus (10) und (12) folgende Modellgleichung

$$n(r', t + \Delta t) = n(r, t) \cdot \left( \frac{\partial M(r, \Delta t)}{\partial r} \right)^{-1} \cdot (1 - (\alpha_D(r) + \alpha_s(r)) \cdot \Delta t) \quad (14)$$

Zusammengefaßt sind in Gleichung (14) und im Rechenprogramm folgende Annahmen enthalten:

- Der Einfluß von Sedimentation und Diffusion wird entsprechend der Partikelverteilung zu Beginn eines jeden Zeitschrittes berechnet. Das Wachstum dieser Teilchen durch Kondensation während des Zeitschrittes hat auf die Sedimentation und Diffusion keinen Einfluß mehr.
- Für verschiedene große Teilchen existiert keine Kopplung der Terme  $\alpha_s$  und  $\alpha_D$ . Eine direkte Integration über die Zeit ist also erlaubt.
- Eine vorgegebene Übersättigung wird, falls sie nicht durch Abkühlung des Systems oder durch Zufuhr von Wasserdampf künstlich aufrechterhalten wird, nur durch Kondensation an als ruhend angenommenen Partikeln abgebaut. Die Wasserdampfkondensation an den Wänden bleibt unberücksichtigt. Ebenso wird ein Wiederverdampfen sedimentierter oder an die Wände diffundierter Tröpfchen nicht angenommen.
- Kondensation findet nur an solchen Partikeln (trockene Teilchen oder Tropfen) statt, deren Radius größer als ein von der momentanen Übersättigung und der Temperatur abhängiger kritischer Radius  $R_c$  ist.
- Tröpfchen mit Radien kleiner  $R_c$  (die dann auftreten können, wenn sich die Übersättigung schnell ändert) geben solange durch Verdampfen ihren Wassergehalt ab, bis der Radius der ursprünglich als Kondensationskern dienenden trockenen Partikeln erreicht ist.
- Der Abbau der Übersättigung wird durch die Massenbilanz der Tropfen zu Beginn und am Ende eines jeden Zeitschrittes berechnet. Die durch Sedimentation und Diffusion abgeschiedene Masse wird dabei berücksichtigt.

#### Ergebnisse:

Einige Beispiele für durchgeführte Rechnungen sind in den Abb. 4311-1 bis 4311-4 dargestellt. In doppeltlogarithmischem Maßstab ist jeweils eine gegebene Anfangsverteilung von Log-Normaler Form (ganz links) und die jeweils veränderte Verteilung als Funktion der Zeit aufgetragen. Die senkrechten Linien haben folgende Bedeutung: In der Anfangskurve kennzeichnen sie die Lage

des kritischen Radius  $R_c$ , in allen anderen Kurven jeweils den Radius der kleinsten Teilchen in der veränderten Verteilung, die im entsprechenden Zeitschritt noch wachsen. Die an diesen Linien aufgetragenen Zahlentripel ergeben jeweils von oben nach unten an: Realzeit  $t$  (in sec), Übersättigung  $S$  (in %) zur Zeit  $t$  und kritischer Radius als Funktion von  $S(t)$ .

In Abb. 4311-1 ist die zeitliche Veränderung einer Log-Normalen Anfangsverteilung mit  $r_G = 0,2 \cdot 10^{-5}$  cm und  $\sigma_L = 0,4$  bei einer Gastemperatur von 130 °C und einer Anfangsübersättigung von 1,5 % dargestellt. Die Anfangsübersättigung wird nicht durch Zufuhr von Wasserdampf aufrechterhalten, sondern durch Kondensation abgebaut. Beginnend mit einem Zeitschritt von  $1 \cdot 10^{-3}$  sec wurde die Veränderung der Verteilung berechnet, für jeden 20. Zeitschritt wurde die berechnete Verteilung geplottet.

Die Fraktion  $F_2$  der Verteilung mit  $r > R_c$  wächst sehr schnell und bildet nach 0,025 sec eine sehr schmale, vom Rest  $F_1$  der Anfangsverteilung völlig getrennte Verteilung. Die Anfangsübersättigung hat im gleichen Zeitraum auf 0,75 % abgenommen. Der kritische Radius liegt zu diesem Zeitpunkt bei 0,085  $\mu\text{m}$  und damit weit unterhalb des kleinsten Teilchenradius von  $F_2$  ( $R_{\min} = 0,41 \mu\text{m}$ ). Die Fraktion  $F_1$  der Anfangsverteilung mit  $r < R_c$  bleibt währenddessen völlig unverändert.

Im nächsten dargestellten Zeitschritt hat  $S$  auf 0,28 % abgenommen, der kritische Radius auf 0,23  $\mu\text{m}$  zugenommen,  $R_{\min}$  beträgt jetzt 0,49  $\mu\text{m}$ , die Verteilung  $F_2$  ist noch etwas schmäler geworden.

Erst im dritten dargestellten Zeitschritt ( $t=0,5$  sec) sind  $R_c$  und  $R_{\min}$  etwa gleich groß geworden, die Übersättigung beträgt jetzt 0,12 %. Die Verteilung  $F_2$  ist noch schmäler geworden. Der Einfluß von Sedimentation und Diffusion ist in der graphischen Darstellung noch nicht zu erkennen. Bei weiterer Abnahme der Übersättigung wird  $R_{\min}$  von  $R_c$  "überholt", d.h. die kleinsten Tropfen von  $F_2$  wachsen langsamer als  $R_c$ . Von diesem Zeitpunkt an müssen alle Tropfen von  $F_2$  mit  $r < R_c$  wieder verdampfen. Das so frei gewordene Wasser kommt dem weiteren Wachstum von Tropfen mit  $r > R_c$  zugute.

In der Rechnung wurde angenommen, daß dieses Verdampfen der kleinen Tropfen plötzlich, d.h. innerhalb eines Zeitschrittes geschieht. Dies ist deshalb vernünftig, weil der Zeitschritt, dessen Größe an die Abnahme der Übersättigung pro Zeitschritt gekoppelt ist, inzwischen wesentlich größer als zu Beginn der Rechnung ist. Diese Tropfen geben ihr gesamtes Wasser an die Atmosphäre ab und nehmen wieder ihren unersprünglichen Radius ein. In der graphischen Darstellung wurden diese Teilchen nicht aufgeführt.

Die weitere zeitliche Veränderung der Fraktion F 2 wird zunehmend gekennzeichnet durch den Einfluß von Sedimentation und Diffusion, entsprechend der großen Tropfenmasse und der angewachsenen Real-Zeit sowie der Tatsache, daß der durch Sedimentation und Diffusion hervorgerufene Massenverlust nicht mehr durch Kondensation von Wasserdampf aus der Gasphase ausgeglichen werden kann.

In Abb. 4311-2 ist der entsprechende Vorgang für eine Log-Normal-Verteilung mit  $r_G = 0,4 \cdot 10^{-5}$  cm und  $\sigma_L = 0,4$  dargestellt. Der Unterschied zum Fall 1 besteht vor allem darin, daß ein größerer Teil der Anfangsverteilung an der Kondensation teilnimmt. Dadurch wird die Übersättigung schneller abgebaut und der Zeitpunkt, zu dem  $R_c = R_{\min}$  wird, ist früher erreicht. Dies hat zur Folge, daß F 2 nicht ganz so schmal wird und der Einfluß der Sedimentation und Diffusion schon früher sichtbar wird.

Abb. 4311-3 und 4311-4 zeigen Fälle, in denen die Übersättigung ihren Anfangswert durch Zufuhr von Wasserdampf beibehält. In Abb. 4311-3 ist es eine Übersättigung von 1,5 %, in Abb. 4311-4 0,5 %. Die Parameter der Anfangsverteilung sind dieselben wie in Abb. 4311-1.

Der Unterschied zu den Fällen 1 und 2 ist sehr deutlich: Die unterschiedliche Wachstumsgeschwindigkeit verschiedener Teilchen bzw. Tropfen bewirkt, daß schon nach kurzer Zeit alle Tropfen der Fraktion F 2 praktisch den gleichen Radius haben, ein Vorgang, der in den Fällen 1 und 2 nicht in dieser Deutlichkeit auftreten konnte, da die Kondensation von einer bestimmten Zeit an nicht mehr aus der Gasphase allein genährt werden konnte.

Das weitere Wachstum der Fraktion F 2 über den dargestellten Zeitraum hinaus kann praktisch aus Tabellen in der Art wie in Tab. 4311-5 in /1/ entnommen werden.

#### Zusammenfassung

- Die Kondensation von Wasserdampf an einer vorgegebenen Verteilung ruhender Partikeln führt in Abhängigkeit von der Übersättigung und von der Aerosolverteilung zu einer Aufspaltung der Anfangsverteilung in zwei Fraktionen.

Die Zeit, in der dies geschieht, ist kurz gegenüber der Zeit, in der andere Effekte wie Sedimentation, Diffusion und wahrscheinlich auch Koagulation wirksam werden.

- Für die Zeit nach der deutlichen Herausbildung der beiden Fraktionen sollte das dargestellte Verhalten der durch Kondensation gebildeten Fraktion nur im Rahmen der gemachten Annahmen gesehen werden. Der Einfluß der anderen, hier nicht berücksichtigten Effekte, insbesondere Koagulation, Impaktion und Interzeption wird beide Fraktionen deutlich gegenüber der dargestellten Form verändern. Eine prinzipielle Änderung der Aussage, daß sich in kurzer Zeit zwei Fraktionen herausbilden, wobei die eine fast monodispers ist, ist jedoch nicht zu erwarten.
- Die Bildung der beiden Fraktionen ist für die weitere Behandlung des Gesamtsystems von entscheidender Bedeutung.

#### Literatur

- /1/ J.P. Hosemann, W. Schikarski, H. Wild,  
"Radioactive Pollutants Released in Accidents of LWR Power Plants  
- a Review and Attempt at Classification - " IAEA Proceeding of a  
Symposium "Physical Behaviour of Radioactive Containments in the  
Atmosphere" 12. - 16.11.1973, Wien.
- /2/ J.P. Hosemann, H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild,  
"Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines Leichtwasser-  
Reaktor (LWR) - Containments (Übersicht und Stand der Kenntnis)",  
KFK 1800, Juni 1973
- /3/ J.P. Hosemann, H. Jordan,  
"Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines Leichtwasser-  
Reaktor (LWR) - Containments, Halbjahresbericht PNS 1/1973, KFK 1859,  
November 1973
- /4/ H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild,  
"Nukleare Aerosole im geschlossenen System",  
KFK 1989, Oktober 1974

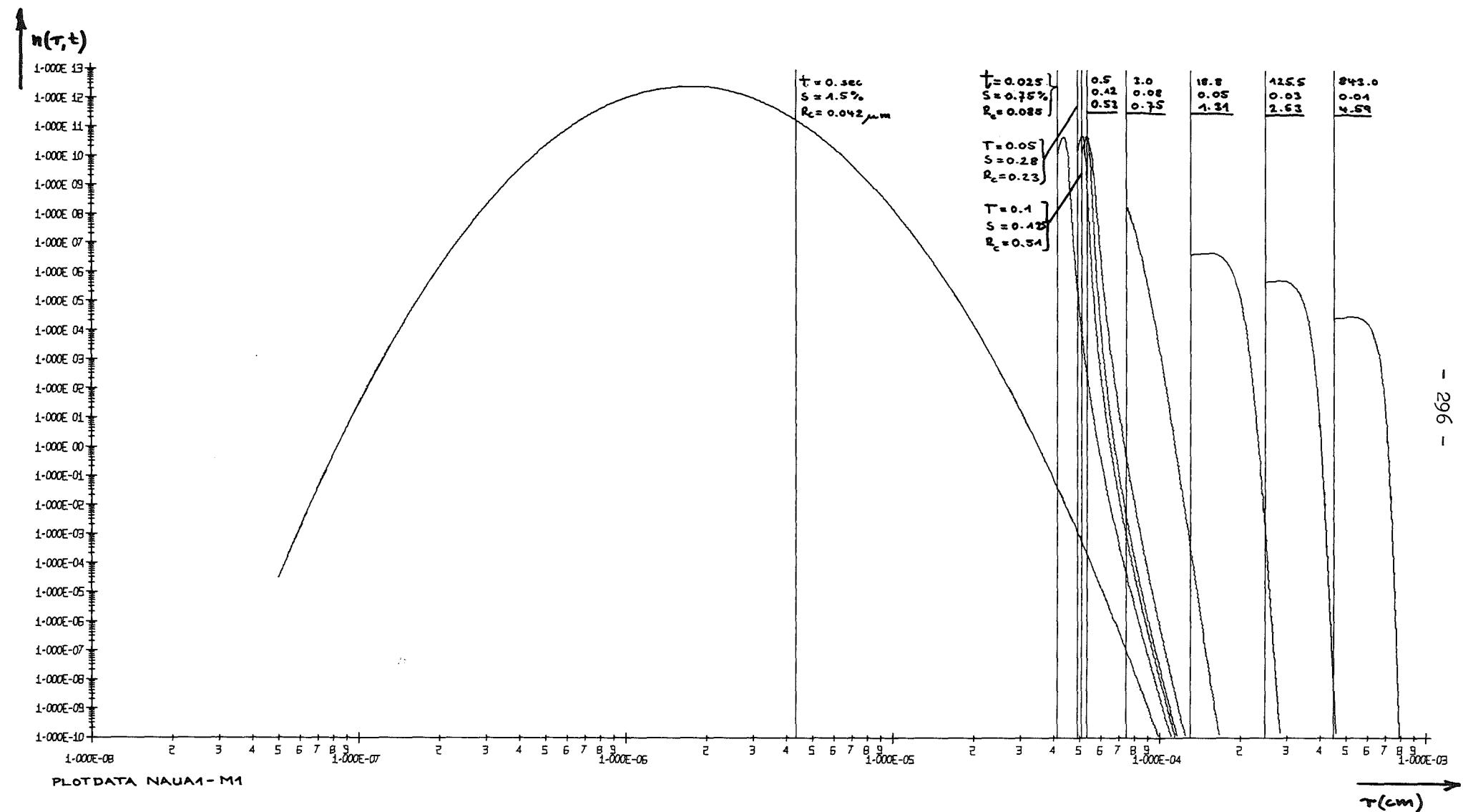


Abb. 4311-1

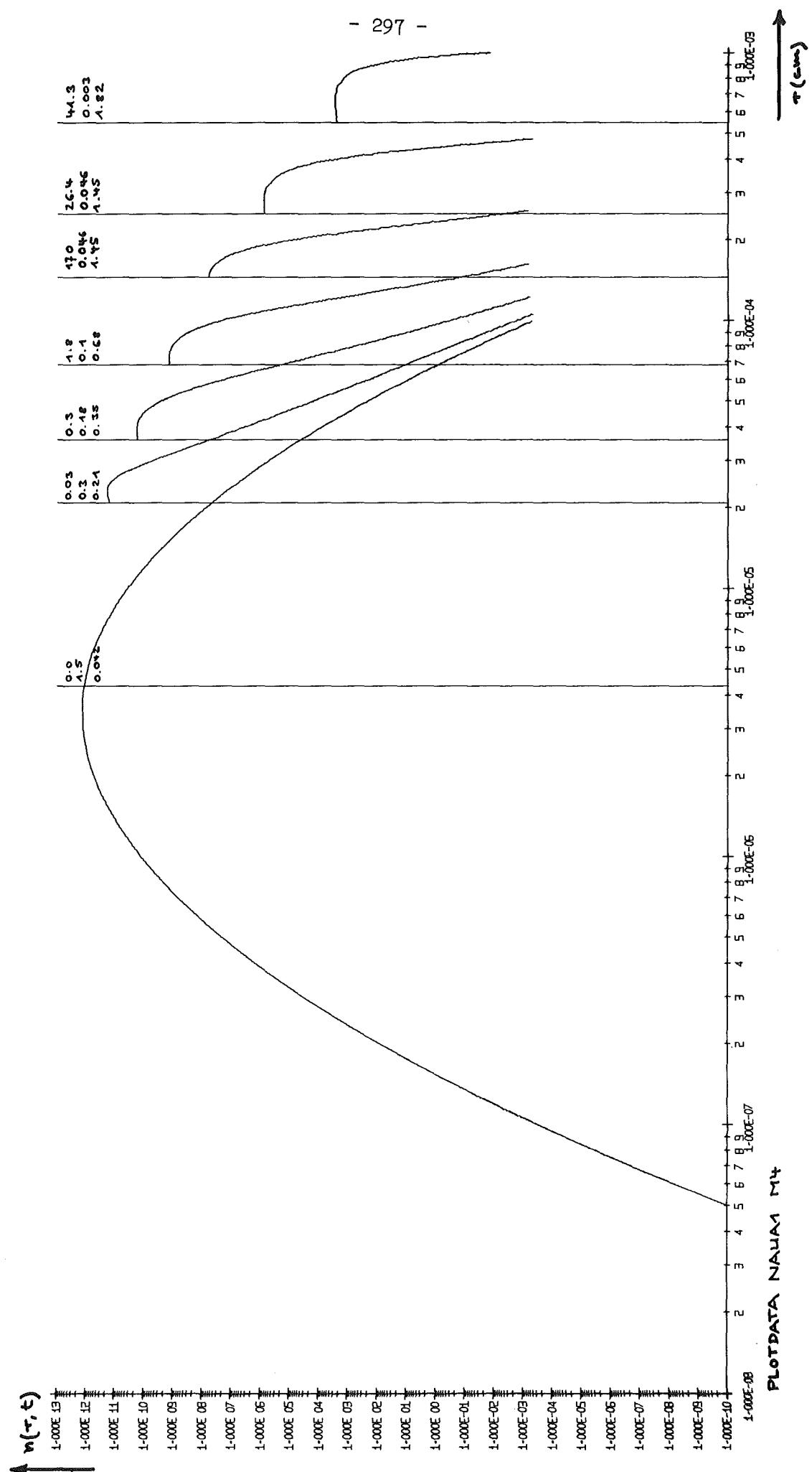


Abb. 4311-2

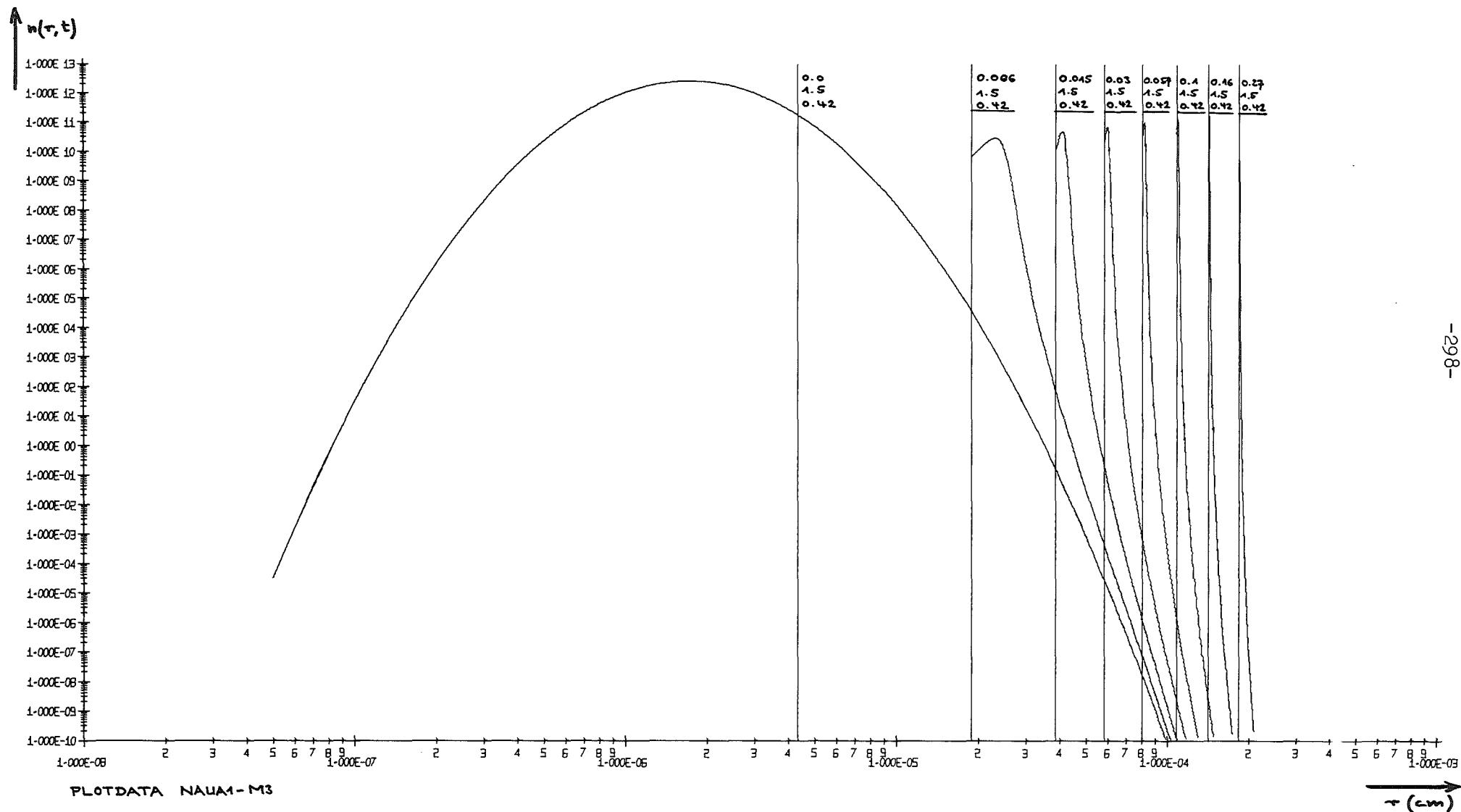


Abb. 4311-3

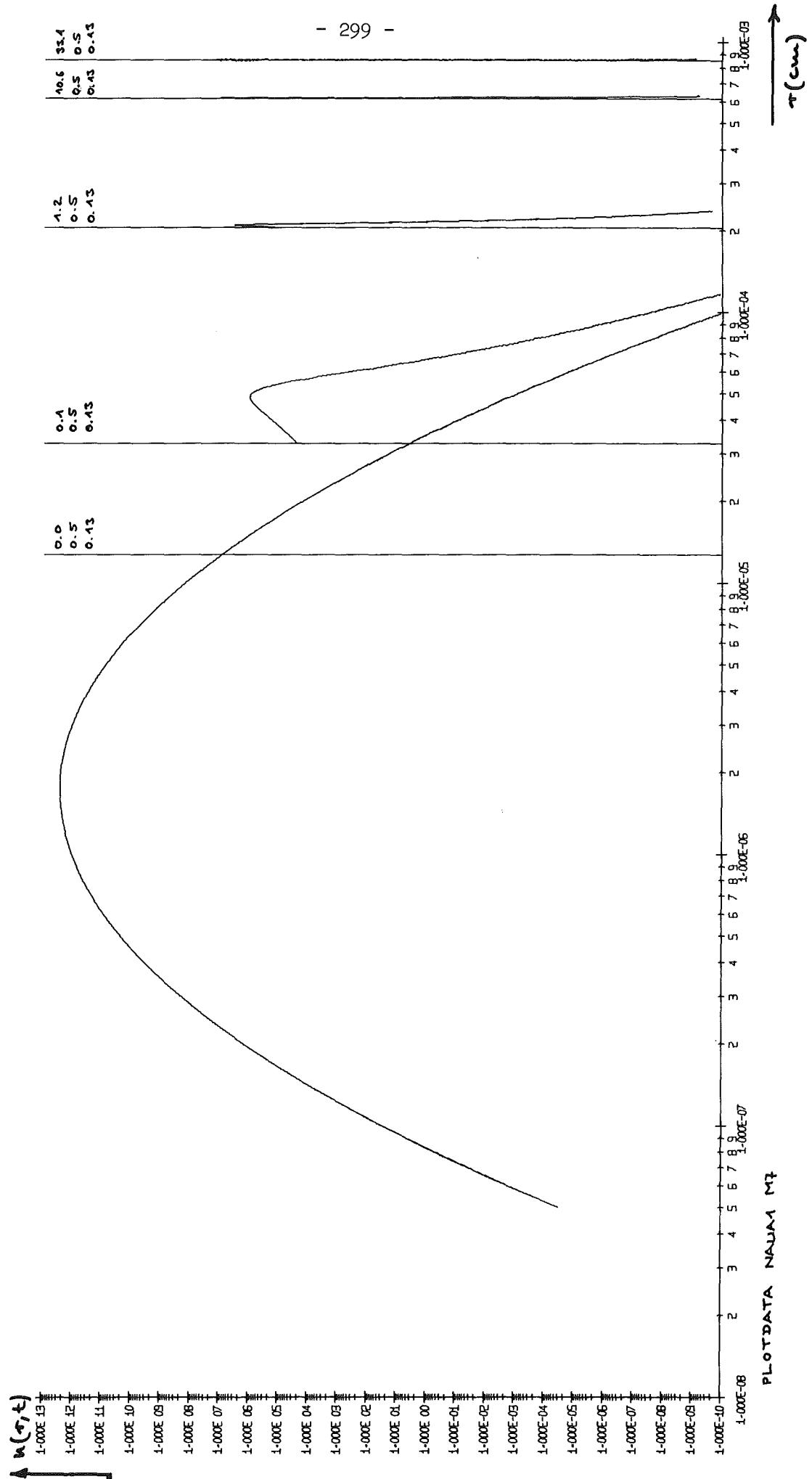


Abbildung 4311-4

4312      Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur  
Ausbreitung radioaktiver Gase

Die Untersuchungen dienen dem Ziel, die Kenntnis der Ausbreitung radioaktiver Stoffe in der Atmosphäre soweit zu verbessern, daß die Folgen einer störfallbedingten Freisetzung solcher Stoffe mit ausreichender Zuverlässigkeit und Genauigkeit abgeschätzt werden können. Diese Zielsetzung ist voll eingebettet in die der BMFT-ad hoc-Gruppe "Risiko und Zuverlässigkeit". Es werden vorrangig die methodischen Grundlagen der Ausbreitungsrechnungen unter Berücksichtigung meteorologischer Bedingungen bearbeitet und somit ein Element für den Entscheidungsprozess der Genehmigung geschaffen.

An einem 200 m hohen Meßturm werden die für die atmosphärische Ausbreitung relevanten Daten gemessen und auf Magnetband gespeichert. Im Rahmen von Ausbreitungsversuchen werden Leitsubstanzen über einen Kamin oder vom Meßturm in die Atmosphäre abgeleitet und das Konzentrationsfeld der Leitsubstanzen im Lee der Quelle gemessen. Die am Turm und bei Ausbreitungsversuchen gesammelten Daten dienen als Ausgangsmaterial für theoretische Untersuchungen.

1. Meteorologisches Informationssystem für Kernkraftwerke  
(H. Dilger, W. Hübschmann, P. Thomas)

Kernkraftwerke emittieren im Normalbetrieb und bei potentiellen Störfällen radioaktive Stoffe in die Atmosphäre. Die dadurch bedingte Strahlenbelastung in der Umgebung des Kernkraftwerkes lässt sich nur dann zuverlässig berechnen, wenn ausreichende meteorologische Informationen vorhanden sind.

Im Kernforschungszentrum Karlsruhe ist seit mehreren Jahren ein meteorologisches Informationssystem in Betrieb /1/. Aufgrund der damit gewonnenen Erfahrungen über Genauigkeit und Verfügbarkeit verschiedener Meßmethoden wird ein vereinfachtes System vorgeschlagen, welches zuverlässig und mit vertretbarem Aufwand in einem Kernkraftwerk die notwendigen meteorologischen Informationen liefert. Dazu gehören zumindest die Windrichtung, die Windgeschwindigkeit und die Ausbreitungskategorie. Um störende Gebäudeeinflüsse zu eliminieren, soll ein Meßmast von mindestens der Höhe des Kamins in einigen hundert Metern Entfernung vom Reaktorgebäude stehen. Die Windmessungen sollten etwa in der Mitte zwischen wirksamer Oberfläche und Kaminhöhe mit einem Schalensternanemometer und einer Schwertwindfahne vorgenommen werden.

Die herrschenden Ausbreitungskategorien A - F (nach Pasquill /2/) können mit Hilfe mehrerer Methoden bestimmt werden /3/. Ein direktes Maß für den Turbulenzzustand der Atmosphäre stellt die aus der vertikalen Windrichtungsfluktuation ermittelte Streuung  $\sigma_\theta$  dar. Diese wird mit einer Vektorfahne bestimmt. Diese Methode Nr. 1 ist allerdings wegen der Empfindlichkeit des Meßgerätes störanfällig und wartungsintensiv, s. Tab. 4312-1. Auch die aus den horizontalen Windrichtungsfluktuationen ermittelte Streuung  $\sigma_\theta$  ist ein brauchbares Maß für die Ausbreitungskategorie. Für diese Methode Nr. 2 ist lediglich eine Schwertwindfahne erforderlich. In  $\sigma_\theta$  sind aber zeitweise Anteile von Winddrehungen enthalten, welche den Meßwert verfälschen. Daher wird nach Methode 2 in etwa 25 % der Fälle die Kategorie um 1 Stufe falsch bestimmt (s. auch folgenden Abschnitt).

In einem indirekten Verfahren verwendet die Methode Nr. 3 den vertikalen Temperaturgradienten und die horizontale Windgeschwindigkeit. Dafür sind je ein Widerstandsthermometer 10 m über der wirksamen Oberfläche und in Höhe der Mastspitze

sowie ein Schalensternanemometer in Höhe der unteren Temperaturmeßstelle erforderlich. Mit diesem Verfahren wird allerdings in 1/3 aller Fälle die Kategorie um 1 Stufe falsch bestimmt.

In einem Kernkraftwerk, in dem es vor allem auf die Zuverlässigkeit und hohe Verfügbarkeit der sicherheitsrelevanten Informationen ankommt, sollten mindestens zwei der beschriebenen Methoden angewendet werden, und zwar Methoden 1 und 3, ersatzweise die Methoden 2 und 3.

Abb. 4312-1 zeigt das Blockschaltbild des vorgeschlagenen Systems. Der Scanner fragt die Meßwertgeber ab; der Analog-Digital-Wandler digitalisiert die analogen Signale. Beide Geräte werden vom Rechner gesteuert. Die Impulse der Anemometer gelangen direkt in den Kernspeicher. Ein Prozeßrechner ist ohnehin vorhanden, z.B. für Aufgaben des Reaktorschutzesystems /4/ oder der Personendosimetrie /5/. Nur während eines Bruchteils der Zeit bedient der Prozeßrechner das meteorologische Meßwerterfassungssystem.

Die halbstündigen Mittelwerte, s. Tab. 4312-1, speichert der Rechner auf Band und Platte. Zeitunkritische Hintergrundprogramme (z.B. Darstellungen der Meßwerte auf dem Bildschirm) befinden sich ebenfalls auf der Platte; ein Tastaturbefehl lädt sie bei Bedarf in den Arbeitsspeicher. Die Hintergrundprogramme werden so gesteuert, daß zeitkritische Programme, z.B. die Meßwerterfassung, nicht beeinträchtigt werden und der Rechner optimal ausgelastet ist.

Die Ausbreitungsklasse wird berechnet aus der Streuung  $\sigma_\varphi$ ,  $\sigma_\theta$  oder bei Ausfall der zugehörigen Geber aus der Temperaturdifferenz  $\Delta T$  und der mittleren Windgeschwindigkeit  $\bar{u}$ .

Tabelle 4312-1: Komplettes meteorologisches Meßsystem

Geber	Meßgröße	Meßhöhe		Abfrage- rhythmus	mittlere Ausfallzeit	Wartungs- intervall
		1	2			
Widerstands- thermometer	Temperatur	$H_o + 10 \text{ m}$	$H_K$	1 min	5 %	6 mon
Schalenstern- anemometer	mittl. horizontale Windgeschwindigk.	$H_o + 10 \text{ m}$	$\frac{H_K + H_o}{2}$	30 min	2 %	12 mon
Schwert- windfahne	mittl. horizontale Windrichtung	$\frac{H_K + H_o}{2}$	$H_K$	1 s	5 %	36 mon
Vektor- fahne	Streuung $\sigma_\theta$ der horizontalen WR			3 min		
	mittl. horizont. WR			1 min		
	mittl. vertik. WR			1 min		
	mittl. Windgeschw.	$H_K$	-	1 min	18 %	2 mon
	Streuung $\sigma_\varphi$ der vertik. WR			1 min		
	Streuung $\sigma_\theta$ der horizont. WR			1 min		

$H_o$  Höhe der wirksamen Oberfläche

$H_K$  Höhe des Kamins

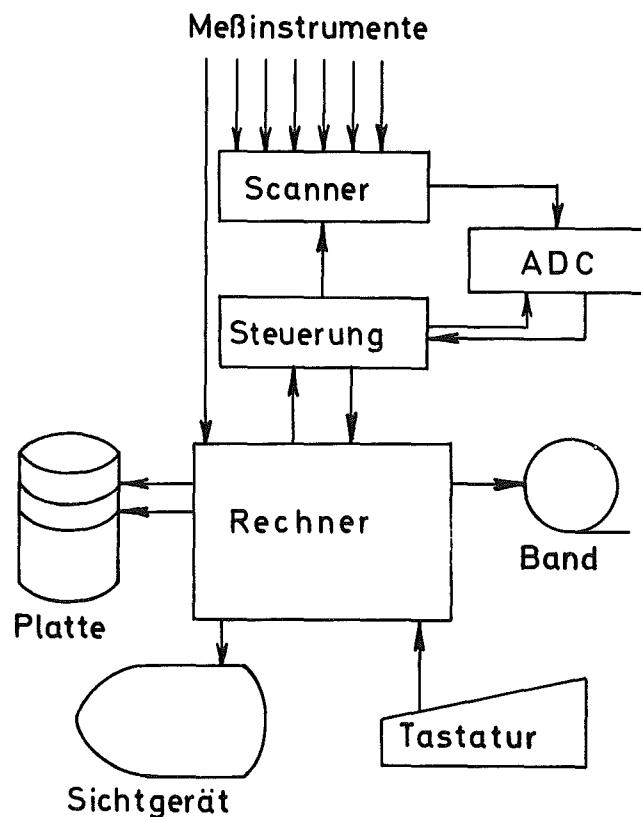


Abb. 4312-1: Blockschaltbild des Meßwerter-  
fassungssystems

Mit Hilfe dieser Informationen ist es möglich, jederzeit die Ausbreitungsverhältnisse in der Umgebung des Standortes übersichtlich darzustellen. Für jede Ausbreitungsklasse und jede gewünschte Emissionshöhe werden der Maximalwert der Aktivitätskonzentration sowie dessen Quellabstand und die Kontur der 10 %- Isolinie gespeichert. Auf Abruf wird auf dem Bildschirm das den tatsächlichen Ausbreitungsverhältnissen (Windrichtung, -geschwindigkeit, Ausbreitungsklasse) entsprechende Diagramm dargestellt /6/.

2. Aufstellung und Vergleich verschiedener Schemata zur Bestimmung von Ausbreitungskategorien  
(H. Dilger, K. Nester)

Ausgehend von den meteorologischen Messungen am Kernforschungszentrum Karlsruhe wurden fünf verschiedene Schemata zur Bestimmung von Ausbreitungskategorien aufgestellt. Basis für die Festlegung der Kategorien war die Streuung der vertikalen Windrichtungsfluktuation  $\sigma_\varphi$ . Die anderen Schemata wurden dieser Einteilung angepaßt (siehe Tab. 4312-2 sowie Abbn. 4312-2 und 4312-3). Durch einen Vergleich mit dem Schema Nr. 1 (Einteilung nach  $\sigma_\varphi$ ) wurden mittels Korrelationsuntersuchungen Aussagen über die Zuverlässigkeit der übrigen Schemata gewonnen. Eine Zusammenstellung der wesentlichen Ergebnisse dieses Vergleichs ist in Tabelle 4312-3 enthalten. Die größte Übereinstimmung erreicht man mit dem Schema 2 (Einteilung nach  $\sigma_\theta$ ). Dies liegt daran, daß  $\sigma_\theta$ , ebenso wie  $\sigma_\varphi$ , direkt von den Turbulenzbedingungen abhängt.  $\sigma_\theta$  erfaßt aber außerdem noch Winddrehungen, die eine Turbulenzzunahme vortäuschen. Die beste indirekte Methode zur Bestimmung der Ausbreitungskategorien ist das Schema 3 (Einteilung nach dem Temperaturgradienten  $dT/dz$  und der Windgeschwindigkeit  $\bar{u}$ ). Da in 97 % aller Fälle eine Abweichung von höchstens einer Kategorie auftritt, ist seine Zuverlässigkeit noch ausreichend, um Einzelsituationen zu beurteilen. Die Parameter Strahlungsbilanz S/Windgeschwin-

digkeit  $\bar{u}$  sowie der Exponent p des Windprofils eignen sich dagegen kaum zur Beurteilung von Einzelsituationen, sondern nur für statistische Untersuchungen, da in 12 % aller Fälle die Ausbreitungskategorie um 2 und mehr Stufen falsch bestimmt wird.

Ausbrei- tungskate- gorie	Häufig- keit H %	Schema 1		Schema 2	Schema 5
		Streuung der Windrichtungs- fluktuationen vertikal $\sigma_\varphi$ [Grad]	horizontal $\sigma_\theta$ [Grad]		Exponent des Windgeschwin- digkeitspro- fils p
A	2,1	$\sigma > 14,0$		$\sigma > 18,0$	$p \leq 0,07$
B	6,0	$14,0 \geq \sigma > 10,5$		$18,0 \geq \sigma > 13,0$	$0,07 < p \leq 0,13$
C	11,7	$10,5 \geq \sigma > 7,0$		$13,0 \geq \sigma > 9,5$	$0,13 < p \leq 0,20$
D	43,1	$7,0 \geq \sigma > 3,0$		$9,5 \geq \sigma > 5,0$	$0,20 < p \leq 0,40$
E	20,9	$3,0 \geq \sigma > 1,5$		$5,0 \geq \sigma > 3,0$	$0,40 < p \leq 0,50$
F	16,2	$1,5 \geq \sigma$		$3,0 \geq \sigma$	$0,50 < p$

Tabelle 4312-2: Einteilung verschiedener Parameter in Ausbreitungskategorien und deren Häufigkeitsverteilung

Schema Nr.	Parameter	Korrelations- koeffizient	übereinstim- mende Kate- gorien	Kategorienabweichung	
				1 Stufe	$\geq 2$ Stufen
2	$\sigma_\theta$	0,86	74	24	2
3	$\frac{dT}{dz}$ , $\bar{u}$	0,81	62	35	3
4	S, $\bar{u}$	0,68	49	39	12
5	p	0,65	49	39	12

Tabelle 4312-3: Korrelationskoeffizient und prozentuale Häufigkeiten von übereinstimmenden bzw. abweichenden Kategorien verschiedener Schemata in bezug auf das  $\sigma_\varphi$  -Schema

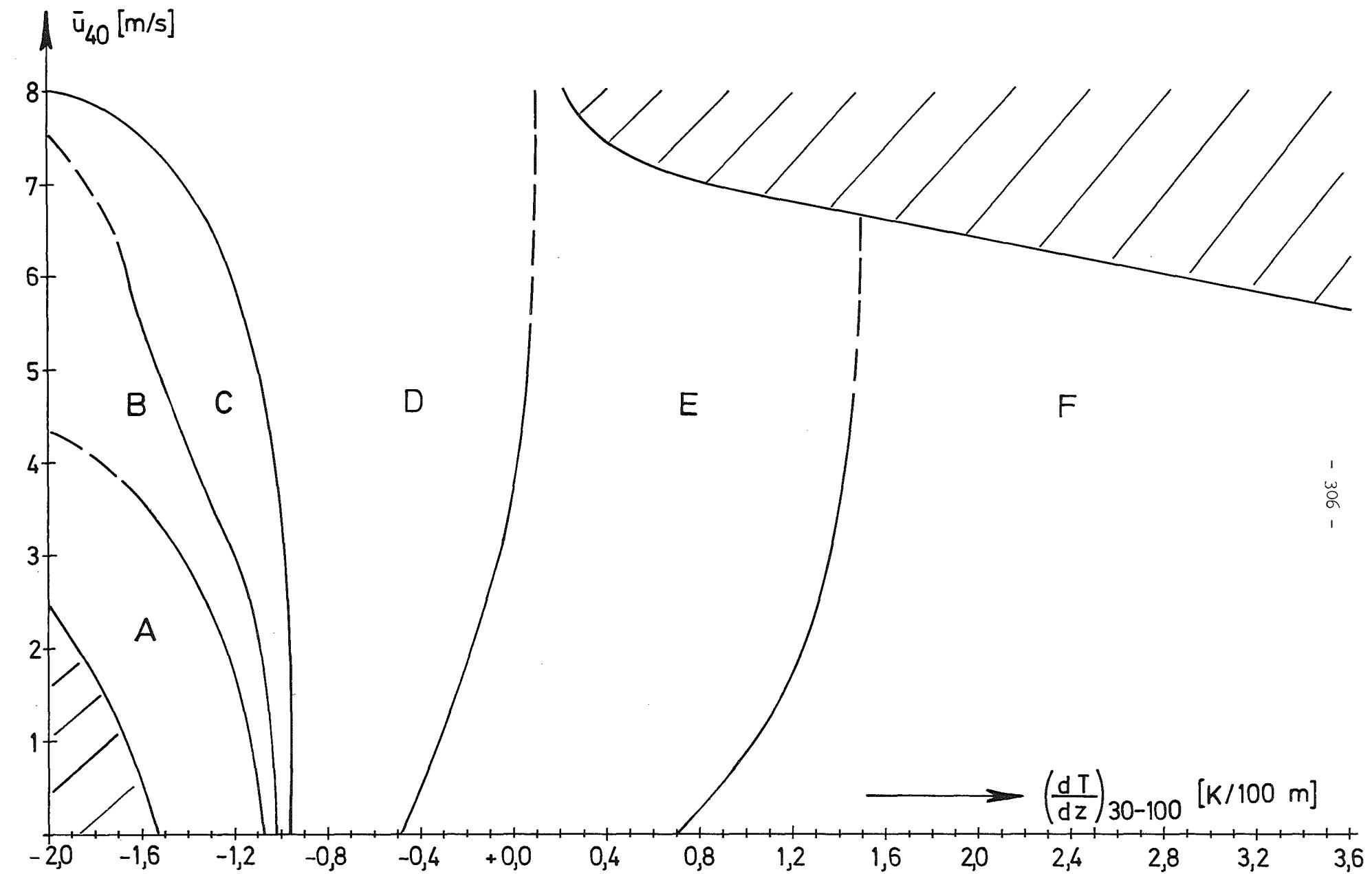


Abb. 4312-2: Einteilung des Temperaturgradienten - Windgeschwindigkeitsfeldes in Ausbreitungskategorien  
Schema 3

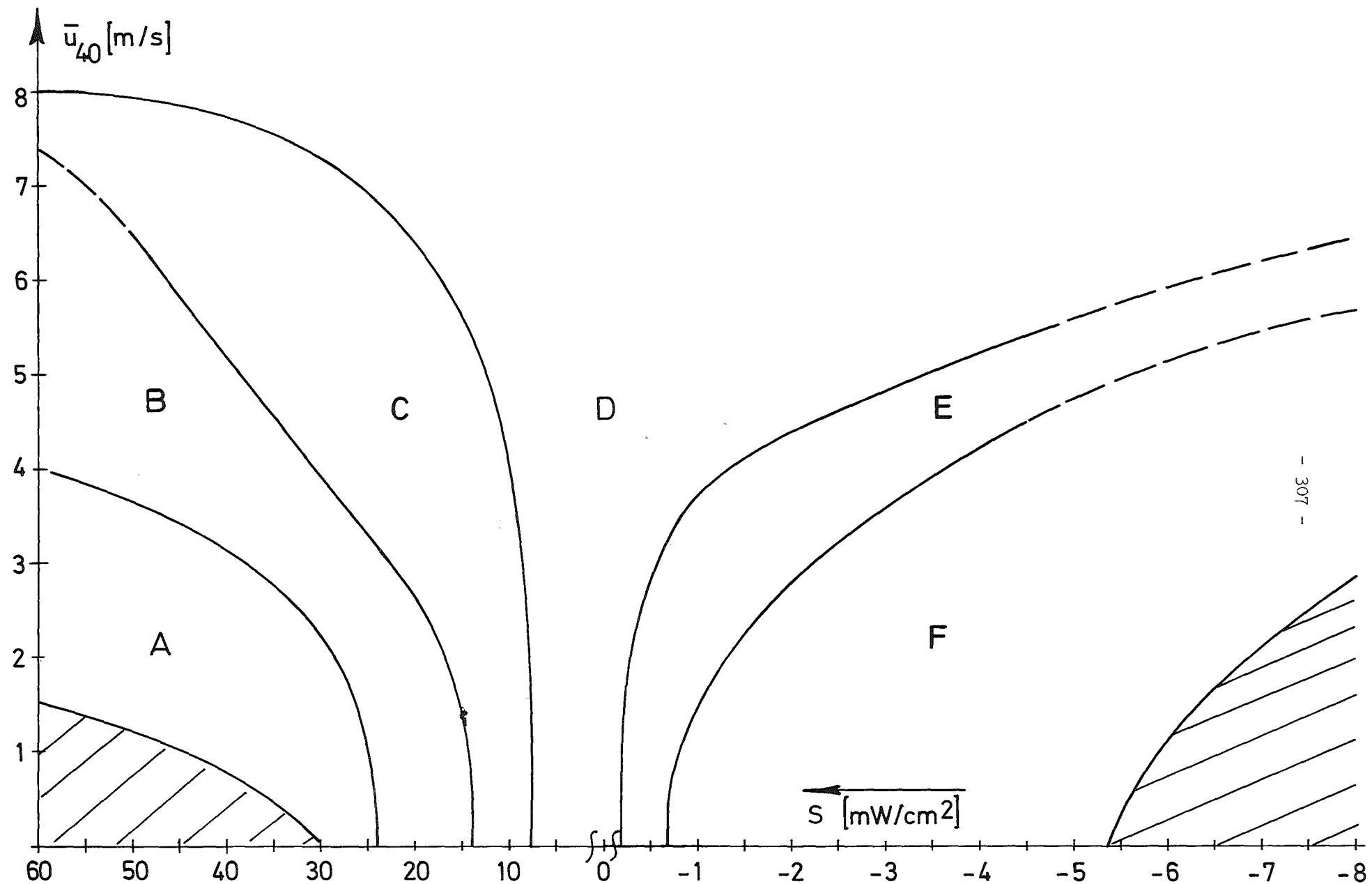


Abb. 4312-3: Einteilung des Strahlungsbilanz - Windgeschwindigkeitsfeldes in Ausbreitungskategorien  
Schema 4

### 3. Ausbreitungsklimatologischer Standortvergleich (S. Vogt)

Ziel der jetzt abgeschlossenen Untersuchung ist die Beantwortung der Frage, inwieweit die im Kernforschungszentrum Karlsruhe gemessenen meteordogischen Daten für die Rheinebene repräsentativ sind, und zwar insbesondere hinsichtlich der Ausbreitung von Schadstoffen.

Im allgemeinen werden die Ausbreitungsverhältnisse durch die Windgeschwindigkeit, die Windrichtung und durch die Intensität der turbulenten Diffusion bestimmt. Durch Vergleich solcher Daten von möglichst vielen Orten im Rheintal ist es möglich, Unterschiede oder geographische Tendenzen im Ausbreitungsverhalten der Atmosphäre festzustellen. Durch die bereitwillige Mithilfe des Deutschen Wetterdienstes und des Geophysikalischen Beratungsdienstes der Bundeswehr ist es gelungen, umfangreiches Datenmaterial dieser Größen von sieben Stationen bereitzustellen, die etwa gleichmäßig im Oberrheingebiet zwischen Freiburg und Frankfurt verteilt liegen. Mit diesen Daten wurden mehrjährige Statistiken der Windrichtung, der Windgeschwindigkeit, der Ausbreitungsklassen und weiterer für die Ausbreitung wichtiger Parameter erstellt.

Hieraus konnten folgende Schlüsse gezogen werden:

- I. Für Orte im Rheintal mit genügendem Abstand von den seitlichen Bergflanken (Odenwald, Kraichgau, Schwarzwald, Pfälzer Wald, Vogesen) werden die Hauptwindrichtungen, ähnlich wie in Karlsruhe, durch den Verlauf der Talachse bestimmt.

Standorte am West- oder Oststrand des Rheingrabens oder an den Mündungen der Seitentäler ins Rheintal besitzen eigene charakteristische Richtungsverteilungen (z.B. Neustadt und Freiburg).

- II. Die in Karlsruhe gemessene Windgeschwindigkeitsverteilung kann als typisch angesehen werden für Standorte in Stadtrandnähe. Stationen in relativ ungestörter Lage zeigen dagegen einen höheren Anteil der Windgeschwindigkeiten über 6 m/s und einen viel geringeren Anteil der Winde unter 1 m/s (z.B. Flughafen Söllingen).
- III. Die Häufigkeitsverteilung der Ausbreitungsklassen von Karlsruhe ist zwar weder auf Standorte innerhalb der Städte noch auf Standorte in ungestörten Lagen übertragbar. Sie ist jedoch typisch für Standorte mit einer Topographie zwischen diesen beiden Extrema.

Eine Zusammenfassung aller vorliegenden Statistiken und Daten erlaubt die Schlußfolgerung, daß die in Karlsruhe gemessenen meteorologischen Werte im Oberrheintal auf andere Standorte mit ähnlicher Topographie übertragen werden können.

#### 4. Ausbreitungsversuche (P. Thomas, H. Schüttelkopf)

1974 wurden insgesamt fünf Ausbreitungsversuche durchgeführt. Bei den Versuchen 24 und 25 wurde neben dem bisher als Leitsubstanz verwendeten Tritium ( $H^3$ ) auch Dibromdifluormethan ( $CBr_2F_2$ ) über den FR2 - Kamin emittiert ( $H = 100$  m), um u.a. das Verhalten beider Tracer vergleichen zu können. Mit beiden Tracern ergaben sich innerhalb der Fehlergrenzen gleiche Ausbreitungsparameter. Diese Versuche bestätigen, wie bereits bei früheren Versuchen festgestellt, daß in der Umgebung des KFZK die Parameter  $\sigma_y$  und  $\sigma_z$  deutlich größer sind als die von Pasquill/Gifford angegebenen, s. /7/. Die Erhöhung entspricht bei neutraler Wetterlage (Kategorie D), wie sie bei den Versuchen 24 und 25 herrschte, einer Verstärkung der Labilität um 1,5 bis 2 Stufen der Kategorienskala.

Das ähnliche Verhalten beider Leitsubstanzen erlaubte es, bei den folgenden Versuchen auf das radioaktive  $H^3$  zu verzichten und die Vorteile der chemischen Leitsubstanz zu nutzen. Solche sind die Erhöhung der Zahl der Meßstellen, die beliebige Wahl der Emissionshöhen am meteorologischen Mast und eine vereinfachte Probenahme.

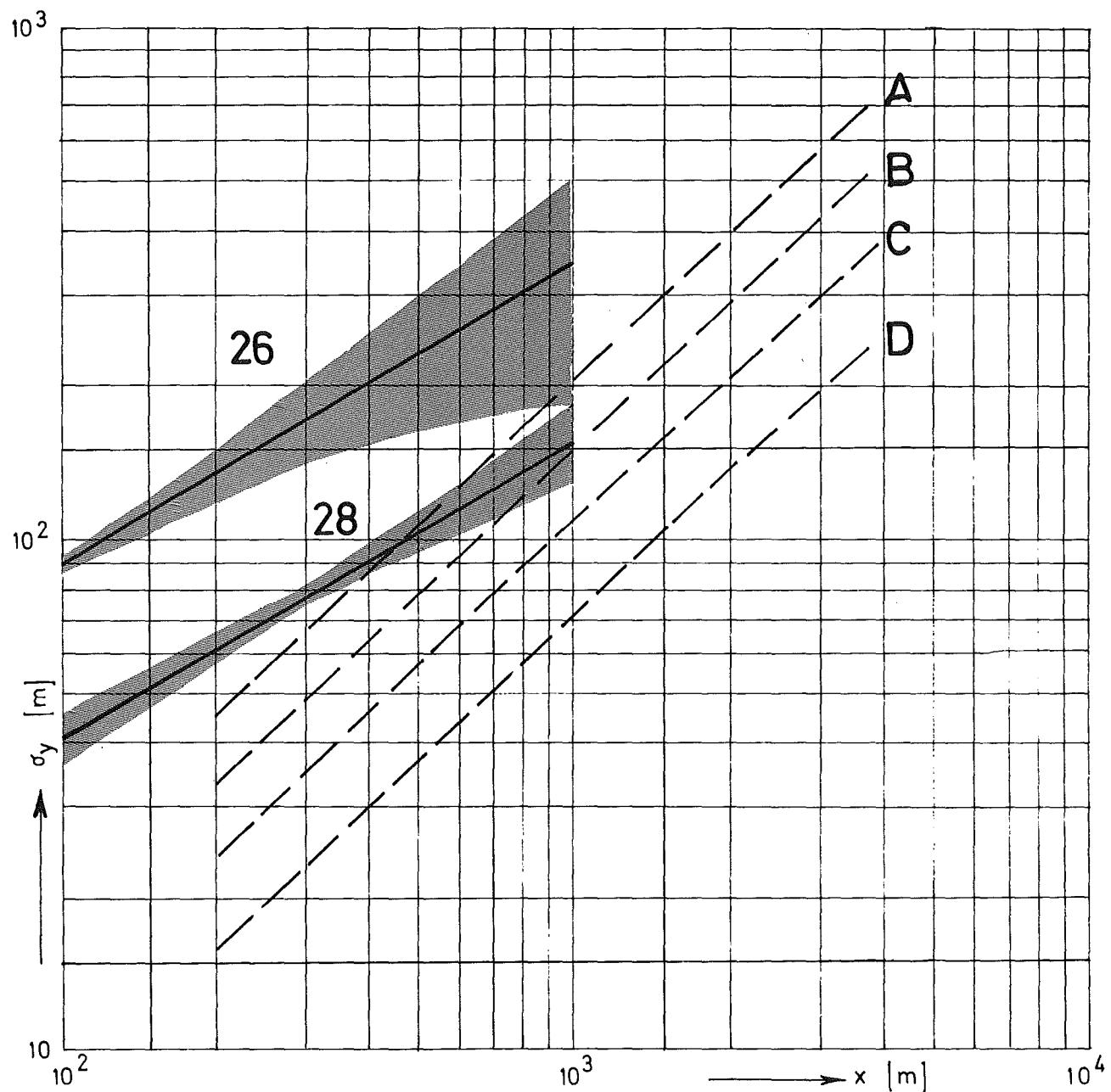
So gelang es 1974 bei gleichem Personalaufwand die Zahl der Sammelstellen von 25 auf 50 zu erhöhen. Bei gleichem Winkelabstand zwischen den einzelnen Positionen, wurde dadurch der Öffnungswinkel des Probenahmesektors verdoppelt. So konnte die Zahl der Mißerfolge (Wind dreht aus Probenahmesektor während des Experimentes heraus!) von ca. 70 % auf  $\leq 15$  % reduziert werden.

Die gleichzeitige Emission mehrerer Leitsubstanzen in verschiedenen Höhen und die Durchführung von Experimenten bei Nacht erfordert eine automatische Probenahme mit billigen Probenahmegeräten. Ein entsprechendes Gerät befindet sich in der Entwicklung.

Die gleichzeitige Emission mehrerer Leitsubstanzen und die mit der automatischen Probenahme zusammenhängende Erhöhung der Zahl der Probenahmestellen vervielfacht die Auswertearbeit. Daher wurde eine sorgfältige Prüfung der Möglichkeiten einer automatischen Auswertung der Gaschromatogramme durchgeführt. Die beste Lösung stellte die Kopplung eines automatischen Probengebers, eines Peakintegrators und eines damit verbundenen Tischrechners mit dem verwendeten Gaschromatographen dar. Die Beschaffung wurde in die Wege geleitet.

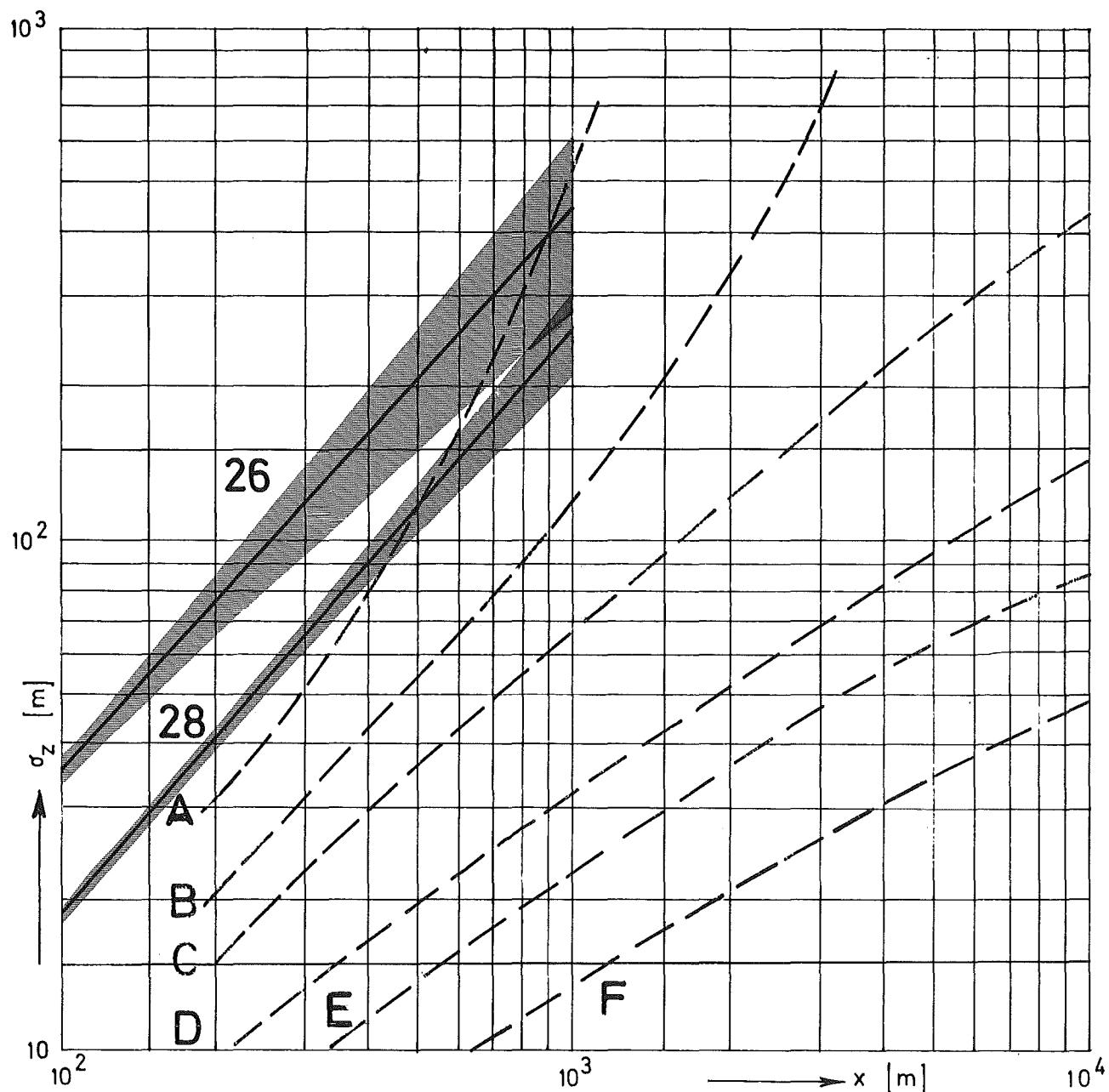
Um den Abstand zwischen Untergrund und Meßwert bei den billigen Leitsubstanzen  $CCl_4$  und  $CFCI_3$  zu erhöhen, wurde ein Tank für 60 kg/h (das entspricht dem 4-fachen der bisher möglichen Emissionsrate) gebaut und geprüft.

Bei den Versuchen 26, 27, 28 erfolgte die Emission erstmals in 60 m Höhe vom meteorologischen Mast. Die aus den Versuchen 26 und 28 ermittelten Ausbreitungsparameter  $\sigma_y$  und  $\sigma_z$  sind in den Abbn. 4312-4 und 4312-5 dargestellt. Die Erhöhung gegenüber  $\sigma$ -Scharen nach Pasquill/Gifford ist noch stärker als bei der Emissionshöhe 100 m. Offenbar verstärkt sich mit abnehmender Emissionshöhe die durch die Bodenrauhigkeit verursachte mechanische Turbulenz. Versuch 27 ist bei Berücksichtigung aller Meßwerte nicht auswertbar.



Versuch	Leitsub- stanz	Emissions- höhe	Kate- gorie
26	$\text{CBr}_2\text{F}_2$	60 m	B
28	$\text{CBr}_2\text{F}_2$	60 m	C

Abb. 4312-4 Aus Versuch 26 und 28 ermittelte Ausbreitungsparameter  $\sigma_y$



Versuch	Leitsubstanz	Emissionshöhe	Kategorie
26	$\text{CBr}_2\text{F}_2$	60 m	B
28	$\text{CBr}_2\text{F}_2$	60 m	C

Abb. 4312-5 Aus Versuch 26 und 28 ermittelte Ausbreitungsparameter  $\sigma_z$

Eigene Veröffentlichungen:

- /1/ W. Hübschmann et al.; Staub-Reinhaltung der Luft 33 (1973)  
245-248
- /3/ H. Dilger, K. Nester; Met. Rundschau, vorgesehen
- /6/ F. Süß, P. Thomas; KFK 1934 (1974)

Zitierte Literatur:

- /2/ F. Pasquill; The Meteorological Magazine, 90 (1961) 33 - 49
- /4/ E. Böhm, E. Schrüfer; Reaktortagung, Berlin (1974)
- /5/ B. Schalopp, H. Scheufler; Reaktortagung, Berlin (1974)
- /7/ D.H. Slade ed.; TID-24 190, May 1969

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren

1. Entwicklung einer Dekontaminationspaste

(S. Kunze, ABRA)

Die im 1. Halbjahr beschriebenen Arbeiten zur Entwicklung einer Dekontaminationspaste wurden mit Untersuchungen über die Abhängigkeit der Dekontaminationswirkung von der Pastenzusammensetzung an radioaktiv kontaminierten Stahloberflächen fortgesetzt.

In der Reaktortechnik werden - wenn überhaupt mit Erfolg - nur Pasten auf Mineralsäurebasis eingesetzt. Deshalb wurde die häufig verwendete Säurekombination 3 Gew-% Flußsäure mit 20 Gew-%-Salpetersäure (sog. 3-20er-Mischung) als Grundlage gewählt.

Pasten werden praktisch nur bei Raumtemperatur, selten bei höheren Temperaturen wegen der dann geminderten Viskosität zu Dekontaminationszwecken eingesetzt. Wegen der niedrigen Arbeitstemperatur ist das Anlaufen der Reaktion zwischen Paste und kontaminierte Oberfläche und damit der Dekontaminationserfolg allein von der Wirksamkeit der in die Paste eingemischten Chemikalien abhängig. Da optimale Dekontaminationsergebnisse nur von homogenen Pasten erwartet werden können, wurde vor dem Zusammenmischen die Benetzbarkeit der Komponenten durch Herabsetzung der Oberflächenspannung in der Säuremischung erhöht.

Unter dem Gesichtspunkt einer guten Verträglichkeit mit den derzeitigen zur Fixierung des radioaktiven Abfalles angewandten Verfahren wurde eine Vielzahl bis 200°C thermisch beständiger Pasten angesetzt durch Mischen von

- Kunststoffpulvern (Firmen BASF, Hoechst, Veba) mit
- flußsäurebeständigen Füllstoffen (Firmen Bayer, Titangesellschaft) und
- Säuremischungen ( $\text{HNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , HF, HCl),  
deren Oberflächenspannung durch Zusätze von säurebeständigen Netzmittel auf mindestens 20 dyn/cm herabgesetzt worden war.

Die Mischungen wurden nach bestimmten Zeitintervallen auf Sedimentation überprüft und die Dekontaminationswirkung an autoklavenkontaminierten Edelstahlproben (1.4541) getestet. Rasch sedimentierende Mischungen können in Grenzen durch Erhöhung des Feststoffanteils stabilisiert, also im pastenförmigen Zustand gehalten werden; jedoch wird dadurch der Säuregehalt relativ herabgesetzt und somit die Dekontaminationswirkung erheblich gemindert.

Die Untersuchungsergebnisse bestätigen, daß z.B. chemisch gleichwertige Kunststoffpulver eine unterschiedliche thermische Stabilität aufweisen und mehr oder weniger sämige Pasten bilden. Ferner wurde festgestellt, daß bisher nur eine Type eines flußsäurebeständigen Füllstoffes die Dekontaminationswirkung positiv beeinflußt. Die Pasten auf Flußsäure- Salpetersäure-Basis ergaben an unter Reaktorbedingungen kontaminierten Proben nur noch mäßige Resultate. Pasten, die auf Schwefelsäure oder Schwefelsäure- Flußsäure - Salpetersäurebasis aufgebaut waren, zeigten zwar bessere, aber immer noch keine mit konventionellen Beizpasten vergleichbare Dekontaminationswerte. Erst nach Zudosierung geringer Mengen Salzsäure zu flußsäure- salpetersäurehaltigen Pasten "sprang" die Reaktion Paste/Edelstahloberfläche an, und es wurden gute Dekontaminationsresultate erzielt.

In der Tabelle 4411-1 sind die Dekontaminationsergebnisse der neuen Paste den Ergebnissen der in der Gerätedekontamination der Abteilung Dekontaminationsbetriebe verwendeten Industriebeizpaste gegenübergestellt.

Obwohl der Salzsäuregehalt der neuen Paste weniger als 25% des Säuregehaltes der Industriebeizpaste beträgt, sind die Dekontaminationsergebnisse der neu entwickelten Paste um mindestens den Faktor 10 besser.

Da die entwickelte Paste auch bei Verwendung in der Gerätedekontamination der Abteilung Dekontaminationsbetriebe gute Erfolge zeigte, wurde mit der bisherigen Lieferfirma ein Lizenzvertrag abgeschlossen. Die bisher eingesetzte Industriebeizpaste wird durch die entwickelte Paste ersetzt.

Die Entwicklungsarbeiten an Dekontaminationspasten werden mit dem Ziel fortgesetzt, die Konsistenz bei höheren Arbeitstemperaturen zu verbessern und den bis jetzt noch unumgänglichen Anteil an Salzsäure durch andere Agentien zu ersetzen.

Tabelle 4411 - 1 Dekontaminationsergebnisse mit Pasten  
 (Restaktivität in % der Ausgangsaktivität)

Werkstoff	Edelstahl Nr. 1.4541, unbehandelt					
	1 Stunde			2 Stunden		
Nuklid	Ce-144	Ru-106	Co-60	Ce-144	Ru-106	Co-60
neue Paste	0,1	1,2	0,7	<0,01	<0,01	0,1
Industriebeizpaste	17,9	54,9	44,7	10,4	33,5	25,0
Werkstoff	Edelstahl Nr. 1.4541, mit Schweißnaht					
	1 Stunde			2 Stunden		
Nuklid	Ce-144	Ru-106	Co-60	Ce-144	Ru-106	Co-60
neue Paste	2,4	2,5	4,6	2,1	2,1	4,0
Industriebeizpaste	18,8	54,2	45,6	8,5	31,9	23,8

2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschmelzen  
(D. Hentschel, ABRA)

Zu den Schmelzen, deren Dekontaminationseigenschaften im 1. Halbjahresbericht 1974 beschrieben wurden, sind aus folgenden Gründen fünfzehn weitere Schmelzen ausgewählt worden.

- Da bisher keine organischen Schmelzen zum Einsatz kamen, wurden Versuche mit drei organischen Komplexbildnern durchgeführt.
- Die gut dekontaminierende Kombination  $\text{NaOH}/\text{KOH}/\text{Na}_2\text{O}_2$  bereitet aufgrund ihrer hydroskopischen Eigenschaften erhebliche Handhabungsschwierigkeiten. Deshalb wurde ihr  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bzw.  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  zugesetzt. Das Dekontaminationsvermögen und die Handhabung dieser neuen Kombination mußte getestet werden.
- Ammoniumsalze können die Fixierung von Abfallkonzentraten in Bitumen stören. Deswegen war es notwendig die gut dekontaminierenden Ammoniumphosphate durch  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  zu ersetzen.

Die Dekontaminationswirkung dieser neuen Salze wurde in Bezug auf solche Nuklide untersucht, die bei Dekontaminationen zu entfernen sind und durch ihre speziellen Eigenschaften diese besonders erschweren.

### 2.1 Versuchsdurchführung

Als Versuchsmaterial dienten gebeizte Edelstahlproben (Werkstoff 1.4541) der Größe 25 x 25 x 1,5 mm, die im Autoklaven wie unter {1} beschrieben kontaminiert und dekontaminiert wurden. Auf anderes Versuchsmaterial, das lediglich durch einfache Wärmebehandlung kontaminiert ist, wurde wegen dann untypischer Arbeitsbedingungen verzichtet.

Die Aktivitätsmessungen erfolgten - abweichend zu {1} - an einem Meßplatz mit Vielkanalanalysator und GeLi-Detektor. Bestimmt wurde die auf den Proben nach der Dekontamination verbliebenen Nuklide Co-60, Ru-106 Rh und Ce-144. Während der Experimente wurde festgestellt, daß Cs-137 auf Edelstahlplättchen nicht haftet. Es wurde daher bei weiteren Untersuchungen mit diesem Werkstoff nicht mehr berücksichtigt.

## 2.2 Ergebnisse

Die untersuchten Salzschmelzen sowie die Dekontaminationsergebnisse sind der Tabelle 4411- 2 zu entnehmen. Folgende Aussagen lassen sich treffen

- Organische Schmelzen sind für die Dekontamination ungeeignet, da sie schlechte Dekontaminationsergebnisse liefern, sich bei den erforderlichen Arbeitstemperaturen teilweise zersetzen oder sublimieren und damit nicht mit den gängigen Fixierungsmethoden für den radioaktiven Abfall verträglich sind.
- Die gute Wirksamkeit der aluminiumchloridhaltigen Schmelzen bestätigte sich. Jedoch ist hier noch die Materialkorrosion zu untersuchen.
- Alkalische Schmelzen (ohne  $Na_2O_2$ ) zeigen nur gute Erfolge bei der Dekontamination von Co-60. Ein Zusatz von  $Na_2O_2$  zu NaOH/KOH verbessert das Dekontaminationsvermögen für Ru-106/Rh und Ce-144 erheblich. Da diese Schmelze wegen ihrer hygroskopischen Eigenschaften nur in Tauchbädern einsetzbar ist, mußten Zusätze gefunden werden, die das Auftragen dünner Schichten ermöglichen. Dazu wurde  $Al_2O_3$  bzw.  $Na_2CO_3$  ausgewählt.  $Al_2O_3$  verringert das Dekontaminationsvermögen speziell für Ru-106/Rh erheblich. Gute Ergebnisse erhält man durch Zusatz von  $Na_2CO_3$  bei gleichzeitiger Erhöhung des KOH-Anteils.
- Das sehr gute Dekontaminationsvermögen phosphathaltiger Schmelzen wurde bestätigt. Aus Gründen der Fixierbarkeit des Abfalls ist jedoch nur  $KH_2PO_4$  für Dekontaminationszwecke geeignet.
- Wenig wirksam auf  $\gamma$ -strahlenden Nuklide sind sulfathaltige Schmelzen. Ihr Dekontaminationsvermögen beschränkt sich offensichtlich auf die  $\beta$ -strahlenden Erdalkalinuklide.

## 2.3 Folgerungen und Planung

Als dekontaminationswirksame mit den Fixierungsmethoden für radioaktive Abfälle verträgliche Substanzen sind zu nennen:

- 1)  $NaCl/KCl/AlCl_3$  und  $KCl/AlCl_3$
- 2)  $NaOH/KOH/Na_2O_2$  und Karbonatzusätze
- 3)  $KH_2PO_4$
- 4) begrenzt Sulfate

Zum Auftragen in dünnen Schichten auf die zu dekontaminierenden Oberflächen und damit zur Verminderung der Salzmengen in den entstehenden Abfallösungen dürften die Aluminiumchloride,  $\text{NaOH}/\text{KOH}/\text{Na}_2\text{O}_2/\text{Na}_2\text{CO}_3$  und  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  geeignet sein. Für die beiden letztgenannten konnte ein Auftragverfahren alternativ zum Tauchverfahren gefunden und erfolgreich demonstriert werden.

Die Dekontamination metallischer Oberflächen wird mit der Ausarbeitung einer zuverlässigen Auftragstechnik, der Dekontamination von Werkstücken die in kerntechnischen Anlagen unter Betriebsbedingungen kontaminiert wurden und im Hinblick auf zu erwartende Korrosionsschäden an den dekontaminierten Werkstücken fortgesetzt.

#### 2.4 Übersichtsversuche zur Dekontamination U- bzw. Th-kontaminiertem metallischer Oberflächen

Im Hinblick auf die Dekontamination Pu-kontaminiertem Oberflächen mit Salzschmelzen wurden Übersichtsversuche mit U- bzw. Th-kontaminierten Oberflächen durchgeführt. Als Schmelzen wurden die unter 2.2 genannten und zusätzlich zwei weitere nitrathaltige Schmelzen ausgewählt, Tabelle 4411-3.

Als Kontaminationslösungen dienten eine ca 11%-ige  $\text{Th}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4-6 \text{H}_2\text{O}$  und eine 10%-ige  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ -Lösung. Davon wurde jeweils ein Tropfen auf ein Plättchen (s. 2.1) gegeben und das Plättchen 1 h bei  $400^\circ$  im Trockenschrank behandelt. Die Dekontamination erfolgte in der unter {1} beschriebenen Weise. Die  $\beta$ -Aktivität wurde nach jedem Dekontaminationsschritt gemessen und die Restaktivität errechnet. Die  $\alpha$ -Messung ist aufgrund der geringen Zerfallsraten bei diesen Nukliden nicht möglich.

Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 4411-3 zusammengefaßt. Es ergibt sich, daß die für die  $\beta/\gamma$ -Dekontamination bewährten Schmelzen auch hier die besten Resultate liefern.

Für die Dekontaminationsversuche an plutoniumkontaminierten Oberflächen wird Probenmaterial benötigt, das nicht im Labor hergestellt werden kann, da die Kontaminationsbedingungen, wie Temperatur und Zustand des Plutoniums nicht simuliert werden können. Zur Fortführung dieser Arbeiten werden daher zunächst in den Laboratorien des Kernforschungszentrums, in denen in Handschuhboxen Plutonium unter typischen Arbeitsbedingungen gehandhabt wird, Werkstoffproben ausgelegt und kontaminiert. Typische Arbeitsbedingungen wurden dazu aus dem Bereich der Brennstoffherstellung, der Wiederaufarbeitung und der Plutonium-Analytik gewählt.

Zitierte Literatur

- {1} 1. Halbjahresbericht 1974 des Projektes Nukleare Sicherheit  
KFK 2050

Tabelle 4411 - 2 Dekontaminationsergebnisse mit Salzschmelzen

Schmelze	Mengenverhältnis g	Arbeitstemperatur °C	60 Co		106 Ru/Rh		144 Ce	
			Zeit min	Dx %	Zeit min	Dx %	Zeit min	Dx %
Signette Salz	-	100	60	78,4	60	86,5	60	68,0
Benzoesäure	-	125	30	63,2	30	75,5	30	58,0
Salicylsäure	-	160	15	80,0	15	70,5	15	70,5
KC1/AlCl <sub>3</sub>	7,0/27,0	180	60	3,9	45	8,9	60	4,3
NaCl/KC1/AlCl <sub>3</sub>	11,7/14,9/26,6	130	45	4,0	45	3,5	45	0,6
NaOH/Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	36,0/10,6	320	45	3,9	45	44,1	45	12,9
NaOH/Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> /Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	36,0/10,6/0,47	310	45	4,3	45	59,2	45	24,1
NaOH/KOH	24,0/22,4	320	45	2,4	15	25,2	15	8,6
NaOH/KOH/Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	24,0/22,4/0,47	280	45	4,9	60	2,3	60	0,3
NaOH/KOH/Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	24,0/22,4/0,47/2,5	280	45	8,4	30	61,9	15	18,0
"	24,0/22,4/0,5/3,0	280	60	5,0	60	38,7	60	11,5
"	24,0/27,4/0,5/5,0	280	60	9,1			30	11,0
"	24,0/29,1/0,5/5,4	280	45	9,6	45	44,2	45	12,4
"	24,0/32,4/0,5/6,0	280	45	10,7	15	61,0	15	18,1
"	24,0/35,0/0,5/6,0	280	45	14,2	30	36,7	45	8,4
"	24,0/32,4/1,0/6,0	280	30	16,2	30	55,4	30	16,1

Tabelle 4411 - 2 Dekontaminationsergebnisse mit Salzschmelzen (Fortsetzung)

Schmelze	Mengenverhältnis g	Arbeitstemperatur °C	60 Co		106 Ru/Rh		144 Ce	
			Zeit min	Dx %	Zeit min	Dx %	Zeit min	Dx %
NaOH/KOH/Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> /Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub> " " " "	24,0/22,4/5,0/0,5	280	45	15,6	30	18,6	45	13,2
	24,0/24,7/5,0/0,5		45	4,1	15	25,3	30	8,3
	24,0/27,4/5,2/0,5		45	7,4			30	4,7
	24,0/30,0/5,5/0,5		15	2,4	45	7,5	45	3,0
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> /KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	51,75/6,8	280	30	0,7	30	0,4	15	<0,1
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	-	220	15	1,6	15	8,6	15	1,9
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	-	280	45	1,3	45	0,4	45	2,3
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> /KC1	38,33/24,87	200	30	0,9	30	0,9	30	0,7
NaHSO <sub>4</sub> /KHSO <sub>4</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	21,4/24,2/2,28	180	60	11,6	45	36,5	45	14,5
K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>7</sub> /KHSO <sub>4</sub>	46,2/2,47	240	-	-	60	53,8	60	23,0
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> /KNO <sub>3</sub>	21,3/30,6	250	60	59,5	60	81,1	60	46,8
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> /Na <sub>2</sub> CrO <sub>4</sub> /NaNO <sub>3</sub>	21,3/24,3/12,75	320	45	68,6	60	81,4	60	64,4

Tabelle 4411 - 3 Dekontaminationsergebnisse bei Uran- und thoriumkontaminierten Oberflächen

Schmelze	Mengenverhältnis g	Arbeitstemperatur °C	Th(NO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>		UO <sub>2</sub> (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	
			Zeit min	Dx %	Zeit min	Dx %
KCl/AlCl <sub>3</sub>	7,0/27,0	180	60	1,0	60	0,9
NaCl/KCl/AlCl <sub>3</sub>	11,7/14,9/26,6	130	45	0,1	60	7,6
NaOH/KOH	24,0/22,4	230/320	45	3,0	15	< 0,1
NaOH/KOH/Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	24,0/22,4/0,47	260/280	30	1,9	15	0,1
NaOH/KOH/Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> /Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	24,0/30,0/5,5/0,5	260/280	60	2,2	15	0,1
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	-	300	15	0,1	15	0,1
NaHSO <sub>4</sub> /KHSO <sub>4</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	21,4/24,2/12,28	180	45	0,2	45	0,1
KHSO <sub>4</sub> /K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	2,47/46,2	240	60	3,2	30	0,1
NaNO <sub>3</sub> /KNO <sub>3</sub>	28,33/33,7	250	60	4,8	60	11,8
NaNO <sub>3</sub> /KNO <sub>3</sub> /NaNO <sub>2</sub>	2,93/22,35/16,65	160	60	10,3	60	14,5

## 4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope im Boden und geologischen Formationen

### Modellvorstellungen zur Wanderung von Plutonium in der Umwelt

(A. Jakubick, ABRA)

Über Ursprung, Stärke und Emissionswahrscheinlichkeit von verschiedenen Plutonium-Kontaminationsquellen wurde bereits im PNS Halbjahresbericht 1973 berichtet {1}.

Auf dieser Stelle soll eine neue, von technischen Merkmalen unabhängige und eher der Dynamik von Plutonium in komplexen Umweltsystemen angepaßte Einteilung der Plutonium-Emissionen dargelegt werden. Sie bezieht sich vor allem auf die zeitliche Dauer der Wechselwirkung zwischen Emissionsquelle und Umwelt und unterscheidet unter:

- kurzandauernden Freisetzungen
- beständigen unvermeidbaren Aufgaben
- Migration aus einem Endlager.

Für die aufgezählten Gruppen sind in der Umwelt verschiedene Formen der Wechselwirkung und verschiedene Transportmechanismen zu erwarten:

- frische Bodenkontaminationen entstehen, wenn durch das Ventilations- system z.B. aus einer Nachunfallatmosphäre Plutonium in die Außenluft gelangt. Die Plutonium-Partikel behalten ihre charakteristische Korngrößenverteilung auch nach Ablagerung auf die Bodenoberfläche - sie gehen kurzfristig keine Wechselwirkung mit dem Boden ein. Ähnliches gilt auch über andere Freisetzungsmöglichkeiten, die den Boden direkt kontaminieren (z.B. Transportunfall). In solchen Fällen steht Plutonium relativ unverdünnt den natürlichen Transportmechanismen, vor allem dem Windtransport, frei zur Verfügung.

- veraltete Kontaminationen, wie sie sich im Laufe der Jahre aus Plutonium-haltiger Abluft in der Nähe von kerntechnischen Anlagen ergeben, sind bis auf einen geringen Anteil mit oberflächennahem Boden vermischt und daher verdünnt. Oft sind sie physikalisch und chemisch an Bodenpartikel gebunden und stark von ihrer Korngrößenverteilung beeinflußt. Gleiches gilt auch über Plutonium-Rückstände nach Dekontaminationsmaßnahmen. Ihre Verfügbarkeit für Windtransport hängt von Bodeneigenschaften und bodenbiologischer Aktivität ab; sie verringert sich mit Alter der Kontamination bis die Resuspension-wahrscheinlichkeit den umgebenden Bodenpartikeln gleich wird. Neben Wanderung auf Bodenoberfläche kommt hier, obwohl im wesentlichen nur durch mechanische Durchmischung bewirkt, auch eine Wanderung im Boden hinzu.
- verborgene Gesteinskontaminationen entstehen, wenn langlebige Transurane bei nuklearer Entsorgung in den geologischen Untergrund eingeführt werden; sie kommen nachgedrungen nach kürzerer oder längerer Zeit mit Gesteinen des Endlagers in Kontakt. Dabei ist eine gegenseitige chemische Reaktion und aufgrund dessen ein qualitativ neues Verhalten wahrscheinlich. Als natürliche Transportmechanismen aus dem Endlager kommen Diffusion und geochemische Wanderung in Frage.

Das zeitabhängige Verhalten von Plutonium, das aus den aufgezählten Zufahrquellen ins Ökosystem Abb. 4412-eingeführt werden kann, läßt sich bei bekannter Emissionstärke nach einer System-Analyse auf einem Modell simulieren {2}. Dazu ist aber notwendig

- den Anfangszustand des Systems zu erkennen, d.h. man muß wissen, welche Plutoniummengen bzw. Konzentrationen in interessierten Einzelbereichen der Umwelt bereits vorhanden sind
- und den Plutonium-Fluß zwischen diesen Einzelbereichen (Komponenten des Ökosystems) eindeutig zu charakterisieren.

Wenn eine solche Quantifizierung vorgenommen werden kann, dann ist es auch möglich die tatsächliche Umwelt- und Strahlengefährdung, die aus der Nuklid-Zufuhr resultiert, objektiv einzuschätzen. Ein brauchbares Pu-Transfer-Modell ist schon auch deswegen notwendig, da wegen der extrem langen

Halbwertszeit von  $\text{Pu}^{239}$  in absehbarer Zeit praktisch keine Abnahme, sehr wohl aber eine Zunahme der Umweltkontamination möglich ist.

Man hat, dank nuklidspezifischer Überwachung bestimmter Bereiche (in BRD: bodennahe Luft, Niederschlag; in USA: Luft, Boden, Oberflächen-bzw. Grundwasser, Schwebestoff, terrestrische Flora und Fauna, Lebensmittel) sowie einiger Einzelarbeiten {3 bis 9}, eine Übersicht über die Plutonium-Konzentrationen in der Bio-, Hydro und Lithosphäre (Tab. 2).

Leider trifft das gleiche nicht über die Kenntnis natürlicher Transportmechanismen von Plutonium zu. Zwar ist es möglich die Transportwege zwischen Donoren und Rezipienten im betrachteten Ökosystem zu identifizieren, (Abb. 4412-1) physikalisch zu definieren und in Form einer Plutonium-Transfer-Matrix festzuhalten (Tab. 4412-1), es ist aber nicht möglich den Transferkoeffizienten (Übertragungskoeffizienten) gültige Zahlenwerte zuzuordnen.

Ihre Bestimmung sollte durch Tracerversuche in der Natur, oder an physikalischen Modellen vorgenommen werden. Für Plutonium kommen unter europäischen Verhältnissen ausschließlich nur Modellversuche in Frage. Eine anschließende Parameter-Identifikation würde dann bei Anpassung der Ergebnisse an das natürliche Ökosystem helfen.

Angenommen, daß man in erster Näherung das System als linear betrachtet, dann ergibt sich seine zeitliche Zuständänderung - hier die Änderung der Plutoniumverteilung in Komponenten - aus:

$$\dot{\varphi} = A\varphi + \psi \quad \{1\}$$

$\varphi$  = Vektor der Zustandsvariablen (Plutonium-Mengen in Einzelbereichen)

$\dot{\varphi}$  = Vektor der zeitlichen Abteilung der Zustandvariablen ( $d / dt$ )

A = Matrix der Transferkoeffizienten (Tab.: 4412-1)

$\psi$  = Vektor der Quellenfunktionen

Über das System gilt, daß die Summe der Zustandsvariablen, die in die Gleichung 1 eingehen, zu jeder Zeit gleich bleibt.

Stellt man die Plutonium-Bilanz für eine Einzelkomponente  $j$  auf, so erhält man einfach die Beziehung für die zeitliche Änderung der Nuklidkonzentration  $c$  im betrachteten Medium:

$$\dot{c}_j = \sum_i^j \lambda_{ij} c_i - \sum_i^j \lambda_{ji} c_j \quad \{2\}$$

Randbedingungen:

$$0 \leq \lambda_{ij} ; \lambda_{ji} \leq \infty ; 0 \leq c_i ; c_j \leq 1$$

Gleichzeitig gilt über die Nuklidkonzentration  $c$ :

$$c = m/V$$

$m$  = Kontaminationsmenge in der Komponente

$V$  = Umfang der Komponente (Einzelbereichs; je nach Medium-Volumen, Gewicht oder Fläche)

Für die Strahlenbelastung innerhalb einer Systemkomponente ist vornehmlich die Verweilzeit  $\tau$  von Plutonium von Interesse. Man gelangt zu ihr nach ähnlichen Bilanzbetrachtungen, die zur Gleichung 2 führten und bekommt schließlich:

$$\tau = \frac{m}{\frac{dm}{dt}} \quad \{3\}$$

$\tau$  ist offensichtlich am kürzesten in bodennaher Luft (für die Stratosphäre trifft es sicherlich nicht zu), etwas länger in natürlichen Wässern und am längsten im Boden. In der Regel zeigt der Boden eine hohe Sorption gegenüber Plutonium und wirkt als natürlicher Auffänger von Plutonium aus Luft und Wasser.

Um - trotz fehlender Daten über Verweilzeiten und Übertragungskoeffizienten - einen quantitativen Einblick in das ökologische Verhalten von Plutonium zu gewähren, lassen sich Diskriminierungsfaktoren  $F_{ji}$  definieren, die die Plutonium-Konzentration der Rezipienten und die der Donoren ins Verhältnis setzt. Ihre Werte sind wieder in Matrixform in der Tab. 4412-3 angeführt. Zum Glück scheint der Plutonium-Pfad, der durch die biologische Kette zum Menschen führt, nicht besonders bedeutend zu sein:

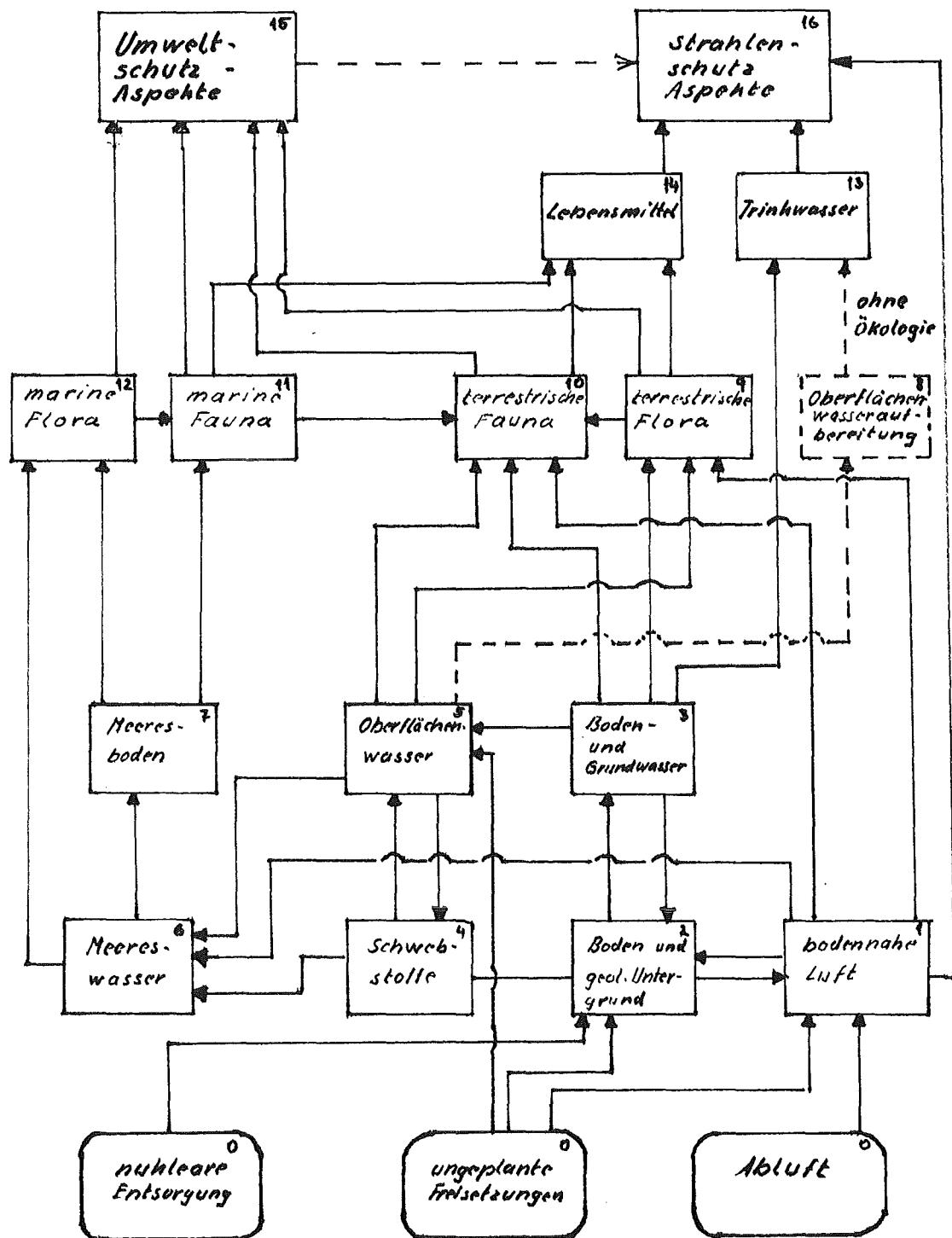
Aus 0,5 MCi des bei nuklearen Tests freigesetzten Plutoniums erreichten die Biosphäre etwa 0,3 MCi. Da man im menschlichen Körper z.Zt. etwa 5 pCi Plutonium - davon in seiner Lunge ca. 0,4 pCi - findet, ergibt sich für den Pfad ein Diskriminierungsfaktor von:

$$\frac{5 \cdot 3 \cdot 10^9 \cdot 10^{-12}}{0,3 \cdot 10^6} \left\{ \frac{\text{Ci}}{\text{man}} \right\} = 5 \cdot 10^{-8}, \text{ wenn}$$

man die Weltbevölkerung mit  $3 \cdot 10^9$  Menschen ansetzt.

Sieht man daher von den Vorgängen ab, die überwiegend biologischer Natur sind (und auch sonst den Biologen überlassen bleiben sollen), so müssen besonders über die Wirkung von physikalischen und chemischen Prozessen (z.B. Wasserbewegung, Dispersion, Löslichkeit und Adsorption), die auf den natürlichen Transportmechanismen einen Einfluß nehmen, neue fach-analytische (als Gegensatz zu dem hier dargelegten system-analytischem Zutritt) Untersuchungen angestellt werden; insbesondere über: Transport in bodennaher Luft, Löslichkeit in natürlichen Wässern sowie Transport und Akkumulation in der Lithosphäre. Erst dann werden genügende Informationen zur Verfügung stehen um fundierte Aussagen über das Verhalten von Plutonium in Ökosystemen zu wagen.

Abb. 4412-1 Fließschema der Plutonium-Pfade in einem Ökosystem, wenn die einzige Zufuhrquelle die Kernindustrie ist. Es wurde keineendlagerung bzw. Abgaben ins Meer oder Oberflächenwässer angenommen.



Tab.: 4412-2 Plutoniumkonzentration in verschiedenen Umweltproben als Folge des weltweiten Fallouts. Die Auswahl der Lokalitäten erfolgte nach Relevanz der Daten für die BRD.

gemessenes Medium	Lokalität und Zeit der Probeentnahme	Pu <sup>239</sup> -Konzentration	Literaturquelle
bodennahe Luft	Braunschweig 1971 Jahresmittel	$5,3 \cdot 10^{-3}$ f Ci/m <sup>3</sup>	(3)
Niederschlag	Leopoldshafen 1971	$2-78 \cdot 10^9$ f Ci/km <sup>2</sup>	(4)
Boden	München	$2,5 \cdot 10^{12}$ f Ci/km <sup>2</sup>	(5)
Grundwasser	Leopoldshafen 1971	$1,7-4,0 \cdot 10^3$ f Ci/l *	(4)
Schlamm	Leopoldshafen Hirschgraben, bzw. Altrhein 1971	$7-13 \cdot 10^3$ f Ci/g * (Trockengewicht)	
Oberflächenwasser	Leopoldshafen Hirschgraben 1971	$1,2-6,4 \cdot 10^3$ f Ci/l *	
Kiefernadeln	Leopoldshafen 1972	3,4 f Ci/g (Frischgewicht)	(6)
Mischbewuchs	Menzenschwand 1972	8,2 f Ci/g (Frischgewicht)	
Kartoffeln	Liedolsheim 1971	$0-5 \cdot 10^3$ f Ci/g (Frischgewicht)	
Äpfel	Liedolsheim	$4,9-25 \cdot 10^{-3}$ f Ci/g (Frischgewicht)	
Rinderleber	Linkenheim	$1,3-12,0 \cdot 10^{-2}$ f Ci/g (Frischgewicht)	
Rindfleisch	Linkenheim	$0-26 \cdot 10^{-3}$ f Ci/g (Frischgewicht)	
Rinderblut	Karlsruhe 1972	$2,0-4,5 \cdot 10^{-2}$ f Ci/g (Frischgewicht)	
Meereswasser	Weltmeer 1972	$3,5-30 \cdot 10^{-10}$ f Ci/m <sup>3</sup>	(7)
Sedimente am Meeresboden	Nord-Atlantik 1969 - 1971	$0,17-2,3 \cdot 10^{12}$ f Ci/km <sup>2</sup>	(8)
	Mittelmeer W von Korsika 1969	$3,4 \cdot 10^{11}$ f Ci/km <sup>2</sup>	
Fische	Atlantik 1970	$1-3 \cdot 10^{-3}$ f Ci/g (Frischgewicht)	(9)
Fischdarm		$2-67 \cdot 10^{-2}$ f Ci/g	
Muscheln		$1-2,6 \cdot 10^{-1}$ f Ci/g	
Zooplankton		1,5 f Ci/g	

\* Es handelt sich um Gesamt- $\alpha$ -Messungen. Daher Pu<sup>239</sup>-Gehalt sicherlich unter dem angeführten Wert.

Tab.: 4412-3 Matrix der Transfer-Koeffizienten bei Plutonium-Wanderung in einem Ökosystem. Die der Einzelkomponenten wurde der Abb. 4412-1 entnommen. Für die Transfer-Koeffizienten zwischen Donor-Komponente i und Rezipient-Komponente j wird die Bezeichnung  $\lambda_{ij}$  verwendet.

D O N O R E N		R E Z I P I E N T E N														Ausfuhr aus dem System 0	
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	
bodennaher Luft	1		$\lambda_{12}$				$\lambda_{16}$			$\lambda_{19}$	$\lambda_{110}$						$\lambda_{115}$
Boden	2	$\lambda_{21}$		$\lambda_{23}$		$\lambda_{25}$											
Grundwasser	3		$\lambda_{32}$			$\lambda_{35}$				$\lambda_{39}$	$\lambda_{310}$						$\lambda_{313}$
Schwebstoffe	4				$\lambda_{45}$	$\lambda_{46}$											
Oberflächenwasser	5				$\lambda_{54}$		$\lambda_{56}$		$\lambda_{58}$	$\lambda_{59}$	$\lambda_{510}$						
Meereswasser	6							$\lambda_{67}$					$\lambda_{612}$				
Meeressedimente	7											$\lambda_{711}$	$\lambda_{712}$				
Oberflächenwasseraufbereitung	8													$\lambda_{813}$			
terrestrische Flora	9								$\lambda_{910}$					$\lambda_{914}$	$\lambda_{915}$		
terrestrische Fauna	10													$\lambda$			
marine Fauna	11													$\lambda_{1014}$	$\lambda_{1015}$		
marine Flora	12											$\lambda_{1211}$			$\lambda_{1215}$		
Trinkwasser	13															$\lambda_{1316}$	
Lebensmittel	14																$\lambda_{1416}$
Umweltschutzaspekte	15																
Strahlenschutzaspekte	16																
Zufuhr in das System (Quellen)	0		$\lambda_{01}$	$\lambda_{02}$				$\lambda_{06}$									

Tab.:4412-4 Matrix der Diskriminierungsfaktoren  $F_{ji}$ . Sie setzt die  $Pu^{231}$ -Konzentration des Rezipienten zu der des Donors ins Verhältnis. Die Daten sind teilweise Literaturquellen [10,11] entnommen oder wurden abgeleitet <sup>+</sup>) Für die Resuspension stehen keine dimensionslose Zahlen zur Verfügung

Zitierte Literatur

- {1} Jakubick, A.T.  
Bestehende und potentielle Quellen für Plutoniumkontamination in  
der Umwelt.  
KFK 2050, 1974
- {2} O'Neill, R.V.  
Tracer kinetics in total ecosystems: A system analysis approach  
Nuclear techniques in environmental pollution, Vienna 1971
- {3} -  
Umwelt-radioaktivität und Strahlenbelastung  
Jahresbericht des Bundesministeriums den Inneren, 1971
- {4} Schüttelkopf, H.  
in: Jahresbericht der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit  
KFK 1565, 1971
- {5} Hardy E.P., Krey P.W.  
Determining the accumulated deposit of radionuclides  
by soil sampling and analysis  
LA-4756, 37-42, 1971
- {6} Frindik, O. Diehl J.F.  
Die Plutonium-Alpha-Aktivität von Lebensmitteln  
Deutsche Lebensmittelrundschau, in Vorbereitung
- {7} Dix G.P., Dobry T.J.  
Critical parameters in plutonium Safety Evaluations  
Health Physics, 22, 569-574, 1972
- {8} Noshkin V.E., Bowen V.T.  
Concentrations and distributions of long lived fallout radionuclides  
in open ocean sediments  
COO-3563-3

- { 9} Wong, K.M., Burke J.C. Bowen V.T.  
Plutonium concentrations in organisms of the Atlantic Ocean  
CONF-701106, 1970
- {10} Langham W.H.  
Plutonium distribution as a problem in environmental science  
LA -4756, 1971
- {11} Noshkin, V.E.  
Ecological aspects of plutonium dissemination in aquatic environments  
Health Physics 22, 537-549, 1972

4420 Technik der Störfallfolgenbeseitigung und Stilllegung

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

Im Zusammenhang mit der Eindämmung und Beseitigung von Störfallfolgen steht die Stilllegungsproblematik von Kernkraftwerken. Die Stilllegung und Endbeseitigung einer Anlage nach einem schweren Störfall stand zunächst im Vordergrund der Arbeiten. Hierfür wurde mit der Untersuchung der technischen Möglichkeiten zum Ausräumen eines durch einen schweren Störfall beschädigten Cores begonnen.

Außerdem hat der vom PNS betreute BMFT-Sachverständigenkreis "Störfallfolgenbeseitigung und Stilllegung" ein Arbeitsprogramm "Methoden und Verfahren zur Stilllegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen" beraten und auf dieser Grundlage dem BMFT einige erste Entwicklungsarbeiten, die von der Industrie durchgeführt werden, als vordringlich zur Förderung empfohlen. Diese Arbeiten sind in der Zwischenzeit in Angriff genommen worden. Ein wichtiges Ziel dabei ist es, rechtzeitig im Bereich der Industrie die entsprechenden Erfahrungen und Fähigkeiten auf diesem Gebiet zu entwickeln.

Es wird jedoch schon heute deutlich, daß sich auch ohne größere Störfälle bereits in naher Zukunft ein zunehmender Engpass bei der Dekontamination und endlagerfertigen Aufbereitung schwerer, aktivierter Reaktorkomponenten ergeben wird.

Die sichere Stilllegung von Kernkraftwerken kann im wesentlichen auf 2 Problemfelder zurückgeführt werden:

- Der Ausbau, der Transport, die Dekontamination und die Zerlegung und endlagerfertige Aufbereitung kontaminiert und aktiver schwerer Primärkreiskomponenten;
- Die Entfernung des aktivierte Stahlbetons in den Primärzellen eines Kernkraftwerkes sowie die endlagerfertige Aufbereitung der dabei anfallenden großen Betonmengen.

Es ist dabei eine wichtige Aufgabe, umgehend vorbereitende Schritte zur Projektierung einer Konditionierungsanlage zur Dekontamination, Zerkleinerung und endlagerfertigen Aufbereitung für große Reaktorkomponenten aus laufenden und stillzulegenden Kernkraftwerken in die Wege zu leiten. Für den Entwurf einer solchen Anlage wurden gemeinsam mit der Industrie erste Arbeiten begonnen.

4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte und mobile Systeme  
zur Schadenserfassung

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

1. Leichtes Manipulator-Fahrzeug "MF3" \*)

Das Fahrgestell und die zugehörige elektrische Steuerung befinden sich in einem fortgeschrittenen Bauzustand.

Die Einsatz-Steuerung mit Multiplexern für das komplette MF3-System zur Befehlsgabe, Informationsübermittlung und Energie-Versorgung für Fahrgestell, Manipulatoren, Fernseh-Kameras und andere Geräte sowie einfacher Ausrüstung zur Schadenserfassung wird in Kürze ausgeschrieben.

Im Zuge der Konstruktion der vorgesehenen leichten elektrischen Master-Slave-Manipulatoren "EMSM II" ließen sich alle wesentlichen Probleme klären.

Der Prototyp des elektrischen Master-Slave-Manipulatores "EMSM I" konnte mit einem Teil der für Versuchseinsätze notwendigen Ergänzungen ausgestattet werden. Vorhanden ist bereits der Hubwagen für die Slave-Einheit, die Stereo-Fernseh-Anlage, die Beleuchtungs-Einrichtung, ein großer Teil der mechanischen Werkzeuge sowie die zugehörigen Bereithalte- und Wechselvorrichtungen. Mit diesem Gerät sollen unter möglichst echten Bedingungen erste Erfahrungen im Arbeiten mit Manipulator-Fahrzeugen in Räumen gesammelt werden.

Es liegt jetzt der PNS-Arbeitsbericht Nr. 32/74 "Einsatzmöglichkeiten von ferngesteuerten mobilen Geräten in kerntechnischen Anlagen" vor, in dem auch Empfehlungen für vorsorgliche bauliche Maßnahmen gegeben werden, die eine effektivere Anwendung von derartigen Geräten erlauben würden.

---

\*) Siehe auch Halbjahresberichte 1972 bis 1974 des PNS,  
KFK 1787, 1859, 1908 und 2050

## 2. Mittleres Manipulator-Fahrzeug "MF2"

### 2.1 Einführende Bemerkungen

Das Manipulator-Fahrzeug MF2 steht nach eingehender Erprobung nunmehr beim Kerntechnischen Hilfszug zur Verfügung, so daß jetzt ein abschließender Kurzbericht über dieses Entwicklungs-Vorhaben an dieser Stelle angebracht ist.

Nach dem Konzept und den Spezifikationen sowie ausgehend von Konstruktionszeichnungen der GfK hat das Polytechnische Institut Dr.-Ing. W. Ständer, 75 Karlsruhe, als Hauptauftragnehmer das MF2-System fertigentwickelt und realisiert.

Das MF2 soll im Freien oder in Hallen verwendet werden, und zwar bei eventuellen Unfällen während der Beförderung von radioaktivem Material oder an kerntechnischen Anlagen.

Liegen am Unfallort stark erhöhte Strahlenpegel vor, so sind Manipulator-Fahrzeuge zur Bekämpfung der Unfallfolgen wichtige Hilfsmittel und können in der entscheidenden Phase der Aktionen unerlässlich sein.

### 2.2 Manipulator-Fahrzeug

#### 2.2.1 Haupteigenschaften

Es handelt sich um ein geländegängiges Kettenfahrzeug, das durch Elektromotoren angetrieben, von Blei-Akkumulatoren versorgt und über Funk nach Fernsehbildern gesteuert wird. Das Arbeitsgerät ist ein schwerer Kraft-Manipulator vom Typ SM5-D, der an einem schwenkbaren Turm montiert ist (Bild 4422-1).

Das Fahrzeug hat folgende Hauptdaten:

Gesamtgewicht	3,4 t
Fahrgestell-Länge	3,20 m
Verlade-Länge	3,88 m
Fahrgestell-Breite	1,54 m
Höhe bis Oberkante Schwenk-Neige-Kopf im Einsatz	2,05 m
Verlade-Höhe	1,53 m.

### 2.2.2 Ausrüstung

Der Manipulator verfügt über sechs verschiedene Bewegungsmöglichkeiten, jede durch einen Elektromotor angetrieben. In jeder Stellung des Armes sind Gegenstände bis zu 200 kg Gewicht manipulierbar und die Tragfähigkeit am Lasthaken beträgt 500 kp.

Am Heck befindet sich in einem Werkzeughalter eine Schraubzange, die gegen die normalerweise benutzte Mehrzweck-Parallelbackenzange ausgetauscht werden kann. Ferner lassen sich weitere sechs Spezialzangen, ein Greifer für 200 l - Abfallfässer sowie vier mechanische und vier elektrische Werkzeuge statt der Parallelbackenzange in den Unterarm einsetzen (Bilder 4422-7 bis -21).

Auf dem Turm des Fahrzeuges ist ein Schwenk-Neige-Kopf installiert, bestückt mit folgenden Geräten:

Einem Paar Stereo-Fernsehkameras zur Beobachtung der Arbeiten,

einer Mono-Fernsehkamera mit Zoom-Objektiv zur Orientierung auf größere Entfernung,

vier Scheinwerfern (zwei Fern-, zwei Breitstrahler), die auch den Nachteinsatz ermöglichen sowie

zwei Stereo-Mikrofone zur Geräuschübertragung.

Die Ausrüstung wird ergänzt durch

je einen Gamma-Dosisleistungsmesser und Temperaturfühler in der Turmfront,

einen Luftstaubsauger am Turmheck,

einen Probensammelbehälter auf dem hinteren Fahrzeugteil sowie

eine automatische Anhänger-Kupplung am Heck.

Es ist vorgesehen, wahlweise zusätzlich eine oder zwei Kleinbildkameras (für Stereo-Bilder) oder statt einer Kleinbild- eine Schmalfilm-Kamera auf dem Schwenk-Neige-Kopf mitzuführen. Schließlich sind noch je zwei Ösen vorn und hinten vorhanden, mit denen das Fahrzeug abgeschleppt oder an einen Kran gehängt werden kann.

### 2.2.3 Konstruktive Einzelheiten

Die Laufrollen des Fahrgestelles besitzen Drehstabfedern und sind einzeln aufgehängt. Die Federung kann wahlweise vor allem zum Arbeiten blockiert werden, um eine stabile Plattform zu erreichen.

Jede Kette wird durch einen Elektromotor über ein nachfolgendes Zweigang-Schaltgetriebe angetrieben. Die Geschwindigkeiten der Elektromotoren im Fahrgestell und Manipulator können mit Impulssteuerungen stufenlos verändert werden. Die Achsen der vorn angeordneten Antriebsräder können zur Verbesserung der Richtungsstabilität vor allem bei der Geradeausfahrt im Gelände mit Hilfe einer elektrischen Schaltkupplung verbunden werden.

Erfolgt an der Anhänger-Kupplung ein Zug, so werden die Bremsen der Fahrmotoren gelüftet, so daß das Fahrzeug im Falle eines Defektes ohne weiteres abgeschleppt werden kann.

Für die Befehlsübertragung und die Telemetrie stehen je eine Zeitmultiplex-Anlage mit 48 bzw. 16 Kanälen (PCM/FM) einschließlich Empfängern und 1 W-Sendern (0,75 m-Band,  $\pm 150$  kHz) zur Verfügung. Im gleichen Frequenzband arbeiten die zwei Bildsender mit 0,1 oder 10 W Sendeleistung und 5 MHz Bandbreite sowie der Stereotonsender mit 1 W Leistung zur Übertragung von Geräuschen und Ortung von Geräuschquellen (vgl. Bild 4422-2).

### 2.3 Hilfsfahrzeuge und Sonstiges

Zu dem kompletten System (Bild 4422-3) gehören ferner ein Leitfahrzeug, von dem aus das Manipulator-Fahrzeug gesteuert wird sowie ein Transportfahrzeug zum Verladen des MF2.

In dem Leitfahrzeug (Bild 4422-4) sind außer dem Bedienungsstand (Bild 4422-5) im Heck mit sämtlichen Bedienungsorganen, Anzeigegeräten und den Fernseh-Monitoren sowie den Empfangs- und Sendeeinrichtungen ein Ladegerät für die Akkumulatoren des Manipulator-Fahrzeuges, ein Satz Reserve-Akkumulatoren und die Spezial-

Werkzeuge für den Manipulator untergebracht. Der Steuerkasten mit je einem Bedienungshebel für das Fahrgestell und den Manipulator kann aus dem Steuerpult entnommen und von einem Operateur mit einem Gurt getragen werden. Hierdurch ist es möglich, das Manipulator-Fahrzeug auch unabhängig vom Leitfahrzeug zu steuern.

Das Manipulator-Fahrzeug kann mit eigener Kraft über zwei mitgeführte Rampen vom Transportfahrzeug herunter- bzw. hinaufgefahren werden (Bild 4422-6).

Das komplette System ist lufttransportfähig, entweder z. B. mit dem mittleren Transportflugzeug "Transall" C-160 (alle Fahrzeuge in einer Maschine bis 1750 km, Leitfahrzeug und Transportfahrzeug mit MF2 in je einer Maschine bis 3000 km) oder über kurze Strecken als Außenlasten mit dem mittleren Transport-Hubschrauber vom Typ CH-53 DG.

#### 2.4 Abschließende Bemerkungen

Aufgrund gesammelter Erfahrungen und zusätzlicher Anforderungen wird das "MF2" noch einige Verbesserungen und Ergänzungen erhalten.

Die Fertigung einer Einrichtung zum zusätzlichen seitlichen Ausfahren des Schwenk-Neige-Kopfes wurde an ein Industrie-Unternehmen vergeben. Ein Zusatzgerät für den Kraft-Manipulator mit einem Elektro-Schlagschrauber und automatischer Mutternzuführung zum schnellen Verschließen von 200 l - Abfallfässern ist in der Planung.

Die Arbeiten für Adaption einer 16 mm - Schmalfilm-Kamera zur Steuerung über Funk wurden angefragt.

Vom KTH wurden ausgedehnte Versuche durchgeführt mit dem Ziel durch zwei zusätzliche Fernsehkameras die Sichtverhältnisse beim Manövrieren in beengten Bereichen zu verbessern.

Manipulatoren und ferngelenkte Fahrzeuge bieten sich außer für kern-technische Zwecke auch für Arbeiten in anderen für Personal nicht oder schwer zugängliche Umgebungen sowie für Aufgaben an, die ein hohes Risiko mit sich bringen. Natürlich sind hierfür gemäß den andersartigen Bedingungen und Forderungen zweckentsprechende Abwandlungen gegenüber dem MF2 nötig.



Bild 4422-1: Mittleres Manipulator-Fahrzeug "MF2"  
mit schwerem Kraft-Manipulator "SM5-D"  
und Fernsehkameras, funkgesteuert;  
in Arbeitsstellung



Bild 4422-3: System "MF2"

Leitfahrzeug, Manipulator-Fahrzeug und  
Transportfahrzeug



Bild 4422-4: Leitfahrzeug für Manipulator-Fahrzeug "MF2"



Bild 4422-5: Bedienungsstand für Manipulator-Fahrzeug "MF2"



Bild 4422-6: "MF2" in Transportstellung und Transportfahrzeug

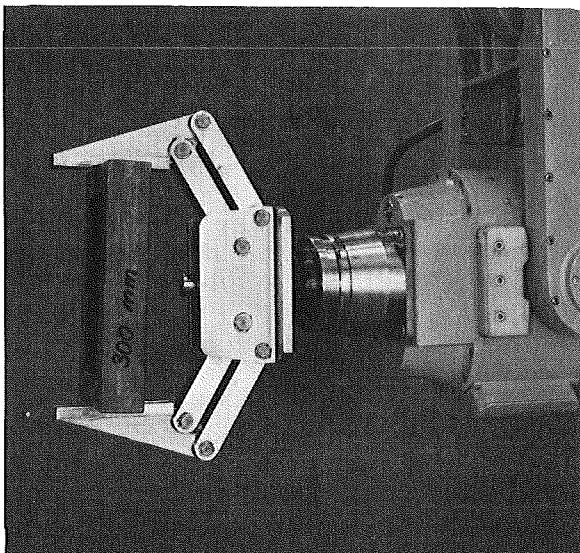


Bild 4422-7: Parallelbacken-Zange 300 mm

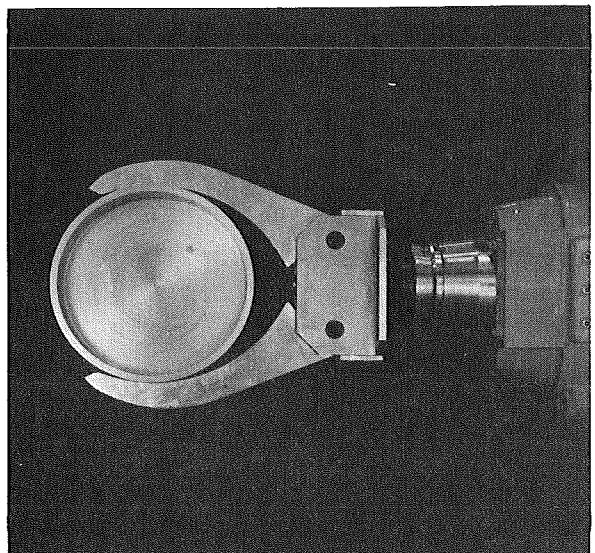


Bild 4422-8: Rohrzange 400 mm

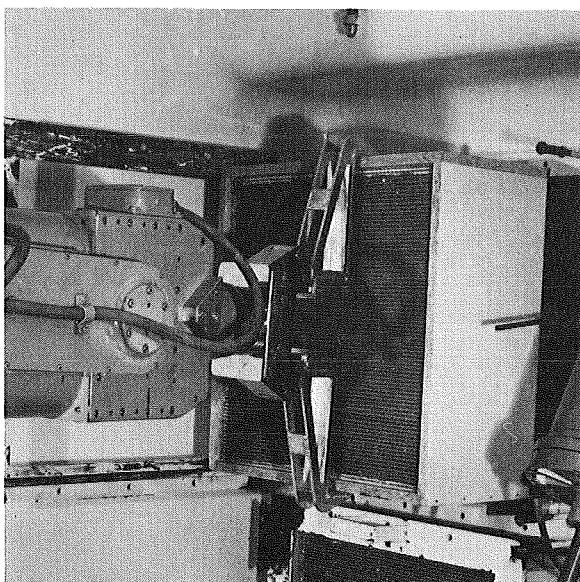


Bild 4422-9: Aufsteckbacken 660 mm

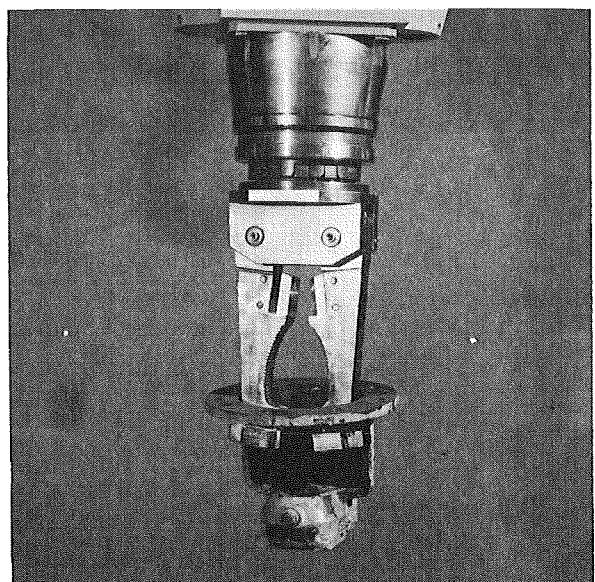


Bild 4422-10: Vielzweckzange, 6 Funktionen; beim Innenfassen

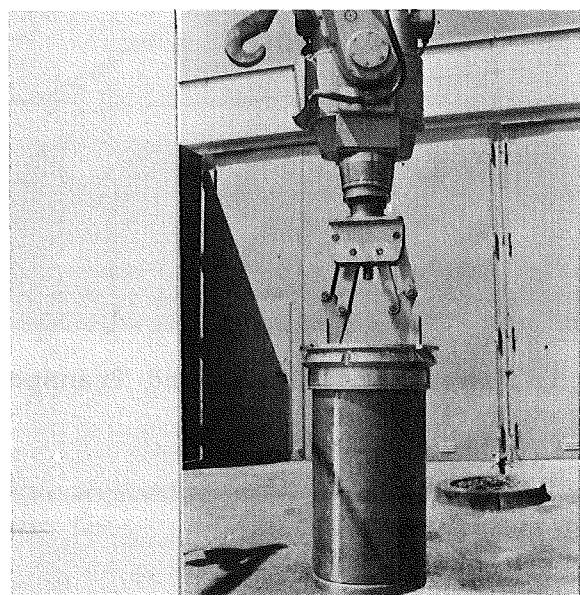
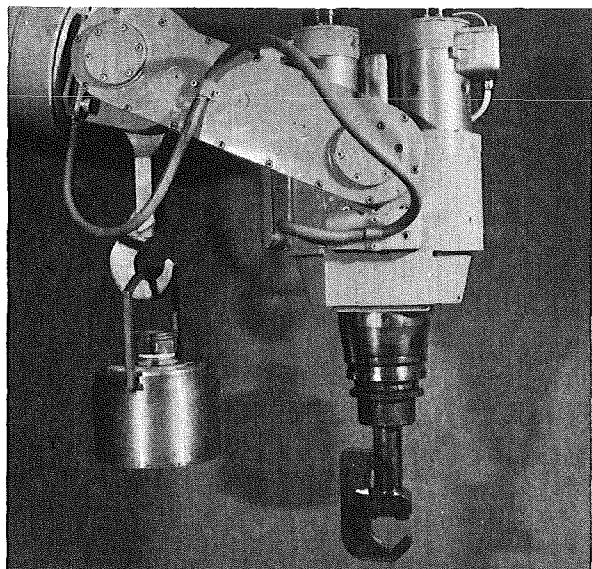


Bild 4422-11: Zange zum Innenfassen 470 mm



- 345 -

Bild 4422-12: Schulter-Lasthaken u. Greifhaken

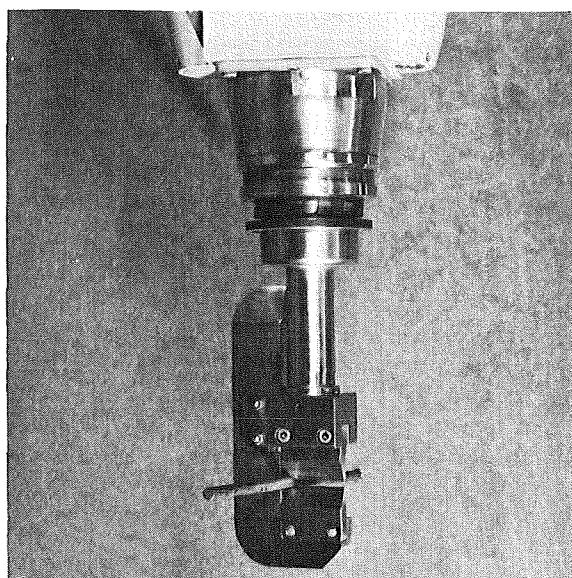


Bild 4422-13: Schneidhaken

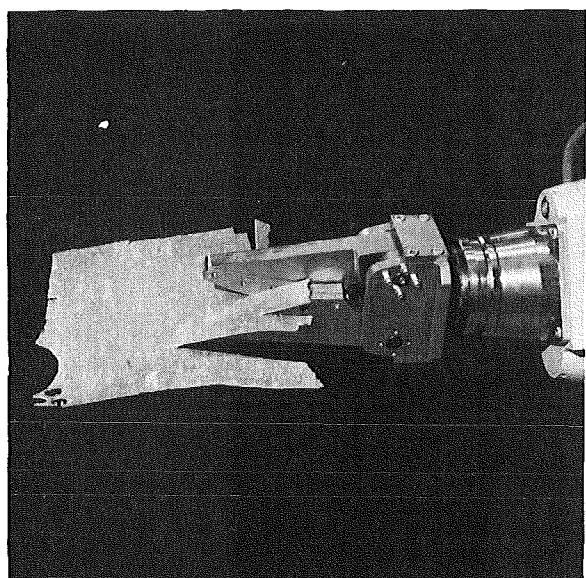


Bild 4422-14: Blechschere

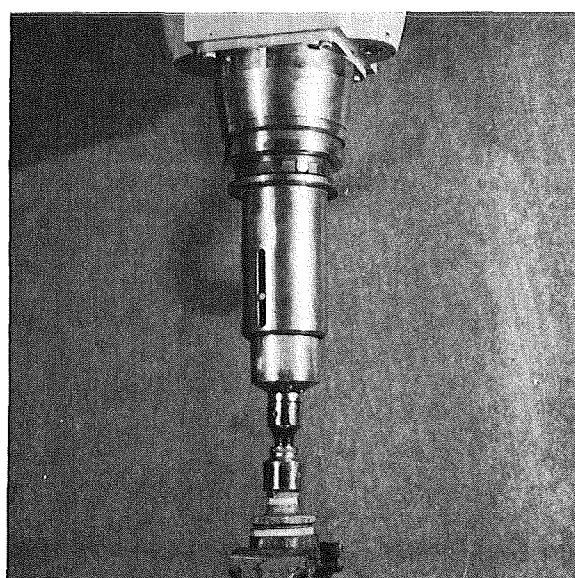


Bild 4422-15: Werkzeugträger  
mit Steckschlüssel

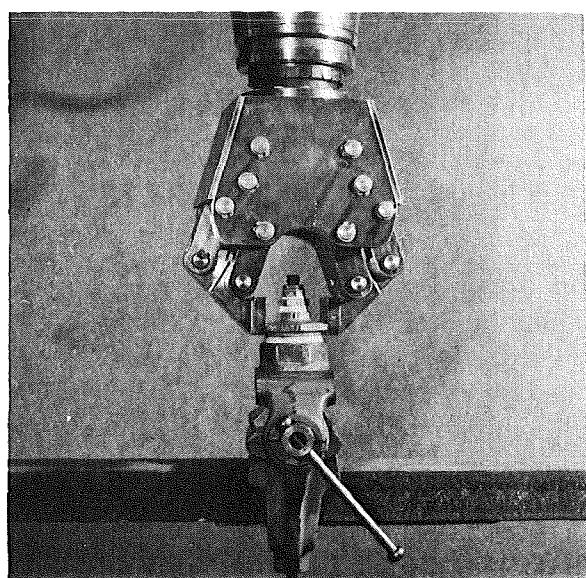


Bild 4422-16: Parallelschraub-  
Zange

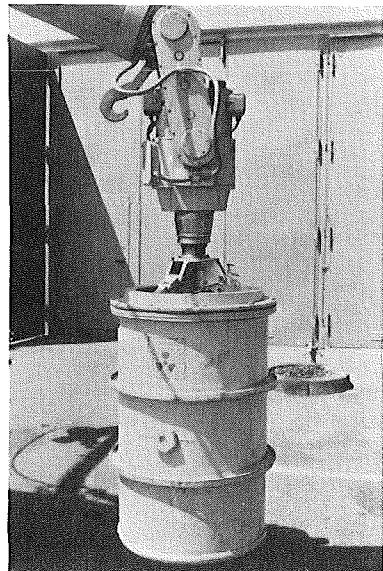


Bild 4422-17: Greifer für 200 l - Abfallfässer

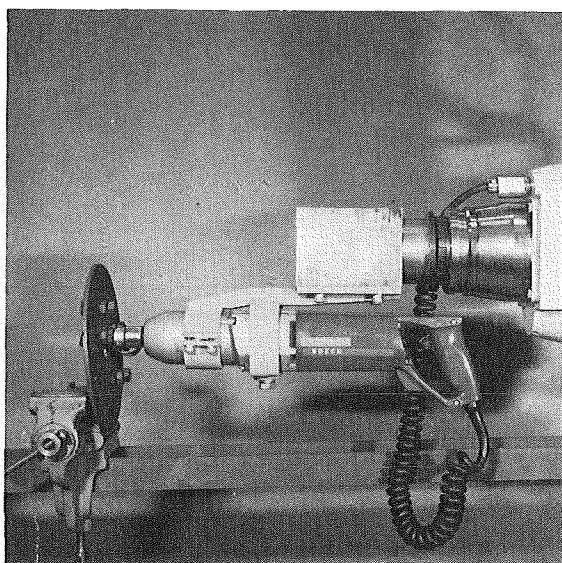


Bild 4422-18: Elektr. Schlagschrauber

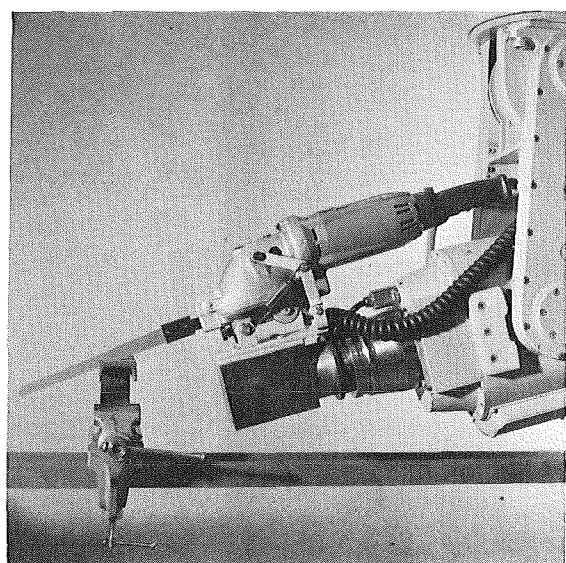


Bild 4422-19: Elektr. Stichsäge

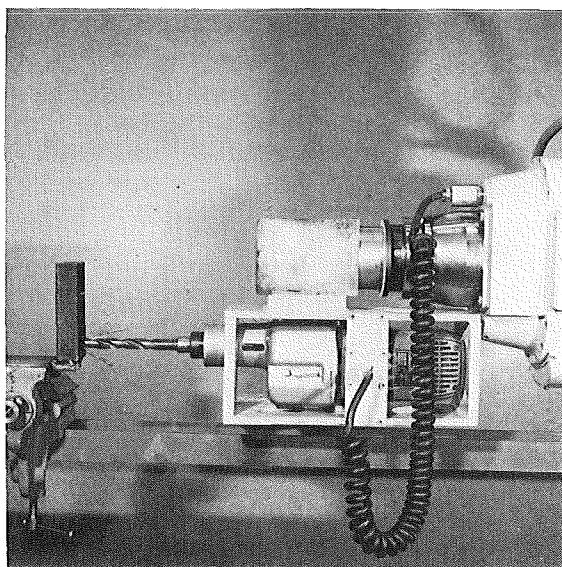


Bild 4422-20: Elektr. Bohrmaschine

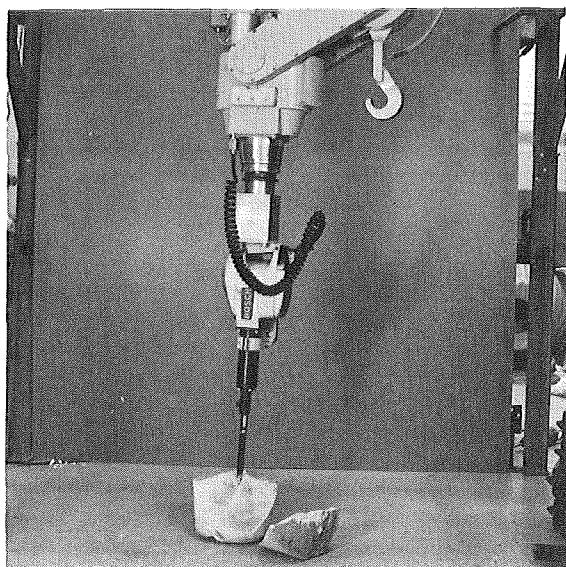


Bild 4422-21: Elektr. Schlaghammer

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1974

F. Hilbert,

"Erzeugung und Freisetzung von radioaktiven Krypton- und Xenon-Isotope durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000"

KFK 2035, August 1974

A. Bayer,

"Radiologische Belastung im Oberrheingebiet durch kerntechnische Anlagen"

KFK-Nachrichten 3/1974, 6. Jahrgang, S. 17 - 24

H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild,

"Nukleare Aerosole im geschlossenen System",

KFK 1989, Oktober 1974

1. Halbjahresbericht 1974 des Projekts Nukleare Sicherheit,

KFK 2050, August 1974

Vergleichsrechnungen mit den Programmen BRUCH-D und RELAP 3 zum Kühlmittelverlustunfall eines 1200 MWe-Druckwasserreaktors

Ext. Bericht 28/74-1, Sept. 1974

S. Malang,

HETRAP: A Heat Transfer Analysis Program,

ORNL-TM 4555

H. Werle

Untersuchungen zur Nachbildung von Kühlurmfahnen in Modellexperimenten,

KFK 1984, August 1974

H. Schüttelkopf, J. Fessler,

Schnelle Radiojodabtrennung aus Abwasserproben und Bestimmung der  $^{129}\text{J}$ -Konzentration durch Neutronenaktivierung,

KFK 2024, August 1974

Jahreskolloquium 1974 des Projekts Nukleare Sicherheit,  
KFK 2101, November 1974

W. Bähr, T. Dippel, M. Kienhöfer,  
Erfahrungen bei der Dekontamination von Reaktorbauteilen,  
KFK 2114, Dezember 1974

Projektberichte (beschränkter Verteiler)

H. Köhler,  
Einsatzmöglichkeiten von ferngesteuerten mobilen Geräten  
in kerntechnischen Anlagen,  
August 1974

G. Ondracek, D. Heine, G. Neuer,  
Möglichkeiten der spezifischen Wärme und der Schmelzwärme  
von Kernschmelzen,  
September 1974

Statusbericht über die theoretischen und experimentellen Unter-  
suchungen des PNS zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverlustunfall  
von LWR und zur Auswirkung von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit  
der Kernnotkühlung,  
September 1974

T. Dippel,  
Stofflich-funktionelle Analyse des Teilbereiches Dekontamination und  
Abfallbeseitigung aus dem Problemkreis "Eindämmung und Beseitigung der Folgen  
von Störfällen",  
September 1974

W. Hübschmann,  
Tagungsbericht, Physikalische und biologische Umwelteinflüsse durch  
Kühlsysteme und die Ableitung von Abwärme aus Kernkraftwerken,  
September 1974

D. Deuber,

Abscheidung von Jod mit diskriminierenden Probensammlern,  
Oktober 1974

H. Wünecke,

Rechenprogramme für die Berechnung großräumiger Ausbreitungen  
von radioaktiven Schadstoffen nach Reaktorstörfällen  
Oktober 1974

S. Vogt,

Ausbreitungsklimatologischer Standortvergleich  
November 1974

D. Smidt,

Die Behandlung fluiddynamischer Probleme mit der Methode der  
finiten Elemente,  
Dezember 1974

M. Fischer,

Statusbericht der Projektleitung über das 1. Halbjahr 1974  
des Projekts Nukleare Sicherheit,  
November 1974