

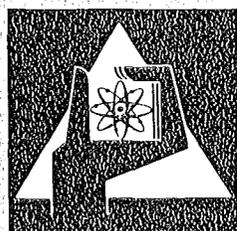
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

September 1975

KFK 2195

Projekt Nukleare Sicherheit

1. Halbjahresbericht 1975



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

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2195

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

7. Projektbericht / 1. Halbjahr 1975

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 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 Abfälle	ABRA
Abteilung Reaktorbetrieb und Technik	RBT
Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit	ASS
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik	LAF
Laboratorium für Isotopentechnik	LIT

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 7. Halbjahresbericht 1/1975 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 - 97 ) 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

FIRST SEMIANNUAL REPORT 1975

---

The 7th Project Report 1/1975 is a description of work within the Nuclear Safety Project performed in the first six month of 1975 in the nuclear safety field by GfK institutes and departements and by external institutions on behalf of GfK. It includes for each individual research activity short summaries (pp 49 - 97) on

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

This report was compiled by the project management.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Kurzfassungen	1
Summaries	49
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN	98
4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen	98
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	98
4112 Entwicklung von Abluftfilter für Wiederaufarbeitungsanlagen	105
4114 Abluftfilterung an Reaktoren, Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgasen. Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien	113
4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen und deren Reinigung	125
4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktorkühlmitteln	125
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	127
4132 Untersuchung der <sup>129</sup> J- Radioökologie	127
4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung kerntechnischer Anlagen	129
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen	130
4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen	136
4151 Untersuchung des Wärmeaustausches Fluß/Atmosphäre am Beispiel des Rheins unterhalb des Kernkraftwerkes Philippsburg als Beitrag zu Abkühlungsmodellen	136
4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf ihre Umgebung	141
4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	146
4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen	146

	<u>Seite</u>
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen	146
4214 Entwicklung eines radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasen- strömungen	167
4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	180
4220 Untersuchung der dynamischen Beanspruchung von RDB-Ein- bauten bei Kühlmittelverlustunfällen	188
4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR- Blowdown-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten	188
4222 Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynami- schen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktor- druckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR- Blowdown-Versuche	189
4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid- und strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB- Einbauten bei Kühlmittelverlustunfällen in LWR	190
4230 Notkühlung von LWR	193
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten und zur Auswirkung von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung	193
4234 Messung der Nachzerfallswärme von $^{235}\text{U}$ im Zeitbereich 10 - 1000 s	199
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittel- verlustunfall	203
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zir- caloy-Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlustunfall	203
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf- Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittel- verlustunfall	219
4235.3 Untersuchungen zur chemischen Wechselwirkung Brenn- stoff/Zircaloy-Hülle	239
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown- Phase eines Kühlmittelverlustunfalles Out-of-Pile-Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben	252

4237.1	Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalles. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminationslopp (DK-Loop) des FR2	264
4237.2	Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten PNS 4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (Einzelstäbe)	267
4238	Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung	270
4239	Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles	284
4240	Coreschmelzen von LWR	305
4241	Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO <sub>2</sub> -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung	
4242	Verhinderung der Bildung eines Knallgasgemisches nach Versagen der Notkühlung	315
4243	Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	318
4244	Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen	338
4300	AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	355
4310	Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen	355
4311	Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments	355
4312	Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase	366
4312	TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen	386

	<u>Seite</u>
4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG VON STÖRFALLFOLGEN	400
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	400
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	400
4412 Wanderung langlebiger Transurane im Boden und in geologischen Formationen	434
4420 Technik der Räum- und Demontagarbeiten	437
4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Still- legung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen	437
4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte und mobile Systeme zur Schadenserfassung	446

### Kurzfassungen

- 4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS-ANLAGEN
- 4110 Luftfilteranlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen  
(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

Die Prototyp-Störfall-Umluftfilteranlage wurde weiteren Tests unter verschiedenen Bedingungen unterzogen.

Dabei erbrachte die Filteranlage unter Heißluft von 160 °C sowie Heißdampf bis 1 at und Temperaturen zwischen 108 und 160 °C bei Verweilzeiten von 0,2 s entsprechend einem Durchsatz von 1200 m<sup>3</sup>/h auch noch nach 18 Tagen Dauerbetriebszeit Abscheidegrade gegen CH<sub>3</sub>J von  $\geq 99,98$  %.

Aufgrund anderer Untersuchungsergebnisse wurde das Adsorbiermaterial auf Austragung der Imprägnierung durch das Luft-Dampfgemisch untersucht.

Es zeigte sich keine meßbare Austragung (Nachweisgrenze  $0,6 \cdot 10^{-6}$  g Ag bei einem Einsatz von 32 g Sorptionsmaterial) bei unterschiedlichen Bedingungen bis zu Temperaturen von 200 °C in Heißdampf über eine Versuchsdauer von 48 h.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im nächsten Berichtszeitraum wird das Gas-Sorptionsteil eines Störfall-Umluftfilters auf sein Abscheideverhalten gegenüber Jod in Satt- und Heißdampf unter Druck entsprechend verschiedenen GaU-Bedingungen geprüft.

Die Materialuntersuchungen werden aufgrund der Rechenergebnisse theoretischer Betrachtungen bei höheren Temperaturen weitergeführt.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Untersuchungen zum hochimprägnierten Jod-Sorptionsmaterial (AC 6120/H<sub>1</sub>) für die GWA-Filter (GWA: Wiederaufarbeitungsanlage für 1500 t/jato Uran) wurden bei niedrigen NO<sub>2</sub>-Gehalten des simulierten Auflöserabgases einer GWA fortgesetzt. Bei erschöpfender Beladung des AC 6120/H<sub>1</sub> wurde bei den Versuchen mit 1 % NO<sub>2</sub> im Trägergas eine Umsetzung des Ag<sup>+</sup> der Imprägnierung von ca. 80 % erreicht. Trotz des Verbrauchs eines wesentlichen Anteiles der Imprägnierung wurden für eine Bett-Tiefe, die einer GWA-Filterstufe entspricht, in allen Versuchen Abscheidegrade > 99,99 % gemessen.

Die Prüfeinrichtung zur Untersuchung des Standzeitverhaltens und der Kapazität des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H<sub>1</sub> unter den realen Bedingungen des SAP Marcoule (Wiederaufarbeitungsanlage) wurde bis auf die Installation in der Wiederaufarbeitungsanlage fertiggestellt

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im 2. Halbjahr 1975 wird das Jod-Sorptionsmaterial in den Auflöser-Abgasen des SAP Marcoule unter Variation von Parametern, die den Auflöserbetrieb betreffen, untersucht. Ebenfalls erfolgt die qualitative und quantitative Nuklid-Analyse der schwebstoffförmig anfallenden Aktivität.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Der Einfluß von Lösungsmittelbeladung auf die Abscheideleistung der Jod-Filterkohle wurde für das Anlagenabluftfilter eines LWR-Kernkraftwerkes festgestellt. Die Beladung schwankte über die Tiefe der Aktivkohleschicht und lag zwischen 7,3 und 12,4 Gewichts-%. Die Abscheidegrade für <sup>131</sup>J in Form von CH<sub>3</sub>J wurden durch die Lösungsmittel-Adsorption erheblich erniedrigt. Ein einfacher Zusammenhang zwischen Lösungsmittelbeladung und Abscheidegrad von Teilbetten der Aktivkohleschicht ist nicht zu erkennen. Verschiedene Vorfilterkohlen zur Reduktion der Lösungsmittelbeladung wurden in eine Prüfstrecke eingebaut, die mit der Anlagenraumabluft eines LWR-Kernkraftwerkes beaufschlagt wird.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

An Aktivkohlebetten aus Vorkohle werden im Labor die Durchbruchzeiten und Massenübergangszonen von organischen Verbindungen gemessen, die als Filterschadstoffe in der Abluft von Kernkraftwerken identifiziert werden konnten. Außerdem wird der Abfall des Abscheidegrades von Aktivkohle zur Jodabscheidung bei Einsatz von verschiedenen Vorfilterkohlen während der Beaufschlagung in einem Kernkraftwerk untersucht.

### Identifizierung von Jodverbindungen in Reaktorabgasen

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Entwicklung eines diskriminierenden Jodsammlers wurde fortgesetzt. Es wurden verschiedene Materialien, die als selektive Sorptionsmaterialien für elementares Jod in Frage kamen, auf ihre Abscheideleistung für elementares Jod und Methyljodid getestet. AC 6111, imprägniert mit Kaliumjodid, erwies sich als das geeignetste der untersuchten Materialien.

Die Versuche zur Verflüchtigung und Abscheidung von hypoiodiger Säure wurden weitergeführt. Im Rahmen der Überprüfung eines in letzter Zeit veröffentlichten Verfahrens zur Herstellung von gasförmiger hypoiodiger Säure wurde eine durch AC 6120 schwer abscheidbare Jodkomponente gefunden.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Versuche zur Entwicklung eines diskriminierenden Jodsammlers werden innerhalb des Parameterbereiches fortgesetzt, der für die Untersuchung der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken von Bedeutung ist.

Die in den Versuchen zur Verflüchtigung und Abscheidung von hypoiodiger Säure gefundene schwer abscheidbare Komponente soll identifiziert werden.

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

4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktorkühlmitteln  
(J. Michael, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten

In 500-Studentests wurde die Metallabgabe von Fe, Cr, Ni bei verschiedenen Sauerstoffgehalten ermittelt. Oberflächenuntersuchungen wurden mit der Firma Dornier, Friedrichshafen, durchgeführt.

#### Erzielte Ergebnisse

Bei niedrigerem Sauerstoffgehalt des Druckwassers wurde eine um ca. 10 % geringere Metallabgabe nachgewiesen. Der sich aus der Oberflächenuntersuchung ergebende Oxidationszustand für das Incoloy betrug  $2,3 \pm 0,3$ , was  $Fe_3O_4$  und einem geringeren Anteil Eisenhydroxid entspricht.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die chemische Absenkung des Sauerstoffs mit Hydrazin und die Ermittlung der daraus resultierenden Metallabgabe ist vorgesehen.

Eine zweite Autoklavenanlage, sowie die Bestimmung des Feststoffgehaltes mittels streuoptischer Verfahren sind in Vorbereitung.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

4132 Untersuchungen zur  $^{129}J$ -Radioökologie  
(H. Schüttelkopf, ASS)

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

In Milchproben aus Friedrichstal wurde  $0,3 - 0,5 \text{ pCi } ^{129}J/l$  gemessen. In Schilddrüsenproben von Kaninchen wurden ca.  $10 \text{ pCi } ^{129}J/\text{Schilddrüse}$  gefunden. Die Sammlung aliquoter Anteile der niederaktiven Abwässer der WAK, von deren Destillation, aus den Klärbecken und vom Rhein und deren Vereinigung zu Monatsproben wurde in diesem Halbjahr begonnen. Erste Messungen der  $^{129}J$ -Emissionen der WAK wurden durchgeführt. Durch ca. 200 Proben zur  $^{129}J$ -Emission

wurden die ökologischen Arbeiten um 2 1/2 Monate verzögert. Eine ionen-sensitive Elektrode wurde zur Messung von  $^{127}\text{J}$  in Milch und Schilddrüsenproben erfolgreich eingesetzt.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

An Verbesserungen der Chemikalienvereinigung, der Herstellung von Eichpräparaten und Probenbehälter wird gearbeitet.

- 4134            Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung  
kerntechnischer Anlagen  
(A. Bayer, W. Engel, R. Kalckbrenner, M. Schückler, INR)

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Arbeiten zur Berechnung der radiologischen Belastung im Oberrheingebiet wurden fortgesetzt mit der Erweiterung des Rechenprogramms um ein Unterprogramm, das die Wechselwirkung von im Flußwasser gelösten Radionukliden mit den Sedimenten und Schwebstoffen beschreibt. Für die Berechnung der altersabhängigen Dosisfaktoren wurde eine Parametersammlung angelegt, welche die altersabhängigen Organgewichte sowie den Verbrauch der wichtigsten Grundnahrungsmittel beinhaltet. Ebenso wurden die natürlichen altersabhängigen Eintrittswahrscheinlichkeiten für die verschiedenen Krebserkrankungen entwickelt. Die Datensammlung wurde ausgedehnt auf Freisetzungsraten von schweren Radioisotopen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Für die nahe Zukunft ist die Vervollständigung der altersabhängigen Dosisfaktoren und die Berücksichtigung von Aktivierungsprodukten vorgesehen.

- 4140            Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer  
Anlagen  
(R. v. Ammon, W. Weinländer, E. Hutter)

#### Durchgeführte Arbeiten

Zwei Gasreinigungsschritten, die der Tieftemperatur-Rektifikation des Abgases aus Wiederaufarbeitungsanlagen zum Zweck der Edelgasabtrennung vorgeschaltet

werden, wird intensive Aufmerksamkeit gewidmet:

- a) Der katalytischen Reduktion von  $O_2$  und  $NO_x$  mit  $H_2$ ;
- b) Der adsorptiven Abtrennung von  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $NH_3$  und Rest- $NO_x$  an Molekularsieben.

Zur Erprobung beider Verfahren im Labormaßstab werden Teststände mit einem Durchsatz von  $1 \text{ Nm}^3/\text{h}$  eingesetzt. Während die Apparatur zum Testen der Effektivität von Katalysatoren fertiggestellt ist, befindet sich die Adsorptionsapparatur in der Konstruktion.

Nach der Vergabe der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage an eine Industriefirma wurde die Komponentenberechnung durchgeführt und mit der Konstruktion begonnen.

#### Erzielte Ergebnisse

Eine Literaturstudie über die adsorptiven Eigenschaften von Molekularsieben ergab, daß die Trennung der Gase  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $NH_3$  und  $NO_x$  von den Edelgasen, insbesondere von Kr möglich sein müßte, da Kr wenigstens 100 mal schlechter als die genannten Gase von Molekularsieben des Typs 5A festgehalten wird.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nach Fertigstellung beider Teststände einschließlich der erforderlichen Analytik soll ein umfangreiches Versuchsprogramm durchgeführt werden

- a) zur Auswahl des effektivsten Katalysators und zu dessen Empfindlichkeit gegenüber den Katalysatorgiften Jod und TBP;
- b) zur dynamischen Koadsorption von  $CO_2$ ,  $NH_3$  und  $NO_x$  in Gegenwart eines großen  $H_2O$ -Überschusses.

Das Verfahrensschema wird im Hinblick auf das Regelkonzept und die Störfallbetrachtung z.Z. überarbeitet. Der Einfluß der zusätzlichen Wärmequellen durch Kr 85 in einer mit Aktivität beaufschlagten Anlage auf das interne Konzentrationsprofil der Trennsäulen wird betrachtet. Die Versorgungseinrichtungen für die TTR-Anlage und die  $CO_2$ - und  $H_2O$ -Entfernung werden beschafft.

- 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)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Gemeinsam mit der Firma Grün und Bilfinger, Mannheim, die den Meßmast im Rhein fertigte und montierte, konnten zwei Mängel beseitigt werden.

1. Das bei Eisgang auf dem Rhein aus statischen Gründen notwendige Hochziehen des Pontons (= Schwimmkörpers) aus der Wasserlinie ließ sich bislang nicht bei allen Wasserständen durchführen. Durch Einbau von Zugösen am Dalben und Umlenkrollen am Ponton ist dies jetzt unter allen Bedingungen möglich. Der Mißstand war offenbar geworden, als versucht werden sollte, die Ursache einer 2. Beanstaltung zu lokalisieren: Die Dämpfung des schwimmenden Gittermastes, bereits nach Abschluß der Montage an der oberen Toleranzgrenze, hatte im Betrieb soweit zugenommen, daß der Sondenträger wechselnden Wasserständen mit bis zu 20 cm Verzögerung nacheilte. Nach Einbau von Führungsrollen mit einstellbarer statt wie bisher fester Andruckkraft, sowie sorgfältigem Ausrichten einiger Stoßstellen im Gittermastaufbau stellte sich eine ausgezeichnete Beweglichkeit ein, so daß die Konstruktion dem Wasserstand millimetergenau folgt.

Allerdings wurden in Begleitung der mechanischen Arbeiten einige Kabel zerstört, so daß umfangreiche Reparaturarbeiten auch an den in der Folge ausfallenden Meßverstärkern notwendig wurden.

Die Erstellung des vollständigen Prozeßrechnerprogramms verzögerte sich zunächst durch mehrfache Hardwareausfälle, von denen Lochstreifenleser/Stanzer, Memory driver und Camac-Analog-Digitalwandler betroffen waren. Im Falle der A/D-Wandler wurden schließlich seitens der Herstellerfirmen mehrfach Konstruktionsänderungen vorgenommen, da die ursprüngliche Version einen Betrieb im recycling mode nur jeweils über Tage standhielt. Danach war die Verlässlichkeit hinreichend, um das Softwarepaket fertigzustellen und zu testen; für einen störungsfreien Dauerbetrieb ist die Camac-Ausfallrate indes noch unbefriedigend hoch.

Die bisherigen Überlegungen zur weiteren Verarbeitung der Prozeßrechnerrohdaten wurden in dem regelmäßig tagenden Interessentenkreis diskutiert und werden in der vollen Fassung des Berichts erläutert.

#### Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Zunächst sind noch einige Schwachstellen im Bereich Zuverlässigkeit der Meßwerterfassung zu beheben. Parallel laufen Maßnahmen zur Übergabe der Prozeßrechnerdaten an die Großrechenanlage. Die Programmierarbeiten zur Datenorganisation dort sowie zu ersten Auswerteverfahren werden aufgenommen.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das Computer-Programm zur Berechnung des 3-dimensionalen Aufstiegs von Kühlturmfahnen wurde anhand der Messungen in Neurath /1/ weiter überprüft. Das von der Abteilung Datenverarbeitung und Instrumentierung neu entwickelte Interpolationsprogramm MEDINT erlaubt jetzt die Berechnung von Verteilungen verschiedener Parameter in beliebigen Schnitten durch die Kühlturmfahne.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Aus Gründen der Rechenzeiterparnis ist eine Vereinfachung des Programms erforderlich. Der erste Schritt ist die 2-dimensionale Version des Programms, die z.Z. getestet wird.

/1/ E. Baer et al.; Untersuchungen an einem Naturzug-Naßkühlturm  
Fortschrittsbericht VDI-Reihe 15, Nr. 5

- 4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN
- 4210 Untersuchung von LWR-Druckabbausystemen, Entwicklung und Anwendung von Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren
- 4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen  
(R.A. Müller, E. Wolf, IRE)

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Zeitraum von August 1972 bis Mai 1973 wurden im Rahmen der 1:1 Blowdownversuche im Kernkraftwerk Marviken (Schweden) in der Wasservorlage der Kondensationskammer experimentelle Untersuchungen des lokalen Druckpulsationsfeldes durchgeführt und die Massenströme sowie die Zusammensetzung des niedergeblasenen Dampf-Wasser-Luftgemisches gemessen. Zur Zeit wird im Hinblick auf die beobachteten Schwingungsphänomene das System auf mögliche Eigenschwingungen untersucht. Die bisher unter vereinfachenden Annahmen gewonnenen Ergebnisse deuten darauf hin, daß Eigenfrequenzen des Systems im Bereich der von der Wasservorlage ausgehenden Erregerfrequenz liegen. Eine Schlüsselrolle nimmt dabei die Schallgeschwindigkeit ein, die in einer Zweiphasenströmung wesentlich von der Gemischzusammensetzung abhängt und im Verlauf des transienten Blowdown-Versuchsablaufes das System in eine Resonanz hineinziehen kann.

In Ergänzung zu den theoretischen Untersuchungen wird in Zusammenarbeit mit dem Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe ein Infrarot-Absorptionsmeßverfahren entwickelt, das zur kontinuierlichen Bestimmung der Massenströme und der Gemischzusammensetzung in Zweiphasenströmungen bei Blowdown-Experimenten dienen soll. Es bietet durch hohe Ansprechempfindlichkeit und gutes zeitliches Auflösungsvermögen den Vorteil, daß auch Massenstrom- und Dichteschwankungen, die z.B. durch Druckpulsationen ausgelöst werden, erfaßbar sind.

Die Auswertung der im Oktober 1974 im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL durchgeführten Messungen des durch die Dampfkondensation induzierten Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage und der entsprechenden dynamischen Reaktion des Sicherheitsbehälters wurde weitergeführt. Als Resultat der bisher ausgewerteten Abblaseversuche Nr. 67 und 68 ergab sich, daß die während des

Abblasevorganges in der Nähe der Kondensationsdüsen entstehenden Druckwellen sich in den beiden Umfangsrichtungen durch die Wasservorlage fortpflanzen. Durch die Überlagerung dieser Wellen werden stehende Druckwellen mit diskreten Frequenzen und einer festen Anzahl von Schwingungsbäuchen und Knoten am Umfang der Kondensationskammer induziert. Die großflächig wirkenden Druckkräfte der Schwingungsbäuche haben zur Folge, daß trotz der kleinen mittleren Amplitude der Druckwellen (im Bereich einiger Hundertstel bar) erzwungene Schwingungen der Kugelschale des Sicherheitsbehälters mit meßbaren Auslenkungen (im Bereich einiger Zehntel Millimeter) induziert werden. Der Bildungsvorgang der stehenden Druckwellen in der Wasservorlage wurde mit einer Gleichung beschrieben, deren Resultate mit den Meßresultaten gut übereinstimmen.

Bei den begleitenden Rechnungen hinsichtlich der Containment-Struktur war wegen des komplizierten Schwingungsverhaltens von zylindrischen und kegelförmigen Schalen des Containments eine weitere Verfeinerung der Diskretisierung erforderlich. Sie war möglich durch den Übergang auf das verbesserte Finit-Element-Programm STRUDL-DYNAL mit neuen finiten Elementen. Die neuen Ergebnisse - Eigenfrequenzen und Eigenschwingungsformen - stimmen zum Teil recht gut mit den vorigen überein, haben aber auch zum Teil große Abweichungen. Aus diesem Grunde werden die transienten Rechnungen zunächst zurückgestellt; sie sind für das kommende Halbjahr geplant.

Seit Juni d.J. werden von der Fa. KWU in Großwelzheim Kondensationsversuche zur Bestimmung der dynamischen Beanspruchungen von Druckabbausystemen bei Kühlmittelverlustunfällen durchgeführt, an denen auch das IRE mit einer eigenen Instrumentierung teilnimmt. Das IRE-Versuchsziel sieht vor, Aussagen über die Störungsausbreitung (Geschwindigkeit und Abschwächung) sowie über mögliche Richtungsabhängigkeiten und die Quellstärke im Blasenkollabierungszentrum zu gewinnen.

Die Experimente werden in einem offenen Behälter ( $d_i = 7 \text{ m}\varnothing$ ) als Ein- oder Mehrrohrversuche ( $d_i = 600$  und  $300 \text{ mm}\varnothing$ ) durchgeführt, wobei als Parameter u.a. die Dampfmassenstromdichte und die Temperatur der Wasservorlage variiert werden. Das Versuchsvorhaben soll bis Anfang September 1975 abgeschlossen sein.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die vertiefte Auswertung der Marviken I-Meßergebnisse wird weitergeführt. Im Vordergrund stehen die möglichen Systemeigenschwingungen, die im nächsten Schritt weitgehend ohne Berücksichtigung der bisher zugrundegelegten Vereinfachungen untersucht werden sollen.

Hinsichtlich der Entwicklung eines Infrarot-Absorptionsmeßverfahrens wird der erste Versuchsabschnitt, der Parameteruntersuchungen bei stationären Verhältnissen umfaßt, in Kürze abgeschlossen. Daran anschließend sind im zweiten Versuchsabschnitt Untersuchungen bei instationären Strömungsverhältnissen vorgesehen. Gleichzeitig wird dem Marviken-Projektstab in Schweden ein Angebot für eine Meßeinrichtung unterbreitet und bei Angebotserteilung soll eine Meßapparatur bis zum Jahresende erstellt werden.

Die bisherige Auswertung der im Kernkraftwerk Brunsbüttel aufgenommenen Meßdaten wird vertieft fortgeführt, wobei insbesondere den aufgetretenen stehenden Druckwellen in der Wasservorlage besondere Beachtung geschenkt wird.

Ergänzend dazu sind weitere Berechnungen zum Strukturverhalten (Eigenschwingungen und Verformungen) mit einem verfeinerten Rechenprogramm geplant.

Die Messungen, die im Rahmen der Beteiligung an den Kondensationsversuchen der Fa. KWU in Großwelzheim durchgeführt werden, dauern voraussichtlich bis September d.J. an. Mit der Auswertung der Meßdaten soll daran anschließend begonnen werden.

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

### Durchgeführte Arbeiten

Eine erste Versuchsserie zur Erprobung und Weiterentwicklung der Markierungs- und Injektionstechnik für die Flüssig- und Gasphase im Bereich hoher Drucke und Temperaturen wurde an der Hochdruckautoklavenanlage von GfK-IRB (PNS 4123) durchgeführt. Außerdem wurde die Injektionseinrichtung an der Containmentanlage RS 50 des Battelle-Instituts beim Blowdown-Versuch C7 am 26. März erprobt.

Die Aktivierungseinrichtungen zur Herstellung der Flüssig- und Gastracer wurden fertiggestellt und bereits mit Erfolg eingesetzt. Der Aufbau der 12-Sonden-Geschwindigkeitsmeßeinrichtung ist abgeschlossen. Mit der Untersuchung der Einstreueffekte wurde begonnen. Die Wasser-Luft-Teststrecke wurde aufgebaut und Mitte Juni in Betrieb genommen. Erste Versuche zur Zweiphasengeschwindigkeitsmessung wurden durchgeführt.

#### Erzielte Ergebnisse

Die bisherigen Autoklavenversuche, der Funktionstest bei Battelle sowie die ersten Versuche an der Wasser-Luft-Teststrecke sind erfolgreich verlaufen. Als wesentliche Ergebnisse sind zu nennen:

1. Die Funktionstüchtigkeit der Gas- und Flüssig-Injektionseinrichtung wurde für den Druck- und Temperaturbereich ( $p = 1$  bis  $160$  bar,  $t = 20$  bis  $350$  °C) und damit für Blowdown-Bedingungen nachgewiesen.
2. Es konnten Injektionsfrequenzen von bis zu  $50$  Hz für beide Phasen erzielt werden.
3. Eine getrennte Messung der Geschwindigkeiten der beiden Phasen gas/flüssig wurde zwar bereits in den ersten Versuchen an der Wasser-Luft-Teststrecke erreicht, aber die Meßergebnisse lassen erkennen, daß eine weitere Verbesserung des Verfahrens durch eine Optimierung der Injektions- und Meßtechnik möglich ist.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Injektions- und Meßtechnik sollen weiterentwickelt werden. Die Autoklavenversuche werden weitergeführt. Parallel dazu werden die Versuche an der Wasser-Luft-Teststrecke fortgesetzt. Dabei sollen zunächst vor allem die Anlaufstrecken für die Flüssig- und Gastracer und die erforderlichen Meßstrecken untersucht werden. Eine Auswertung mittels Rechenprogrammen (SEDAP u.a.) soll bis Ende 1975 erfolgen.

4215            Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschie-  
dener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren  
(J. Reimann, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

In der Aufbauphase des Versuchsstandes wurde folgender Stand erreicht:

- Die Mischkammer mit der ein breites Spektrum von Dampf-Wasser-Gemischen bezüglich Dampfgehalt, Druck und Strömungsform zur stationären Simulation von Blowdown-Zuständen erzeugt werden soll, wurde mit auswechselbaren Einsätzen konstruiert und in die Fertigung gegeben.
- Der an die Mischkammer anschließende 8 m lange Teststreckenabschnitt wurde mit einem System auswechselbarer Rohrabschnitte für die 3 Nennweiten 20, 50, 80 entwickelt.  
Das Ausschreibungsverfahren für das gesamte Rohrleitungsnetz ist beendet und die Bestellung eingeleitet worden.
- Die Instrumentierung wurde weiter vervollständigt. Für die Massenstrom-Referenz-Messung wurde eine zu erwartende statistische Meßgenauigkeit von  $\pm 1,5 \%$  errechnet.
- Für die Identifikation der Strömungsform in der Teststrecke erscheint nach dem durchgeführten Literaturstudium eine Sonde am erfolgreichsten zu sein, die auf der Änderung der elektrischen Leitfähigkeit bei Phasenwechsel beruht.  
Versuche in einem Wasser/Luft-Kreislauf wurden vorbereitet, um in erster Linie die sichere Interpretierbarkeit der Meßsignale zu untersuchen. Mit der Entwicklung einer Sonde für die Druck- und Temperaturbedingungen des Versuchsstandes wurde begonnen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- Experimentelle Voruntersuchungen zur Erkennung der Strömungsform mit lokalen Leitfähigkeitssignalen.
- Entwicklung einer Meßsonden-Vorrichtung für 150 atü und 350 °C.

- 4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverlustunfällen
- 4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten  
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Arbeit konzentrierte sich auf die beiden folgenden Punkte:  
Erstellung eines Versuchsprogrammes für den HDR und festigkeitsmäßige Auslegung des Kernmantels.

#### Erzielte Ergebnisse

Erstellung eines Versuchsprogramms:

Als Basis für das Blowdown-Versuchsprogramm am HDR wurde ein Referenzversuch festgelegt, der dem Blowdown eines typischen Druckwasserreaktors (Bruch im kalten Strang) am nächsten kommt. Darauf aufbauend wurden die Daten für die anderen Versuche so geändert, daß - soweit das möglich und absehbar ist - entweder nur der Druckabfall im unterkühlten Bereich, oder nur der transiente Massenstrom im Blowdownstutzen, oder nur die Größe der Ringraumbereiche, in denen Sieden zu erwarten ist, variiert wurde.

Es wurde festgestellt, daß wegen des relativ kleinen Bruchstutzendurchmessers am HDR bei den Blowdowns relativ milde Kernmantelbeanspruchungen zu erwarten sind.

Festigkeitsmäßige Auslegung des Kernmantels:

Für die Berechnung der Kernmantelwandstärke wurde der Kernmantel als einseitig eingespannte, träge, biegesteife Schale behandelt. Die transiente Belastung wurde den Druckwellenausbreitungsrechnungen für den Ringraum entnommen, die vom LRA und IRS durchgeführt wurden. Die numerische Behandlung des Problems erfolgte mit STRUDL/DYNAL. Es ergab sich, daß bei einer Kernmantelwandstärke von nur 30 mm auch an der am höchsten beanspruchten Stelle die Fließgrenze gerade noch nicht überschritten wird. Bei diesem Rechen-

modell wurde die Rückwirkung der Kernmantelverformung auf die Druckwellenausbreitung nicht berücksichtigt. Abschätzungen anderer Art lassen vermuten, daß die tatsächlich zu erwartende dynamische Beanspruchung des Kernmantels wesentlich geringer ist. Wenn konstruktive Gründe dies nicht verbieten würden, wäre deswegen mit Rücksicht auf deutlichere Kernmantelverformungen eine erhebliche Reduktion der Wandstärke zu empfehlen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit den Vorausberechnungen der Blowdown-Versuche wird begonnen, sobald die hierfür erforderlichen Rechenprogramme implementiert sind. Die Versuche werden frühestens 1977 beginnen. Die zugehörige Auswertung wird nach Vorlage der ersten Versuchsergebnisse begonnen.

4222            Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche  
(K.D. Appelt, IRE)

#### Durchgeführte Arbeiten

Während des Berichtszeitraumes wurde für die Messungen am HDR ein Instrumentierungsplan ausgearbeitet. Mit der Untersuchung geeigneter Meßverfahren wurde begonnen.

#### Erzielte Ergebnisse

Die Prototypaufnehmer wurden bestellt. Aufgrund langer Lieferzeiten liegen konkrete Ergebnisse noch nicht vor.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nach Lieferung der Prototypaufnehmer werden die geplanten Versuche durchgeführt. Die weiteren Arbeiten werden sich auf die Auswahl, Entwicklung und Untersuchung von Prototypaufnehmern konzentrieren. Ein beheizbarer Druckbehälter, mit dem man die zu erwartenden Versuchsverhältnisse weitgehend simulieren kann, soll entwickelt werden. Die Bereitstellung einer zweckentsprechenden, optimierten Instrumentierung wird als erstes Teilziel angesehen.

- 4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid- und strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverlustunfällen in LWR  
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

### Einleitung

Das Vorhaben umfaßt die begleitenden theoretischen Arbeiten zu den HDR-Blowdown-Versuchen (PNS 4221, PNS 4222), insbesondere die Entwicklung fluidstrukturdynamischer Codes zur Berechnung von Blowdown-Vorgängen insoweit, als sie zur Bestimmung der maximalen Beanspruchung des Kernmantels von Bedeutung sind. Diese Arbeiten waren früher unter PNS 4212 begonnen worden.

### Durchgeführte Arbeiten

Das in Los Alamos (IASL) entwickelte Programm YAQUI zur Berechnung zweidimensionaler transienter Strömungen wurde übernommen. Es wurde auf PL/1 umgestellt und als REGENT-Subsystem verfügbar gemacht.

Testrechnungen wurden erfolgreich durchgeführt. Eine Vergleichsrechnung mit REXCO wird vorbereitet. Für eine Erweiterung von YAQUI auf Probleme in nicht-rechteckiger Berandung und mit variabler Strömungskanalattiefe wurden die erforderlichen Planungen durchgeführt. Ein Schalenmodell (statisch, linear-elastisch, biegeschlaff) wurde formuliert und geprüft. Es wurde erkannt, daß die Biegesteifigkeit berücksichtigt werden muß. Es wurde daher ein weiteres Schalenmodell unter Einbeziehung von Biegesteifigkeit und Tragheit formuliert. Dabei wurde weitgehend von analytischen Ansätzen Gebrauch gemacht. Vergleiche dieses Modells mit STRUDL-DYNAL-Rechnungen ergaben Übereinstimmung in den Eigenfrequenzen und Schwingungsformen.

### Erzielte Ergebnisse

- Der zweidimensionale Fluiddynamikcode YAQUI ist (bis auf die graphische Ausgabe) einsatzbereit.
- Die modelltheoretische und mathematische Formulierung eines mit der Fluid-  
dynamik zu koppelnden Schalenmodells liegt vor.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die graphische Ausgabe für YAQUI wird ermöglicht. Nicht-rechteckige Bearbeitungen des Strömungskanals werden realisiert. Die Erweiterung auf 2 1/2 Dimensionalität (Vorbedingung für die Koppelung mit der Strukturdynamik) wird in Angriff genommen. Das schalentheoretische Modell wird als ein Rechenprogramm verfügbar gemacht.

- 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 Systemkern von SSYST wurde der IBM 370 besser angepaßt, so daß die Rechenkosten deutlich gesenkt werden konnten.
- Das Programm WAK zur Berechnung der Thermo- und Fluidodynamik im Unterkanal während der Flutphase wurde als Modul verfügbar gemacht.
- Der Modul STADEF wurde fertiggestellt. Er führt die Dehnungsanalyse des Hüllrohres zweidimensional durch.
- Der Modul ZIRKOX berechnet die Oxidation des Hüllrohres.

Zur Erweiterung und Verbesserung des Programmsystemes wurden Voruntersuchungen zur Statistik des Hüllrohraufblähens, zur verbesserten Darstellung der Stoffgesetze und zur Thermohydraulik während der Flutphase durchgeführt.

Anwendungsrechnungen wurden mit RELAP und SSYST für das Projekt 4236 durchgeführt. Ebenso für ein "Standard Problem" der USNRC.

#### Erzielte Ergebnisse

Alle für die erste Version von SSYST vorgesehenen Moduln sind fertiggestellt.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im nächsten Halbjahr ist vorgesehen, eine umfangreiche Parameterstudie mit SSYST durchzuführen.

4234 Bestimmung der Nachzerfallswärme von U-235  
(K. Baumung, INR)

#### Zielsetzung des Forschungsvorhabens

Die Nachzerfallswärme von U-235, die einen der wesentlichen Unsicherheitsfaktoren bei der Beschreibung des Kühlmittelverluststörfalls (KVS) darstellt, soll zur Absicherung der verfügbaren Daten im Zeitbereich von etwa 10 - 1000 sec kalorimetrisch gemessen werden.

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Es wurde eine Literaturdurchsicht über bisher veröffentlichte Werte der Nachzerfallswärme und mögliche Meßmethoden durchgeführt. Dabei kommt man zu folgendem Ergebnis:

Berechnungen der Nachzerfallswärme aus Nukliddaten sind unter sich konsistent, weichen aber von  $\beta$ - bzw.  $\gamma$ -Einzelmessungen der Energiefreisetzung zum Teil stark ab, was auch für diese untereinander gilt. Die einzige kalorimetrische Bestimmung, die bisher auch für kürzere Abklingzeiten (ab 70 sec) von M. LOTT et al. (1973) durchgeführt wurde, gilt als eines der genauesten Ergebnisse. Sie weist aber stark darauf hin, daß die ANS-5.1-Standardkurve und auch eine aus allen 1973 verfügbaren  $\beta$ - und  $\gamma$ -Einzelmessungen angepaßte Kurve im für die KVS-Analyse wichtigen Zeitbereich von einigen 100 s um etwa 20 bis 30 % zu hoch liegen. Es werden daher weitere Daten zur Klärung der Diskrepanzen benötigt.

Beim Vergleich der experimentellen Methoden zeigt sich, daß trotz der Schwierigkeiten bei der kalorimetrischen Messung von zeitlich schnell veränderlichen Wärmeleistungen dieses Verfahren wegen seiner Einfachheit, mit der es direkt die gesuchte Größe liefert, vorzuziehen ist. Daher wurde ein rechnergesteuertes adiabatisches Mikrokalorimeter konzipiert, das sich durch besonders kurze Einschwingzeiten auszeichnet. Damit wird es möglich sein, die Nachzerfallswärme kalorimetrisch erstmals ab etwa 10 sec nach Ende der Bestrahlung zu messen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Zunächst ist der Bau des Kalorimeters und der Bestrahlungseinrichtung geplant. Parallel dazu werden Steuer- und Auswerteprogramme für die Messungen erstellt.

- 4235 Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelyerlustunfall
- 4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlustunfall  
(M. Boček, <sup>V</sup>IMF II)

### Durchgeführte Arbeiten

Untersucht wurden:

- Die Temperaturabhängigkeit der Gesamtdehnung
- Die Geschwindigkeitsabhängigkeit der Streckgrenze bzw. der Fließspannung
- Das makroskopische Bruchverhalten
- Das Korngefüge nach der Verformung

Die Verformungsversuche wurden an Flachzugproben in Luftatmosphäre durchgeführt.

### Erzielte Ergebnisse

- Die Gesamtdehnung nimmt mit steigender Temperatur bei 900 °C zu und erreicht Werte von 100 - 150 %. Ein eindeutiger Zusammenhang zwischen Gesamtdehnung und Probenorientierung (Winkel zwischen Probenachse und Walzrichtung) läßt sich nicht feststellen.
- Der Geschwindigkeitsexponent  $m$ , als Maß für die Geschwindigkeitsempfindlichkeit der Fließspannung, erreicht im Temperaturbereich von 860 - 950 °C für Verformungsgeschwindigkeiten von  $\dot{\epsilon} = 10^{-4} \div 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  Werte, die über  $m = 0,3$  liegen. Messungen an Proben, deren Verformungsrichtung unter 45 ° zur Walzrichtung liegt, zeigen unter den oben genannten Versuchsbedingungen nur  $m$ -Werte bis 0,2, d.h. normalplastisches Verhalten.
- Die Temperatur bestimmt demzufolge die Superplastizität nur als notwendige Bedingung. Für das superplastische Verhalten sind darüber hinaus weitere Randbedingungen zu erfüllen. Neben der bereits bekannten Spannungs- (bzw. Verformungsgeschwindigkeits-) abhängigkeit ergeben sich in dieser Untersuchung auch Anisotropie-Effekte als mitbestimmend.
- Das makroskopische Bruchverhalten ändert sich um 860 °C von einem Bruch mit Einschnürung zu einem Bruch ohne Einschnürung bei höheren Temperaturen.

- Metallographische Gefügeuntersuchungen ergaben, daß Proben, die bei 600 °C verformt wurden, ein langgestrecktes Verformungsgefüge in der Zugrichtung aufweisen. Bei Proben, die oberhalb 860 °C verformt wurden, behielten die Körner ihre ursprüngliche Gestalt bei. Die auftretende Vergrößerung des Kornes läßt auf Kornwachstum schließen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Zur weiteren Untersuchung der oben genannten Probleme sind Zugversuche im Vakuum und Rohrrinnendruckversuche geplant.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die bereits berichteten Versuchsergebnisse der kinetischen Wasserdampf-Hochtemperatur-Oxidationsuntersuchungen an Zircaloy-4-Rohrmaterial bei 900 - 1300 °C wurden einer Überprüfung hinsichtlich maßgeblicher Zeitgesetzmäßigkeiten, Reaktionsgeschwindigkeits- und Diffusionskonstanten unterworfen und in den Rahmen international veröffentlichter Ergebnisse gestellt. Es ergab sich, daß die experimentellen Meßwerte sowohl der Sauerstoffaufnahme als auch der homogenen oxidativen Durchdringung durch ein parabolisches Zeitgesetz angenähert werden können. Die Berücksichtigung der mittleren Dicke der  $\alpha$ -Einwachsungen in die transformierte  $\beta$ -Phase ergab jedoch einen zusätzlichen Durchdringungsbeitrag, der mit Zeit und Temperatur stark ansteigt. Die Arrhenius-Auftragung der Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten ermöglichte die Berechnung einer Aktivierungsenergie von etwa 47 kcal/Mol (gegenüber 45,5 kcal/Mol nach Baker und Just), die Auftragung der mittleren Diffusionskonstanten gegen  $1/T$  eine Aktivierungsenergie von etwa 51 kcal/Mol, was in etwa der Sauerstoff-Diffusion in  $\alpha$ -Zirkon (ca. 41 - 51 kcal/Mol) entspricht. Auch sind die eigenen Versuchsergebnisse in guter Übereinstimmung mit einem Computerprogramm, das den zeitlichen Verlauf der Sauerstoffaufnahme, das Wachstum der Oxidschicht und  $O_2$ -stab.  $\alpha$ -Phase auf der Basis bekannter Diffusionskoeffizienten und Gleichgewichtskonzentrationen beschreibt. Die übrigen Aktivitäten waren vorbereitender Art und zielten auf Hochtemperatur-Oxidationsuntersuchungen innerhalb des FR2 sowie außerhalb des Reaktors mit nachgeordneter und überlagerter mechanischer Prüfung bzw. Beanspruchung. Erste Untersuchungen an innendruckbeaufschlagten Kap-

selproben ergaben an Stellen defekter, primär gebildeter Deckschichten spannungsbedingte, lokal verstärkte Oxidationserscheinungen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die zukünftigen Oxidationskinetischen Untersuchungen sind auf den Einfluß der Dampfströmungsgeschwindigkeit, des LOCA-typischen Temperatur-Zeit-Verlaufs und der der Oxidation überlagerten Zugspannung ausgerichtet.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Bei der Kernspaltung von Oxidbrennstoff wird Sauerstoff freigesetzt, der z.T. von den Spaltprodukten, z.T. von der Zry-Hülle abgebunden wird. Anhand thermodynamischer Daten des Hüllmaterial-Brennstoff-Spaltprodukt-Systems wurde die max. Oxidation der Hülle in Abhängigkeit des Abbrandes abgeschätzt.

Mit Zry-4-Hüllrohren, die mit  $UO_2$  unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt waren, wurden Experimente bis  $1200^\circ C$  durchgeführt, um den Einfluß des Sauerstoffpotentials des Oxidbrennstoffs auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-4 zu bestimmen.

#### Erzielte Ergebnisse

Die theoretischen Abschätzungen ergaben, daß bei der Verwendung von Pu-239 als spaltbares Isotop in LWR-Brennstoffen die für die Oxidation der Zry-Hülle zur Verfügung stehende Sauerstoffmenge größer ist als beim U-235, d.h. es kommt zu einer größeren fiktiven O/M-Erhöhung ( $M=U, Pu$ ) des Brennstoffs. Die praxisrelevanten O/M-Verhältnisse variieren, je nach Abbrand, zwischen 2.00 und 2.05.

Die Experimente mit den kurzen Brennstabsimulatoren zeigen, daß die mechanischen Eigenschaften von Zry-4 durch die chemische Wechselwirkung mit dem Oxidbrennstoff stark verändert werden. Das Ausmaß der plastischen Hüllrohrverformung ist vom O/M-Verhältnis des Brennstoffs abhängig. Bei  $O/M \geq 2.05$  kommt es bei Temperaturen zwischen  $800$  und  $1000^\circ C$  stets zum Bersten der Rohrproben.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- Systematische Untersuchungen des Einflusses des Sauerstoffpotentials des Brennstoffes und der Spaltprodukt-Konzentration auf das chemische und mechanische Verhalten des Zry.
- Ermittlung der Grenzwerte, oberhalb denen es zum Versagen der Hüllrohre kommt.
- Experimente mit kontinuierlicher Messung des Innendruckes der Rohrproben.

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 dem eindimensionalen Wärmeleit-Rechenprogramm RESIM wurde eine Empfindlichkeitsstudie hinsichtlich des Einflusses von Änderungen der Geometrie- und Stoffdaten auf die Simulationsqualität für den Brennstabsimulator mit  $\text{UO}_2$ -Ringpellets durchgeführt. Die Detailentwicklung der Brennstabsimulatoren wurde weitergeführt und in Vorversuchen erprobt; dazu gehören die Cosinus-Leistungserzeugung beim direkt beheizten Wärmeübergangs-Meßstab und dessen Instrumentierung mit Thermoelementen. Der Simulationsbrennstab mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -beschichteten  $\text{UO}_2$ -Ringpellets und alternativ mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Ringpellets wurde in weiteren Vorversuchen erprobt, und RESIM-Rechnungen für die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Alternative wurden durchgeführt. Außerdem wurden Rechnungen mit einem neu entwickelten Rechenprogramm AXIAL zum axialen Temperaturverlauf im Elektrodenübergangsbereich der Anschlußelektroden des Graphitheizers durchgeführt. Bei der Versuchsanlage wurden Detailprobleme weiterbearbeitet, wie z.B. die Wandheizstäbe der Teststrecke und die Saphirfenstereinheit für die optische Temperaturmessung der Hüllrohre. Das Experimentiergerüst wurde montiert und mit der Rohrmontage am Kondensationsbehälter begonnen. Die Druck- und Temperaturwechselbeanspruchung der Teststrecke wurde überprüft, und Detailkonstruktionsarbeiten wurden erledigt. Die Heizstromversorgung wurde ausgesetzt; das Meßwerterfassungssystem wurde ausgearbeitet und in Auftrag gegeben. Das "True Mass Flow Meter" zur Messung instationärer Zweiphasenmassenströme und die Einrichtung zur optischen Messung von Hüllrohrtemperaturen in der Teststrecke wurden weiterentwickelt, die Gamma-Dichtmeßeinrichtung wurde bestellt.

### Erzielte Ergebnisse

Die RESIM-Empfindlichkeitsstudie zeigte die außerordentlich gute Simulationsqualität des Stabes mit  $UO_2$ -Ringpellets und bestätigte die Richtigkeit des gewählten Brennstabsimulator-Konzepts. Die Stabentwicklung ist so weit fortgeschritten, daß mit der Prototyp-Fertigung begonnen werden kann. Der Simulationsbrennstab mit  $Al_2O_3$ -beschichteten  $UO_2$ -Ringpellets zeigte in einem Versuch einen elektrischen Durchschlag, dessen Ursache noch geklärt werden muß. Dagegen ist die Alternative mit  $Al_2O_3$ -Ringpellets, deren Simulationsqualität weniger gut ist, so weit entwickelt und in Vorversuchen erprobt, daß dieser Stab für den Einsatz zur Verfügung steht.

Für das "True Mass Flow Meter" muß bei der Eichung nur noch eine einzige Apparatekonstante ermittelt werden, so daß im Prinzip die Eichung auch mit einphasiger Strömung durchgeführt werden kann.

Die weiterführenden Versuche zur optischen Temperaturmessung der Hüllrohrtemperaturen in der Teststrecke bestätigen, daß eine Meßgenauigkeit von etwa  $\pm 3\%$  (bezogen auf Celsius-Skala) erreichbar ist.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Aufbauend auf den Vorarbeiten zum Auswertungsprogramm wird dieses und parallel dazu das Versuchsprogramm weiter bearbeitet. Der Aufbau der Versuchsanlage wird weitergeführt. Der Simulationsbrennstab mit  $UO_2$ -Ringpellets wird auf Fehlerursachen hin untersucht, und die Meßgeräte werden weiterentwickelt.

4237.1      Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalles. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2  
(E. Karb, L. Sepold, RBT)

### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im ersten Halbjahr 1975 waren die Arbeiten vorwiegend auf den Beginn der Versuche im FR2-Reaktor ausgerichtet. Die Vorbereitung gilt Versuchen mit zwei Stabtypen:

1. Versuche mit Nuklearstäben (verkürzte DWR-Ausführung).
2. Versuche mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (BSS), die mit dem Forschungsvorhaben PNS 4237.2 kombiniert sind.

Die Zielsetzung der BSS-Versuche ist im letzten Halbjahresbericht dargelegt worden.

#### 1. Versuche mit Nuklearprüflingen

Die Spezifikation für die Nuklearprüflinge konnte, wie geplant, Anfang dieses Jahres abgeschlossen werden. Die letzte dazu notwendige Arbeit war die Auslegung des Plenums.

Dabei mußte der zeitliche Verlauf des Druckes an der entstehenden Beule (Ballooning) im Stab im Vergleich zum DWR-Stab ermittelt werden.

Der Unterschied der beiden Stäbe liegt in der kürzeren Tablettensäule des Prüflings (rund 1/7 des DWR-Stabes) und in nur einem (oberen) Plenum gegenüber zwei des DWR-Stabes.

Es gelang, für den wichtigsten Zeitbereich des Versagensablaufs, nämlich ab etwa 1 Sekunde, eine gute Übereinstimmung zu erzielen. Ergebnis: Gleich großes Plenumvolumen wie im DWR-Stab. Die Rechenergebnisse konnten durch Gasströmversuche mit Helium und Argon unter den erwarteten Druckbedingungen im Stab erhärtet werden.

Daraufhin konnten die Prüflinge im Frühjahr bestellt werden. Sie sollen im Juli eintreffen.

Der erste Vorbestrahlungseinsatz zur Bestrahlung von sechs Versuchsstäben ist bereits fertiggestellt. Die Bestückung des Einsatzes mit Durchflußmesser, Thermoelementen und Vanadiumdetektor erfolgt zur Zeit. Die Erprobung des kompletten Vorbestrahlungseinsatzes im BE-Prüfstand des FR2 schließt sich unmittelbar an.

Die Einzelteile des Versuchseinsatzes (zur Aufnahme eines Stabes) befinden sich in der Fertigung. Am Programm für die Erprobung der Teile, u.a. bezüglich der Dichtheit, wird zur Zeit gearbeitet.

Im Rahmen der Arbeiten zum Sicherheitsbericht für die in-pile-Versuche mit bestrahlten Stäben wird zur Zeit die radiologische Belastung der Umgebung durch die Versuche unter verschiedenen Randbedingungen berechnet.

Die Erstellung von Soft- und Hardware zum Anschluß an das CALAS-Datenerfassungssystem findet zur Zeit statt. Unmittelbar daran schließt sich ihre Erprobung an.

Die augenblicklich durchgeführten Änderungen am Kreislauf zielen in erster Linie auf eine Verbesserung der Meßgenauigkeit hin. Unter anderem wurde die Blende zur Durchsatzbestimmung neu ausgelegt. Zur Zeit befindet sie sich in der Fertigung. Exakte Vermessung der Blende und ihre Eichung schließen sich an.

Zur Beschaffung einer Vorserie Thermoelemente für die Temperaturmessung der Stabhülle wurde eine Spezifikation erarbeitet. Der Aufbau der TE ergibt sich daraus wie folgt: Adern aus Ni/Cr-Ni mit isolierter Meßspitze und Edelmantel. Zwischenwerkstoff zur Vermeidung von Eutektiums-bildung mit dem Hüllwerkstoff Zircaloy sowie aus Gründen der Dampfverträglichkeit ist Platin. Das Platin soll als Hülse auf die TE-Meßspitze aufgehämmert werden. Erste Ergebnisse dazu werden noch erwartet.

## 2. Brennstabsimulatoren (BSS)

Die BSS selbst sowie der Stand der Arbeiten sind im folgenden Beitrag 4237.2 beschrieben.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Noch im 2. Halbjahr 1975 sollen die Versuche mit Nuklearstäben beginnen. Die ersten Versuche sollen mit unbestrahlten Stäben durchgeführt werden. 1976 sollen sie, evtl. schon mit bestrahlten Stäben, fortgesetzt werden. Voraussetzung dafür ist unter anderem die erfolgreiche Anschweißung der TE an bestrahlte Stäbe unter Heißen-Zellen-Bedingungen. Mit einer Konzeption dazu soll noch in diesem Jahr begonnen werden. Die Vorbestrahlung der Stäbe im FR 2 soll nach Plan im 2. Halbjahr 1975 beginnen und wird je nach Abbrandstufe bis über 2 Jahre dauern.

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

### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Auf der Basis eines zum Jahresbeginn vorliegenden Heizstabkonzeptes wurde ein Prototypheizstab entwickelt und angefertigt, die Konstruktion eines

kompletten Versuchseinsatzes für die Verwendung im DK-Loop des FR2 durchgeführt sowie die Einzelteile für die 1975 benötigten Einsätze beschafft. Eine 1. Serie von Heizstäben ist in der Fertigung.

Versuche zur partiellen Leistungsbestimmung am Heizstab sowie zur elektrischen Isolation des Heizleiters gegenüber der Stabhülle unter Versuchsbedingungen wurden durchgeführt und werden z.Z. ausgewertet.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im 2. Halbjahr 1975 werden in Kombination mit PNS 4237.1 die Vorarbeiten für die vorgesehenen in-pile-Versuche (Handling, Komponentenerprobung, Meßwertverarbeitung) sowie die Versuche zur Beurteilung der Bestimmung von unterschiedlich erzeugter Stableistung (nuklear, thermisch, elektrisch) im FR2 durchgeführt. Die Versuche dienen gleichzeitig der in-pile-Erprobung des Heizstabmodells und der Versuchsanordnung.

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

#### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Die Entwicklung von Fertigungsverfahren zur Herstellung der Brennstabsimulatoren wurde weitgehend abgeschlossen. Für die Verschweißung von Zircaloy<sup>-4</sup> und Inconel 600 hat sich in Vorversuchen das Sprengschweißen als erfolgreich herausgestellt. Ein Prototyp-Brennstabsimulator wurde bei voller Leistung getestet. Seine Funktion erwies sich als einwandfrei; Heizstab und Ringpellets ließen sich nach dem Versuch gut demontieren und wiederverwenden. - Die Planung des Versuchsstandes und der Stromversorgung wurde abgeschlossen. Die entsprechenden Montagearbeiten sind größtenteils beendet. Für die elektrische Beheizung der Brennstabsimulatoren wurde ein Gerät zur programmierbaren Leistungssteuerung gebaut und erprobt. - Die Röntgenanlage zur Erfassung des Aufblähvorganges der Zircaloy-Hülle wurde außerhalb des Versuchsraumes aufgebaut und in Betrieb genommen. Erste Probeaufnahmen erbrachten gute Ergebnisse.

- Der Entwurf des Quotientenpyrometers zur berührungslosen Messung der Hüllrohrtemperaturen an der aufblähenden Stelle wurde abgeschlossen. Mit dem Zusammenbau des Gerätes wurde begonnen, ein Versuchsaufbau zu dessen Funktionsprüfung und Eichung wurde vorbereitet. - Die Planung der Anlagen

für die Meßdatenerfassung und -übertragung wurde beendet. Die Meßdatenerfassungsanlage steht kurz vor der Auslieferung. Die Installation für die Datenübertragung zwischen Schaltwarte und dem Rechnersystem CALAS wurde fertiggestellt und getestet. - Die Erstellung von Rechenprogrammen zur thermischen Auslegung und experimentellen Überprüfung der Brennstabsimulatoren wurde abgeschlossen. Arbeiten zur Übernahme und Überprüfung von Teilen des Brennstabverhaltens-Codes SSYST wurden begonnen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Als wichtige Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- Herstellung und Instrumentierung von Brennstabsimulatoren
- Fertigstellung und Inbetriebnahme des Versuchsstandes
- Aufbau und Inbetriebnahme der Röntgenanlage an der Teststrecke
- Fertigstellung und Eichung des Quotientenpyrometers sowie Inbetriebnahme an der Teststrecke
- Inbetriebnahme des gesamten Meßdatenübertragungssystems
- Vorversuche zum thermischen Verhalten des Brennstabsimulators, zur Spaltgasströmung zur aufblähenden Stelle sowie zur Lokalisierung der aufblähenden Stelle
- Nachrechnung der Vorversuche mit dafür erstellten Rechenprogrammen
- Empfindlichkeitsstudie zum thermischen Verhalten des Brennstabsimulators mittels Wärmeleitprogramm
- Übernahme von Teilen des Brennstabverhaltens-Codes SSYST

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

#### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Der Versuchskreislauf wurde montiert und an die Versorgungsleitungen angeschlossen; Restarbeiten sind noch an der Instrumentierung und Isolierung durchzuführen. Ein Anschluß an die zur Heizung vorgesehenen Leistungsthyristoren wurde zum Prüfstand verlegt; für die Steuerung der Thyristoren in der Versuchsanfangsphase und zur Simulierung der Nachwärme wurde ein

Gerät gebaut und mit einem Lastwiderstand geprüft. Die schnelle Datenerfassung mit der unmittelbar vor der Auslieferung stehenden Anlage wurde software-seitig vorbereitet. Die Konstruktion der ersten Teststrecke für eine Anordnung aus 5 Stäben wurde fertiggestellt; das längsgeteilte Gehäuse und die Abstandshalter befinden sich in der Fertigung. Heizstäbe für die ersten Experimente wurden vom Hersteller geliefert und sind vermessen; zur Zeit läuft der verhältnismäßig zeitraubende Einbau von Thermoelementen in die Stabhülle. Versuche zur Befestigung von Blockadekörpern auf den Heizstäben wurden vorläufig abgeschlossen; nachdem Verbindungen einer Aufnahmebuchse mit dem Stab durch Hochtemperaturlötung und Sprengschweißen nicht zufriedenstellend ausfielen, wurde mit dem bisher besten Befestigungsverfahren durch Rundhämmern ein Probestab hergestellt, der in den nächsten Wochen einer Prüfung unter Betriebsbedingungen unterworfen werden soll.

Rechnungen zur Größe der axialen Komponente der Wärmestromdichte im Bereich der künstlichen Blockade ergaben, daß die Wärmestromdichte an der Staboberfläche sich bereits 10 mm hinter dem Blockadekörper mit weniger als 2 % Fehler bestimmen läßt.

Es wurde ein vorläufiges Versuchsprogramm aufgestellt.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Bis zur Fertigstellung der Teststrecke und der Heizstabinstrumentierung werden die Inbetriebnahmeprüfungen des Versuchskreislaufes, der Überwachungsinstrumentierung und der Datenerfassungsanlage durchgeführt.

Parallel dazu wird die Verzögerung einer Benetzung der Beobachtungs-Scheiben durch die Beheizung mit einem aufgedampften Metallfilm geprüft; eine Fortsetzung der Heizstabprüfung schließt sich an. Abhängig von der Verfügbarkeit der instrumentierten Heizstäbe sollen bis zum Jahresende zumindest die Experimente der ersten Versuchsgruppe mit glatten Stäben durchgeführt sein.

- 4240 Coreschmelzen von LWR
- 4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von  $UO_2$ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung  
(S. Hagen, RBT)

#### Durchgeführte Arbeiten

In Fortführung der im vorigen Halbjahresbericht beschriebenen Experimente wurden Abschmelzversuche an Einzelstäben in He und in Luft durchgeführt. Damit sollte das Verhalten in den beiden Grenzfällen der Reaktorunfallatmosphäre, d.h. in nicht und in stark oxidierender Umgebung, untersucht werden.

Da eine starke Wechselwirkung zwischen Zircaloy-Hülle und  $UO_2$ -Pellets stattfindet - beeinflußt durch das Oxidationspotential der Umgebungsatmosphäre - ist das dynamische Verhalten des Dreistoffsystems Uran-Zircaloy-Sauerstoff für das Abschmelzverhalten bestimmend.

Um die zeitliche Entwicklung der Wechselwirkung kennenzulernen, wurden Versuchsreihen mit systematisch bei verschiedenen Temperaturen abgebrochenen Experimenten in He und Luft durchgeführt. Hierbei erreichten die Temperaturen an der Hüllrohroberfläche jeweils Werte von  $1450\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $1850\text{ }^{\circ}\text{C}$  in He und  $1600\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $2220\text{ }^{\circ}\text{C}$  in Luft. Diese Versuchsreihen dienten ferner für die genaue Untersuchung des Versagensverhaltens.

Als Zubehör für den im Bau befindlichen und kurz vor der Fertigstellung stehenden Versuchskessel für die Versuche in Wasserdampf und an Brennstab-bündeln wurde die Dampferzeugungsanlage und die Datenverarbeitungsanlage beschafft.

#### Erzielte Ergebnisse

In Helium, d.h. bei fehlender Oxidation von außen, wird die Wechselwirkung zwischen Zircaloy-Hülle und  $UO_2$ -Pellets unabhängig von der Geschwindigkeit des Temperaturanstiegs bei  $1850\text{ }^{\circ}\text{C}$  so stark, daß es zu einem gemeinsamen Abschmelzen von Pellets und Hülle kommt. In Luft reißt die den Stab umgebende Oxidhülle ab  $1890\text{ }^{\circ}\text{C}$  auf und es beginnt das schon vorher im Innern

geschmolzene Material abzufließen. Auch beim Aufheizen dieser Hülle auf über 2200 °C bleibt dieselbe noch fest.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Versuche zur genauen Bestimmung der Versagenstemperatur werden fortgesetzt. Nach Fertigstellung des Versuchskessels für die Wasserdampfversuche wird derselbe zusammen mit dem Dampferzeuger und der Datenverarbeitungsanlage in Betrieb gesetzt. In diesem Kessel sind als erste Versuche Untersuchungen an Einzelstäben bei unterschiedlichem Dampfangebot vorgesehen, um das Verhalten in den unterschiedlichen Bereichen des Unfallcores zu simulieren.

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

#### Ziel der Arbeit

Mit dieser Arbeit werden die Möglichkeiten der Wasserstofffreisetzung nach einem LWR-Coreschmelzen verfolgt und damit zusammenhängend Studien zur Verhinderung von Explosionsgemischen angefertigt.

#### Durchgeführte Arbeiten

Nachdem festgestellt wurde, daß die Metall-Wasser-Reaktion von den wasserstofferzeugenden Prozessen am schnellsten abläuft, wurden neben den alternativ möglichen Verfahren zur Verhinderung der Knallgasbildung, wie der Inertisierung und der katalytischen Rekombination, auch die H<sub>2</sub>- und O<sub>2</sub>-Absorption mit wässrigen Lösungen untersucht.

#### Erzielte Ergebnisse

- Der Einsatz der wässrigen Absorptionsmittel könnte mit einer Sprinkler-Anlage gekoppelt werden.
- Die Absorption von Sauerstoff ist in wässriger Lösung leichter durchzuführen als die von Wasserstoff.
- Bei Absorption in wässrigen Lösungen wird der Druck im Containment um den Partialdruck des absorbierten Gasanteils erniedrigt.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Sollten Alternativmöglichkeiten zur Verhinderung eines Knallgasgemisches nach einem LWR-Störfall erwünscht sein, müssen weitere Untersuchungen zeigen, welche der in Diskussion stehenden Methoden zur technischen Reife entwickelt werden soll. Zugleich müßte geprüft werden, ob nicht kombinierte Verfahren die größte Zuverlässigkeit bieten.

4243            Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen (H. Albrecht, IRCH; D. Perinic, RBT)

### Durchgeführte Arbeiten

#### a) Aufbau der Versuchsanlage

Die Installation der Schmelzanlage für schwach aktives Schmelzgut, SASCHA, wurde abgeschlossen und das mit der Lieferfirma vereinbarte Abnahme-Versuchsprogramm erfolgreich durchgeführt. Gleichzeitig wurde die Transport- und Filterstrecke für die Freisetzungsprodukte so weit fertiggestellt, daß in Kürze erste Versuche mit der Gesamtanlage stattfinden können.

#### b) Vorversuche zum Schmelzen von Corium unter Luft

Solange die Schmelzanlage SASCHA nicht zur Verfügung stand, wurden Corium-Schmelzversuche mit einer einfacheren Experimentier-Einrichtung und einem 12 KW-HF-Generator durchgeführt. Es ging dabei um die Untersuchung folgender Fragen:

- Ermittlung der Ursache für das Hochquellen und Verspritzen von Schmelzgut während der induktiven Aufheizung
- Entwicklung eines Systems zur Absaugung der freigesetzten Produkte aus dem Tiegelbereich
- Verträglichkeit von Corium-Schmelzen mit keramischen Tiegelwerkstoffen
- Verhalten von Coriumschmelzen in Betontiegeln

c) Entwicklung der Temperaturmeßtechnik

Für die Genauigkeit der Temperaturmessung mit einem Quotientenpyrometer spielen sowohl das Emissionsverhalten der Prüflinge als auch die Extinktion durch Dämpfe über der Schmelze eine wichtige Rolle. Deshalb wurde eine Reihe von Corium-Komponenten einzeln geschmolzen und auf entsprechende selektive Eigenschaften bei den Referenz-Wellenlängen des Pyrometers untersucht. Ferner galt es festzustellen, wie empfindlich das Pyrometer auf Intensitätsschwankungen der vom Schmelzgut emittierten Strahlung reagiert und insbesondere, ob durch solche Schwankungen zusätzliche Fehler bei der Temperaturmessung entstehen können.

d) Untersuchungen zur Auswahl geeigneter Filtermaterialien

Mit Hilfe eines Aerosol-Generators wurden inaktive Testaerosole der Oxide von Mn, Zr und La hergestellt und damit das Abscheideverhalten verschiedener Membranfiltertypen untersucht. Außerdem sollte geklärt werden, wie genau man die aktivierungsanalytische Bestimmung der Niederschläge durch direkte Bestrahlung der beaufschlagten Filter, d.h. ohne ein Ablösen der Niederschläge, durchführen kann.

Erzielte Ergebnisse

a) Schmelzversuche mit Corium unter Luft

Es zeigte sich, daß das Hochquellen von Schmelzgut im Tiegel und die beobachteten vulkanartigen Eruptionen hauptsächlich durch Krafteinwirkungen verursacht werden, die in inhomogenen Magnetfeldern auftreten. Die Verwendung von längeren bzw. konisch nach unten erweiterten Induktionsspulen hatte ein deutliches Nachlassen der erwähnten Effekte zur Folge.

Als ein geeignetes Rohrmaterial für die Absaugung der Freisetzungserzeugnisse aus dem Tiegelbereich erwies sich bisher Duranglas. Rohre aus  $Al_2O_3$  wurden durch hochgeschleuderte Schmelzpartikel stellenweise so stark erhitzt, daß sie rissen und auseinanderbrachen.

Bei der Untersuchung der Verträglichkeit von Corium mit  $ThO_2$ -Tiegeln zeichnet sich für die bisherigen Versuchsbedingungen (30 - 60 g Schmelzgut in Tiegeln mit 2,5 cm Durchmesser und 5 cm Höhe) immer deutlicher ab, daß bei Temperaturen zwischen  $2400^\circ C$  und  $2600^\circ C$  die maximale Haltezeit etwa 15 min beträgt. In dieser Zeit werden die Tiegelwände so stark ausgewaschen - besonders in Höhe der Schmelzenoberfläche - daß das Schmelz-

gut ausläuft.

Ab ca. 2400 °C sind alle Coriumbestandteile geschmolzen. Es bilden sich zwei deutlich getrennte Schmelzen, eine metallische und eine keramische, die nicht miteinander mischbar sind. Erst wenn neben dem schnell oxidierenden Zirkon auch die Stahlanteile aufoxidiert sind, entsteht eine einheitliche Schmelze.

Die Versuche zur Erzeugung von Corium-Schmelzen in Betontiegeln wurden durchgeführt, weil im Rahmen des Versuchsprogramms auch der Einfluß von Beton auf die Spaltprodukt-Freisetzung untersucht werden soll. Bemerkenswert ist zunächst, daß in den Betontiegeln durch induktive Aufheizung Corium-Temperaturen von mindestens 2000 °C erreichbar waren. Die Schmelze überzog sich bei den Versuchen rasch mit einer Glashaut, die sich über den Tiegelrand ausdehnte und den Luftzutritt zum Schmelzgut weitgehend verhinderte. Heftige Verbrennungsvorgänge fanden daher nicht statt. Als Eindringgeschwindigkeit der Schmelze in den Beton wurden Werte bis zu 5 mm/min ermittelt.

#### b) Auswahl der Meßfilter

Bei der Bestimmung des Abscheidegrades von Membranfiltern aus Zellulose-Acetat und regenerierter Zellulose ergaben sich Werte zwischen 99.76 und 99.99 %. Um zu prüfen, ob die mit den verwendeten Testaerosolen erzielten Ergebnisse auf reale Spaltprodukt-Aerosole übertragbar sind, wurde die Größe der abgeschiedenen Partikeln mit einem Raster-Elektronenmikroskop untersucht. Es ergab sich ein mittlerer Wert von 0,1 µm, was für eine gute Übertragbarkeit spricht.

Als recht praktikabel erwies sich die oben erwähnte Methode der Aktivierungsanalyse zur Bestimmung inaktiver Fissium-Niederschläge. Obwohl die Auswertung noch nicht abgeschlossen ist, läßt sich bereits absehen, daß man bei Verwendung der gängigen Membranfiltertypen auf Zellulosebasis bzw. aus Polyamid für die meisten Corium-Komponenten und viele Spaltproduktelemente Nachweisgrenzen im Bereich von 0,1 µg erreicht. Dabei ist bereits berücksichtigt, daß man die Filter vor der Aktivierung in der Regel in Polyäthylenfolien einschweißt und diese Folien durch ihren relativ hohen Gehalt an Na, K und Fe merklich zur Erhöhung der Untergrundaktivität bei der γ-Analyse beitragen.

### Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Als wichtigste Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- Aufnahme des Versuchsbetriebes mit der Schmelzanlage SASCHA sowie der Spaltprodukt-Transport- und Filterstrecke.
- Endgültige Installation der Temperatur-Meßtechnik an der Schmelzanlage; Ermittlung aller Korrekturfaktoren, die für den Einsatz des Quotientenpyrometers in der neuen Anlage erforderlich sind.
- Automatisierung der Auswertung am  $\gamma$ -Meßstand durch den Einsatz eines inzwischen gelieferten Prozess-Rechners.
- Herstellung und Analyse von Fissium-Proben, die aus einer Mischung von  $UO_2$ -Pulver und mit radioaktiven Tracern versehenen Spaltproduktelementen bestehen.

4244            Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen

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

### Durchgeführte Arbeiten

#### a) Konstitutionsuntersuchungen:

In den Systemen U-Zr-O, Fe-Zr-O und U-Fe-O wurden die Untersuchungen weitergeführt, im System Fe-Zr-O wurden Schmelztemperaturen gemessen. Im 4-Stoffsystem U-Zr-Fe-O wurden erste Schmelzversuche an Proben des Schnittes  $UO_2$ -Zr-Fe bei Temperaturen von 2300 bis 2500 °C im abgeschlossenen System durchgeführt.

Eine Hochtemperatur-Röntgen-Diffraktometerkammer wurde erprobt und für die vorgesehenen Untersuchungen an Corekomponenten geeicht.

#### b) Reaktionsuntersuchungen:

Durch Versuche im Induktions- und im Lichtbogenofen wurden die Abdampfverluste von "Corium E"-Schmelzen unter Schutzgas (Ar) ermittelt. Insgesamt wurden jeweils 10 Schmelzproben quantitativ chemisch analysiert. An Proben der Zusammensetzung des "Corium A" (65 Gew. %  $UO_2$ , 18 Gew. % Zry-4, 17 Gew. % Stahl 1.4550 in ringförmiger Anordnung der massiven

Komponenten) sowie an Proben, deren Zusammensetzung bei 50 Gew. % Corium A + 50 Gew. % Corium E liegt (50 Gew. %  $UO_2$ , 14 Gew. % Zry-4, 36 Gew. % Stahl 1.4550), wurden integrale Reaktionsuntersuchungen unter Schutzgas (Ar) durchgeführt.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben:

Es wurden simulierte LWR-Brennstäbe untersucht, die sowohl unter Schutzgas als auch an Luft aufgeheizt worden waren.

Erzielte Ergebnisse

a) Konstitutionsuntersuchungen:

In den ternären Systemen U-Zr-O, Fe-Zr-O und U-Fe-O wurden die bislang noch teilweise abgeschätzten Phasenverhältnisse experimentell bestätigt. Im System Fe-Zr-O steigen die Schmelztemperaturen (Liquidus) vom metallischen Randsystem Fe-Zr aus mit zunehmendem Sauerstoffgehalt rasch an. An 2 Proben des 4-Stoffsystem U-Zr-Fe-O (in Gew. %: 65 bzw. 35  $UO_2$ , 18 bzw. 10 Zr, 17 bzw. 55 Fe), die bis 2300 bzw. 2500 °C im abgeschlossenen System angeschmolzen worden waren, konnte der Phasenbestand ermittelt werden. Er stimmt laut röntgenographischem Befund im wesentlichen mit aufgeschmolzenen Corium-A - bzw. Corium-E-Proben überein.

b) Reaktionsuntersuchungen:

Die Untersuchungen zum Abdampfverhalten einer Corium E-Schmelze haben gezeigt, daß die Schmelzproben gewichtsanteilig vor allem an Sauerstoff, aber auch an U und Zr abgereichert sind. Die Haltezeiten der Schmelze hatten keinen großen Einfluß, da sich ein stationäres Gleichgewicht bereits nach 3 Minuten eingestellt hatte. Corium-A-Proben entmischen sich beim Schmelzen unter Schutzgas (Ar) in eine metallische und eine oxidische Schmelze. Bei Veränderung der chemischen Zusammensetzung der Proben in Richtung auf Corium E (Erhöhung des Stahlanteils) wird bei einer Mischung von jeweils 50 Gew. % Corium A und Corium E eine einheitliche metallische Schmelze beobachtet.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben:

1) In Schutzgas aufgeheizte Stäbe:

Die Ergebnisse der Untersuchungen bestätigen die früheren Aussagen.

2) An Luft aufgeheizter Stab:

Beim Aufheizen unter oxidierenden Bedingungen zeigte der Brennstab erwartungsgemäß ein abweichendes Reaktionsverhalten. Als Folge der Zry-Oxidation blieb eine formstabile Hülle erhalten. Unter den vorgegebenen Versuchsbedingungen kam es zu keiner nennenswerten Bildung flüssiger Phasen am Kontakt Brennstoff-Hülle. Am Kontakt Brennstoff-Heizstab wurden vielseitige chemische Wechselwirkungen zwischen  $UO_2$  und W unter Bildung niedrig schmelzender eutektischer Zusammensetzungen beobachtet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

a) Konstitutionsuntersuchungen im 4-Stoffsystem U-Zr-Fe-O

b) Weitere Reaktionsuntersuchungen zum Abdampf- und Entmischungsverhalten komplexer  $UO_2$ -Zry-Stahl-Schmelzen; integrale Reaktions- und Schmelzversuche unter Einbeziehung von Beton.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Stäben, die bei verschiedenen Temperaturen gehalten werden; weitere Untersuchungen an Stäben, die unter oxidierenden Bedingungen aufgeheizt werden.

4300       AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN  
          BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

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

4311       Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und  
          Aerosolen in LWR-Containments  
          (W. Schöck, IASR )

#### Zielsetzung und Zeitplanung

Ziel des Vorhabens ist die Entwicklung eines Computercodes NAUA (Nach-  
Unfall-Atmosphäre), der den Aufbau radioaktiver Aerosole in der Nachunfall-  
atmosphäre eines LWR-Containments berechnet.

Die bisherigen Untersuchungen haben ergeben, daß der partikelförmigen  
Komponente (Aerosol) der luftgetragenen Radioaktivität im Containment  
nach einem schweren Störfall besondere Bedeutung zukommt. Darüber hinaus  
ist gerade das Aerosolverhalten als wichtiges Glied in der Ereigniskette  
zwischen Störfall und radiologischer Umgebungsbelastung unter den beson-  
deren Bedingungen im LWR-Containment weitgehend ungeklärt. Das läßt sich  
auch aus der Reaktorsicherheitsstudie der USAEC (Rasmussenstudie) heraus-  
lesen.

Ausgehend von den bisherigen Ergebnissen und von einem besseren Verständ-  
nis der Lösungsmöglichkeiten wurde das Forschungsvorhaben neu formuliert.

Es wird ein erstes theoretisches Modell NAUA-Mod1 erstellt, das die  
Grundlage für die Konstruktion eines Versuchsstandes liefert, mit dem  
eine Reihe von wichtigen ungeklärten Fragestellungen experimentell be-  
arbeitet werden kann. In Wechselwirkung zwischen Modellentwicklung und

stützenden experimentellen Arbeiten wird die Entwicklung des NAUA-Codes bis zur Anwendbarkeit auf reale Containmentsituationen weitergeführt.

#### Durchgeführte Arbeiten

Die erste Version NAUA-Mod 1 wird zunächst aus zwei Teilprogrammen zusammengesetzt

- NAUCON zur Beschreibung der Wasserdampfkondensation
- NAUPAR zur Beschreibung des Aerosolabbaus

Beide Teilprogramme wurden für sich weiterentwickelt, wobei die konstruktiven Randbedingungen einer Kopplung besondere Berücksichtigung erfuhren.

Zur Beherrschung der bei Störfallberechnungen anfallenden Vielfalt von möglichen Ausgangssituationen muß das Modell in einem breiten Parameterbereich zuverlässig sein. Um das zu überprüfen und im Hinblick auf die Konstruktion des Versuchsstandes wurden mit NAUCON Parameterrechnungen durchgeführt.

#### Erzielte Ergebnisse

In das Kondensationsprogramm NAUCON wurde eine beliebig wählbare Wasserdampfquellfunktion eingebaut. Den beim Störfall im Containment auftretenden Bedingungen wird damit besser Rechnung getragen. Es wurden Kondensationsrechnungen bei verschiedenen Temperaturen und mit variierte Stärke der Wasserdampfquelle durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, daß diese Parameter wenig Einfluß auf den Zustand des Aerosolsystems haben, und daß dieser überwiegend von der Größenverteilung des Ausgangsaerosols und von der Gesamtmenge an kondensierbarem Wasserdampf bestimmt wird.

Die unter allen Bedingungen verifizierte hohe Kondensationsrate rechtfertigt die Abtrennung des Kondensationsprogramms NAUCON vom Programm NAUPAR, das wesentlich langsamer ablaufende Prozesse beschreibt.

Eine vorläufige Vergleichsrechnung zum CORRAL-Code zeigt, daß vom NAUA-Modell ein deutlicher Abbau des in CORRAL enthaltenen Konservatismus zu erwarten ist.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf

Die Arbeiten in der nächsten Zukunft umfassen die Integration der Teilprogramme NAUCON und NAUPAR in das NAUA-Mod 1, sowie die Arbeiten zur Spezifikation des Versuchsstandes.

4312           Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung  
radioaktiver Gase  
(H. Dilger, W. Hübschmann, K. Nester, D. Papadopoulos, H. Schüttel-  
kopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

#### Durchgeführte Arbeiten

Es wurden 3 Ausbreitungsversuche durchgeführt, bei denen chemische Tracer in 60 m Höhe vom meteorologischen Turm emittiert wurden. Bei den letzten beiden Versuchen wurden zu Vergleichszwecken jeweils zwei Tracer ( $\text{CF}_2\text{BR}_2$  und  $\text{CFCl}_3$ ) gleichzeitig eingesetzt. Da die gemessenen Konzentrationsverteilungen beider Tracer gut übereinstimmten, können diese künftig in verschiedenen Höhen gleichzeitig emittiert werden. Die gaschromatographische Auswertung der Luftproben wurde durch einen automatischen Probeinjektor und einen Peak-Integrator rationalisiert.

Um das Berechnungsmodell der Dosisleistung durch  $\gamma$ -Strahlung aus einer Abluftfahne zu testen, wurde die Dosisleistung unter der Ar-41-haltigen Abluftfahne des FR2 bei stabiler Wetterlage gemessen. Die Meßwerte stimmen zufriedenstellend mit den Rechnungen überein.

### Erzielte Ergebnisse

Die Analyse der zeitlichen Entwicklung von Ausbreitungsbedingungen hinsichtlich zu erwartender Strahlendosen nach nuklearen Störfällen wurde auf die zwei Parameter Tageszeit und Ausbreitungskategorie konzentriert. Es wurde u.a. ermittelt, mit welcher Wahrscheinlichkeit Änderungen der Ausbreitungskategorie eintreten. Die Ergebnisse wurden mit dem stationären Ausbreitungsmodell verglichen.

Der Einfluß der Rauigkeit des Untergrundes auf die Ausbreitungsparameter  $\sigma_z$  und  $\sigma_y$  wurde unter Benützung der bisherigen Versuchsergebnisse theoretisch abgeschätzt. Man geht von den  $\sigma$ -Kurvenscharen von Pasquill/Gifford aus. Deren Zuordnung zu den rauigkeitsunabhängig bestimmten Diffusionskategorien wird unter Berücksichtigung der Bodenrauigkeit modifiziert.

Die Meßwerte der beiden am Meßmast installierten Vektorfahnen erlauben die Berechnung der turbulenten Bewegungen der Atmosphäre in den drei Richtungskomponenten. Aus deren zeitlichem Verlauf wurde durch Fourieranalyse die Energiedichteverteilung der atmosphärischen Turbulenz in dem Frequenzbereich von  $1,4 \cdot 10^{-4}$  bis 0,125 Hz ermittelt. Die Analyse erlaubt eine Unterscheidung des Frequenzbereichs der rauigkeitsbedingten und der konvektiven Turbulenz; Richtungsänderungen treten mit einer Periodendauer von  $T > 15$  min. auf.

Zur Sicherheit der Umgebung auch gegen den sehr unwahrscheinlichen Fall einer Freisetzung radioaktiver Stoffe direkt aus dem Sicherheitsbehälter in die Atmosphäre wurde ein Meßstellennetz entworfen. Dieses dient der Messung der  $\gamma$ -Strahlung aus der radioaktiven Wolke. Es wurden mindestens 9 Meßstellen auf einem Kreis mit einem Radius von ca. 800 m verteilt. Damit ist eine ausreichende Wahrscheinlichkeit gegeben, daß aus den Meßwerten der in der Nähe der Abluftfahne liegenden Meßstellen auf die Quellstärke  $\gamma$ -Aktiver Nuklide geschlossen werden kann. Letztere gibt einen Hinweis auf eine eventuelle Gefährdung der Bevölkerung in der Umgebung durch  $\gamma$  und  $\beta$ -Aktivität.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf

Die Ausbreitungsversuche werden fortgeführt, wobei auch 2 chemische Tracer gleichzeitig in unterschiedlichen Höhen emittiert werden sollen. Um den Personalbedarf für diese Versuchsdurchführung zu reduzieren, wurden für die Komponenten eine automatische Sammelstelle entwickelt und geprüft. Die Komponenten sind in Auftrag gegeben und sollen bis Ende 1975 eingesetzt werden.

4312 TU H      Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre  
BMI SR 21      unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Re-  
gionen  
(C.D. Wüneke, H. Schultz, Arbeitsgruppe f. Technischen Strahlenschutz  
der TU Hannover)

### Durchgeführte Arbeiten

Es wurden die wichtigsten Teilprogramme eines numerischen Rechenprogramms nach der particle-in-cell-Methode zur Berechnung des Transportes und der turbulenten Verdünnung von konventionellen und radioaktiven Schadstoffen in der Atmosphäre programmiert und in Testläufen auf der Großrechenanlage (CDC-CYBER 73/76) des Regionalen Rechenzentrums für Niedersachsen in Hannover erfolgreich geprüft. Gegenüber dem Gauß'schen Rauchfahnenmodell bietet ein solches numerisches Rechenprogramm nach der particle-in-cell-Methode Vorteile zur Beschreibung der Ausbreitung unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Als nächster Schritt sollen die Eingabe der Quellverteilungen und die Erfassung der Randbedingungen flexibler gestaltet werden und danach Vergleichsrechnungen mit geeigneten Windfeldern durchgeführt werden. Als Fernziel ist schließlich eine Erweiterung dieses Programms zur Berücksichtigung von chemischen Reaktionen und eventuellen anderen Kombinationseffekten in der Atmosphäre vorgesehen.

- 4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN
- 4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen
- 4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren  
(T. Dippel, D. Hentschel, S. Kunze, ABRA)

1. Dekontaminierbarkeit von Polyvinylchlorid- und Gummibodenbelägen

Durchgeführte Arbeiten

Aufgrund der - vorzugsweise bei Gummibelägen, in geringem Maß bei Polyvinylchlorid (PVC)-Belägen - teilweise stark schwankenden Dekontaminationsergebnisse wurden je zwölf Belagproben unterschiedlicher Zusammensetzung und zum Teil auch verschiedener Herstellungsverfahren nach zwei in Deutschland bekannten Prüfmethode (Karlsruher Verfahren und E DIN 25415) auf ihre Einsatzmöglichkeit als Fußbodenbeschichtung in kerntechnischen Anlagen hin geprüft.

Erzielte Ergebnisse

PVC-Beläge

Bei PVC-Belägen, die durch Mischen ("Weichmachen") aus deren Grundsubstanzen hergestellt wurden, hat sich gezeigt, daß zwischen Füllstoffanteilen und Dekontaminierbarkeit in bestimmten Bereichen kein Zusammenhang besteht. Bei hoch gefüllten Belägen, deren Zuschlagsstoffe auch hydrophile Anteile enthalten, ist die Dekontaminierbarkeit teilweise erheblich gemindert. Eine Abhängigkeit vom Grundfarbton konnte nicht festgestellt werden. Beläge mit überwiegend klar abgegrenzter, richtungsloser Musterung, die wegen der Oberflächenoptik verhältnismäßig "kalt" hergestellt wurden, sind für Kontaminationsbereiche nur mit Vorbehalt zu empfehlen.

Gummibodenbeläge

Für Gummibodenbeläge, die durch chemische Reaktion ("Härten") aus Polymeren, Vulkanisationsmittel und Füllstoffen hergestellt werden, ist die richtige Auswahl der Füllstoffe von wesentlicher Bedeutung. Die Unter-

suchungen ergaben, daß gut dekontaminierbare dunkle Beläge durch Härten mit Ruß oder/und Graphit helle Beläge durch Zusätze von Hartkaolin, Bariumsulfat, Titandioxid und nur sehr geringen Mengen an aktiver hygroskopischer Kieselsäure hergestellt werden können. Steigende Mengen an hygroskopischen Füllstoffen mindern im Gummibelag immer die Dekontaminierbarkeit.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Prüfung der Dekontaminierbarkeit von Bodenbelägen ist damit abgeschlossen.

Die am Ende des letzten Halbjahresberichts wegen Materialbeschaffung und meßtechnischen Problemen unterbrochenen Dekontaminationsuntersuchungen von Beizproben werden mit dem Ziel fortgesetzt, neben der Paste mit reduziertem Salzsäureanteil doch noch eine salzsäurefreie Paste zu entwickeln. Mit der Prüfung und Überwachung der von der Lizenzfirma hergestellten Pasten hinsichtlich ihrer Dekowirkung wird Ende 1975 die Entwicklung von Pasten abgeschlossen.

## 2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzsäuremelzen

### Durchgeführte Arbeiten

Die bereits beschriebenen Dekontaminationsversuche mit Salzsäuremelzen wurden fortgesetzt. Dabei dienten als Probenmaterial geschweißte, im Autoklaven kontaminierte, Edelstahlproben (Werkstoff 1.4541). Benutzt wurden nur die im 2. Halbjahresbericht 1974 als wirksam eingestufteten Melzen. Zum Auftragen der Salze auf die Werkstücke in dünnen Schichten ist eine Flamspritze beschafft und eingerichtet worden. Als für das Flamspritzen geeignetste Salz erwies sich Kaliumhydrogenphosphat. Weitere Vorversuche damit wurden zur Klärung der optimalen Einwirkzeit und Schichtdicke durchgeführt.

### Erzielte Ergebnisse

Schmelzen, die ungeschweißte Proben gut dekontaminieren, zeigen auch gute Dekontaminationserfolge an mit einer Schweißnaht versehenen Proben.

Die beschaffte Flammsspritzeanlage ist für Dekontaminationsversuche betriebsbereit. Die ermittelte, günstigste Einwirkzeit der Kaliumhydrogenphosphat-Schmelze auf die kontaminierte Werkstückoberfläche beträgt 10 Minuten. Die maximal aufgetragene Salzschiehtdicke sollte 0,3 mm betragen. Bei dieser Schichtdicke ist die Abfallmenge an kontaminiertem Salz um ca. 90 % geringer als beim Behandeln der Werkstücke in Salzbadern.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

In Laborversuchen sollten die optimalen Bedingungen für die Dekontamination mit Kaliumhydrogenphosphat mit Hilfe der Flammsspritzeapparatur ermittelt werden.

Zur Beendigung der Dekontaminationsversuche mit Salzschnielzen sind noch folgende Untersuchungen notwendig:

- Korrosionsmessungen an behandelten Werkstücken.
- Dekontaminationsversuche mit weiteren Reaktormaterialien und einer erweiterten Nuklid Auswahl, sobald geeignetes Probenmaterial vorliegt.
- Demonstration des Dekontaminationsverfahrens an Werkstücken, die im Reaktorbetrieb kontaminiert wurden.

Die Dekontamination Pu-kontaminierter Oberflächen mit Salzschnielzen kann erfolgen, sobald der entsprechende Raumbedarf gesichert ist.

4412            Wanderung langlebiger Transurane im Boden und in geologischen Formationen  
(T. Dippel, A. Jakubick, ABRA)

#### Wahrscheinlichkeitsansatz zur Behandlung der Aktinidenfreisetzung aus einem Endlager

#### Durchgeführte Arbeiten

Neben den nuklearen Anlagen auf der Bodenoberfläche läßt sich auch ein Endlager der radioaktiven Abfälle als eine potentielle Transurane-Kontaminationsquelle mit geringer Emissionswahrscheinlichkeit betrachten. Sein

Beitrag bei Vergrößerungen des Transurane-Inventars in der Umwelt durch die Atomindustrie kann nach Ermittlung der Möglichkeit des Entweichens quantifiziert werden. Zu diesem Zwecke wurde die Freisetzungswahrscheinlichkeit aus einer zur Endlagerung vorgesehenen Salzformation abgeschätzt.

#### Erzielte Ergebnisse

Zur Abschätzung der Möglichkeit einer Störung der existierenden geologischen Verhältnisse durch seltene Naturereignisse, wurde ein Wahrscheinlichkeitsansatz benutzt. Bei der Annahme, daß das Ereignis von zufälliger Natur ist, gelangt man zu einer Beziehung, die eine spezielle Form der Binomialverteilung darstellt. Diese besagt, daß die Größenordnung der Erwartungswahrscheinlichkeit einer geologischen Störung der Verhältnisse in der Umgebung des Endlagers in der Größenordnung von 1 in 3000 bis 30.000 Jahren liegt.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Aussagen über den Vorgang der Migration von Transuranen, sowohl auf der Bodenoberfläche wie auch in tiefen geologischen Formationen, verlangen die Kenntnis der fixierenden und dispersiven Eigenschaften der Böden und Gesteine für die Transurane. Es werden daher Experimente zur Bestimmung dieser Eigenschaften ausgeführt.

4420            Technik der Räum- und Demontgearbeiten

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Der Dringlichkeit wegen wurde mit Untersuchungen für die Projektierung einer Anlage zur Dekontamination und endlagerfähigen Aufbereitung aktiver, schweren Reaktor-Komponenten (Konditionierungsanlage) begonnen und die Arbeiten im Hinblick auf das Ausräumen eines durch einen schweren Störfall beschädigten Reaktor-Cores unterbrochen.

Zunächst wurden die drei Teilgebiete bearbeitet:

- Betriebserfahrungen in großen Heißen Zellen-Anlagen bei Demontagearbeiten und der Behandlung aktiver Abfälle
- Auslegungs-Gesichtspunkte bezüglich einer Konditionierungs-Anlage und Funktions-Abläufe
- Zerlegungsmethoden

#### Erzielte Ergebnisse

Es wurden die bisherigen relevanten Betriebserfahrungen ermittelt von:

- der Anlage FERAB (GfK) für die Behandlung mittelaktiver fester Abfälle
- der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) als Beispiel für eine Reprocessing-Anlage
- den Heißen Zellen im Gebäude 701 (GfK) als Beispiel für eine Anlage zur Durchführung diverser Untersuchungen.

Die Verfahrens-Abläufe von sechs in Frage kommenden Behandlungsarten für aktive schwere Reaktor-Komponenten wurden analysiert und die wesentlichen Verfahrensschritte und deren Reihenfolge ermittelt.

Es wurde ferner die Bedeutung und Wahrscheinlichkeit der verschiedenen Behandlungsarten abgeschätzt und ein erster vereinfachter schematischer Grundriß für den Kern einer Konditionierungsanlage zur Diskussion gestellt.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Arbeiten werden wie folgt fortgesetzt:

- Studien im Hinblick auf das Konzept einer Konditionierungsanlage
- Untersuchungen des Ausbaues von schweren Reaktor-Komponenten und ggf. Behandlung am Standort
- Behandlung der Zerkleinerungs- und Handhabungs-Techniken.

4422            Ferngesteuerte Arbeitsgeräte und mobile Systeme zur  
                  Schadenserfassung  
                  (G.W. Köhler, RBT)

#### Durchgeführte Arbeiten

Das Fahrgestell des leichten Manipulator-Fahrzeuges MF3 wurde fertig mon-

tiert und Werkserprobungen sowie Abnahme-Prüfungen unterzogen.

Die Einsatzsteuerung für das komplette MF3-System zur Befehls-gabe, Informationsübermittlung und Energie-Versorgung für das Fahrgestell MF3, zwei Manipulatoren EMSM II, eine Stereo-Fernsehanlage und mehrere Geräte wurden nach Abschluß der Planung ausgeschrieben. Nach Abschluß der Projektierung und Konstruktion der elektrischen Master-Slave-Manipulatoren EMSM II für MF3 wurde auch für diese eine Ausschreibung durchgeführt.

Die am Prototyp des elektrischen Master-Slave-Manipulators EMSM I für Versuchseinsätze notwendigen Ergänzungen konnten fertiggestellt werden.

#### Erzielte Ergebnisse

Am Fahrzeug MF3 konnten alle Funktionen des Fahrwerkes mit variabler Geometrie gemäß den Spezifikationen nachgewiesen werden.

Für die Einsatzsteuerung und die Manipulatoren EMSM II liegen jetzt Festpreis-Angebote von Industrieunternehmen vor.

Mit der Erprobung des ergänzten Manipulators EMSM I, insbesondere dem fernbedienten Einsatz der Werkzeuge, wurde begonnen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit dem ergänzten Manipulator EMSM I sollen unter möglichst echten Bedingungen erste Erfahrungen im Arbeiten mit Manipulator-Fahrzeugen in Räumen gesammelt werden.

Die nächsten Schritte bei den Teilvorhaben "EMSM II" und "Einsatzsteuerung" werden sein:

- Empfehlung des Sachverständigenkreises "Geräte für den Notfall und zur Störfallfolgen-Beseitigung"
- Förderungsantrag für die Entwicklungsvorhaben an das BMFT
- Vergabe von Aufträgen an Industrieunternehmen.

Mit der Realisierung der Manipulatoren EMSM II und der Einsatzsteuerung sowie Integrierung zusammen mit dem Fahrgestell MF3 zu einem kompletten System, würde dem KTH ein leichtes in Räumen von Gebäuden und auch im Gelände einsetzbares Fahrzeug zur Verfügung stehen, das für ferngesteuerte Ausführung von Arbeiten und Schadenserfassung verwendet werden kann.

Summaries

4100 ENVIRONMENTAL IMPACT BY 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, LAF II)

4111 Post-accident Recirculation Filters for Fission Product Removal from the Containment Atmosphere

Work Completed and Essential Results

The prototype post-accident recirculation filters have been subjected to further tests made under various conditions.

The filter system exposed to hot air of 160 °C and to saturated steam up to 1 atm and temperatures between 108 °C and 160 °C yielded for residence times of 0,2 sec after 18 days of permanent operation removal efficiencies > 99,98 % for CH<sub>3</sub>J with a flow of 1200 m<sup>3</sup>/h.

Induced by previous experimental results the adsorber material was examined for transportation of the impregnation by the air-steam mixture.

No measurable transportation was found (detection limit  $0,6 \times 10^{-6}$  g Ag when 32 g of sorption material were used) under different conditions up to temperatures of 200 °C in superheated steam over a duration of the experiment of 48 h.

Plans for the Near Future

During the next report period the gas-sorption part of a post-accident recirculation filter will be examined for its removal behavior with

respect to iodine in pressurized saturated and superheated steam, corresponding to various MCA conditions.

Material investigations will be continued on the basis of calculated results of theoretical considerations applicable to higher temperatures.

#### 4112 Development of Exhaust Air Filters for Reprocessing Plants

##### Work Completed and Essential Results

Investigations of the iodine loading capacity of highly impregnated iodine sorption material (AC 6120/H<sub>1</sub>) for the GWA-filters (GWA: reprocessing plant for 1500 metric tons per year of uranium) have been continued for low NO<sub>2</sub>-contents of the simulated dissolver offgas from GWA. When fully loading AC 6120/H<sub>1</sub>, a conversion to silver iodides of Ag<sup>+</sup> of the impregnation of about 80 % was reached in experiments with 1 % NO<sub>2</sub> in the carrier gas. Despite the consumption of a substantial portion of the impregnation removal efficiencies > 99,99 % were measured for a bed depth corresponding to a GWA filter stage.

The test facility allowing to examine the behavior and the capacity of the AC 6120/H<sub>1</sub> iodine sorption material under actual conditions at SAP Marcoule (reprocessing plant) has been completed except for installation in the reprocessing plant.

##### Plans for the Near Future

In the second half year of 1975 the iodine sorption material in the dissolver off-gases of SAP Marcoule will be examined while varying parameters relating to dissolver operation. Also the activity in the form of volatile material will be subjected to qualitative and quantitative nuclide analysis.

4114 Exhaust Air Filters at Reactors, Identification of Iodine Compounds in Reactor Off-gases. Aging and Poisoning of Iodine Sorption Material

#### Work Completed and Essential Results

The influence of solvent loading on the removal efficiency of iodine filter charcoal was examined for the exhaust air filter in the shutoff rooms of an LWR nuclear power station. Loading varied across the depth of the activated charcoal layer and ranged from 7,3 to 12,4 wt. %.

The removal efficiencies for  $^{131}\text{I}$  in the form of  $\text{CH}_3\text{I}$  were substantially reduced by solvent adsorption. A simple relationship cannot be recognized to exist between solvent loading and removal efficiency of partial beds of the activated charcoal layer. Various upstream activated filter charcoals for reduction of solvent loading were mounted in a test section exposed to the exhaust air of shutoff rooms of an LWR nuclear power station.

#### Plans for the Near Future

Penetration times and mass transition zones of organic compounds are measured at activated charcoal beds made of upstream activated charcoal which can be identified as filter pollutants in the exhaust air of nuclear power stations. In addition the drop in the removal efficiency of activated charcoal for iodine removal will be investigated when different upstream filter charcoals are used during exposure in a nuclear power station.

#### Identification of Iodine Compounds in Reactor Off-gases

##### Work Completed and Essential Results

The development of a discriminating iodine collector has been carried on. Different materials eligible as selective sorption materials for elemental iodine were tested with respect to their removal efficiencies for elemental iodine and methyl iodine. AC 6111 impregnated with potassium iodide proved to be the most suitable of the materials investigated.

The experiments relating to the volatilization and removal of hypoiodous acid have been carried on. In verifying a method recently published on the preparation of gaseous hypoiodous acid an iodine component was found which is difficult to remove by AC 6120.

#### Plans for the Near Future

Tests on the development of a discriminating iodine collector will be carried on within the range of parameters which is significant for investigation of exhaust and vent air of nuclear power stations.

The component found in the experiments on volatilization and removal of hypoiodous acid difficult to remove is to be identified.

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

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

#### Work Completed

In 500-hour tests the Fe, Cr, Ni metal loss was determined for different oxygen contents. Surface examinations were made together with Dornier company, Friedrichshafen.

#### Essential Results

At a lower oxygen content of the pressurized water a reduced metal loss by about 10 % was detected. The state of oxidation for Incoloy resulting from surface examination was  $2,3 \pm 0,3$  which corresponds to  $Fe_3O_4$  and a smaller fraction of iron hydroxide.

#### Plans for the Near Future

Chemical decrease of oxygen by hydrazine and the evaluation of the resulting metal loss are envisaged.

A second autoclave system as well as the determination of the solid content by optical scattering techniques are being prepared.

4130 Long-Term Radiological Burden of the Environment

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

#### Work Completed and Essential Results

In milk samples taken at Friedrichstal values from 0,3 to 0,5 pCi  $^{129}\text{I}/\text{l}$  were measured. In thyroid samples from rabbits about 10 pCi  $^{129}\text{I}/\text{thyroid}$  were found. In the present half year the collection of aliquot parts of low-activity effluent waters from WAK, from its distillates, from the settling basins and from the Rhine river and of combined monthly samples was started. First measurements of  $^{129}\text{I}$  emissions from WAK were performed. Since about 200 samples for  $^{129}\text{I}$  had to be taken in the WAK emissions, the ecological program has been delayed by 2 1/2 months. An ion sensitive electrode for  $^{127}\text{I}$  measurement in milk and in thyroid samples was used successfully.

#### Plans for the Near Future

Efforts are being made to improve the combination of chemicals, the preparation of calibration substances and the construction of sample recipients.

4134 Investigation of the Long-Term Radiological Environmental Impact  
Caused by an Accumulation of Nuclear Facilities  
(A. Bayer, W.Engel, R. Kalckbrenner, M. Schückler, INR)

#### Work Completed and Essential Results

The investigations on the radiological impact in the Upper Rhine river basin have been continued with an expansion of the computer program taking

into account the interaction of the radioisotopes dissolved in the river water with the sediments and the suspended material. For the calculation of the age dependent dose factors relevant parameters have been collected like the age dependent weight of organs and the age dependent consumption of food. In addition the age dependent natural incidences of cancerous diseases have been evaluated from statistical data. The collection of release data from nuclear facilities was expanded to include the release of heavy radioisotopes.

#### Plans for the Near Future

In the near future the completion of the age dependent dose factors and the inclusion of the release of activation products is foreseen.

4140 Separation of Krypton and Xenon from the Offgas of Nuclear Facilities  
(E. Hutter, RBT; G. Neffe, RBT; R. v. Ammon, W. Weinländer, IHCH; C.H. Leichsenring, PNS-PL)

#### Work Completed

Before removing the noble gases (Kr-85, Xe) from the offgas of a reprocessing plant two gas cleaning steps have to be installed:

- (a) the catalytic reduction of  $O_2$  and  $NO_x$  with  $H_2$ ;
- (b) the adsorptive removal of  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $NH_3$  and residual  $NO_x$  by means of molecular sieves.

To test the two methods on a laboratory scale, test rigs are being used with a flow of 1 std.  $m^3/h$ . While the apparatus for testing the effectivity of catalyzers has been finished, the adsorption apparatus is in the design phase.

After a private company had been charged with the construction of the low temperature rectification system, calculation of the components was carried out and design work was started.

### Essential Results

A literature search on the adsorptive properties of molecular sieves indicated that separation of the gases  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $NH_3$  and  $NO_x$  from the noble gases, especially from Kr, ought to be possible because Kr is retained by type 5A molecular sieves at least 100 times less efficiently than the gases mentioned above.

### Plans for the Near Future

After completion of the two test rigs including the necessary analytical instrumentation an extensive test program is to be carried out

- (a) in selecting the most effective catalyzer and in determining its sensitivity to the catalyzer poison iodine and TBP;
- (b) on the dynamic co-adsorption of  $CO_2$ ,  $NH_3$  and  $NO_x$  in the presence of a large excess of  $H_2O$ .

The process flowsheet is presently being revised with respect to the control concept and failure considerations. The influence of additional heat sources due to Kr 85 in a column exposed to activity upon the internal concentration profile of the separation columns is being tested. The gas provision facilities for the TTR system and for  $CO_2$  and  $H_2O$  removal are being purchased.

4150      Waste Heat Problems Associated with Nuclear Facilities

4152      Investigation of the Heat Exchange River/Atmosphere at the Rhine River Downstream of the Philippsburg Nuclear Power Station. A Contribution to Heat Loss Models.  
(G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, IASR)

### Work Completed

The control of the movement of the floating components of the mechanical construction above the river Rhine had been working insufficiently from the beginning. The friction between the column and the floating mast was

reduced to avoid excessive damping of vertical motion due to changes in water height. Additionally, a special installation was provided in order to obtain a suitable support for lifting the pontoon shears in case of iceflow.

In the course of the repairs several cables were damaged and had to be renewed as well as several on-line amplifiers.

Regarding the data gathering complex, there was a considerable delay in programming the processor code. This was due to hardware breakdowns of tape reader, memory driver and CAMAC Analog-Digital-Converters. As to the ADCs, the manufacturer finally worked out some alternations in the circuit to achieve a sufficient reliability in the recycling mode operation. The improvements have been suitable for software test purposes but the ADCs are not yet satisfactory for permanent automatic operation.

A summary of studies concerned with processor output data handling had been discussed with the consulting group of this programme and is published in the full length report of the project (in German).

#### Plans for the Near Future

The breakdown points have to be cleared. The data transfer from the processor to the IBM-computer has to be handled. Computer codes for data organisation and evaluation have to be programmed.

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 3-dimensional rise of cooling tower plumes was examined on the basis of the measurements at Neurath /1/. The program MEDINT developed by the department "Datenverarbeitung and Instrumentierung" allows now the calculation of the distribution of different parameters in any cross-section of the cooling tower plume, which are needed for the tests.

Plans for the Near Future

In order to reduce the computing time it is necessary, to simplify the program. The first step is the 2dimensional version, which is presently tested.

/1/ E. Baer et al., Untersuchungen an einem Naturzug-Naßkühlturm,  
Fortschrittsbericht VDI-Reihe 15, Nr. 5

4200 SYSTEM BEHAVIOR OF NUCLEAR FACILITIES DURING INCIDENTS

4210 Dynamic Load of Components and Systems

4211 Dynamic Load of LWR Pressure Suppression Systems

Work Completed and Essential Results

Within the framework of true scale blowdown tests performed at the Marviken Nuclear Power Station (Sweden) from August 1972 until May 1973, experimental investigations were performed in the water pool of the wetwell relating to the local pressure pulsation field; besides, the mass flows and the composition of the blow down steam-water-air mixture were measured. In the light of vibrational phenomena observed the system is presently examined for possible natural vibrations. Results obtained so far on simplifying assumptions indicate that the natural frequencies of the system are within the range of excitation frequency originating in the water pool. A decisive role is assumed by the sound velocity which substantially depends on the composition of the mixture in a two-phase flow and which may move the system into resonance during the transient blowdown test.

As a supplement to theoretical investigations an infrared absorption measuring technique is being developed in cooperation with the Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) of the Karlsruhe University, which will be used for continuous determination of mass flows and mixture composition in two-phase flows. The tests made until now reveal that this measuring technique has a high sensitivity and a good time resolution. Variations in the mass flow and density, e.g. caused by pressure pulsations, also can be recorded.

Evaluation work continued on measurements of the fluctuating pressure field in the suppression pool of the Brunsbüttel pressure suppression system and of corresponding dynamic response of the containment. These measurements had been performed within the framework of non-nuclear hot tests at the Brunsbüttel power station in October 1974. The evaluation concentrated on the vent tests Nos. 67 and 68. The essential result of the evaluation is

that the condensation of steam in the region of the exit nozzle gives rise to the generation of quasiperiodic pressure waves propagating in both peripheral directions through the suppression pool. Superposition of these moving waves causes the formation of standing pressure waves. They have discrete frequency values and a fixed number of loops and nodes in the peripheral direction. Since these loops cover a relatively large area where the pressure forces act on the structure, forced vibration of the containment shell with too measurable deflections (of the order of several tenths of millimeter) is induced, even if relatively small pressure amplitudes are generated (of the order of several hundredths of bar). The process of development in the suppression pool of the standing pressure waves can be described by an equation whose numerical results are in fairly good agreement with the experimental data.

Discretization had to be more refined by the accompanying calculations on account of the complicated vibration behavior of the cylindrical and conical shells of the containment. This was possible by taking over the improved STRUDL-DYNAL finite element program incorporating new finite elements. Part of the new results - natural frequencies and modes of natural vibrations - agree quite well with previous results, while part of them deviate considerably. For this reason, transient calculations have been postponed. It is planned to carry them out during the next half year.

Since June 1975 KWU has performed in Großwelzheim condensation tests in order to evaluate the dynamic loads of pressure suppression systems in loss-of-coolant accidents, in which IRE participated with an instrumentation of its own. The goal of IRE tests consists in gaining information about flow propagation (rate and reduction) and about possible dependencies of direction and the source strength in the center of bubble collapsing.

The tests are being performed in an open vessel ( $d_i = 7 \text{ m}\varnothing$ ) as single and multiple tube tests ( $d_i = 600$  and  $300 \text{ mm } \varnothing$ ), the test parameters subject to variations being the steam mass flow density and the temperature in the water pool. The tests are scheduled to be terminated in early September 1975.

### Plans for the Near Future

Detailed evaluation of the Marviken I measurement results will be carried on. Main topics will be the possible natural vibrations of the system which are to be studied in the next step letting aside to a large extent the simplifications so far used.

Regarding development of an infrared absorption measurement technique, the first phase of testing will be terminated shortly which includes parameter studies under steady-state conditions. In the following second phase of testing studies will be made under non-steady-state flow conditions. At the same time, an offer for a measuring equipment will be submitted to the Marviken Project Management, Sweden, and it is intended to build a measuring instrument until the end of this year in case that the order, will be received.

Previous evaluation of measured data from the Brunsbüttel nuclear power station will be continued more intensively, particular attention being paid to the standing pressure waves which had appeared in the water pool.

As a supplement further calculations are planned on structure behavior (natural vibrations and deformations) using a simplified calculation program.

The measurements performed within the framework of participation in the KWU condensation tests in Großwelzheim will probably last until this September. It is intended to evaluate the measured data subsequently.

4214      Development of a Radionuclide Method of Mass Flow Measurement  
            in Non-Steady State Multiphase Flows  
            (R. Löffel, W. Golly, H. Meichelböck, LIT; A. Suppan, RBT)

### Work Completed

A first series of experiments on testing and further development of the

labeling and injection techniques for the liquid and gaseous phases in the range of high pressures and temperatures were carried out at the high pressure autoclave facility of GfK-IRB (PNS 4123). Moreover, the injection system was tested in the RS 50 containment facility of the BATTELLE Institute during the C7 blowdown experiment on March 26. The activation units for preparation of the liquid and gaseous tracers were completed and have already been used successfully. Composition of the 12-detector velocity measuring system has been completed. Studies of scattering effects have been initiated. The water-air test facility was built up and commissioned in mid-June. Preliminary experiments were carried out on two-phase velocity measurements.

### Essential Results

The autoclave experiments carried out so far, the functional test at BATTELLE and the first experiments at the water-air test facility were successful. Here are the most important results:

1. The operability of the gas and liquid injection system was proved for the pressure and temperature range ( $p = 1$  to 160 bar,  $t = 20$  to  $350^{\circ}\text{C}$ ) and, hence, for blowdown conditions.
2. Injection frequencies of up to 50 Hz were achieved for the two phases.
3. Although separate measurements of the velocities for the two phases, gaseous and liquid, were attained already in the first few experiments carried out at the water - air test facility, it is evident from the results that further improvements of the method, are possible by optimization of the injection and measuring techniques.

### Plans for the Near Future

Injection and measuring techniques will be advanced. The autoclave experiments will be carried on. They will be paralleled by continued experiments in the water-air test facility. First of all, the startup sections for the liquid and gaseous tracers and the necessary measuring sections will be

studied. Evaluation by means of computer programs (SEDAP and others) is scheduled for the period up until late 1975.

4215 Combined Test Bench for Testing and calibrating of Different  
Two-phase Mass Flow Measuring Techniques  
(J. Reimann, H. John, E. Wanner, IRB)

#### Work Completed and Essential Results

During the phase of test bench erection the following status has been achieved:

The mixing chamber serving to generate a broad spectrum of steam-water mixtures as regards steam quality, pressure and type of flow for steady-state simulation of blowdown conditions was provided with exchangeable rigs. Order for fabrication was placed.

The test section of 8 m length adjacent to the mixing chamber was developed with a system of exchangeable tube sections commensurate with the three nominal widths 20, 50, 80.

Tendering has been terminated for the whole pipework and the process of ordering has been initiated.

The instrumentation has been completed. An anticipated statistical accuracy of measurement of  $\pm 1,5\%$  was calculated for the mass flow reference measurement.

According to the literature studied a probe seems to be most promising for identification of the type of flow in the test section, which operates on the variation of electric conductivity during change of phase.

Experiments were prepared in a water-air circuit in order to investigate primarily the possibility of safely interpreting the measuring signals. Development was started of a probe fitting to the pressure and temperature conditions of the test bench.

Plans for the Near Future

Experimental preliminary investigations allowing to recognize the type of flow by local conductivity signals.

Development of a measuring probe - device suitable for 150 atm and 350 °C.

4220      Dynamic Load of Pressure Vessel Internals in LWR Loss-of-Coolant Accidents

4221      Planning, Pre-calculation and Interpretation of the HDR-Blowdown Tests for Dynamic Loading of LWR Pressure Vessel Internals  
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

Work Completed

Work concentrated on the following two subjects: Definition of the HDR blowdown test program and design of the core barrel.

Essential Results

Definition of a test program:

As a basis of the HDR blowdown test program a reference test was defined, which resembles most the blowdown of a typical pressurized water reactor (rupture in the cold line). Starting from this reference test the data applicable to the other tests were changed to such an extent that - as far as possible and foreseeable - the following effects can be studied separately:

The pressure drop from the subcooled conditions to saturation conditions, the transient mass flow in the blowdown nozzle, or the size of annular spaces in which boiling must be anticipated.

It was found that because of the relatively small diameter of the HDR-blowdown nozzle relatively moderate stresses can be expected to occur

at the core barrel during blowdown.

Design of the core barrel:

To calculate the wall thickness of the core barrel, the latter was treated as thin cylindrical shell, fixed at one side and taking into account inertia effects and bending resistance. The transient load was derived from the calculations of pressure wave propagations in the annular space. These calculations had been carried out by LRA and by IRS. The shell problem was treated numerically by STRUDL/DYNAL. It was found that for only 30 mm wall thickness of the core barrel the yield point is just reached but not yet exceeded at the point of maximum stress.

In this computational model the feed back of core barrel deformation on the propagation of pressure waves had not been taken into account. Different estimates lead to the assumption that the dynamic load which is actually expected as acting on the core barrel is much lower. If not ruled out by reason of design, a substantial reduction of the wall thickness would be recommended with regard to more pronounced deformations of the core barrel.

4222      Recording and Evaluation by Measurement Technique of the Dynamic Behavior of Reactor Pressure Vessel Internals in the Superheated Steam Reactor (HDR) within the Framework of HDR-Blowdown Tests (K.D . Appelt, F. Eberle, J. Kadlec, G. Lang, IRE)

#### Work Completed

During the period of reporting an instrumentation plan has been set up for measurements in the HDR-Blowdown-Tests. Studies have been started relative to appropriate measuring techniques.

#### Essential Results

The prototype transducers have been ordered. Concrete results are not yet available because of long delivery times.

### Plans for the Near Future

Following delivery of the prototyp transducers the planned pre-tests will be continued. Future work will concentrate on the selection, development and examination of prototype transducers. Provision of a suitable optimized instrumentation is considered as the objective with the highest priority.

4223 Progress in Development and Verification of Computer Codes for Stress and Strain Analysis of LWR Pressure Vessel Internals Including the Fluid Structural Interaction for the Problem of Loss of Coolant Accidents (R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

### Introduction

The task includes the theoretical activities accompanying the HDR blowdown tests (PNS 4221, PNS 4222), in particular the development of computer codes for coupled fluid and structural dynamics to such extent as the investigations are significant for evaluation of the maximum load of the core barrel. These activities had previously been started under PNS 4222.

### Work Completed

The YAQUI program developed in Los Alamos (LASL) for calculation of two-dimensional transient flows was taken over. It was adapted to PL/1 and made available as REGENT subsystem. Trial computations had been successful. A computation allowing comparison with REXCO is being prepared. Planning is terminated which is required for extension of YAQUI to solve problems with non-rectangular boundaries and variable depths of the flow channels. A shell model (static, linear-elastic, without bending resistance) was formulated and verified. It was found that bending resistance must be taken into account. Therefore, another shell model was formulated which included bending resistance and inertia effects. Analytical approaches were used extensively. Intercomparisons of this model and STRUDL-DYNAL computations yielded agreement with respect to natural frequencies and modes of vibration.

### Essential Results

- The YAQUI two-dimensional fluid dynamic code is ready for use (with the exception of graphic output).
- The theoretical and mathematical formulations of a shell model to be coupled with fluid dynamics are available.

### Plans for the Near Future

It will be possible to obtain a graphic output of YAQUI. Non-rectangular boundaries of the flow channel will be realized. 2 1/2 dimensional extension (prerequisite of coupling with structure dynamics) will be started. The theoretical shell model will be made available as a computer program.

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 kernel of the program system SSYST was adapted to the IBM 370 so that computing costs now are reduced considerably.
- The program WAK, which calculates the thermohydraulics during the reflood phase is now available within SSYST
- The modul STADEF is completed. STADEF calculates the clad mechanics two-dimensionally.
- The modul ZIRKOX which calculates the oxidation of the cladding is programmed.

Work was done on the area of statistical considerations of ballooning or an improved representation of the material properties and on

thermohydraulics during reflood phase.

The code RELAP was applied to "sample problems" of the USNRC. The code system SSYST was applied on PNS 4236.

### Essential Results

All moduls planned for SSYST-Mod 1 are completed.

### Plans for the Near Future

A detailed parameter study with SSYST will be performed.

4234      Decay Heat Measurement of  $^{235}\text{U}$   
            (K. Baumung, INR)

### Objectives

The decay heat data of  $^{235}\text{U}$  are one of the main uncertainties of the LOCA analysis. Therefore more accurate data shall be supplied by calorimetric measurements in the time period from about 10 to 1000 seconds.

### Work Completed and Essential Results

At first the present data of the decay heat and the different measurement methods were reviewed. This led to the following results: Different calculations of the afterheat from nuclide data are consistent. However, there exist differences between the calculations and the separate  $\beta$  and  $\gamma$  measurements; and there also exist discrepancies among the various experimental results. The first and, so far, the only calorimetric measurement, which has been performed for shorter cooling times (beginning at 70 seconds) by LOTT et al. (1973) seems to yield the most reliable data. But it shows that the ANS-5.1 standard as well as the fit by PERRY et al., who used all experimental data available by 1973, may be 20 to 30 % too high for decay times in the order of some hundred seconds, a time period which is of special interest for the LOCA analysis.

Therefore further experimental data are required to resolve the discrepancies. Although there are difficulties in measuring fast time dependent thermal powers by means of calorimetry a comparison of the various experimental methods suggests using this method because it is the simplest one and directly yields the desired quantity with good accuracy.

To overcome these difficulties a computerized adiabatic microcalorimeter with a time constant of only several seconds is being developed. With the aid of this instrument it should be possible to extend the range of calorimetric measurements of the decay heat to cooling times as short as 10 seconds.

#### Plans for the Near Future

In the next half-year the calorimeter and a pneumatic transport facility will be designed and constructed and in parallel computer programs will be developed for calorimeter control data evaluation.

4235        Studies on Material Behavior During a LOCA

4235.1 Investigation of the Mechanical Behavior of Zircaloy-Cladding  
Material During a LOCA  
(M. Boček<sup>V</sup>, IMF II)

#### Work Completed

Investigations were performed on:

- The temperature dependence of the total elongation.
- The strain rate dependence of the yield stress.
- The macroscopic fracture behavior
- The grain structure after deformation.

All these deformation tests were carried out in air atmosphere on sheet specimens.

### Essential Results

- The total elongation shows a maximum at 850° C and decreases above 1050° C - due to drastic oxidation - to very low values.
- The influence of sample orientation (angle  $\gamma$  between the sample axis and the rolling direction) upon the strain rate exponent  $m$  has shown to be very sensitive to orientation. Thus the superplastic behavior is not only determined by the temperature- and stress- (strain rate-) range, respectively but depends also on the texture.
- There is a very pronounced change in the deformation behavior at  $T \geq 850^\circ \text{ C}$  in the strain rate range  $\dot{\epsilon} = 10^{-4} + 10^{-3} \text{ (s}^{-1}\text{)}$ . No change could be observed on samples for which  $\gamma = 45^\circ$ .
- Samples deformed to fracture below 850° C failed by necking. No necking occurred on specimens for which  $m \geq 0,3$  (depending on temperature, strain rate and orientation).
- No stretchedgrains were observed on samples for which  $m \geq 0,3$ . However a large increase in grain diameter appeared in this specimens.

### Plans for the Near Future

For the further investigations of the above problems it is intended to perform tensile tests in vacuum and burst tests.

4235.2 Studies on High Temperature Steam Oxidation of Zircaloy-4 Cladding Tubes  
(S. Leistikow, IMF/ II)

### Work Completed, Essential Results

The already published results of high temperature steam oxidation experiments, testing Zircaloy 4 tubing at 900 - 1300° C, have undergone further

evaluation. It was checked how they fit into the frame of already published international data. It was shown that total oxygen consumption and penetration can be expressed by parabolic rate equations. In addition, the average thickness of O<sub>2</sub>-stabilized  $\alpha$ -phase, which penetrates  $\beta$ -phase as  $\alpha$ -incur-sions, was measured and taken into account, but was found not to be covered by the parabolic relationship because of its highly time and temperature dependent character. The activation energy Q, compiled by plotting the parabolic rate constant as function of  $1/T$ , was shown to be of about 47 kcal/Mole (compared to Baker-Just = 45,5 kcal/Mole), the plotting of the average diffusion coefficient as function of  $1/T$  resulted in Q = 51 kcal/Mole (compared to 41 - 51 kcal/Mole for oxygen diffusion in  $\alpha$ -Zr, according to literature). Furthermore good agreement of experimental results with computer values, calculated by a new program on the basis of diffusion coefficients and equilibrium concentrations, was verified.

All other activities were concentrated on preparations for in- and out-of-pile steam oxidation testing superimposed by biaxial tensile stresses or joined by tensile testing. First argon-pressurized capsule oxidation experiments showed the appearance of stress-assisted oxide scale cracking followed by deeply penetrating additional bulk oxidations.

#### Plans for the Near Future

Further oxidation kinetic evaluations are directed towards experiments to determine the influence of

- flow rate of steam,
- LOCA typical time-at-temperature conditions, and
- stress-assisted additional oxidation.

4235.3 Studies on the Chemical Interaction of Fuel and Zircaloy  
Cladding  
(P. Hofmann, IMF/I)

#### Work Completed

In the nuclear fission of oxide fuel oxygen is released which is partly

bound by the fission products and partly by the Zry-cladding. Based on thermodynamic data of the cladding material-fuel-fission product-system the oxidation of the cladding was estimated as a function of burnup.

Zry-4 cladding tubes filled with  $UO_2$  of different O/U-ratios were used in experiments up to 1200°C in order to determine the influence of the oxygen potential of the oxide fuel on the mechanical properties of Zry-4.

### Essential Results

Theoretical estimates have shown that the amount of oxygen available is greater when Pu-239 is used as the fissile isotope in LWR fuels than with U-235 as the fissile material, which involves a greater fictitious increase in the O/M-ratio ( $M = U, Pu$ ) of the fuel. The O/M ratios in practice vary between 2.000 and 2.05 depending on burnup.

The experiments with the short fuel rod simulators show that the mechanical properties of Zry-4 are strongly modified by the chemical interactions with the oxide fuel. The degree of plastic deformation of the cladding tube is dependent on the O/M-ratio of the fuel. For  $O/M \geq 2.05$  the Zry-tube specimens always burst between 800 and 1000°C.

### Plans for the Near Future

- Systematic investigations into the influence of the oxygen potential of the fuel and the fission product concentration on the chemical and mechanical behavior of Zry.
- Determination of limit values beyond which the cladding tubes will fail.
- Experiments with continuous measurement of the inner pressure in the tube specimens.

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

### Work Completed

A sensitivity study with the one dimensional heat conduction code RESIM has been performed with respect to the influence of changes in geometry and material properties upon the quality of simulation for a fuel simulator with  $\text{UO}_2$  annular pellets. The development of the fuel rod simulators has been continued with preliminary experiments including the cosine distribution of power production in the directly heated rod for heat transfer measurement and the instrumentation with thermocouples. The fuel rod simulator with  $\text{Al}_2\text{O}_3$  coated  $\text{UO}_2$  annular pellets and alternatively with  $\text{Al}_2\text{O}_3$  annular pellets has been tested in further experiments. Calculations with RESIM for the alternative configuration have been made. Further calculations have been performed with the new code AXIAL to investigate the axial temperature distribution in the area of the junction between the power supply and the graphite heater.

Work on design problems of the experimental equipment as the wall heaters of the test section and the sapphire windows for the optical temperature measurement of the canning is going on. The frame for the loop has been finished and the installation of the tubes at the condensation vessel started. Calculations have been made about the loads from the pressure and temperature fluctuations in the test section. The power supply for the heaters has been designed as well as the data acquisition system.

The "true mass flow meter" for the measurement of transient two phase flows and the equipment for the optical measurement of canning temperatures in the test section have been developed. The equipment for X-ray density measurement has been ordered.

### Essential Results

The RESIM sensitivity study showed the extraordinary good quality of simulation of the rod with  $\text{UO}_2$  annular pellets. This shows the suitability of the chosen fuel rod simulator concept. The development of the rod is now ready for the fabrication of a prototype. The simulation rod with  $\text{Al}_2\text{O}_3$  coated  $\text{UO}_2$  annular pellets showed an electrical shortage during one experiment. The reason for this shortage is not clear so far. The

alternative rod concept with  $\text{Al}_2\text{O}_3$  annular pellets, which does not show such a high simulation quality, is as well developed and tested in experiments. This rod is ready for use.

The development of the "true mass flow meter" showed that for calibration only one single evaluation constant has to be found out. So in principle the calibration is also possible with single phase flow. Further tests of the optical temperature measurement of the fuel rod canning inside the test section confirmed an accuracy of about  $\pm 3\%$  (centigrade scale).

#### Plans for the Near Future

The evaluation program as well as the experimental program itself will be developed in more details. The construction of the experimental equipment is going on. The simulation fuel rod with  $\text{UO}_2$  annular pellets will be tested to find out possible failures. The development of the instrumentation is going on, too.

4237.1 Investigations on Fuel Rod Failure during the 2nd Heatup  
Phase of a LOCA  
In-pile Experiments with Single Rods in the DK-Loop of  
the FR2 Reactor  
(E. Karb, L. Sepold, RBT)

#### Work Performed and Essential Results

The activities in the first half of 1975 aimed mainly at the start of the in-pile experiments in the FR2 reactor. Preparations were made for experiments with two types of pins:

- a) Experiments with nuclear pins (PWR-Design, short length)
- b) Experiments with electrically heated fuel rod simulators (BSS) in connection with subproject PNS 4237.2.

The objectives of the BSS experiments were explained in the last semi-annual report.

## 1. Experiments with Nuclear Test Specimens

The specification of the nuclear test specimens was completed according to schedule early this year. The last effort needed was the design of the plenum volume.

This required the analytical determination of the internal pressure as a function of time at the axial position of the ballooning in the short length test rod as against the full length PWR rod. The differences between test rod and regular PWR rod are: A shorter pellet stack length (test rod to PWR rod length  $\approx 1/7$ ) and the fact that the test rod will have only one (upper) plenum whereas the PWR rod has the free gas volume divided in an upper and a lower plenum.

Satisfactory agreement was reached for the most important period of time of the failure sequence i.e. the time approximately 1 second after onset of ballooning. The result: The plenum of the test rod will have the same volume as both plena of the PWR rod together. The calculated results were backed up by gas flow experiments with helium and argon under the anticipated pressure conditions in the pin.

Accordingly, it was possible to order the test specimens in spring. They will arrive here by July.

The first rig for pre-irradiation of six test pins has been assembled. Presently, the rig is being equipped with flow meters, thermocouples and vanadium detectors. This will be followed immediately by a test of the complete pre-irradiation rig in the fuel element test bed of the FR2.

The components of the in-pile test section (for single pins) are under fabrication. The program for testing the components, among others with respect to leak tightness, is being worked out.

Within the framework of activities on the safety report regarding the in-pile experiments on irradiated pins the radiological environmental burden caused by the experiments is presently being calculated under various boundary conditions.

Software and hardware for the connection to the CALAS data acquisition system are under preparation. The trial phase will follow immediately.

The modifications of the loop presently carried out are aimed primarily at improving the measurement accuracy. Besides others the orifice for coolant flow determination was redesigned. Right now the orifice is being fabricated. Exact measurement of its geometrical dimensions and hydraulic calibration will follow.

A specification was written for purchasing an advance series of thermocouples for measurement of the rod cladding temperature. According to this specification, the design of the thermocouples is as follows: Wires made of Ni/Cr-Ni with an insulated measuring junction and a stainless steel sheathing. The material between Zircaloy cladding and the SS thermocouple sheath used to avoid formation of an eutectic between these materials was selected to be Platinum because of its good corrosion resistance to steam. The Platinum will be swaged onto the measuring junction of the thermocouples as a sleeve. The feasibility of the swaging process is not yet tested completely.

## 2. Fuel Pin Simulators (BSS)

The fuel rod simulators and the status of the work concerned are described in the next contribution, PNS 4237.2.

### Plans for the Near Future

In the second half of 1975 the experiments on nuclear pins will begin. The first experiments will be carried out with unirradiated pins. In 1976 they will be continued, perhaps with irradiated pins. One of the pre-conditions is the successful welding of thermocouples on irradiated pins under hot cell conditions. The pertinent work will be started in this year. The pre-irradiation of the pins in the FR2 reactor is scheduled to begin in the second half of 1975 and will take more than 2 years, depending on the burnup level.

4237.2 Reference Tests with Electrically Heated Fuel Rod Simulators  
(Single Rods) as a Supplement to the In-pile Experiments  
PNS 4237.1  
(B. Räßple, RBT)

Work Completed, Essential Results

Based on a fuel rod concept available since the beginning of this year, a prototype heater rod was developed and fabricated. A complete test rig was built for use in the pressurized loop of FR2 and the components for rigs required in 1975 were procured. A first series of heater rods are being manufactured.

Experiments were performed on partial determination of power at the heater rod and on electrical insulation of the heating conductor against the rod cladding under operating conditions. The experiments are presently evaluated.

Plans for the Near Future

In the second half of 1975 preparatory work will be done in combination with PNS 4237.1 for the envisaged in-pile tests (handling, component testing, processing of measured values). Also the experiments in the FR2 reactor to judge the different methods of rod power determination (nuclear, thermal, electrical) will be performed using different ways of power generation (nuclear, electrical). At the same time, these experiments serve the purpose of in-pile testing of the heater rod model and of the test assembly.

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

Work Completed and Essential Results

The development of fabrication methods for the production of fuel rod simulators has been largely terminated. For welding of Zircaloy-4 and

Inconel 600 explosive welding has proved to be promissory in preliminary tests. A prototype fuel rod simulator was tested at full power. Its performance was faultless and the fuel rod and ring pellets could be easily dismantled and reused after the experiment.

Planning of the test rig and electricity supply were terminated. Most of the assembly work has been finished. For electric heating of the fuel rod simulators a special device was built and tested which allows to program the power control.

The radiographic system recording ballooning of the zircaloy clad was erected outside the test space and put into operation. First trial pictures yielded good results.

The design of the two colour pyrometer for contactless measurement of the cladding temperature at the point of ballooning was completed. Work was started on the assembly of the instrument and a test setup was prepared to verify its performance and for the purpose of calibration.

Planning of the systems for recording and transmission of measured data was terminated. The data recording system will be delivered shortly. The facility for data transmission between the control room and the CALAS computer system was completed and tested.

Computer programs were established for thermal design and experimental verification of the fuel rod simulators. Work has been started on the adaptance and verification of parts of the SSYST fuel rod behavior code.

#### Plans for the Near Future

It is intended to perform the following significant tasks during the next months:

- Fabrication and instrumentation of fuel rod simulators.
- Completion and putting into operation of the radiographic system at the test section.
- Completion and calibration of the two colour pyrometer as well as starting work with the test section.
- Putting into operation the entire measurement data transmission system.
- Preliminary tests on thermal behavior of the fuel rod simulator, on gap gas flow towards the point of ballooning and localization of the point of ballooning.
- Verification of preliminary tests using especially established computer programs.
- Sensitiv study of the thermal behavior of the fuel rod simulator by means of a heat conduction program.
- Adaption of parts of the SSYST fuel rod behavior code.

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 and Essential Results

The test loop has been built up and is connected to the steam and water supply installations; some additional work must be done with instrumentation and thermal insulation. Connections are installed between the test section and the power thyristors for electrically heating of the rods; for controlling the thyristors in the pre-test phase and during decay heat simulation a special device was built and tested together with a power-resistor. The software for the fast data acquisition with a new equipment, that will be delivered within the next weeks, was prepared.

The design of the first test section for an arrangement of five rods

was finished. The longitudinally divided housing and the spacer grids are under fabrication; the heater rods for the first experiments are delivered by the manufacturer and are checked to be within the specifications; now the time consuming work of thermocouple installation in the heater sheaths is on the way. Pretests for the attachment of the blockage sleeves to the heater rods are finished for the time being; because the connection between the adaptor bush and the heater rod was not fully successful by using high temperature brazing or explosive welding, now a test rod was fabricated by swaging the bush to the heater rod. This rod is ready for testing within the next weeks. Computer calculations concerning the axial component of the heat flux near the artificial blockage showed that it is possible to calculate the heat flux at the surface of the rod as near as 10 mm behind the blockage sleeve with an error smaller than 2 %. A preliminary test program was scheduled.

#### Plans for the Near Future

Until the completion of the test section and the heater rod instrumentation starting tests with the loop with its instrumentation and with the data acquisition system will be conducted.

As a parallel activity it will be checked experimentally if the wetting of the observation windows can be retarded by heating the glass with a vacuum deposited thin metal layer. Heater rod testing will be continued.

Depending on the availability of the heater rod instrumentation the experiments of the first test group with smooth rods are to be conducted until the end of the year.

4240 Core Meltdown of LWR

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 continuation of the experiments described in the last half-year report single rods were melted down in helium and air. This should give information on the behavior of the rods in non- and strong-oxidizing atmosphere. Since the interaction between Zircaloy-can and  $UO_2$ -pellet, influence by oxidation due to the surrounding atmosphere, the dynamical behavior of the system Uranium-Zircaloy-Oxygen is determining for the meltdown behavior.

In order to investigate the development of this interaction, series of experiments with different final temperatures have been performed. The temperatures reached values of  $1450^{\circ}C$  to  $1850^{\circ}C$  in He and  $1600^{\circ}C$  to  $2220^{\circ}C$  in air. This series also have been carried out to settle the exact temperature of failure.

The vapor production facility and the data acquisition device needed for the bigger pressure vessel has been installed.

### Essential Results

In the nonoxidizing helium atmosphere at  $1850^{\circ}C$  Zircaloy and  $UO_2$  interact violently. The result is a combined meltdown of pellets and can. This phenomenon appears independent of the velocity of temperature rise. In air the oxid skin splits open at  $1890^{\circ}C$  and the earlier molten material of the interior begins to flow out. When heating up to more than  $2200^{\circ}C$  the oxid skin remains solid nevertheless.

### Plans for the Near Future

Experiments for determination of failure temperatures are continued. After completion of the vessel for the experiments in steam atmosphere, it will be installed together with the steam generator and the data acquisition device. In this vessel first experiments will be performed with different amounts of steam in order to simulate the different regions of the failing core.

4242 Studies Relating to Hydrogen Formation and Recombination  
during LWR Core Meltdown  
(S. Dorner, INR)

### Objectives

The work is concerned with the possibilities of hydrogen release following LWR core meltdown; related studies are being made on the prevention of explosive mixture formation.

### Work Completed

After the finding that the metal-water reaction is the fastest among the hydrogen generating processes, H<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> absorption with aqueous solutions was investigated in addition to alternative methods following to prevent the formation of oxyhydrogen gas, such as inertization and catalytic recombination.

### Essential Results

The aqueous absorbers could be used together with a sprinkler system. Oxygen absorption can be performed more easily in aqueous solution than hydrogen absorption. When absorption takes place in aqueous solution, the pressure in the containment is reduced by the partial pressure of the gas fraction absorbed.

### Plans for the Near Future

Should alternatives be desirable to prevent the formation of an oxyhydrogen gas mixture after an LWR incident, future studies will have to reveal which of the methods discussed have to be developed to technical maturity. It should be studied at the same time whether combined methods offer maximum reliability.

4243 Experiments on Determination and Limitation of Fission and  
Activation Product Release during Core Meltdown  
(H. Albrecht, D. Perinic)

Work Completed

a) Experimental Set-up

The installation of the melting plant SASCHA which was specified for experiments with slightly active corium and fission has been completed, and the acceptance test program agreed with the supplier has been carried out successfully. Also the transport and sampling devices for the released products have been completed so that experiments with the whole assembly can be started now.

b) Preliminary Melting Experiments with Corium in Air

As long as the melting plant SASCHA was not available a series of melting experiments with corium were conducted using a simpler arrangement and a 12-kilowatt high-frequency generator. The following items have been analyzed:

- causes of the swelling and spattering of molten material during the inductive heating
- development of a system to draw off the released products from the crucible region
- compatibility of corium melts with ceramic crucible materials
- behavior of corium melts in concrete crucibles

c) Development of the Temperature Measuring Technique

The accuracy of the temperature measurement by a quotient pyrometer is influenced by the emission properties of the samples as well as by the extinction of the vapors above the melt. Therefore, several corium components were melted separately to examine the corresponding selective properties in the range of the reference wavelengths of the pyrometer. Furthermore, it was necessary to investigate the sensitivity of the pyrometer to varying intensities of the radiation emitted by the melt and to find out if such variations could lead to additional errors or the measured temperature.

d) Filter Tests

By means of an aerosol generator inactive test aerosols of the oxides of Mn, Zr and La have been produced in order to examine the retention behavior of different types of membrane filters. Quantitative determination of the precipitate by activation analysis was carried out by means of irradiating the filters together with the precipitates. The accuracy of this method was examined for different filter materials and more than 10 inactive corium and fission product elements.

Essential Results

a) Melting Experiments with Corium in Air

The main reason for the swelling and spattering effects of molten corium will probably be mechanical forces which result from inhomogeneous magnetic fields. When longer induction coils were used or coils which had a conical form getting larger at the lower end, the mentioned effects were much less marked.

Looking for a suitable pipe material for drawing off the released products from the crucible region we found a special type of glass ("Duranglas") to have the best properties. Pipes from  $Al_2O_3$  were superheated locally by ejected molten particles so that they cracked and broke to pieces.

The investigations concerning the compatibility between corium and  $ThO_2$ -crucibles have confirmed the earlier results that a melt of  $2400 - 2600^\circ C$  can be kept in the crucible not longer than about 15 minutes. After this time the crucible walls are washed out so far - especially in the range of the melt surface - that the melt will penetrate and run out.

At a temperature of  $2400^\circ C$  all corium components are molten. At first, two separated and immiscible phases are found - one metallic and one ceramic. But when the zircaloy and the steel components have been oxidized totally, a uniform, single-phase melt will be formed.

The experiments for producing corium melts in crucibles from concrete were carried out because in later experiments the influence of concrete on the fission product release is to be investigated. The first remarkable result is that corium temperatures of at least

2000° C could be reached by inductive heating. During the experiments the melt was quickly covered by a skin of glass which tended to expand as far as beyond the upper end of the crucible. Thus, the access of air to the melt was largely prevented so that no intensive burning could take place. The melt was penetrating the concrete with a velocity up to 5 cm/min.

b) Filter Tests

The retention factors of membrane filters from cellulose acetate and regenerated cellulose were found to vary between 99.76 and 99.99 %. In order to find out if the results gained with the test aerosols are transferable on real fission product aerosols, the size of the deposited particles was measured by use of a scanning electron microscope. The average diameter found was 0,1 µm, a value which is typical for real fission products.

The above mentioned method of activation analysis for the determination of inactive fission deposits on membrane filters seems to be well practicable. Though the evaluation is still incomplete it looks as if the detection limit will be in the range of 0,1 µg for the most corium components and several fission products when filters from cellulose or polyamide are used. This result already includes the fact that the filters are enclosed in polyethylene foils before being irradiated and that these foils as well as the filter material give rise to a considerable γ-activity which is due to their content of K, Na and Fe.

Plans for the Near Future

The next steps will be:

- start of experiments with the melting plant SASCHA and the fission product transport and filter system
- final installation of all devices for temperature measurement; determination of the correction factors which are needed for use of the quotient pyrometer

- automatization of the  $\gamma$ -ray analysis by means of a data processor
- production and analysis of fission pellets containing  $UO_2$  and slightly active fission products with a simulated burn-up of  $\leq 50000$  MWD/t.

4244 Constitution and reaction behavior of LWR materials at core melting conditions

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

#### Work Completed

##### a) Phase equilibrium studies

Further investigations were performed in the systems U-Zr-O, Fe-Zr-O and U-Fe-O; melting temperatures have been measured in the system Fe-Zr-O. In the quaternary system U-Zr-O investigations were started by preliminary melting experiments of samples  $UO_2$ -Zr-Fe within a closed system at temperatures between 2300 and 2500° C.

A high-temperature X-ray diffractometer has been tested and calibrated for the intended investigations of core components.

##### b) Reaction studies

The evaporation loss of molten Corium E in inert gas atmosphere (Ar) was investigated by melting-experiments in an induction furnace and an electric arc furnace. 10 samples of each melting series have been analyzed quantitatively.

Reaction experiments in inert gas atmosphere (Ar) were performed with Corium A samples (65 w%  $UO_2$ , 18 w% Zry-4, 17 w% steel 1.4550 in annular arrangement) and with samples of chemical composition 50 w% Cor. A + 50 w% Cor. E (50 w%  $UO_2$ , 14 w% Zry, 36 w% steel).

##### c) Metallurgical examinations of molten rods

Simulated LWR-fuel rods heated in inert gas atmosphere (He) and in air have been examined.

## Essential Results

### a) Phase equilibrium studies

The estimated phase boundaries in the ternary systems U-Zr-O, Fe-Zr-O and U-Fe-O were confirmed by further experiments. In the system Fe-Zr-O the melting temperature (liquidus) are shown to rise rapidly with growing oxygen content, starting from the pure metallic system Fe-Zr.

Two samples of the quaternary system U-Zr-Fe-O (in weight percent: 65 UO<sub>2</sub>, 18 Zr, 17 Fe and 35 UO<sub>2</sub>, 10 Zr, 55 Fe) were heated in a closed system to 2300 and 2500<sup>o</sup> C respectively. The phases could be determined. By X-ray diffraction the same phases were found as in melted Corium A and Corium E samples respectively.

### b) Reaction studies

By investigations concerning the evaporation behavior of a Corium E melt a considerable loss of weight of oxygen and also of U and Zr in the melted samples has been observed. There was no considerable influence of the duration of heat on the chemical composition of the samples because a stationary state was reached after 3 minutes.

Melting Corium A samples in inert gas atmosphere (Ar) formed a metallic and an oxidic melt which were immiscible. A unic metallic melt was obtained when the chemical composition of the samples was varied towards Corium R by rising the steel concentration to a value corresponding to a mixture of 50 w% Cor.A and 50 w% Cor.E.

### c) Metallurgical examinations of molten rods

#### 1. rods heated in inert gas atmosphere

The results are in good agreement with the results of former experiments.

#### 2. rod heated in air

When heated under oxidizing conditions the rod showed a different reaction behavior, as it was expected. The Zry-cladding has been oxidized and therefore remained inherently stable. Under the pretended experimental conditions no remarkable formation of fluid phases at the contact fuel-cladding occurred. At the contact fuel-heating rod variable chemical interactions with  $UO_2$  and W were observed and low-melting-point eutectical compositions were formed.

#### Plans for the Near Future

- a) phase equilibrium studies in the quaternary system U-Zr-Fe-O.
- b) further reaction studies concerning the evaporation and separation behavior of complex  $UO_2$ -Zry-steel melts; reaction and melting tests including concrete as a further constituent.
- c) metallurgical examinations of simulated rods heated at different temperatures and further investigations of rods heated in oxidizing atmosphere.

430C 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 Hydro-  
sphere Following Major Incidents

4311 Investigations on the Interactions of Fission Products and  
Aerosols on LWR-Containments  
Conception of the NAUA Code for Calculating the Aerosol  
Behavior in the Containment  
Parameter Studies  
(G. Haury, H. Jordan, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

### Work Completed

The purpose of the program is the development of a computer code NAUA (Nach Unfall-Atmosphäre, Post Accident Atmosphere) for predicting the time dependent behavior of radioactive aerosols in the post accident atmosphere of a LWR-Containment.

The first model NAUA-Mod 1 is being composed of two sub-codes

- NAUCON for calculating the steam condensation
- NAUPAR for calculating the aerosol removal

Both sub-codes have been developed separately taking into account the special coupling conditions.

In order to be valid in all cases of possible starting conditions in postulated accident sequences the model must accept a wide variety of parameter ranges. Sub-codes NAUCON has been tested in parameter studies to prove its reliability.

### Essential Results

An arbitrarily definable steam source has been added to NAUCON. This is intended to represent more closely the causal structure of events in the containment.

Calculations of steam condensation were done at various temperature and with various source values. The results are the weak influence of these parameters on the final state of the system and the confirmation of the main role of the initial aerosol size distribution and of the total steam mass concentration.

The high condensation rate has been proved in all cases. As NAUPAR calculates much slower processes the separate use of both sub-codes is maintained.

A preliminary comparison with the CORRAL code shows the conservative nature of this code.

### Plans for the Near Future

Work in the near future will comprise the integration of NAUCON and NAUPAR into the NAUA-Mod 1 and the specifications of the experimental facility.

4312 Theoretical and Experimental Investigations of the Atmospheric Diffusion of Radioactive Gases  
(H. Dilger, W. Hübschmann, K. Nester, D. Papadopoulos, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

### Work Completed

Three diffusion experiments were carried out during which chemical tracers were emitted from the meteorological tower at 60 m height. In the latter two experiments two tracers ( $\text{CF}_2\text{Br}_2$  and  $\text{CFCl}_3$ ) were used simultaneously for comparison. As the measured concentrations of both tracers compared well, they can be emitted simultaneously in the future at different heights. The gaschromatographic evaluation of the air samples has been improved by use of an automatic sample injector and a peak integrator.

The  $\gamma$ -dose rate below the FR-2 offgas plume containing Ar-41 was measured for a stable diffusion category in order to check the calculation model. Satisfactory agreement was found with the calculated dose rates.

### Essential Results

The analysis of the time dependent change of atmospheric diffusion parameters with respect to the irradiation doses expected from accidental fission product releases concentrated on the daytime and diffusion category parameters. This analysis shows among other results that the probability of a change of diffusion category is strongly dependent on these two parameters. The influence of the

surface roughness on the diffusion parameters  $\sigma_z$  and  $\sigma_y$  was evaluated theoretically on the basis of diffusion experiments. The analysis is based on the  $\sigma$ -curves proposed by Pasquill/ Gifford. The assignment of these curves to the diffusion categories established independently of the roughness is modified taking into account the local surface roughness.

The turbulent fluctuations of wind direction components have been evaluated from the measurements of the vector vanes installed at the meteorological tower. By Fourier analysis the power spectrum was calculated in the frequency range from  $1.4 \times 10^{-4}$  up to 0.125 Hz. The analysis allows to distinguish between the frequency ranges of the roughness-induced and the convective turbulence. Changes of the wind direction occur with periods of more than 15 minutes duration.

To protect the environment against the highly improbable accidental fission product release from the damaged containment, a  $\gamma$ -sensor grid was designed which should be capable of detecting the  $\gamma$ -radiation from the radioactive plume. At least 9 detector stations are located on a circle of 800 m radius. By this arrangement the  $\gamma$ -dose rates measured close to the plume allow derivation of the gamma activity emission rate. The latter indicates an eventual hazard to the population living in the vicinity through  $\gamma$ - and  $\beta$ -activity.

#### Plans for the Near Future

The tracer experiments are being continued. Two chemical tracers will be emitted simultaneously at different heights in order to investigate the height dependence of the diffusion parameters. In order to reduce the manpower requirement for these tests the components of an automatic sampler station have been developed and tested. These components are ordered and should be operative at the end of 1975.

4312 TU H      Modelling of the Diffusion of Pollutants in the  
BMI SR 21      Atmosphere under Varying Conditions in Large  
                 Cultivated Regions

Work Completed and Essential Results

The most important routines of a numerical code based on the particle-in-cell-method for calculating the transport and the turbulent dispersion of inert and radio-active pollutants in the atmosphere have been programmed and have been tested successfully on the CDC computer CYBER 73/ 76 of the Regional Computer Centre for Niedersachsen in Hannover. Compared to the Gaussian plume model such a numerical code based on the particle - in - cell - method offers several advantages for the computation of the diffusion under varying conditions in large cultivated regions.

Plans for the Near Future

As next step the input of the pollutant source distribution and the boundary conditions will be made more flexible and then calculations for comparison purposes will be undertaken with suitable wind-fields. For the future finally an improvement of this code is planned by inclusion of chemical reactions and potential combination effects in the atmosphere.

4400      CONFINEMENT AND ELIMINATION OF THE CONSEQUENCES OF INCIDENTS

4410      Isolation and Removal of Contamination

4411      Development of Decontamination Methods  
            (Th. Dippel, D. Hentschel, S. Kunze, ABRA)

1. Decontamination of Polyvinylchloride- and Rubber Type Flooring

Work Completed

PVC type and rubber type floorings showed erratic results during decontamination experiments. Therefore sets of twelve samples of

each material had been tested for their applicability in nuclear facilities by two standardised decontamination test procedures.

### Essential Results

#### PVC Floorings

These types, fabricated by mixing of the basic components, showed no relation between content of fillers and decontamination results. Decontamination results are partly poorer, if the flooring contains a high concentration of the filler, especially if the latter consists mainly of hydrophilic materials. The coloring of the floorings seems to have no influence on the decontamination but floorings with clearly separated patterns can not be recommended for nuclear facilities.

#### Rubber Floorings

Fabricated by chemical reactions between polymeres, vulcanization materials and fillers, the decontamination results depend definitely from the proper choice of the filler. Flooring types, containing lampblack, graphite, kaoline, barium sulfate and titanium oxide are easy to decontaminate. Again, increasing contents of hydrophilic filler cause a fall off in the decontamination results.

### Plans for the Near Future

Hereby, the decontamination tests with flooring materials are finished. The experiments on the development of a cleansing paste, reported in the second Semiannual Report 1974 and interrupted for reasons of providing material samples and measuring problems are now continued aimed to abandon the hydrochloric acid. By testing routinely fabricated badges of the cleansing paste selected, this work will be completed at end of 1975.

#### 2. Decontamination of Metal Surfaces by Molten Salts

### Work Completed

Decontamination experiments have been continued with stainless steel

samples, which carried a welding seam to simulate special surface conditions. These types of melts which had proven as effective according to the statement in the Second Semiannual Report 1974 had been used. The coating of the samples was accomplished by a flame spray system, which has been installed for this purpose.  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  turned out as the most suitable salt for this spray technique. Further experiments have been carried out aimed to optimize the treatment time i.e. the time in which the salt reacts with the surface of the sample, and the salt layer thickness.

### Essential Results

Molten salts which decontaminate non pretreated samples are also very effective with samples pretreated with a welding seam. The flame spray system is ready to use to decontamination experiments. With respect to  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  the treating time is about ten minutes. The salt layer thickness is at 0.3 mm at its optimum. With this conditions the flame spray technique reduces the salt bulk by a factor of 0.1 with respect to the quantity which is necessary for dipping technique, as calculations indicate.

### Plans for the Near Future

Laboratory experiments are continued to learn more about the behavior of the flame spray system. To finalize this work, the following experiments have to be carried out.

- Determination of corrosion rates of various types of stainless steels.
- Decontamination with a selection of other materials used in nuclear facilities.
- Decontamination of samples, contaminated during plant operation in nuclear facilities.

Gloveboxes, glove box equipment and samples are prepared for decontamination of Pu-contaminated surfaces. This work will be started on provision of the proper laboratory place.

4412 Migration of Longlive Transuranium Isotopes in the Soil and Geological Formations  
(A. Jakubick, Th. Dippel)

Probability approach to the problem of actinide release from final dispository

#### Work Completed

In addition to the nuclear facilities on the surface the final disposal site has to be considered as a potential source of transuranium contamination, although the probability of emission is very low. The increase of the transuranium inventory in the environment due to this source is connected with the probability of its release. For this purpose the probability of release from a salt formation was evaluated.

#### Essential Results

To estimate the possibility of a disturbance of the existing geological conditions by rare natural events a probability approach was applied. Supposing that the event is of random nature, a relation was obtained, which represents a special case of the binominal distribution. According to this approach the probability of occurrence of a geological disturbance in the vicinity of the final disposal site is in order of 3000 to 30 000 years.

#### Plans for the Near Future

Further predictions considering the migration of transuranics - on the soil surface as well as in the deep geological formations - require the knowledge of fixation of these nuclides by soils and rocks. The dispersivity of these media should be estimated too. For this reason experiments on this topic are planned.

4420      Techniques of Clearing and Dismantling

4421      Development of Methods and Techniques for Decommissioning  
            and Final Disposal of Nuclear Facilities  
            (G.W. Köhler, J. Weppner, RBT-IT)

Work Completed

Studies were begun on the project design of a plant for decontamination and processing fit for final storage of radioactive, heavy reactor components (conditioning plant); meanwhile work on clearance of a reactor core damaged by a major incident has been suspended for a certain time.

The work was started with the following three topics:

- Operating experience in large hot cell facilities in dismantling work and treatment of radioactive wastes.
- Design aspects of a conditioning plant and functional flow diagram.
- Methods of disassembly.

Essential Results

The operating experience was assessed from

- the FERAB (GfK) plant for treating medium radioactive, solid wastes.
- the Karlsruhe Reprocessing Plant (WAK) as an example of a reprocessing plant.
- the hot cells in Building 701 (GfK) as an example of a versatile installation in which various remote operations can be carried out.

The process flow diagrams of six treatment techniques applicable to heavy radioactive reactor components were analyzed and the most important process steps and their sequences were determined. Moreover, the importance and the probability of the different kinds of treatment was

estimated and a preliminary simplified basic floor plan of the central part of a conditioning plant was drafted.

#### Plans for the Near Future

The work will be continued as follows:

- Studies with regard to the concept of a conditioning plant.
- Studies of the dismantling of heavy reactor components and, if necessary, their treatment on the reactor site.
- Development of cutting and handling techniques.

4422 Remotely Controlled Working Equipment and Mobile  
Systems for Damage Assessment  
(G.W. Köhler, M. Salaske, RBT-IT)

#### Work Completed

The chassis of the lightweight manipulator vehicle MF3 was completely assembled and subjected to trial runs and acceptance tests.

The action control system for the whole MF3 system including command transmission, transmission of information and power supply for the MF3 chassis, two EMSM II manipulators, one stereoscopic TV system and several other equipment units was the subject of a tendering procedure after termination of the planning phase.

After the project design phase and following completion of the design of the electric Master Slave manipulators EMSM II for MF3, also these objects were tendered for.

The additional test rig for the electric Master Slave prototype manipulator EMSMI has been completed.

#### Essential Results

All functions of the MF 3 vehicle with its variable geometry chassis were verified in accordance with specifications.

Fixed price bids have now been submitted by industries on the action control system and the EMSM II manipulators.

Tests of the EMSM I manipulator with supplements especially the remotely controlled application of tools, have been started.

#### Plans for the Near Future

The EMSM I manipulator with supplements is to be used to gather first experience in working with manipulator vehicles in rooms under conditions as close to reality as possible.

The next steps to be taken for the development of the EMSM II and its action control system will be

- recommendation by the expert committee on "Equipment to be used in emergencies and for removal of the consequences of incidents",
- application for financial subsidies to be granted to the development project by the Federal Ministry of Research and Technology,
- placing orders with industries.

The EMSM II manipulators and its action control system integrated into the MF3 chassis would provide a lightweight vehicle to the Nuclear Emergency Brigade (KTH) for operations in buildings and in the open field. It could be used also for other remotely controlled operations and for damage assessment in nuclear facilities.

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUF-  
ARBEITUNGSANLAGEN

4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederauf-  
arbeitungsanlagen

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

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

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

Untersuchungen am Prototyp des Störfall-Umluftfilters

Die im letzten Halbjahr begonnene Prüfung einer Prototyp-Störfall-  
Umluftfilteranlage wurde bei höheren Temperaturen und Dampfge-  
halten fortgesetzt.

Tab. 4111-1 Untersuchung zum Betriebsverhalten eines Prototyp-  
Störfall-Umluftfilters unter erhöhter Feuchte und  
Temperatur

Prüfmedium : ca. 150 mg CH<sub>3</sub><sup>127</sup>J + ca. 1 mCi CH<sub>3</sub><sup>131</sup>J

Jod-Sorptionsschicht: AC 6120 mit ca. 7,9 g Ag/100 g Träger

Schichtdicke : 5 cm  $\hat{=}$  0,2 s Verweilzeit

Durchsatz : ca. 1200 m<sup>3</sup>/h

Betriebsbe- dingungen [°C]	Druck [bar]	Betriebsdauer des Einzel- versuches [d]	Betriebszeit insgesamt [d]	Abscheide- grad [%]	Fördermedium
150	1	3	3	> 99,99	trockene Luft
150	1	7	7	> 99,99	"
160	1	2	9	> 99,99	Heißdampf
160	1	5	12	99,988	"
160	1	7	14	99,979	"
108	1	3	17	99,983	Heißdampf
108	1	4	18	> 99,99	75 % Gas- feuchte

Die mit dem Störfall-Umluftfilter erreichten Abscheidegrade lagen nach der Gesamtbetriebszeit von 18 Tagen (ohne Einrechnung der An- und Abfahrzeiten) noch immer nahe der Nachweisgrenze, da aus Sicherheitsgründen die eingesetzte Aktivitätsmenge auf Aktivitäten  $\leq 1$  mCi je Versuch begrenzt bleiben soll.

Nach Errichtung eines Drucktanks werden die Versuche mit höheren Feuchtegehalten und unter Überdruck bis 5 bar fortgesetzt.

Die Probenahme wird zur Vermeidung von Kondensationsvorgängen in den Probensammlern zwischen 180 und 200°C durchgeführt. Dabei können keine handbetätigten Ventile eingesetzt werden. Um eine einwandfreie Probenahme auch bei aus Sicherheitsgründen nicht begehrter Prüfstandshalle zu gewährleisten, wurde eine vollautomatische Probensammeleinrichtung entwickelt und in Betrieb genommen, die eine beliebige Vorwahlzeit von einigen Sekunden bis zu 30 Stunden bei beliebiger Beaufschlagungsdauer ermöglicht. Dabei können bis zu 4 Proben vor und hinter der Testfilteranlage eingesetzt werden. (Abb. 4111-1 und 4111-2).

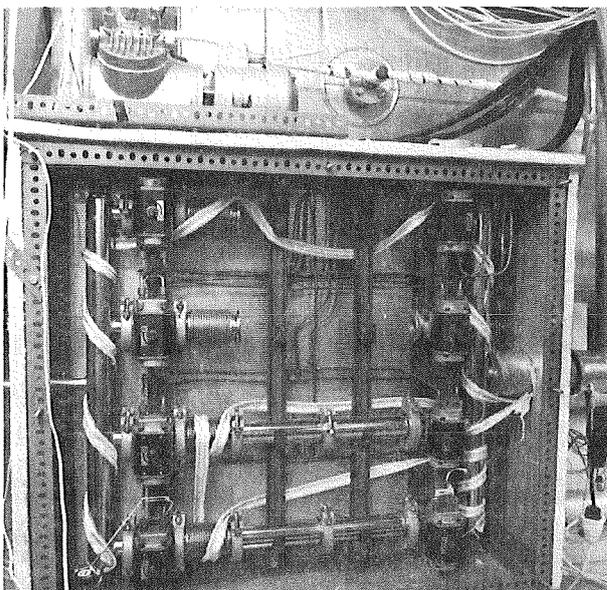


Abb. 4111-1: Probensammler

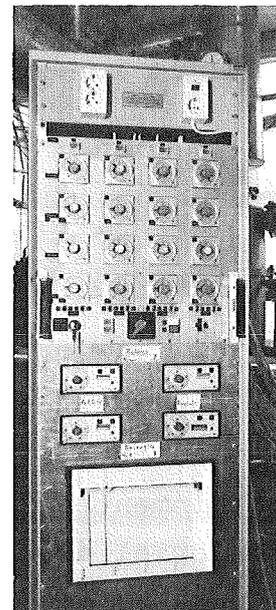


Abb. 4111-2: Steuerschrank

#### Abfuhr der Zerfallswärme aus dem Störfall-Umluftfilter

Zur Störfallfilteranlage wurden Rechnungen über das Nachwärme-Abfuhrproblem durchgeführt. Auf der Filteranlage können je nach Freisetzungsraten hohe Spaltproduktaktivitäten abgeschieden werden. Diese führen mit ihrer Nachwärme zu einer wesentlichen Temperaturerhöhung der Filteranlagenabluft und beim Ausfall des Antriebes der Filteranlage zu unzulässigen Temperaturen.

Es wurde deshalb untersucht, ob die natürliche Konvektion aus Temperaturunterschieden für eine Notkühlung der Filteranlage ausreicht.

Für die Rechnungen wurden folgende Parameter variiert:

Die Jodfreisetzung zwischen 5 und 25 %,  
die Aerosolfreisetzung zwischen 0,1 und 0,5 % Coreinventar,  
die theoretische Kaminhöhe der Filteranlage zwischen 5 und 20 m.

In Abhängigkeit von diesen Parametern wurde der zeitliche Temperaturverlauf der Abluft aus der Störfall-Umluftfilteranlage von 0 bis 100 Tagen ermittelt bei unterschiedlichen Durchsätzen von 10 bis 30.000 m<sup>3</sup>/h und für den Störfall "ausgefallener Ventilator".

Bei der Rechnung zur natürlichen Thermokonvektion wurden die Druckabfälle über die Filteranlage mitberücksichtigt. Es zeigt sich an Hand der Abb. 4111-3 bis 4111-8, daß bei "Kaminhöhen" ab 10 m auch bei hohen Aktivitäten unzulässige Temperaturen nicht überschritten werden, ja sogar im begrenzten Rahmen die Filterwirkung aufgrund des konvektiven Durchsatzes aufrechterhalten wird.

#### Transporterscheinungen unter Heißdampfbedingungen

Da aufgrund anderweitiger Erfahrungen Veränderungen der Imprägnierung des Jod-Sorptionsmaterials erwartet werden können, wurde untersucht, ob bei Temperatur- und Dampfbedingungen, wie sie im LWR-Containment herrschen, die Impägnierung des AC 6120 aus dem Trägermaterial austragen wird. Die Experimente wurden in einer Dampfapparatur bis zu 200°C und unterschiedlichen Bedingungen durchgeführt (s. Tab. 4111-2). Zur Messung der Austragung wurden imprägnierte Testbetten vom Dampf durchströmt und dieser dann über nachgeschaltete Abscheider geleitet.

Es wurden keine analytisch meßbaren Anteile auf den Abscheidern gefunden. Die Analysenempfindlichkeit betrug 0,6 µg Ag bei einem Einsatz von 32 g Sorptionsmaterial.

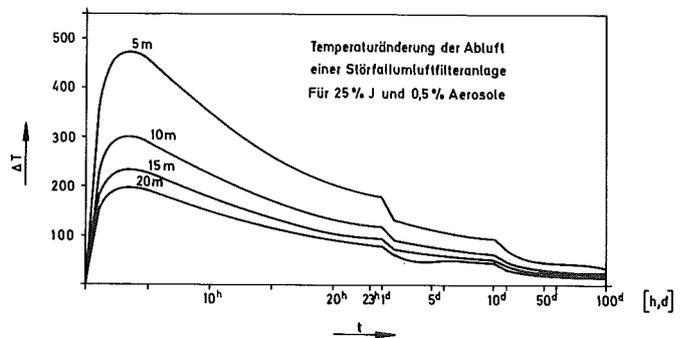
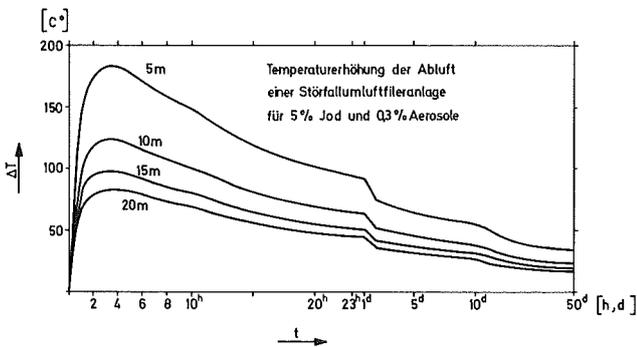
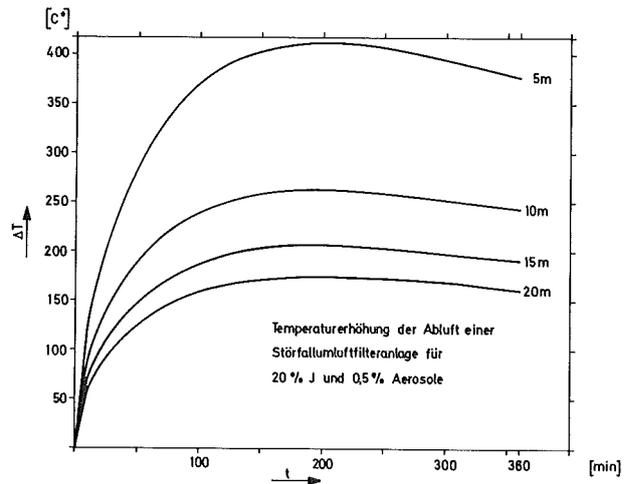
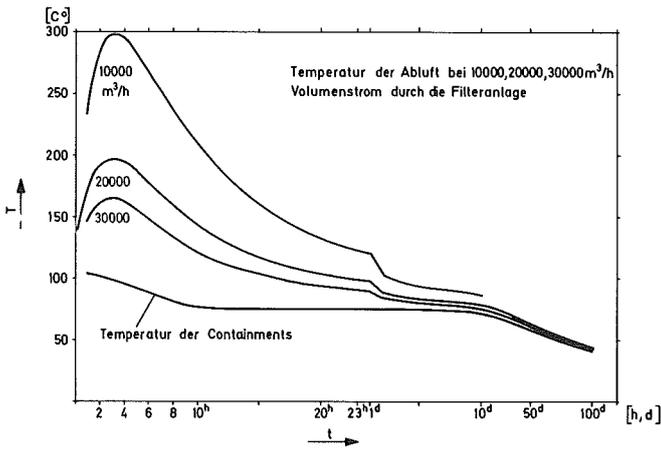
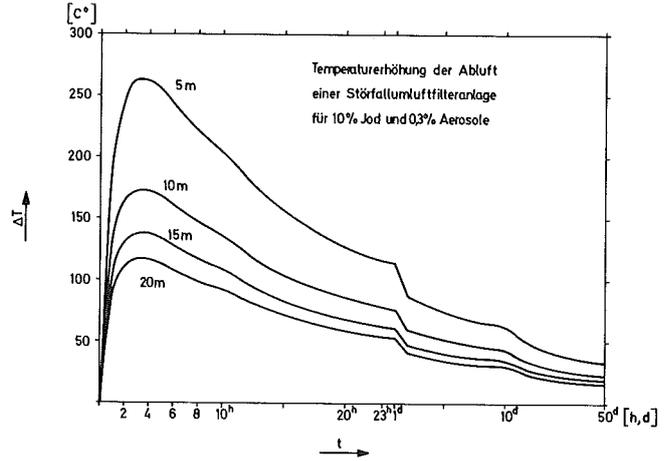
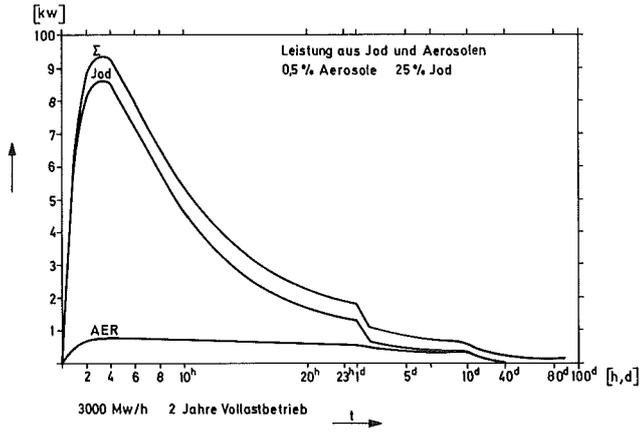


Abb. 4111-3 bis 4111-8: Zeitliche Temperatur- und Leistungsverläufe in einem Störfall-Umluftfilter bei unterschiedlichen Freisetzungsraten und Kaminhöhen

Tab. 4111-2 Untersuchung über die Austragung von Imprägnierung aus AC 6120 durch Heißdampf

Material : AC 6120  
Durchsatz : 441 l/h  
Versuchsdauer : 24 h pro Versuch  
Verweilzeit : 0,1 s/Testbett  
Anzahl der Testbetten: 4 zu je 2,5 cm  
Menge AC 6120 : ca. 8 g pro Testbett

Gaszusammensetzung	Temperatur [°C]	Druck [bar]	Anlaysenergebnisse
Heißdampf	150	2,5	< 0,6 µg Ag <sup>+</sup> )
"	200	4	< 0,6 µg Ag
" (wdh.)	200	4	< 0,6 µg Ag
Luft/Dampf	200	4	< 0,6 µg Ag

+ ) Nachweisgrenze

Bau eines Aerosolgenerators zum Einsatz unter simulierten Störfallbedingungen

(A. Weinert)

Zur Untersuchung von Schwebstofffiltern unter den Bedingungen eines LWR-Störfalles sind Prüfaerosole sowie Prüf- und Meßmethoden bereitzustellen, die unter hohem Druck, hoher Temperatur und großer Luftfeuchte eingesetzt werden können.

Nachdem das Flammenverdampfungsverfahren zur Herstellung von Feststoffaerosolen soweit entwickelt worden war, daß bei der Prüfung von Schwebstofffiltermaterialien unter Normalbedingungen reproduzierbare Ergebnisse erzielt werden konnten, wurde ein Konzept zur Anwendung des Verfahrens im technischen Filterprüfstand erarbeitet.

Von den beiden Möglichkeiten, den Aerosolgenerator direkt in den Hauptstrom des Prüfstandes einzubauen oder die Aerosole in einer außerhalb der Teststrecke liegenden Vorrichtung zu erzeugen und dann in die Teststrecke einzuspeisen, wurde aus Gründen der Zugänglichkeit und Regelmöglichkeit die letztere gewählt (s. Abb. 4111-9).

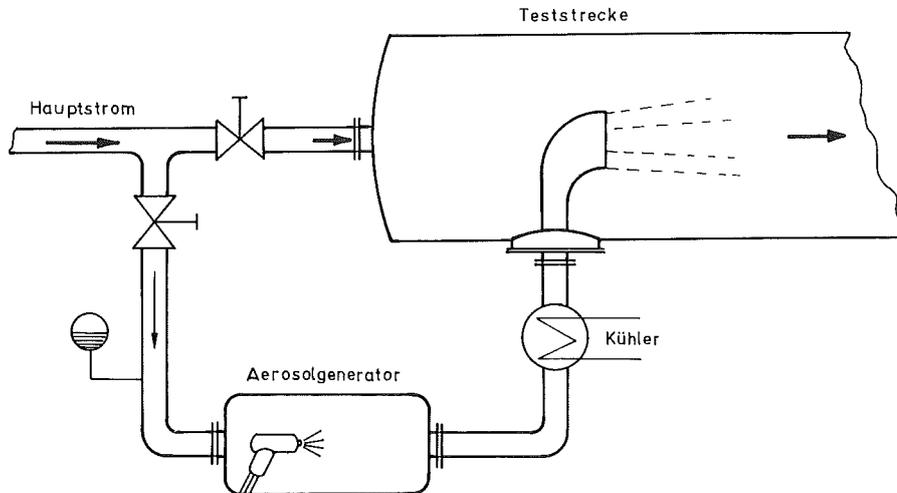


Abb. 4111-9: Entwurf für Aerosoleinspeisung im Filterprüfstand

Die Vorrichtung wird im Bypass zur Teststrecke gefahren, damit zur Kühlung des verdampften Salzes und zur Bereitstellung von Sauerstoff für die Flamme keine Fremdluft in den Kreislauf eingespeist werden muß. Der Einbau eines zusätzlichen Gebläses für die Förderung des Bypass-Luftstromes würde wegen der hohen Anforderungen an Temperaturbeständigkeit und Leckdichtigkeit großen technischen Aufwand erfordern. Deshalb wird der Durchsatz durch die Aerosol-Erzeugungsvorrichtung durch variable Drosselung des Hauptvolumenstromes vor der Teststrecke erreicht. Bei der Verwendung von Propan als Brenngas und einem Gasverbrauch des Brenners von ca. 200 l/h wird dem Bypass-Strom eine Wärmemenge von ca. 18.400 KJ zugeführt, außerdem eine geringe Menge Wasserdampf als Verbrennungsprodukt. Um die Feuchtluftbedingungen in der Teststrecke nicht zu ändern, muß die von der Gasflamme erhitzte Luft nach der Vermischung mit den Aerosolpartikeln mittels eines Wärmetauschers genau soweit abgekühlt werden, daß die durch Verbrennungswärme bzw. Verbrennungsprodukte bewirkten Änderungen ausgeglichen werden.

Das gewählte Konzept für die Aerosoleinspeisung hat den Vorteil, daß die gesamte Vorrichtung durch Absperrarmaturen vom Hauptkreislauf getrennt werden kann. Dadurch kann der Prüfstand separat angefahren werden und es sind auch während des Prüfstandbetriebes Eingriffe in die Aerosolerzeugungsvorrichtung möglich. Außerdem kann die Anlage als zusammenhängende Einheit gebaut werden, die in Stillstandszeiten ohne Umbauten am Prüfstand außer Betrieb genommen werden kann. Die Konstruktion der gesamten Vorrichtung wird an eine Fremdfirma vergeben, ebenso die Abwicklung der Sicherheitsfragen, die sich beim Betrieb des Gasbrenners unter erhöhtem Druck bzw. aus dem Einbringen von Brenngas in den Prüfstand ergeben.

Die experimentellen Arbeiten zur Entwicklung des Aerosolgenerators wurden fortgesetzt. Nach der Fertigstellung einer Einrichtung zur Verdünnung hochkonzentrierter Aerosole wurden Versuche begonnen, um die Teilchengrößenverteilung flammenverdampfter Salzaerosole zu messen. Die Verdünnung wird durch Zusammenführen der Partikel mit zwei gefilterten Luftströmen erreicht, die in geeigneter Geometrie aufeinandertreffen, wodurch eine ausreichende Vermischung zustande kommt.

Zur Zeit wird untersucht, ob es möglich ist, durch Variation des Durchmessers der in die Flamme eingespeisten Primärteilchen und anderer Parameter eine Beeinflussung des Aerosolgrößenspektrums zu erreichen. Bis jetzt konnten Natriumchloridaerosole erzeugt werden, deren Durchmesser zum größten Teil zwischen 0,05 und 0,17  $\mu\text{m}$  lagen. Nach neueren Erkenntnissen, die von Dymant [1] sowie Dupoux und Briand [2] wiedergegeben werden, liegt der am schwersten abscheidbare Teilchendurchmesser nicht bei 0,3  $\mu\text{m}$  sondern bei 0,15  $\mu\text{m}$ . Im Hinblick auf diese Versuchsergebnisse wird mit der ausgewählten Methode der Aerosolerzeugung ein zur Filterprüfung gut geeignetes Teilchengrößenspektrum erzeugt.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen  
(J. Furrer, R. Kaempffer, LAF II; K. Jannakos, W. Apenberg, RBT/IT)

Entwicklung einer Filteranlage für die Große Wiederaufarbeitungsanlage (GWA)

Ziel des Vorhabens ist es, eine komplette GWA-Prototyp-Filteranlage zu bauen und inaktiv zu erproben. Die Filtereinrichtungen müssen neben den Bedingungen, die eine konventionelle Filteranlage erfüllen muß, zusätzlich eine hohe Betriebssicherheit, eine ausreichende Dekontamination des Abgases und eine sichere Handhabung durch Fernbedienung der kontaminierten und strahlenden Filter ermöglichen.

Teilziele:

- Entwicklung eines Jodfilters für die o.g. Filteranlage einschließlich der Fernbedienungseinrichtungen zum Wechsel, Ausschleusen und Abtransport der Filtertrommeln.
- Aufbau eines Probestandes für die Entwicklung und Erprobung von Filterkomponenten.
- Inaktive Erprobung und Weiterentwicklung der Naßabscheider und Schwebstofffilter
- Ermittlung von Betriebsbedingungen für die Jodfilter einer großen Wiederaufarbeitungsanlage
- Spezifikation der Hauptkomponenten für die verbesserte WAK-Abgasreinigung

Im ersten Halbjahr 1975 wurden das Jodfilter und der Probestand für die Entwicklung und Erprobung von Filterkomponenten konzipiert und ein Vorentwurf zur Konzeption der Filteranlage gefertigt. Mit der Konstruktion und zum Teil Fertigung und Bestellung von Filterkomponenten für das Jodfilter und den Probestand wurde begonnen.

Die Konzeption der zu entwickelnden Filteranlage, die als Prototyp für die Abgasfilteranlage der KEWA dienen soll, ist aus der Abb. T027-1 ersichtlich. Neben den Überwachungs- und Regelungseinrichtungen - diese sind in der genannten Abb. nicht enthalten - sowie sonstigen Hilfsaggregaten sind für die Filteranlage die folgenden Hauptkomponenten vorgesehen: Naßabscheider, Schwebstofffilter, Jodfilter.

Das vom Auflöser kommende Abgas, ca.  $50^{\circ}\text{C}$ , gesättigt, wird im Naßabscheider (Tropfen- bzw. Nebelabscheider) durch Abscheidung von flüssigen und festen Aerosolen vorgereinigt und im anschließenden Gaserhitzer auf ca.  $100^{\circ}\text{C}$  aufgeheizt (Verringerung der relativen Gasfeuchte). Im Schwebstofffilter der Klasse S wird das Abgas von den mitgeführten radioaktiven Schwebstoffen gereinigt (Abscheidegrad  $\geq 99,97\%$  für  $0,3\ \mu\text{m}$  Schwebstoffe) und strömt über den Gaserhitzer, der die Gastemperatur auf ca.  $150^{\circ}\text{C}$  konstant hält, (Arbeitstemperatur des Jodfilters) in das Jodfilter. Das Jodfilter besteht aus zwei hintereinandergeschalteten Filtertrommeln, die mit dem Jodsorptionsmaterial AC 6120 gefüllt sind. Im Jodfilter wird das Jod mit einem Abscheidegrad von  $\geq 99,9\%$  abgeschieden. Das Abgas wird anschließend auf ca.  $90^{\circ}\text{C}$  abgekühlt und durch das nachgeschaltete Schwebstofffilter geleitet. Hier sollen Schwebstoffe, die ev. im Jodfilter entstehen, abgeschieden werden.

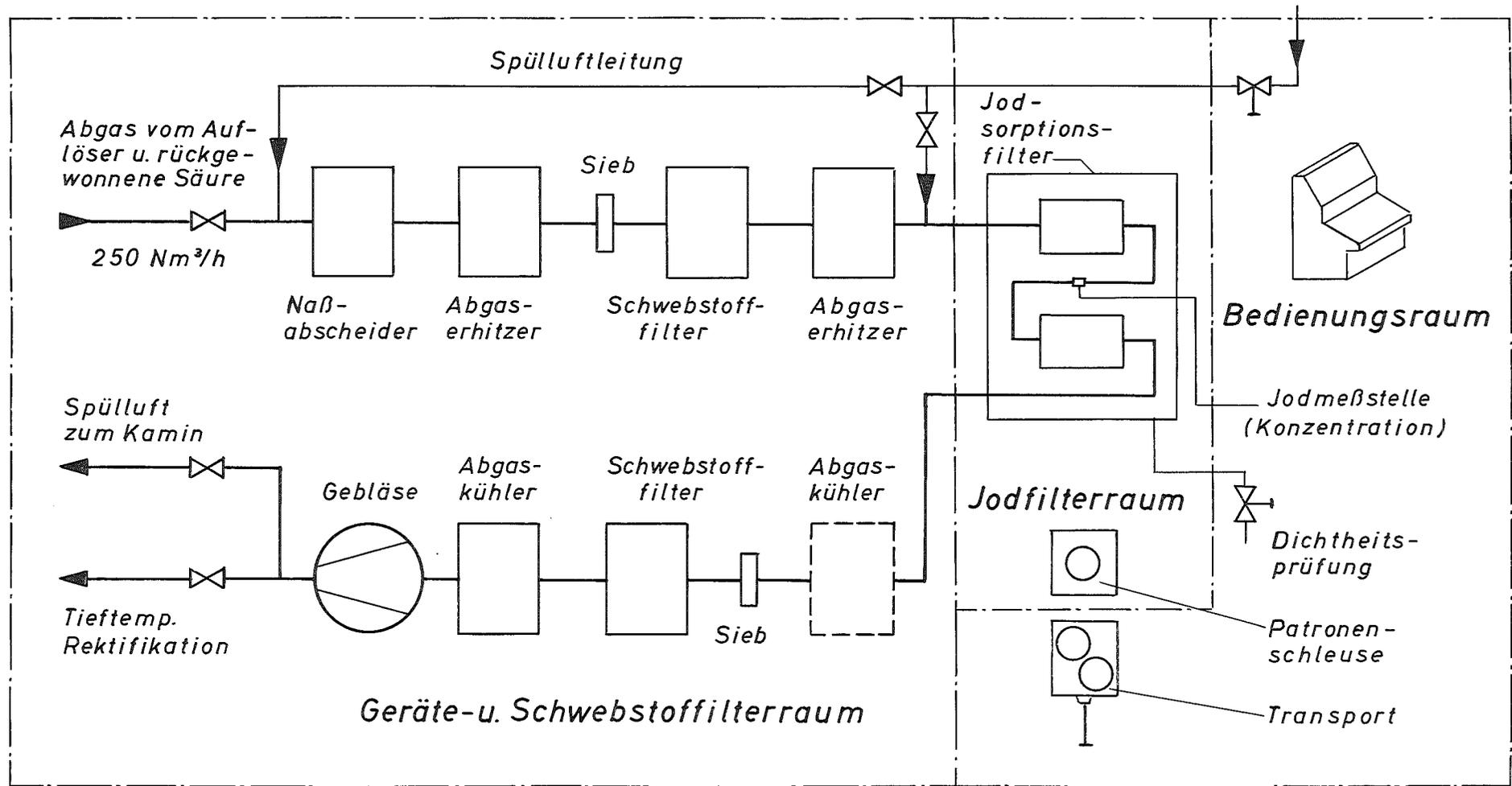


Abb. 4112-4: *Filteranlage (Entwurf)*

### Abscheideversuche unter GWA-Bedingungen

Im 2. Halbjahresbericht 1974 (KFK 2130) wurde über die ersten Abscheidungsversuche einer Versuchsreihe mit hochimprägniertem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H<sub>1</sub> berichtet, die im Berichtszeitraum fortgesetzt wurde. Filterbetten mit der für die GWA vorgesehenen Bett-Tiefe werden mit einer Menge an radioaktiv markiertem elementarem Jod beaufschlagt, die annähernd der stöchiometrischen Menge zur Umsetzung der Ag-Imprägnierung der Hälfte des eingesetzten AC 6120/H<sub>1</sub> entspricht. Der NO<sub>2</sub>-Gehalt des Trägergases und die Temperatur werden im Bereich der erwarteten GWA-Bedingungen variiert. Bei diesen Untersuchungen kann zur Bestimmung der Beladekapazität ein Teil des Sorptionsmaterials erschöpfend beladen und gleichzeitig zur Bestimmung des Abscheidegrades der Verlauf des Abscheideprofiles im restlichen Testbett gemessen werden. Die Ergebnisse bei einem NO<sub>2</sub>-Gehalt von 2,5 und 5 % sowie Temperaturen von 120 bzw. 150°C sind dem KFK 2130 zu entnehmen. Im Berichtszeitraum wurden die Untersuchungen mit verringerter NO<sub>2</sub>-Konzentration fortgesetzt.

#### Versuchsbedingungen:

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

Trägergas: Feuchtluft, Taupunkt 30°C, Temperatur: 120 bzw. 150°C, NO<sub>2</sub>-Gehalt: 1 %, lineare Luftgeschwindigkeit wie für GWA vorgesehen.

Als Einleitungsverfahren wurde die in KFK 2130 berichtete Methode für die Darstellung von großen Mengen an radioaktiv markiertem Jod verwendet.

#### Versuchsergebnisse:

Die Ergebnisse sind in Tab. 4112-1 und 4112-2 wiedergegeben.

Tab. 4112-1 Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, 1 % NO<sub>2</sub> im Trägergas, 120°C

**Versuchsbedingungen:**

Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub>, 1 - 2 mm Kugeldurchmesser, Imprägnierung gemäß GWA-Bedingungen  
 Trägergas : Luft + 1 % NO<sub>2</sub>; Taupunkt-Temperatur: 30°C; Testbett-Temperatur: 120°C  
 Vorströmzeit : 20 h; Beaufschlagung: 4 h; Nachströmzeit: 4 h  
 Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 1,01 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	9,5	1720	1. Bett	1720	1460	76,4
13,1	19,2	3480	2. Bett	1760	1490	78,1
19,7	28,9	5240	3. Bett	1760	1490	78,1
26,3	38,4	6960	4. Bett	1720	1460	76,4
32,9	47,8	8660	5. Bett	1700	1450	75,6
39,5	57,2	10360	6. Bett	1700	1450	75,6
46,0	66,3	12010	7. Bett	1650	1400	73,2
52,6	74,7	13530	8. Bett	1520	1290	67,6
59,2	82,9	15010	9. Bett	1480	1260	65,8
65,8	91,2	16510	10. Bett	1500	1270	66,5
72,3	97,4	17630	11. Bett	1120	955	49,9
78,9	99,92	18087	12. Bett	457	388	20,3
85,5	99,9998	18100	13. Bett	13	11	0,58
92,1	99,99992	-	14. Bett	+) )	+) )	-
100,0	99,99994	-	15. Bett	+) )	+) )	-

+) Nachweisgrenze unterschritten

Tab. 4112-2 Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, 1 % NO<sub>2</sub> im Trägergas, 150°C

**Versuchsbedingungen:**

Sorptionsmaterial: siehe Tab. 4112-1  
 Trägergas : Luft + 1 % NO<sub>2</sub>; Taupunkt-Temperatur: 30°C, Testbett-Temperatur: 150°C  
 Vorströmzeit : 20 h, Beaufschlagung: 4 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	10,9	1970	1. Bett	1970	1680	87,7
13,1	22,0	3980	2. Bett	2010	1710	89,3
19,7	33,0	5970	3. Bett	1990	1690	88,4
26,3	44,0	7960	4. Bett	1990	1690	88,4
32,9	55,0	9950	5. Bett	1990	1690	88,4
39,5	65,7	11890	6. Bett	1940	1650	86,0
46,0	75,6	13680	7. Bett	1790	1520	80,1
52,6	84,0	15200	8. Bett	1520	1290	67,5
59,2	91,2	16510	9. Bett	1310	1110	57,9
65,8	96,5	17469	10. Bett	959	815	42,6
72,3	99,4	17994	11. Bett	525	446	23,3
78,9	99,9964	18099	12. Bett	105	92	4,8
85,5	99,9994	18100	13. Bett	0,5	0,4	0,02
92,1	99,9995	-	14. Bett	+) )	+) )	+) )
100,0	99,9998	-	15. Bett	+) )	+) )	+) )

+) Nachweisgrenze unterschritten

Bei erschöpfender Beladung des AC 6120/H<sub>1</sub> (s. Kapazitätsausnutzung der ersten Einzelbetten) wurde bei den Versuchen mit 1 % NO<sub>2</sub> im Trägergas eine Umsetzung des Ag<sup>+</sup> der Imprägnierung von ca. 80 % erreicht. Die Versuchsreihe zeigt also eine niedrigere Umsetzung bei geringeren NO<sub>2</sub>-Gehalten. Dieses Ergebnis ist noch zu abzusichern.

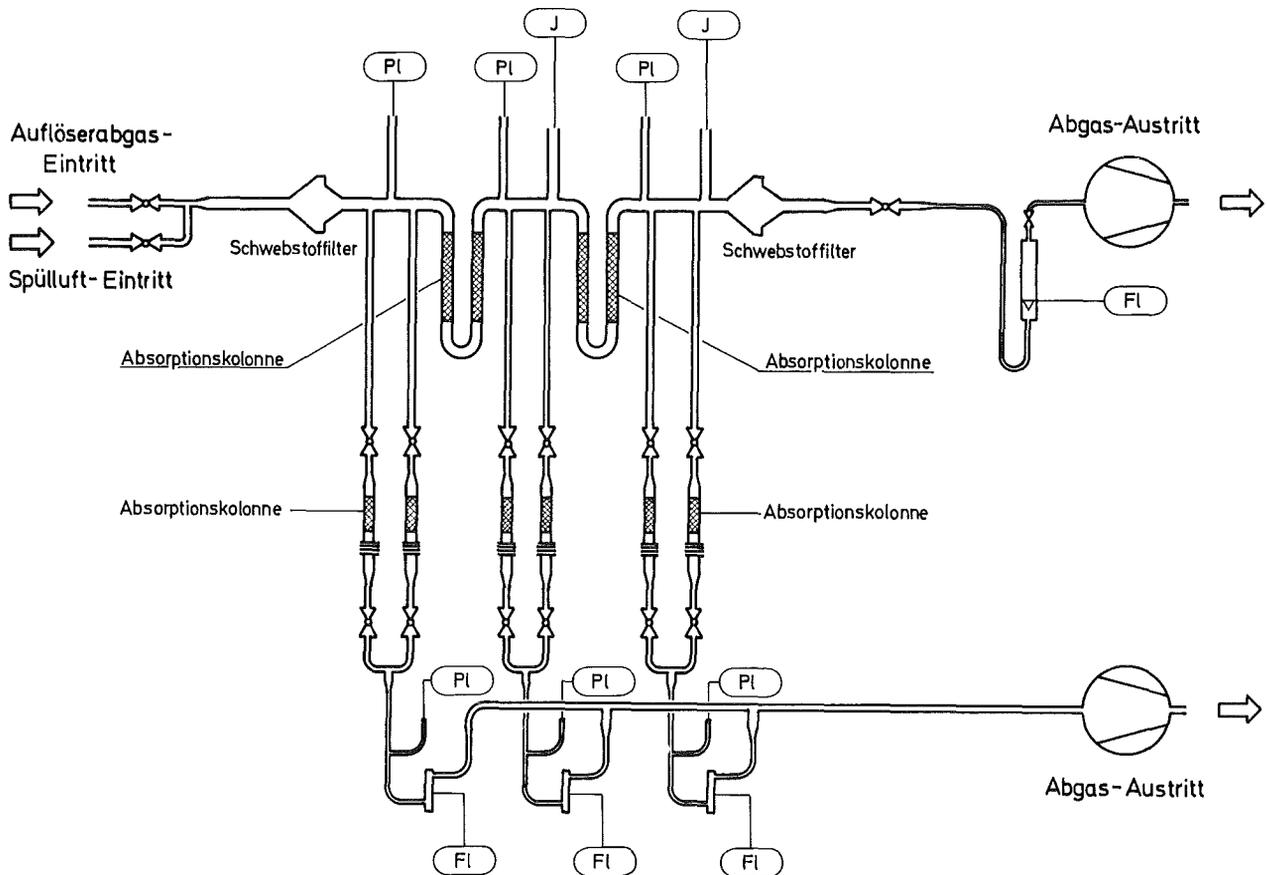
Da in der GWA nach neuesten Angaben u. U. als Spülgas N<sub>2</sub> statt Luft eingeleitet wird, ist die Versuchsreihe auf N<sub>2</sub> als Trägergas zu erweitern und im besonderen der Einfluß von NO-Beimengungen in nicht oxidierender Atmosphäre zu untersuchen. Ein Regenerationseffekt durch NO<sub>2</sub> wurde bereits früher beschrieben /4/ (KFK 1818, S. 100).

Trotz des Verbrauchs eines wesentlichen Anteiles der Imprägnierung wurden für eine Bett-Tiefe, die einer GWA-Filterstufe entspricht, in allen Versuchen Abscheidegrade > 99,99 % gemessen.

#### Aufbau von Prüfeinrichtungen für Aerosole und Spaltjod aus Auflöserabgasen in Wiederaufarbeitungsanlagen

Zur Untersuchung des Standzeitsverhaltens und der Kapazität des anorganischen Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 sowie der Abscheideleistung der Fasermatten zur Aerosolfilterung unter den realen Bedingungen einer Wiederaufarbeitungsanlage wurden vom LFT Prüfeinrichtungen zur Installation in den Auflöserabgasstrecken von Wiederaufarbeitungsanlagen entwickelt. Unter Berücksichtigung der räumlichen Gegebenheiten in der Wiederaufarbeitungsanlage der am Projekt beteiligten französischen Partner mußte für das SAP Marcoule (Frankreich) eine Sonderkonstruktion verwendet werden.

Die Prüfeinrichtung, die in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe installiert werden soll (Abb. 4112-1), besteht im wesentlichen aus einer Edelstahlverrohrung, in der mit gasdichten Verbindungen Glasrohre eingebaut sind, die das anorganische Jod-Sorptionsmaterial AC 6120 mit der für die GWA vorgesehenen Bett-Tiefe enthalten. Die beiden Haupt-Sorptionskolonnen können durch drei doppelt angelegte Bypass-Sorptionskolonnen, die kleiner dimensioniert und mit Schwebekörper-Durchflußmesser regelbar sind, umfahren werden.



Probennahmestelle Auflöserabgas-Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe (WAK)

Abb. 4112-1

Zu Beginn und am Abschluß der gesamten Sorptionsstrecke, die mit einem automatisch anzeigenden Durchflußmesser versehen ist, wird je ein Schwebstofffilter der Klasse S angeordnet. Das Schwebstoff-Filtergehäuse aus Edelstahl, eine Eigenkonstruktion des LFT, ermöglicht den Filterwechsel ohne Kontamination der Reinaluftseite.

Der Durchsatz des gesamten Abgasvolumens beträgt ca.  $3 \text{ Nm}^3/\text{h}$ .

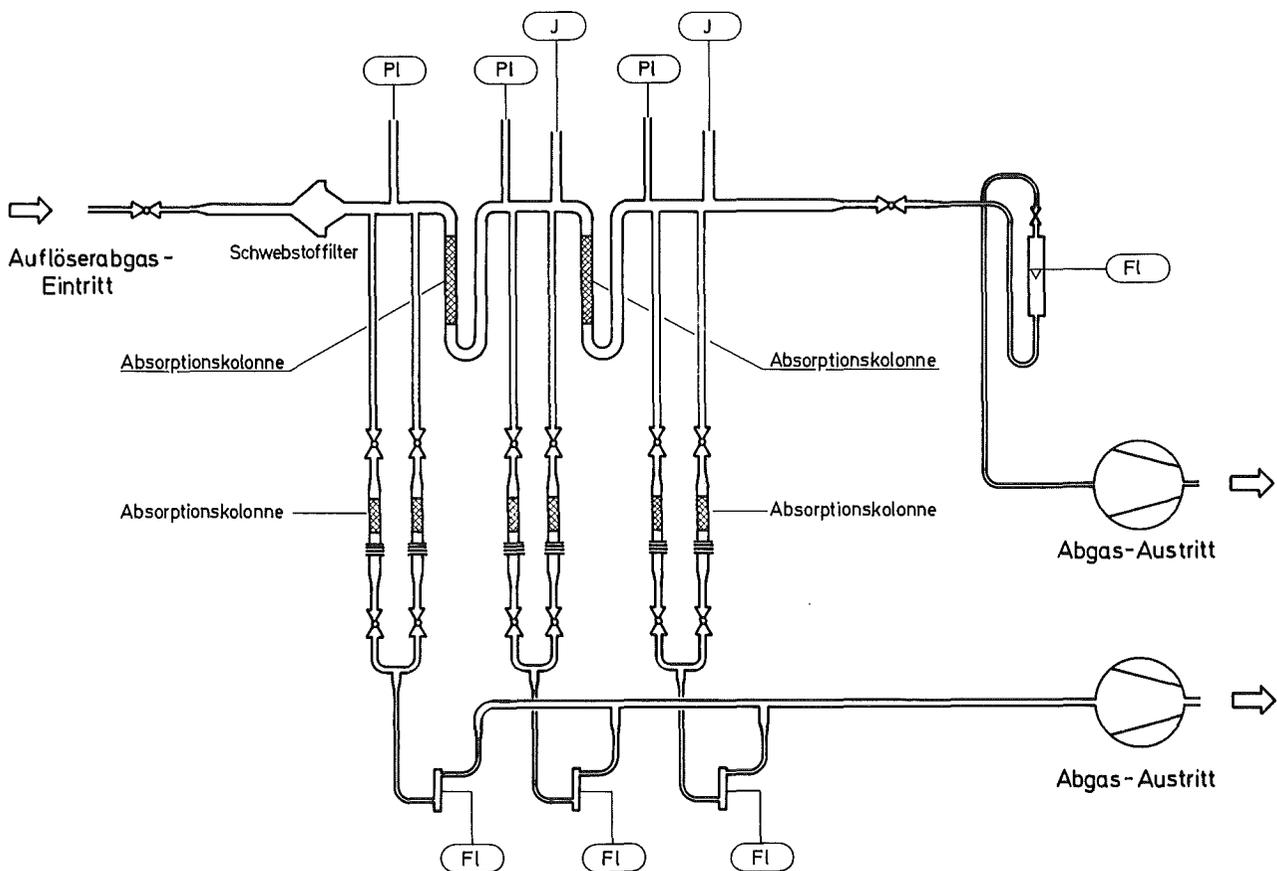
Zur diskontinuierlichen Überwachung sind im Hauptabgasstrom Edelstahlmanometer für die Differenzdruckmessung vor und nach den Sorptionskolonnen sowie Halogenmeßstellen eingebaut.

Die ganze Anlage befindet sich in einem Wärmeschrank, der eine Regelung für den Temperaturbereich um  $150^\circ\text{C} \pm 3^\circ\text{C}$  besitzt. Außerhalb des Schrankes werden Signalgeber für Temperaturüberschreitung, Betriebsstundenzähler, Schreiber und die säurefesten Neuberger-Spezialvakuumpumpen installiert.

Die Gesamt-Sorptionsstrecke steht unter einem Unterdruck von ca. 20.000 Pa. Das über die Strecke angesaugte Auflöser-Abgas wird nach Durchlauf durch die gesamte Sorptionsstrecke wieder in den Hauptabgasstrang zurückgeleitet. Als Absperroorgane wurden gasdichte Gachot-Hähne und Nupro-Faltenbalgventile eingesetzt.

Die Sorptionskolonnen und die Schwebstofffilter sind mit Leybold-Flanschen in die Verrohrung eingepaßt, so daß jederzeit ein Austausch vorgenommen werden kann. Ein Spülluftstutzen ermöglicht vor dem Filterwechsel eine Luftspülung des gesamten Systems.

Die in der SAP Marcoule zu installierende Prüfeinrichtung (Abb. 4112-2) unterscheidet sich von der WAK-Anlage dadurch, daß die Haupt-Sorptionsstrecke nur einfach ausgelegt ist und nur ein Schwebstofffilter vorgeschaltet ist. Das Gesamtsystem befindet sich in einer  $\alpha$ -dichten Glove-Box aus Edelstahl mit einer Frontscheibe aus Plexiglas. Die Box, eine Neuentwicklung, wurde im LFT konzipiert, die bauliche Ausführung und Fertigung wurde von der Industrie übernommen.



Probennahmestelle Auflöserabgas-Wiederaufarbeitungsanlage Marcoule

Abb. 4112-2

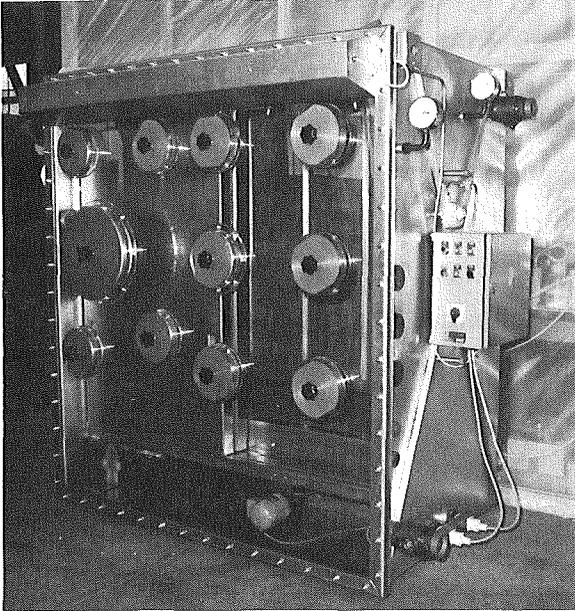


Abb. 4112-3:  $\alpha$ -dichte Handschuhbox für den Betrieb bei 150°C

Die Box kann im Dauerbetrieb bei 150°C betrieben werden. Der eigentliche Heizraum, in dem sich die Sorptionsstrecke befindet, ist von der Plexiglas-Frontscheibe durch zwei Schiebetüren getrennt. Da die Temperatur der Frontscheibe  $\leq 70^\circ\text{C}$  betragen muß, befinden sich Lüftungsstutzen mit Filtern in den Seitenwänden, die den Zwischenraum kühlen. In der Frontscheibe sind mehrere Handschuhstutzen sowie ein Schleusenstutzen mit dicht schließenden Deckeln eingearbeitet (s. Abb. 4112-3).

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

#### Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

(J. Furrer, R. Kaempfer)

Die Untersuchungen zur Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien wurden weitergeführt. Auf den Zusammenhang zwischen Lösungsmittelbeladung und Absinken des Abscheidegrades gegenüber  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{CH}_3^{131}\text{J}$  bei KJ-imprägnierten Aktivkohlen wurde bereits hingewiesen (KFK 2130, S. 96). Im Berichtszeitraum wurde die quantitative Verteilung von Lösungsmitteln in Filterkohle eines LWR-Kernkraftwerkes bestimmt und den im Laborversuch gemessenen differentiellen und integralen Abscheidegraden zugeordnet.

Bei der untersuchten Aktivkohle handelte es sich um Proben aus Kontrollfiltern, die parallel zur Hauptfiltereinrichtung eingebaut waren und ca. 6 Monate nach Inbetriebnahme des Kernkraftwerkes entnommen wurden. (Aktivkohle Typ NORIT CG II, stranggepreßt, Stäbchendurchmesser 2 mm, 1 % KJ-imprägniert).

Die Proben wurden aus 4 hintereinanderliegenden Betten von je 12,5 cm Bett-Tiefe gewonnen.

In der folgenden Tab. 4114-1 sind die Abscheidegrade und die Lösungsmittelbeladungen der im Kernkraftwerk eingesetzten Aktivkohle im Vergleich zur frischen Aktivkohle aufgeführt. Die prozentualen Werte wurden durch Extraktion und anschließender gaschromatographischer Analyse mit dem Gaschromatograph Hewlett-Packard, Modell 5700 A, und dem rechnenden Integrator Hewlett-Packard, Modell 3380, A, erhalten.

Tab. 4114-1 Zusammenhang zwischen Lösungsmittelbeladung und Abscheidegrad für  $\text{CH}_3^{131}\text{J}$   
am Beispiel einer im Kernkraftwerk eingesetzten Aktivkohle

Aktivkohleproben: ca. 6 Monate nach Inbetriebnahme des Kernkraftwerkes aus parallel zur Hauptabgasstrecke eingebauten Kontrollfiltern entnommen.

Trägergas : Feuchtluft,  $50^\circ\text{C}$ ,  $\sim 75\%$  rel. Feuchte.

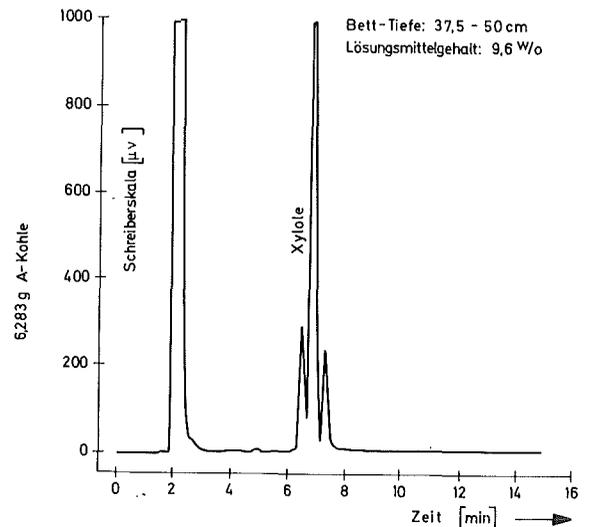
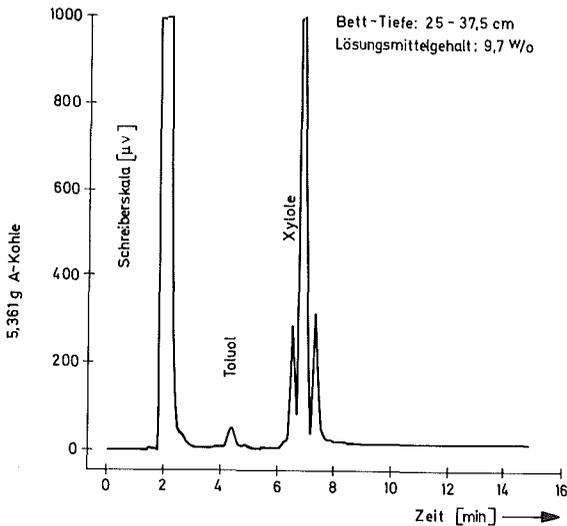
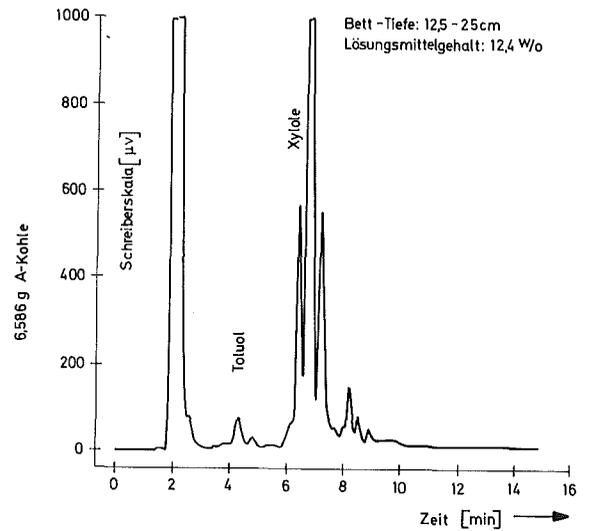
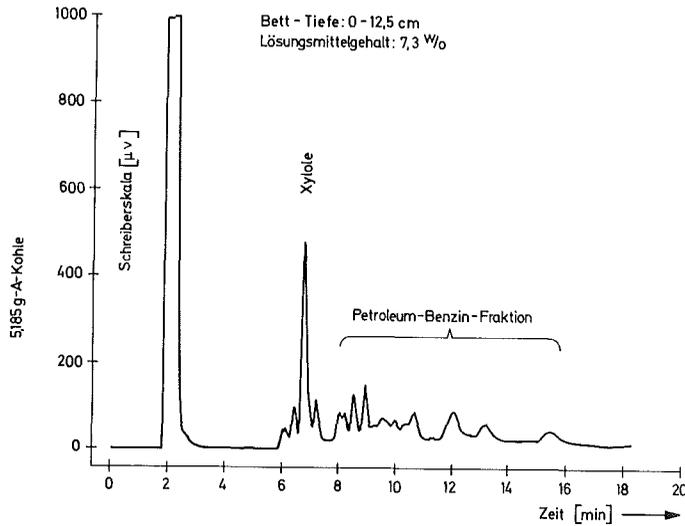
Prüfmedium :  $1\ \mu\text{Ci}\ \text{CH}_3^{131}\text{J}$ , vermischt mit  $10\ \mu\text{g/g}$  Aktivkohle  $\text{CH}_3^{127}\text{J}$

Aktivkohle aus:		Kontrollfilterbett-Tiefe [cm]				Integrale Werte 0-50 [cm]
		0-12,5	12,5-25	25-37,5	37,5-50	
frische Aktivkohle	Abscheidegrad %	92,6	92,6	92,6	92,6	99,994
Anlagenabluftfilter I	Abscheidegrad %	10,4	49,4	39,0	37,5	82,8
	Lösungsmittelgehalt w/o	11,1	11,9	9,4	4,2	9,2
Anlagenabluftfilter II	Abscheidegrad %	19,8	37,7	38,0	28,6	77,9
	Lösungsmittelgehalt w/o	7,3	12,4	9,7	9,6	9,8

In der ersten Aktivkohleschicht (s. Abb. 4114-1 bis 4) wurden zusätzlich zu Toluol- und Xylolanteilen, die sich über das gesamte Kontrollfilter verteilen, schwerflüchtige Komponenten einer Petroleum-Benzinfraktion gefunden. Diese unterschiedliche Beladung dürfte zum Teil zu dem sehr hohen Verlust an Abscheideleistung der ersten Aktivkohleschicht beigetragen haben. Die Werte in Tab. 4114-1 zeigen, daß eine einfache Zuordnung zwischen Lösungsmittelgehalt der Aktivkohle und Abscheidegrad nicht gegeben ist. Weitere Untersuchungen zum Einsatz von Aktivkohle als Adsorber für organische Lösungsmittel in Form von Vorfilterkohlen werden z. Z. durchgeführt.

Abb.: 4114-1 bis 4

Gas-Chromatogramme der  $\text{CCl}_4$  Extrakte aus Anlagenabluftfilter eines Kernkraftwerkes



## Untersuchung von Lösungsmittel-Sorptionsmaterialien für Vorfilter

(K. Bitter <sup>+</sup>), K. Gerlach)

Zur Untersuchung der Wirkung von Vorfiltern (Lösungsmitteladsorbierende Aktivkohle vor der imprägnierten Aktivkohle zur Jodabscheidung) wurde ein Filtermaterialprüfstand rohluftseitig vor dem Anlagenabluftfilter eines kürzlich in Betrieb genommenen Kernkraftwerkes installiert (Abb. 4114-5).

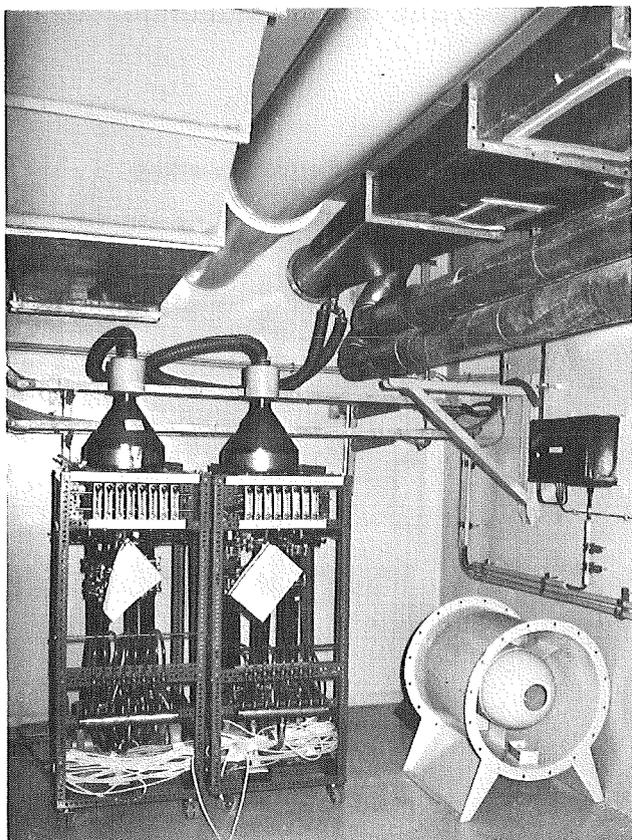


Abb. 4114-5: Mobiler Filtermaterialprüfstand des LFT

Die z. Z. übliche Auslegung von Jodfilteranlagen läßt im allgemeinen einen zusätzlichen Druckabfall über die Vorfilter von ca. 100 - 200 mmWS zu, ohne daß wesentliche zusätzliche Aufwendungen für die Abluftventilatoren und die Lüftungskanäle erforderlich wären. Die Bett-Tiefe der Aktivkohle zur Lösungsmitteladsorption im Prüfstand wurde deshalb über den Differenzdruck festgelegt. Als Richtwert wurden 100 mmWS (bei einer linearen Luftgeschwindigkeit von 50 cm/s) zugrundegelegt.

Erste Ergebnisse zur Wirkung der Vorfilter werden in ca. 4 Monaten zur Verfügung stehen.

<sup>+</sup>) Delegierter Mitarbeiter der KWU

## Entwicklung von diskriminierenden Jodsammlern

(H. Deuber)

Die physikalischen und chemischen Formen des Spaltjods in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken bedingen dessen Filterungs-, Transport- und Ablagerungsverhalten. Diese Formen des luftgetragenen Spaltjods lassen sich mit diskriminierenden Jodsammlern bestimmen, in denen sie entsprechend ihren physikalischen und chemischen Eigenschaften abgeschieden und somit getrennt werden. Mit dem in Entwicklung befindlichen diskriminierenden Jodsammler ist eine Trennung und Bestimmung von Aerosoljod, elementarem Jod und organischen Jodverbindungen beabsichtigt. Die Abscheidung dieser Formen soll in der genannten Reihenfolge mit Schwebstofffiltern bzw. Sorptionsmaterialien erfolgen.

Im Berichtszeitraum wurden verschiedene Materialien, die als spezifische Sorptionsmaterialien für elementares Jod in Frage kamen, auf ihre Abscheideleistung für elementares Jod ( $^{131}\text{J}_2$ ) und Methyljodid ( $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ ) getestet. (Die Abscheideleistung für  $\text{J}_2$  sollte möglichst groß, für  $\text{CH}_3\text{J}$  möglichst klein sein). Die dazu benutzten Jodsammler hatten folgenden Aufbau:

1. 2 Schwebstofffilter Whatman CF/A ( $\varnothing$  4,5 cm).
2. 3 Betten AC 6111, Korngröße 0,4 - 2 mm, imprägniert mit jeweils verschiedenen Substanzen zur Abscheidung von elementarem Jod: 8,5 % KJ; 5 % Bi; 8 % Ag (Bett-Tiefe 2,5 cm,  $\varnothing$  2,5 cm).
3. 3 Betten Aktivkohle CG 0,8, stranggepreßt,  $\varnothing$  0,8 mm, imprägniert mit 1 % KJ zur Abscheidung von organischen Jodverbindungen (Bett-Tiefe 2,5 cm,  $\varnothing$  2,5 cm).

Die das  $\text{J}_2$ -Sorptionsmaterial betreffenden Ergebnisse sind in Tab. 4114-2 aufgeführt. Wie ersichtlich, ist der integrale Abscheidegrad für  $\text{J}_2$  am größten bei AC 6111-Ag (Bett-Tiefe 7,5 cm), für  $\text{CH}_3\text{J}$  am kleinsten bei AC 6111-Bi. Größte Abscheidung für  $\text{J}_2$  und kleinste Abscheidung für  $\text{CH}_3\text{J}$  werden also von einem einzigen der untersuchten Materialien nicht gewährleistet.

Tab. 4114-2 Abscheidung von  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{J}_2$  und  $\text{CH}_3\text{J}$  an  
AC 6111 verschiedener Imprägnierung

Trägerkonzentration: 1 mg/m<sup>3</sup>  
 Bett-Temperatur : 30°C  
 Luftfeuchte : 70 %  
 Luftstrom : 441 l/h  
 Luftgeschwindigkeit: 25 cm/s  
 Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm  
 Einleitzeit : 1 h  
 Vorströmzeit : ≥ 15 h  
 Nachströmzeit : 1 h

Imprägnierung	Jodform	Bett-Tiefe [cm]	Abscheidegrad, integral [%]	Abscheidegrad, differenziell [%] <sup>+) </sup>
KJ	$\text{J}_2$	2,5	99,974	99,97
		5,0	99,980	20,81
		7,5	99,982	9,73
KJ	$\text{CH}_3\text{J}$	2,5	0,037	0,037
		5,0	0,074	0,037
		7,5	0,113	0,039
Bi	$\text{J}_2$	2,5	88,93	88,93
		5,0	97,96	82,37
		7,5	99,36	73,58
Bi	$\text{CH}_3\text{J}$	2,5	0,0005	0,0005
		5,0	0,0008	0,0002
		7,5	0,0010	0,0002
Ag	$\text{J}_2$	2,5	99,924	99,92
		5,0	99,996	95,18
		7,5	99,997	34,54
Ag	$\text{CH}_3\text{J}$	2,5	7,72	7,72
		5,0	15,81	8,77
		7,5	23,29	8,89

<sup>+)</sup>  Abscheidegrad eines Bettes von 2,5 cm Tiefe

In Tab. 4114-3 ist als die Trennung der beiden Jodformen charakterisierende Größe der Trennfaktor TF angegeben. Dieser wird durch das Verhältnis der K-Faktoren für  $J_2$  und  $CH_3J$  definiert:

$$TF = \frac{K_{J_2}}{K_{CH_3J}}$$

Für den K-Faktor gilt:

$$K = \frac{\lg DF}{t}$$

DF = Dekontaminationsfaktor

t = Verweilzeit

Tab. 4114-3 Trennfaktor für die Trennung von  $^{131}J$  in Form von  $J_2$  und  $CH_3J$  durch AC 6111 verschiedener Imprägnierung

Imprägnierung	Bett-Tiefe [cm]	Trennfaktor (TF)
KJ	2,5	$2,2 \cdot 10^4$
	5,0	$1,1 \cdot 10^4$
	7,5	$0,8 \cdot 10^4$
Bi	2,5	$4,4 \cdot 10^5$
	5,0	$4,9 \cdot 10^5$
	7,5	$5,0 \cdot 10^5$
Ag	2,5	$8,9 \cdot 10^1$
	5,0	$5,8 \cdot 10^1$
	7,5	$3,9 \cdot 10^1$

Wie Tab. 4114-3 zeigt, zeichnen sich AC 6111-KJ und AC 6111-Bi durch große Trennfaktoren aus. Da aus meßtechnischen Gründen die Gesamtbettiefe auf 7,5 cm begrenzt werden soll, reicht das Kriterium des Trennfaktors allein nicht aus. Als zweites Kriterium wird daher ein Abscheidegrad für  $J_2$  von  $> 99,9 \%$  bei einer Gesamtbettiefe von 7,5 cm festgelegt. Mit diesem Kriterium erweist sich AC 6111-KJ unter den vorliegenden Bedingungen als das geeignetste der untersuchten  $J_2$ -Sorptionsmaterialien. Es bleibt zu prüfen, ob es sich auch unter anderen Bedingungen (Trägerkonzentration, Temperatur, relative Feuchte) bewährt.

### Verflüchtigung und Abscheidung von hypoiodiger Säure

Zur Klärung des Transport- und Abscheidungsverhaltens von schwer abscheidbaren Spaltjodkomponenten wurden die Versuche zur Verflüchtigung und Abscheidung hypoiodiger Säure fortgesetzt. In den bisherigen Versuchen hatte sich kein Hinweis auf eine Flüchtigkeit von HJO ergeben. (1. Halbjahresbericht 1974, KFK 2050 (1974) S. 84; 2. Halbjahresbericht 1974, KFK 2130, S. 103). Im Berichtszeitraum wurde daher ein in letzter Zeit veröffentlichtes Verfahren zur Herstellung und Verflüchtigung von HJO angewandt /3/.

Nach dieser Methode wird HJO mit Hilfe von überschüssigem elementarem Brom in alkalischer Jodid-Lösung ( $^{131}J^-$ ) erzeugt und durch einen Heliumstrom aus der Lösung gespült. Die Erzeugung von HJO unter diesen Bedingungen wird auf Bildung von  $J_2$  nach



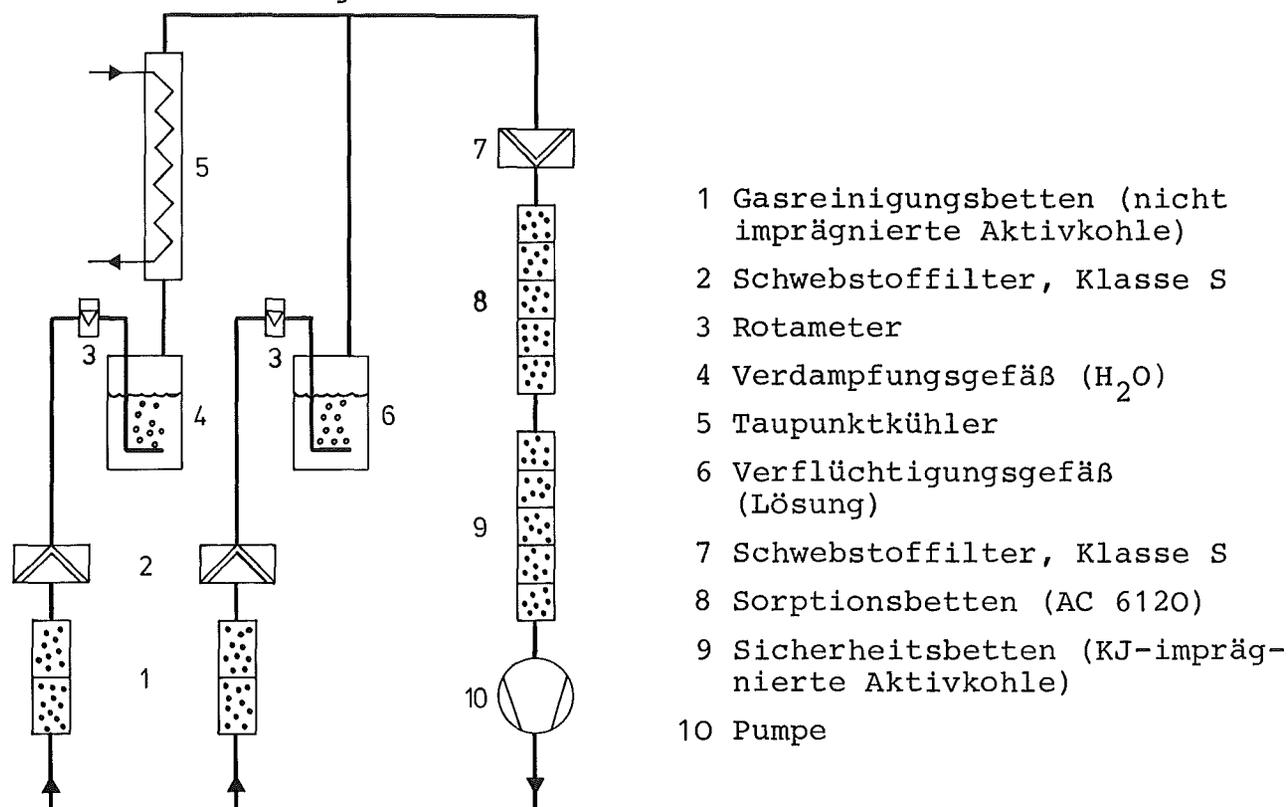
und nachfolgender Hydrolyse des  $J_2$  gemäß



zurückgeführt.

Bei Berücksichtigung weiterer Reaktionen, auf die an anderer Stelle eingegangen werden soll (vorgesehen für Jahresbericht 1975 des LAF II), kommt man jedoch zum Schluß, daß die Herstellung von HJO nach dieser Methode wenig aussichtsreich erscheint.

Die Versuche wurden mit der in Abb. 4114-6 wiedergegebenen Apparatur durchgeführt. Ein Heliumstrom wurde durch eine mit  $\text{Br}_2$  versetzte alkalische Jodid-Lösung ( $^{131}\text{J}^-$ ) geleitet, mit Feuchtluft vermischt und nach Passieren eines Schwebstofffilters durch Sorptions- und Sicherheitsbetten geführt.



Apparatur zur Verflüchtigung und Abscheidung von Jodverbindungen

Abb. 4114-6

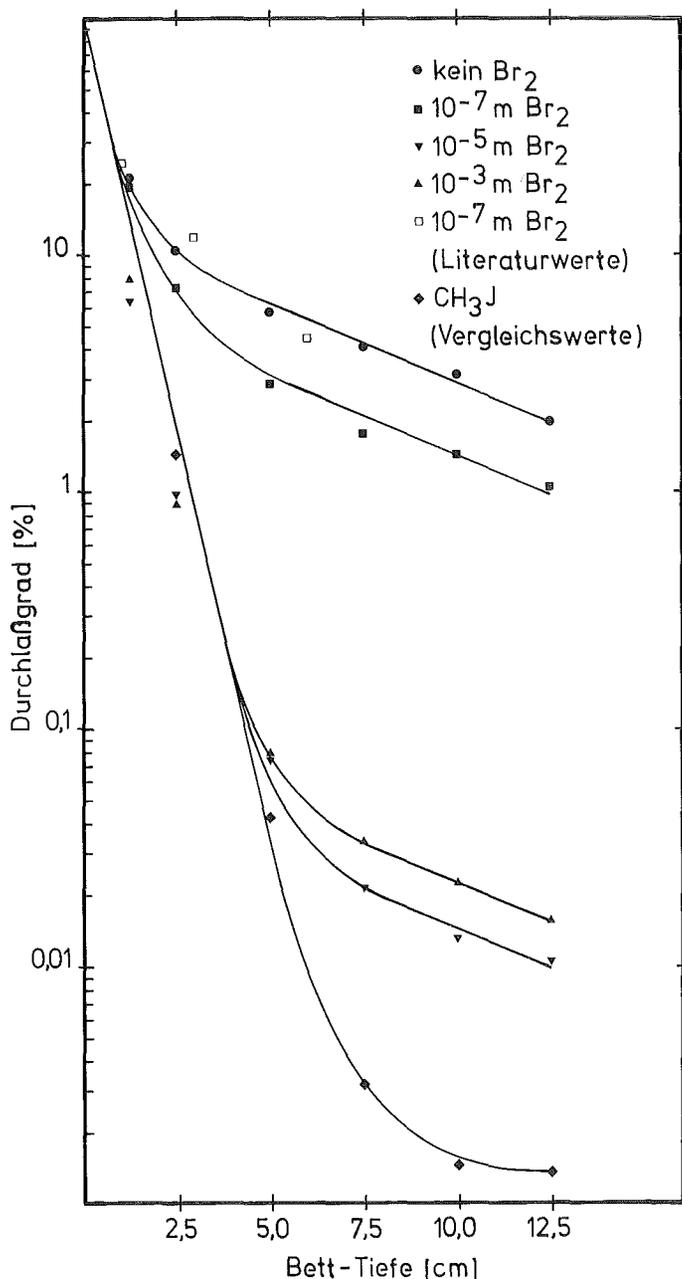
Vor Beginn der Versuchsreihe wurde die gesamte Apparatur mit heißer Chromschwefelsäure gereinigt. Nach jedem Versuch wurde, abgesehen vom Luftzufuhrteil, eine Reinigung der Apparatur mit heißem RBS und, nach Spülen mit bidestilliertem  $\text{H}_2\text{O}$ , mit heißer, gereinigter Luft durchgeführt.

Die Ergebnisse der Versuche sind in Tab. 4114-4 und Abb. 4114-7 wiedergegeben. In Abb. 4114-7 ist ebenfalls das Ergebnis eines Abscheidungsversuches mit  $\text{CH}_3\text{J}$  (Trägerkonzentration:  $1 \text{ mg/m}^3$ ) unter gleichen Bedingungen dargestellt. Wie ersichtlich, war der Durchlaßgrad in allen Versuchen bei größeren Bett-Tiefen größer als im Versuch mit  $\text{CH}_3\text{J}$ . Besonders groß war die Durchlässigkeit, wenn nur eine geringe Menge an  $\text{Br}_2$  ( $10^{-7} \text{ mol/l}$ ) oder überhaupt kein  $\text{Br}_2$  eingesetzt wurde. In diesen beiden Fällen war die Durchlässigkeit nahezu gleich. Die geringe Menge an  $\text{Br}_2$  hatte also praktisch keinen Einfluß auf  $\text{J}^-$ .

Tab. 4114-4 Abscheidung der aus Br<sub>2</sub>-haltigen <sup>131</sup>J<sup>-</sup>-Lösungen  
verflüchtigten Aktivität an AC 6120

Temperatur (Lösung, Sorptionsmaterial,  
Trägergas) : 20<sup>o</sup>C  
 Konzentration des J<sup>-</sup> in der Lösung : 10<sup>-9</sup> mol/l  
 pH-Wert der Lösung : 12  
 Korngröße des Sorptionsmaterials : 1 - 2 mm  
 Trägergas: Helium (Lösung); Gasgemisch,  
 Helium + Luft (Sorptionsmaterial)  
 Gasstrom durch die Lösung : 10 l/h  
 Gasstrom durch das Sorptionsmaterial : 441 l/h  
 Feuchte des Gasgemisches : 50 %  
 Beaufschlagungszeit : 1 h  
 Vorströmzeit : ≥15 h  
 Nachströmzeit : 0

Nr.	c <sub>Br<sub>2</sub></sub> [mol/l]	Abscheidegrad [%]					
		Bett-Tiefe [cm]					
		1,25	2,5	5,0	7,5	10,0	12,5
		Verweilzeit [s]					
		0,05	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5
1	0	79,3	89,8	94,4	96,0	96,9	98,0
2	10 <sup>-7</sup>	79,7	92,8	97,1	98,2	98,6	98,97
3	10 <sup>-5</sup>	93,5	99,02	99,924	99,979	99,987	99,989
4	10 <sup>-3</sup>	92,0	99,11	99,920	99,967	99,977	99,984



Durchlaßgrad von AC6120 gegenüber der aus  $\text{Br}_2$ -haltigen  $^{131}\text{J}$ -Lösungen verflüchtigten Aktivität gegen Bett-Tiefe  
Abb. 4114-7

leichter abscheidbare Komponente bestand, wie ein Vergleich mit dem Abscheideprofil des  $\text{CH}_3\text{J}$  ergibt, aus  $\text{CH}_3\text{J}$ .

Die Entscheidung, ob die durch AC 6120 schwer abscheidbare Komponente ein Reaktionsprodukt von Jod mit einer Verunreinigung oder  $\text{HJO}$  war, kann nur nach weiteren Experimenten gefällt werden.

Die in Abb. 4114-7 dargestellten Werte aus der eingangs angegebenen Literatur /3/ entsprechen einem Versuch, der anscheinend wie Versuch 2 durchgeführt wurde. Die Unterschiede der beiden Versuchsergebnisse sind gering.

Aus den Abscheidungsprofilen geht hervor, daß mindestens 2 Jodkomponenten bei der Abscheidung vorlagen. Der Anteil der schwer abscheidbaren Komponente, nach der genannten Veröffentlichung HJO, betrug in den Versuchen 1 und 2 etwa 10 %, in den Versuchen 3 und 4 ungefähr 0,1 % der insgesamt aus dem Trägergasstrom abgeschiedenen Aktivität. Da in den Versuchen 1 und 2 ca.  $10^{-4}$  %, in den Versuchen 3 und 4 ca. 1 % der vorgelegten Aktivität abgeschieden wurden, errechnet sich eine Konzentration von  $10^{-11}$  bzw.  $10^{-9}$  mg J/m<sup>3</sup> im Trägergasstrom. Es ist verständlich, daß eine Jodkomponente, die in derart geringen Konzentrationen auftritt, ohne weiteres ein Reaktionsprodukt von Jod mit einer Verunreinigung sein kann. Die

Zitierte Literatur:

/1/ J. Dymont in "Air Filtration" by C.N. Davies ed. (Academic Press 1973) p. 50

/2/ J. Dupoux and A. Briand, Water, Air and Soil Pollution 3  
(1974) 537

/3/ M.J. Kabat, Proc. 13th AEC Air Cleaning Conference (August 1974)

/4/ KFK 1818, Jahresbericht 1972 der Abteilung Strahlenschutz  
und Sicherheit, S. 100

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

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

Die Untersuchung der Metallabgaberate des Dampferzeugerwerkstoffes INCOLOY-800 in einem Druckwasserautoklaven hat das Ziel eine günstige Fahrweise von Druckwasserreaktoren zu ermitteln, indem die Kontamination des Primärkreislaufs und die Korrosion der Dampferzeuger gering gehalten werden können.

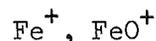
In drei 500-Studentests wurde die Metallabgabe von Incoloy-800 bei verschiedenen Sauerstoffgehalten des Druckwassers von 342° C und 150 bar ermittelt. Im ersten Lauf betrug der O<sub>2</sub>-Gehalt 8 mg/kg Wasser (bei 25° C bestimmt) und fiel bis zum Ende auf 1,3 mg/kg ab. Diesem Lauf schloß sich ein Kontrolllauf an, der diese Werte im wesentlichen bestätigt.

Mit der Metallabgabe von Incoloy 800 ist Korrosion der Metalloberfläche verbunden. In Zusammenarbeit mit dem Labor für Grenzflächenphysik der Fa. Dornier System, Friedrichshafen, wurden mit den festkörperphysikalischen Oberflächenuntersuchungsverfahren:

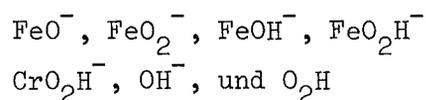
- |                                   |      |
|-----------------------------------|------|
| - Sekundärionen - Spektroskopie   | SIMS |
| - Auger- Elektronen-Spektroskopie | AES  |
| - Scanning-Auger-Mikroprobe       | SAM  |

chemische Analysen der Korrosionszone der Incoloyproben durchgeführt und gedeutet.

Mit Hilfe von SIMS wurden im positiven Ionenspektrum die Massen



im negativen Spektrum



gefunden.

Der sich daraus ergebende Oxidationszustand des Eisens betrug  $2,3 \pm 0,3$ , was einer Identifizierung von  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  und einem geringeren Anteil von Eisenhydroxid entspricht.

Es ist deutlich zu erkennen, daß keine geschlossenen Korrosionsschichten, sondern Anreicherungsinseln vorliegen. Es handelt sich bei diesen Oberflächenanalysen um erste Ergebnisse. In einem späteren Bericht wird darauf ausführlich eingegangen.

Ein dritter 500-Studentest diente zur Ermittlung der Metallabgabe von Incoloy 800 bei  $342^\circ \text{C}$  und 150 bar bei reduziertem Sauerstoffgehalt. Es war dem Speisewasser vorher mittels Vakuum von etwa  $10^{-1}$  Torr und durch anschließende Argon-Spülung des Wassers über etwa eine Viertelstunde der  $\text{O}_2$ -Gehalt auf weniger als 0,1 mg/kg Wasser abgesenkt worden.

Im Vergleich zu dem Test mit normalem  $\text{O}_2$ -Gehalt des Deionats von etwa 5 mg/kg Wasser war bei vermindertem  $\text{O}_2$ -Gehalt die Metallabgabe für Eisen und Nickel um etwa 10% abgesunken. Der Chromgehalt im Druckwasser lag im Bereich der Nachweisgrenze, eine Änderung war deshalb nicht angebar.

Diese Arbeiten werden mit der chemischen Absenkung des Sauerstoffs mittels Hydrazin fortgesetzt.

Die Aufstellung einer zweiten Autoklavenanlage wird vorbereitet. Ferner befindet sich die Bestimmung des Feststoffgehaltes im Druckwasser mittels streuoptischer Untersuchungen in Vorbereitung.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

Seit Beginn des 2. Quartals 1975 werden im Abstand von zwei Wochen Kuhmilchproben in Friedrichstal genommen. Die Auswertung der ersten Analysen ergab 0,3 - 0,5 pCi  $^{129}\text{J}$ /l Milch. Da der natürliche Untergrund des  $^{129}\text{J}$  unter  $10^{-2}$  pCi  $^{129}\text{J}$ /l liegt, ist eine Kontamination durch das  $^{129}\text{J}$  der WAK anzunehmen. Dieses wesentlich unter der empfohlenen Jahresdosisgrenze liegende Ergebnis ist umso überraschender, da die betroffenen Kühe dieses  $^{129}\text{J}$  nur aus 2 Jahre altem Heu inkorporiert haben können (reine Stallhaltung, kein Frischfutter). Da keine weiteren Kühe in der Umgebung der WAK gehalten werden, wird seit Juli 1975 Ziegenmilch aus dem Hauptaufschlagsgebiet der Abluft der WAK analysiert.

Vom gleichen Gebiet werden Schilddrüsenproben von Kaninchen beschafft. Bisher wurden 4 Proben geliefert. Die ersten Ergebnisse zeigen Werte um 10 pCi  $^{129}\text{J}$ /Schilddrüse. Diese Werte liegen um mindestens den Faktor 100 über den Untergrundswerten des  $^{129}\text{J}$ / $^{127}\text{J}$ -Verhältnisses und um ungefähr 4 Größenordnungen über der Nachweisgrenze unserer analytischen Methode.

Da für die Beurteilung der in der Umgebung gemessenen  $^{129}\text{J}$ -Konzentrationen die Kenntnis der  $^{129}\text{J}$ -Emissionen mit Abwasser und Abluft notwendig ist, wurde mit der Sammlung dieser Primärdaten begonnen. Täglich werden aus den niederaktiven Abwässern der WAK, den destillierten Abwässern und den geklärten Abwässern in der ADB aliquote Mengen entnommen und zu Monatsproben vereinigt. Zur Beurteilung des Einflusses dieser  $^{129}\text{J}$ -Emissionen auf den Jodhaushalt des Rheinwassers wird monatlich eine kontinuierlich genommene Rheinwasserprobe beschafft. Auf die Sammlung von mittelaktiven Abwässern der WAK wurde bisher verzichtet, da einerseits frühere Analysen keine wesentliche Gehalte erwarten lassen und andererseits die Einrichtung eines Labors im Kontrollbereich noch nicht abgeschlossen ist.

Die Aufarbeitung dieser Wasserproben, sowie einer Reihe von aus Milch abgetrennten Jodfraktionen konnte bisher nicht durchgeführt werden, da die Messung der  $^{129}\text{J}$ -Emissionen mit der Abluft der WAK und in Speiselösungen der WAK auf die Gefahr einer Überschreitung des Abluftplanes des KFZK hinwies. Da von dieser Frage die Betriebs-erlaubnis der WAK abhängig gemacht wurde, wurden diese Arbeiten den ökologischen Fragen vorgezogen.

Während der in diesem Halbjahr durchgeführten Analysen trat eine Reihe von Schwierigkeiten auf. Die gleichzeitige Bestimmung von  $^{127}\text{J}$  über  $^{128}\text{J}$  durch  $\gamma$ -Spektrometrie neben  $^{130}\text{J}$  führt zu einer geringen Erhöhung der Strahlenbelastung von Mitarbeitern. Gleichzeitig wurden erhebliche Schwierigkeiten verzeichnet, wenn Proben höhere  $^{127}\text{J}$ -Gehalte haben, da die Proben z.T. erst um Mitternacht meßbar sind und zu dieser Zeit nicht zugänglich sind. Am Vortag ist die Aktivität des  $^{128}\text{J}$  zu hoch (bis zu 1 Ci) und am nächsten Morgen ist das  $^{128}\text{J}$  zerfallen ( $t_{\frac{1}{2}} = 25$  min). Daher wurde zur  $^{127}\text{J}$ -Messung in Milch und Schilddrüsenproben eine ionensensitive Elektrode mit Erfolg geprüft. Der Zeitaufwand für die Reinigung der Chemikalien und der Präparation der Eichproben ist zu hoch; die z.Zt. verwendeten Präparatebehälter sollen durch widerstandsfähigere Probegefäße ersetzt werden. An diesen Fragen wird zur Zeit gearbeitet. Außer diesen Arbeiten, welche in der 6-wöchigen Betriebspause des FR 2 durchgeführt werden, werden nach dieser Pause die Messungen der angefallenen Proben zur Radioökologie des  $^{129}\text{J}$  fortgesetzt.

4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine  
Anhäufung kerntechnischer Anlagen

(A. Bayer, W. Engel, 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.

Im Programmteil, der die Ausbreitung von Radionukliden in Flußsystemen beschreibt, wurde die Wechselwirkung von im Flußwasser gelösten Isotopen mit den Sedimenten und Schwebstoffen berücksichtigt. Es zeigte sich dabei, daß gewisse Effekte wie Ablagerung und Resuspension modellmäßig schwer zu beschreiben sind, da diese von einer Reihe sich dauernd ändernder Flußparameter wie Wasserführung und Schwebstoffkonzentration abhängen. Da diese Effekte jedoch relativ klein sind, reichen im Rahmen der Gesamtgenauigkeit der Untersuchung zu ihrer Beschreibung einfache Annahmen aus. Die notwendigen Transferkoeffizienten wurden aus gemessenen Verteilungskoeffizienten und Konzentrationsfaktoren gewonnen.

Für die Berechnung der altersabhängigen Dosisfaktoren wurde eine Parametersammlung angelegt. Tabellen bzw. Kurven für Körpergewicht, Körperwasservolumen, Luft- und Wasserumsatz und Verbrauch wichtiger Grundnahrungsmittel in Abhängigkeit vom Alter wurden angefertigt. Altersabhängige Daten über Organe, die als kritische Organe in Frage kommen, werden zur Zeit gesammelt. Daneben werden die natürlichen altersabhängigen Eintrittswahrscheinlichkeiten für verschiedene Krebserkrankungen, die u.a. bei vergleichenden Betrachtungen der Risiken der Kerntechnik mit anderen Risiken herangezogen werden, auf Grund vorhandener Statistiken entwickelt.

Die Sammlung von Freisetzungsraten wurde ausgedehnt auf den Bereich der schweren Radioisotope, d.h. auf die Isotope der natürlichen Kernbrennstoffe (Uran und Thorium) und deren Zerfallsprodukte sowie die Transurane (Plutonium usw.), die während des Betriebs von Kernkraftwerken entstehen und nach Wiederaufarbeitung zum größten Teil wieder als Kernbrennstoffe eingesetzt werden. Bearbeitet wurde zunächst die Freisetzung beim Abbau von Erzen, bei der Aufbereitung, Isotopenanreicherung, Brennelementfertigung und bei Leistungsreaktoren. Das Studium der Freisetzung bei der Wiederaufarbeitung ist vorgesehen.

#### Veröffentlichungen

D. Schiesser

Erzeugung und Freisetzung von Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ce-141 und Ce-144 durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000  
KFK-Bericht 2153 (1975)

W. Engel

Freisetzung von schweren Radionukliden durch Anlagen zur Gewinnung und Verarbeitung von Kernbrennstoff und durch Kernreaktoren und die resultierende radiologische Belastung  
Unveröffentlichter Bericht

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

(E. Hutter, G. Neffe, RBT; R. v. Ammon, W. Weinländer, IHCH, C.H. Leichsenring, PNS-PL)

1. Versuchsanlage

Für die Abtrennung der Edelgase aus der Abluft einer großen Wiederaufarbeitungsanlage ist eine Tieftemperatur-Rektifikations-Versuchsanlage im Aufbau.

Nach der Vergabe der Anlage (Nenndurchsatz  $50 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ) an eine Industriefirma wurde die Komponentenberechnung durchgeführt und abgeschlossen; mit der Konstruktion wurde begonnen. In einer Störfallbetrachtung wurden die Störungseinflüsse untersucht und die erforderlichen Betriebsweisen erarbeitet. Im Hinblick darauf wird z.Z. das Verfahrensschema ergänzt und das Regelkonzept überprüft.

Bei der Konstruktion der Rektifikationskolonnen wird die volle zur Verfügung stehende Höhe der Technikumshalle ausgenutzt.

Daten der ersten Kolonne zur Trennung der Edelgase Krypton und Xenon vom Stickstoff:

Einbauten	Siebböden
Anzahl der theoretischen Böden	11
Aktiver Säulendurchmesser	160 mm
Höhe über alles	7800 mm
Sumpfheizung	880 W

Daten der zweiten Kolonne zur Trennung des Kryptons vom Xenon:

Einbauten	Füllkörper
Anzahl der theoretischen Böden	8
Säulendurchmesser	50 mm
Höhe über alles	7600 mm
Sumpfheizung	190 W

Beide Kolonnen werden zusammen mit dem vorgeschalteten Wärmetauscher und den Auffangbehältern zur flüssigen Zwischenlagerung der gewonnenen Edelgase in

einem Vakuumbehälter als Isolation eingesetzt. Das Konzept der Vakuumisolation ermöglicht die gute Leckkontrolle einer späteren radioaktiv betriebenen Reinigungsanlage und wird deshalb bereits bei dieser inaktiven Anlage erprobt.

## 2. Laboruntersuchungen zur Vorreinigung

Bevor das Abgas der eigentlichen Tieftemperatur-Rektifikation zugeführt werden kann, muß es von allen Komponenten, die zum Ausfrieren und damit zur Verstopfung von Leitungen, Ventilen oder Kolonnenböden führen können, oder sonst ein Risiko darstellen, gereinigt werden. Nach der Abtrennung des Jods und der Aerosole (siehe PNS 4112) sind zwei Vorreinigungsstufen vorgesehen.

1. Die Reduktion des Sauerstoffs und der Stickoxide mit Wasserstoff;
2. die adsorptive Abtrennung von Restwasser,  $\text{CO}_2$  und anderen Restverunreinigungen wie  $\text{NH}_3$  und  $\text{NO}_x$  an Molekularsieben.

Die Verbrennung von  $\text{O}_2$  und  $\text{NO}_x$  mit Wasserstoff ist entweder thermisch bei Temperaturen um  $1100^\circ\text{C}$  oder bei niedrigeren Temperaturen (um  $400^\circ\text{C}$ ) an einem Ruthen-Katalysator möglich. Beide Verfahren haben ihre Vor- und Nachteile: Dem Vorteil der niederen Temperatur beim katalytischen Verfahren steht die Anfälligkeit des Katalysators gegen Gifte wie Jod und Phosphate gegenüber. Während das dadurch gegebene Verfügbarkeitsproblem bei der thermischen Verbrennung entfällt, stellt dort die Zündung und Beherrschung der Flamme ein gewisses Sicherheitsproblem dar. Außerdem liegen die Restmengen an  $\text{NO}_x$  höher. Beiden Verfahren gemeinsam ist die relativ aufwendige Regelung der Wasserstoff-Zufuhr. Eine Entscheidung zwischen beiden Varianten ist erst nach Durchführung eines Versuchsprogramms möglich. Aus diesem Grund wurde ein Labor-Teststand errichtet, an dem Versuche zur Effektivität verschiedener Katalysatoren, sowie ihr Verhalten gegenüber Giften untersucht werden sollen.

### 2.1 Katalyse-Teststand (Abb. 1)

Das Trägergas ( $1 \text{ Nm}^3/\text{h N}_2$ ), dem die Gase  $\text{NO}$ ,  $\text{O}_2$  und  $\text{H}_2$  in der gewünschten Konzentration zudosiert werden, durchströmt nach Vorwärmung das Katalysatorbett und verläßt hinter einem Kühler zur Wasserabscheidung wieder die Apparatur. Probenahmestellen vor und hinter dem Katalysatorbett erlauben die Analyse von  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  (Chemolumineszenz),  $\text{NH}_3$  (IR, Dräger-Röhrchen) sowie der

übrigen Bestandteile.

Das Versuchsprogramm sieht vor, nach Auswahl des effektivsten Katalysators (hohe  $\text{NO}_x$ -Beseitigung, geringe  $\text{NH}_3$ -Bildung) den Einfluß von bestimmten Beladungen des Katalysators mit Jod oder Tributylphosphat auf die Effektivität zu messen (siehe auch PNS 2. Halbjahresbericht 1974, KFK 2130).

## 2.2 Molekularsieb-Teststand (Abb. 2)

Eine ähnliche Apparatur zur Untersuchung der Koadsorption von  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NH}_3$  und einiger Kohlenwasserstoff-Verbindungen an Molekularsieben befindet sich im Aufbau.

Trägergas ist wieder  $\text{N}_2$  mit einem Durchsatz von maximal  $1 \text{ Nm}^3/\text{h}$ , wobei der Druck zwischen 1 und 5 bar variierbar ist. Da die Konzentration der zudosierten Gase außer  $\text{H}_2\text{O}$  höchstens 1 % betragen soll, enthält das Gaslager 5-%ige Mischungen jeder dieser Komponenten in  $\text{N}_2$ . Vor der Zudosierung dieser Gemische wird das Trägergas zur Einstellung des gewünschten  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdrucks durch einen Befeuchtungs- und einen Feuchteinstellbehälter geleitet. Im Molsiebbett wird dynamisch adsorbiert, d.h. der Durchbruch der einzelnen über das Adsorberbett geleiteten Gaskomponenten wird durch Analyse des Gasstroms vor und hinter dem Bett, u.a. durch Gaschromatographie gemessen.

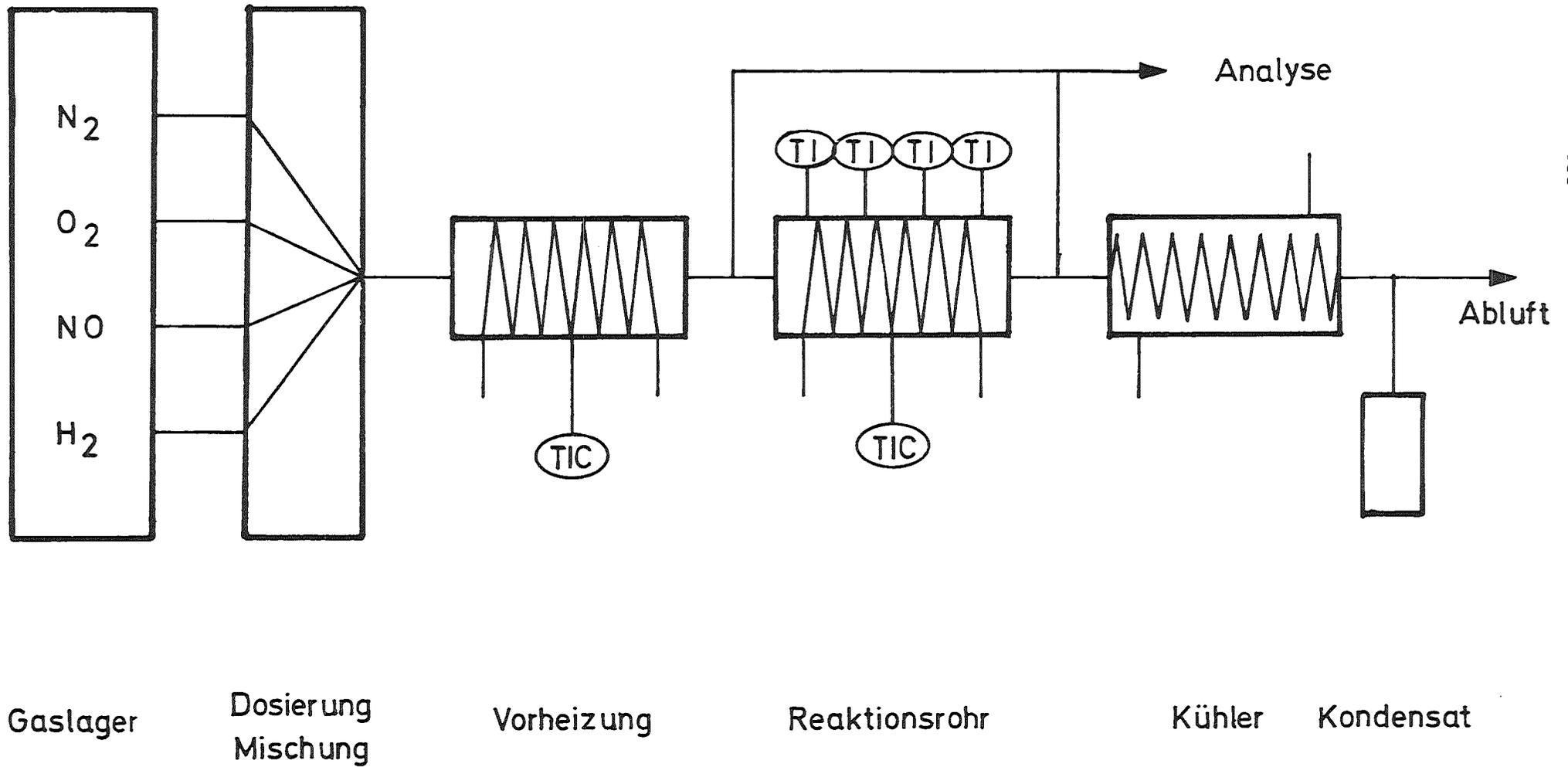
Im ersten Schritt werden die eingangs genannten Verunreinigungen adsorbiert, ohne daß es zum Durchbruch einer dieser Komponenten kommt. Im zweiten Schritt werden Krypton- und Xenon-Reste mit reinem  $\text{N}_2$  vom Adsorberbett gespült.

Nur wenn es gelingt, das im realen Betrieb aktive Kr weitgehend vom Adsorber zu entfernen, ohne daß andere Komponenten (außer Xe) durchbrechen, ist es möglich, die im dritten Schritt, der Regeneration vom Adsorberbett, desorbierten Gase an die Umwelt abzugeben.

Den aus der Literatur entnommenen Gleichgewichts-Adsorptionsdaten zufolge (Abb. 3) sollte eine derartige Dreiertakt-Gasreinigung möglich sein, da die Edelgase, vor allem das Krypton um mindestens den Faktor 100 schlechter als  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NH}_3$  etc. adsorbiert werden.

Abb 1

### Katalytische $\text{NO}_x/\text{O}_2$ - Reduktion



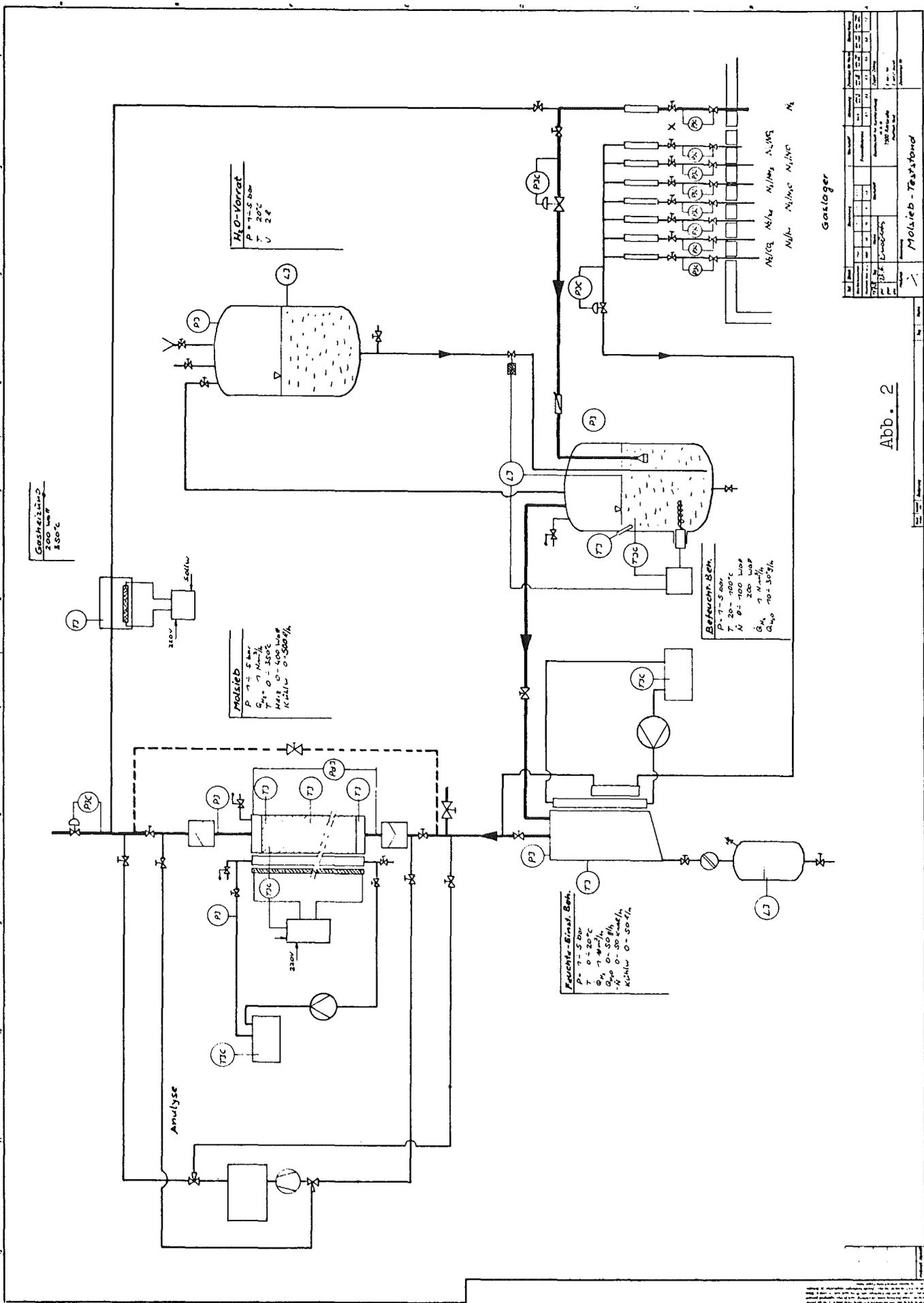
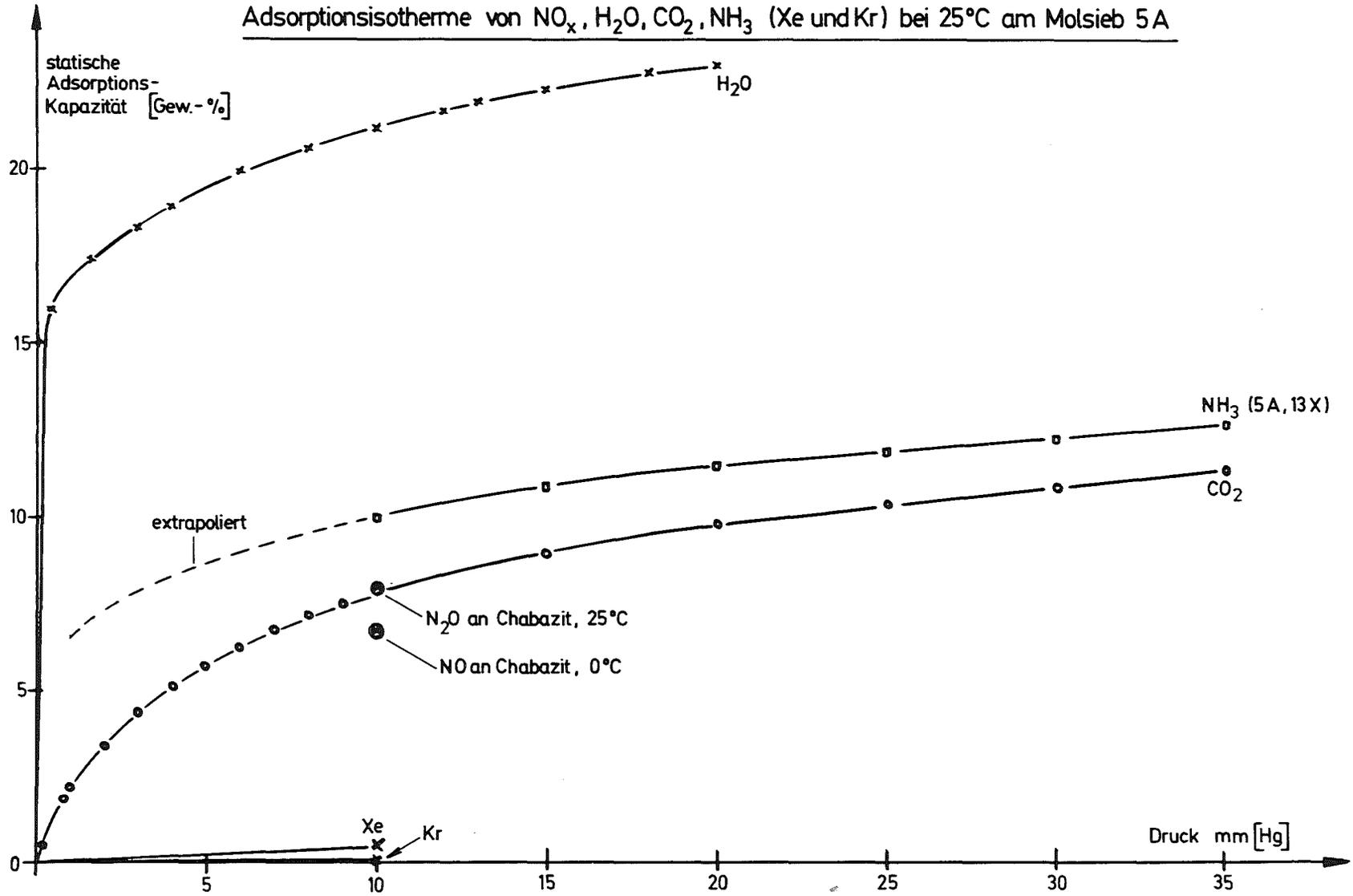


Abb. 2

Adsorptionsisotherme von  $\text{NO}_x$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NH}_3$  (Xe und Kr) bei 25°C am Molsieb 5A



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)

Zur Auswertung der in Rheinhausen gewonnenen Meßdaten zum Wärmeübergang Rheinoberfläche-Atmosphäre

Die im folgenden vorgelegten Ansätze zur Weiterverarbeitung der Prozeßrechnerrohdaten dienen schwerpunktmäßig der Erzielung von Ergebnissen zu

- der absoluten Größe der Wärmeaustauschflüsse und deren statistischem Verhalten, um zu Kriterien zur Definition von "typischen", bzw. "wichtigen" Situationen zu gelangen; auf diese sollen dann speziell die folgenden Untersuchungen konzentriert werden. Entscheidender Auswahlparameter ist jeweils die Auswirkung einer erfaßten Situation auf die Kühl-Kapazität des Gewässers, extremen Situationen mit nur geringen Auswirkungen kommt lediglich die Bedeutung von Extrapolationshilfen bei der Beurteilung von Gültigkeitsbereichen gefundener Zusammenhänge zu.
- den Abhängigkeiten dieser Größen von der hydrologischen und meteorologischen Situation. Erster Schritt hierzu ist die Untersuchung der Abhängigkeiten der durch Gegenüberstellung der direkt gemessenen Flüsse mit den Gradienten von Windgeschwindigkeit, Temperatur und Feuchte ermittelten Austauschparameter von lokalen, mikroklimatischen und regionalen Einflüssen in Form von Parameterstudien für die oben spezifizierten Fälle.

Zweck dieser Parameterstudien ist es, zum einen die für das Verhalten der Austauschkoeffizienten wesentlichen Faktoren zu erfassen, um mit angebbaren Fehlern die jeweils gemessenen Situationen auf interessierende Fälle umzurechnen, zum anderen zu ermitteln, welcher Satz von möglichst einfach zu gewinnenden Meßdaten bei geeigneter Auswertung mit hinreichend kleinen (und bekannten) Fehlern zu

brauchbaren Erfassungen der Flüsse herangezogen werden kann.

Der nächste Schritt sieht einen Vergleich der durch gesicherte Umrechnungsmethoden flexibler gewordenen Datensätze vom Mast im Rhein mit denen des Ufermastes, später auch mit denen des 5 km entfernten meteorologischen Mastes des Kernkraftwerkes Philippsburg vor, zunächst um überwiegend lokal geprägte Situationen von stark regional beeinflussten zu unterscheiden. Um den Übergang von der genauen punktuellen Kenntnis des Wärmehaushaltes zu einer Abschätzung eines größeren Flußabschnitte vollziehen zu können, müssen beide Fälle getrennt verfolgt werden. Bei den überwiegend durch lokale Effekte geprägten Situationen ist der topologische Einfluß im Vergleich zu anderen - meist kraftwerkseigenen - Meßstationen zu untersuchen. Bei deutlich regionalem Einfluß ist festzustellen, wie weit Vergrößerungen der zeitlichen und örtlichen Auflösung zulässig sind, um noch akzeptable Wärmebilanzaussagen zu erhalten.

Die Anwendung der Ergebnisse besteht darin, auf optimale Verteilung und Geräteausrüstung der kommenden - zumeist kraftwerkseigenen - Meßstationen zu schließen und geeignete Berechnungsmethoden zur Verfügung zu stellen, um von der bisherigen Verkopplung von wasser- temperaturabhängigen und -unabhängigen Größen bei der Aufstellung von Wärmebelastungsmodellen freizukommen, wie sie bei der Anpassung an gemessene Temperaturverläufe bei gleichzeitig mangelnder Kenntnis sowohl der Einleitungen als auch der Wärmeaustauschvorgänge zwangsläufig erfolgt. Diese Verkopplung trägt in die existierenden Rechenmodelle erhebliche Unsicherheiten. Die hier beschriebenen Arbeiten sollen dazu beitragen, daß Angaben von "natürlichen", d.h. in unbelastetem Zustand, Gewässertemperaturen, auf denen die zulässigen Aufheizspannen fußen, unter Berücksichtigung ihres zeitlichen Verhaltens möglich sind.

Um die gewünschten Ergebnisse aus den Meßdaten zu erhalten, wurden die Verfahrensweisen im einzelnen wie folgt ausgearbeitet:

1. Übernahme der mehrwöchigen 10-min. Protokolle des Prozeßrechners (Inhalte wie in KFK 2050 S. 120/122 angegeben) auf Datenträger der GfK-Großanlage

2. Fehlersuchprogramm mit Darstellung und Indizierung unwahrscheinlicher Meßwerte und ihrer Umgebung; wahlweises Tilgen, wenn möglich Korrigieren oder Verifizieren der indizierten Werte
3. Statistische Darstellung zur Erkennung relevanter Kombinationen
4. Parameterschnitte durch diese Kombinationen mit sukzessiver Umrechnung relevanter Parameter auf normierte Fälle; Überprüfung und gegebenenfalls Ergänzung bestehender Parameterisierungsformeln
5. Klassifizierung von Fällen nach ihrer Abhängigkeitsstruktur
6. Korrelationsuntersuchungen an geeigneten Klassen von Fällen
7. Ermittlung von minimal erforderlichen Sätzen von Eingangsdaten zur Erzielung vorgegebener Genauigkeitsgrenzen
8. Ermittlung der erforderlichen Eingangsdaten zum Übergang auf Flußabschnitte
9. Darstellung von Ist-Zuständen und Berechnung ähnlicher Zustände für den Aufpunkt der Meßstelle
10. Herleitung einer sinnvollen "natürlichen" Temperaturangabe für den Bereich der Meßstelle

Eine Übersicht der Einbettung dieser geplanten Aktivitäten in den gesamten Anwendungsbereich der Ergebnisse der Meßstation gibt das folgende Flußdiagramm, Abb. 4151-1, das in seinem unteren Drittel auch auf die Aktivitäten anderer Stellen (DWD = Deutscher Wetterdienst, ASS = Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit der Gesellschaft für Kernforschung, KKP = Kernkraftwerk Philippsburg, LfG = Landesanstalt für Gewässerkunde) Bezug nimmt.

Abgesehen von den Vorarbeiten zur weiteren Datenverarbeitung ist folgender Stand erreicht:

Gemeinsam mit der Firma Grün und Bilfinger, Mannheim, die den Meßmast im Rhein fertigte und montierte, konnten zwei Mängel beseitigt werden. 1. Das bei Eisgang auf dem Rhein aus statischen Gründen

notwendige Hochhieven des Pontons (=Schwimmkörpers) aus der Wasserlinie ließ sich bislang nicht bei allen Wasserständen durchführen. Durch Einbau von Zugösen am Dalben und Umlenkrollen am Ponton ist dies jetzt unter allen Bedingungen möglich. Der Mißstand war offenbar geworden, als versucht werden sollte, die Ursache einer 2. Beanstandung zu lokalisieren: Die Dämpfung des schwimmenden Gittermastes, bereits nach Abschluß der Montage an der oberen Toleranzgrenze, hatte im Betrieb soweit zugenommen, daß der Sondenträger wechselnden Wasserständen mit bis zu 20 cm Verzögerung nacheilte. Nach Einbau von Führungsrollen mit einstellbarer statt wie bisher fester Andruckkraft, sowie sorgfältigem Ausrichten einiger Stoßstellen im Gittermastaufbau stellte sich eine ausgezeichnete Beweglichkeit ein, so daß jetzt die Konstruktion dem Wasserstand millimetergenau folgt.

Allerdings wurden in Begleitung der mechanischen Arbeiten einige Kabel zerstört, so daß umfangreiche Reparaturarbeiten auch an den in der Folge ausfallenden Meßverstärkern notwendig wurden.

Die Erstellung des vollständigen Prozeßrechnerprogramms verzögerte sich zunächst durch mehrfache Hardwareausfälle, von denen Lochstreifenleser/ Stanzer, Memory driver und Camac-Analog-Digitalwandler betroffen waren. Im Falle der A/D-Wandler wurden schließlich seitens der Herstellerfirmen mehrfach Konstruktionsänderungen vorgenommen, da die ursprüngliche Version einen Betrieb im recycling mode nur jeweils über Tage standhielt. Danach war die Verlässlichkeit hinreichend, um das Softwarepaket fertigzustellen und zu testen; für einen störungsfreien Dauerbetrieb ist die Camac-Ausfallrate indes noch unbefriedigend hoch.

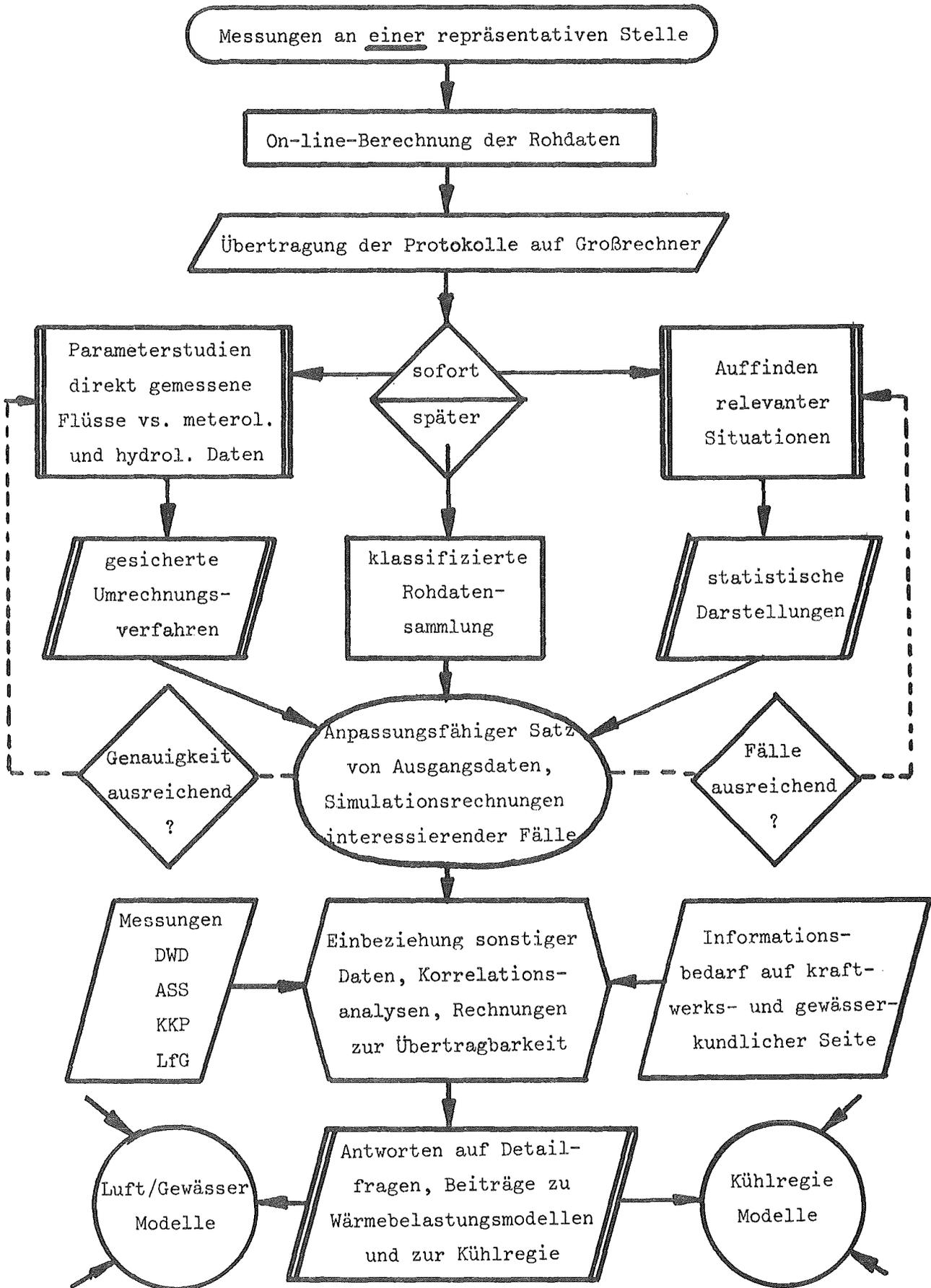


Abb. 4151-1: Darstellung der geplanten Auswertung der am Rhein unterhalb von Philippsburg gemessenen Wärmeaustauschdaten und mögliche Anwendung der Ergebnisse

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

Das entwickelte Computer-Programm zur Berechnung des 3-dimensionalen Aufstiegs von Kühlturmfahnen (Dampf 3) wurde an weiteren Beispielen getestet. Die Abbildungen 4152-1 und 4152-2 liefern z.B. die Vertikalgeschwindigkeit in zwei Schnitten durch die Kühlturmfahne wie sie aufgrund der Daten in Neurath/1/ vom 15. 12. 1973, 15.00 Uhr berechnet wurden. Gestrichelt eingetragen ist der sichtbare Teil der Fahne. Abb. 4152-3 liefert einen Vergleich zwischen dem berechneten und beobachteten sichtbaren Teil der Kühlturmfahne. Die Übereinstimmung ist recht gut. Die in /1/ angegebenen Messungen sind allerdings nicht gut geeignet, um das Programm zu testen, da nur die sichtbare Fahne zusammen mit den Emissionsdaten und den meteorologischen Daten in der Umgebung zur Verfügung stehen. Der sichtbare Teil der Kühlturmfahne beschränkt sich nicht selten nur auf den oberen Teil der Kühlturmfahne und umfaßt auch nur einen Teil der gesamten Länge der Fahne. Besser geeignet sind deshalb Messungen der Aufstiegs geschwindigkeit, der Feuchte und der Temperatur in der Fahne, wie sie im Rahmen des HHT Projekts der KFA Jülich durchgeführt wurden. Es wurde deshalb mit der Projektleitung Kontakt aufgenommen, um die Ergebnisse der Messungen an den Kühltürmen in Neurath und in Meppen zu erhalten, was prinzipiell auch zugesagt wurde. Allerdings müssen die Daten erst entsprechend aufbereitet werden.

Zur Darstellung der Ergebnisse wurde von der Abteilung Datenverarbeitung und Instrumentierung (ADI) ein Interpolationsprogramm MEDINT entwickelt, das die Verteilungen der verschiedenen Parameter in beliebigen Schnitten durch die Fahne zu berechnen gestattet. Anhand dieser Daten lassen sich mit dem Höhenlinienprogramm PLOTHL /2/ diese Verteilungen in Form von Isoliniendarstellungen zeichnen. Die Abbildungen 1 und 2 sind auf diese Weise entstanden. Außerdem ist in der ADI ein Programm zur Berechnung des Schattens der sichtbaren Kühlturmfahne in Bearbeitung.

Da das Programm Dampf 3 eine große Rechenzeit benötigt, ist es für statistische Betrachtungen erforderlich, das Programm wesentlich zu vereinfachen. Als erster Schritt wurde das Programm um eine Dimension reduziert, was bereits einen beträchtlichen Rechenzeitgewinn bringt. Zur Zeit wird diese Version getestet.

Die Ergebnisse dieses Programms sind noch unmittelbar mit den Ergebnissen bei 3 Dimensionen vergleichbar. Zusätzliche Annahmen sind nicht erforderlich. Möglicherweise läßt sich damit das Programm Dampf 3 ersetzen. Außerdem zeigen die Messungen, die bisher bekannt geworden sind, daß eine derartige Vereinfachung noch realistische Verteilungen liefert. Sollte aus Rechenzeitgründen eine weitere Vereinfachung notwendig sein, so muß das theoretisch weniger befriedigende noch zu entwickelnde eindimensionale Programm Verwendung finden.

#### Zitierte Literatur

- /1/ E. Baer et.al.: Untersuchungen an einem Naturzug-Naßkühlturm,  
Fortschrittsbericht VDI-Zeitschrift, Reihe 15,  
Nr. 5
- /2/ U. Schumann : PLOTHL  
Ein Fortran IV Unterprogramm zur Darstellung  
von Funktionen von zwei unabhängigen Variablen  
durch ihre Höhenlinien auf einem Plotter,  
KFK-Bericht Nr. 1486

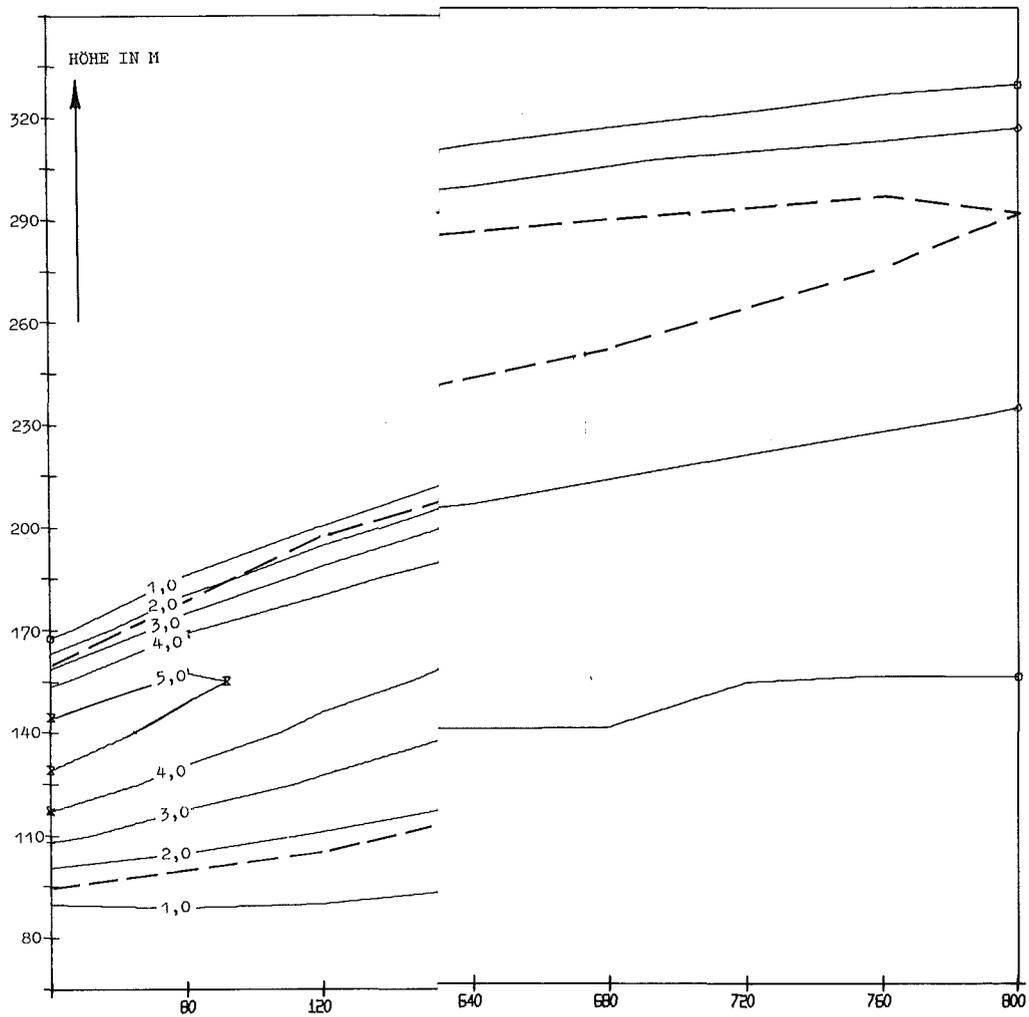


ABB. 4152-1 SCHNITT DURCH DIE KÜHLTURM

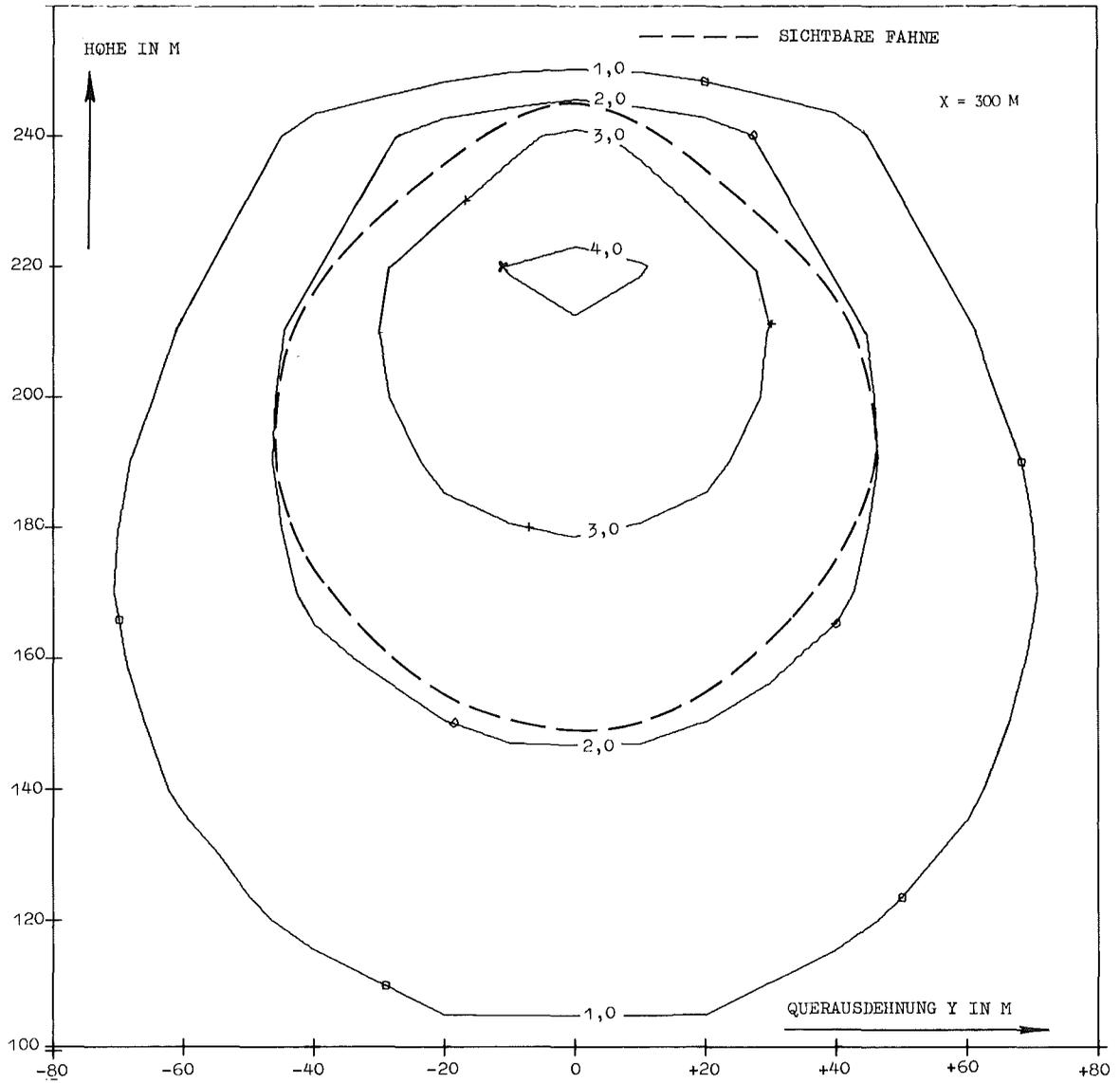


ABB.: 4152-2 SCHNITT DURCH DIE KÜHLTURMFAHNE PARALLEL DER Y-ACHSE, VERTEILUNG DER VERTIKALGESCHWINDIGKEIT IN M/S

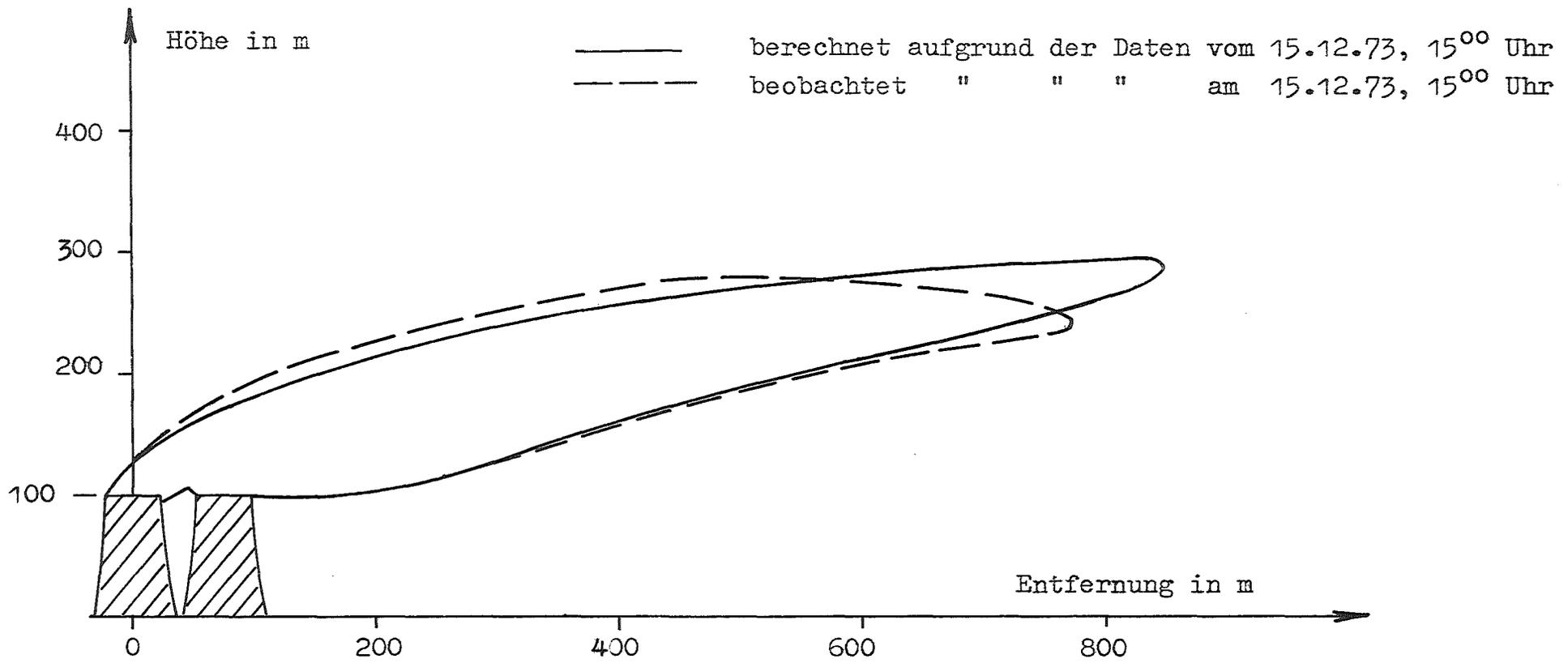


Abb. 4152-3 Sichtbare Dampfahne

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)

Die im Entwicklungszeitraum durchgeführte vertiefte Auswertung der MARVIKEN I-Meßergebnisse konzentrierte sich auf Fragen der möglichen Systemeigenschwingungen in Zusammenhang mit den bei den Versuchen Nr. 10 und 13 aufgetretenen Schwingungsresonanzphänomenen. Bei diesen beiden Versuchen, insbesondere bei Nr. 13, traten in der Wasservorlage und in der Dampfverteilerkammer Druckpulsationen mit relativ großen Amplituden auf [1]. Dabei zeigte der Druckpulsationsverlauf in der Dampfverteilerkammer etwa ab Mitte der starken Blowdown-Phase einen resonanzähnlichen Charakter. Die Vermutung des Vorhandenseins einer Resonanz im Dampfzuströmsystem wurde dadurch erhärtet, daß die Spektraldichtefunktionen (Abb. 4211-1) der in der Wasservorlage und in der Dampfverteilerkammer gemessenen Drucksignale ähnlich sind, sich aber im Bereich der maximalen Schwingungsenergien, bei ca. 4 Hz, betragsmäßig wie 1:3 verhalten.

Da die Anlage MARVIKEN aus schwingungstechnischer Sicht sehr komplex ist, wurden für die Untersuchung der Systemeigenschwingungen im ersten Schritt zunächst folgende vereinfachenden Annahmen zugrunde gelegt:

- System soll linear, gedämpft stabil sein
- Dämpfung (Lehr'sches Dämpfungsmaß "D")  $\leq 10\%$ . [2]  
Dadurch praktisch kein Unterschied der Eigenfrequenzen des gedämpften und ungedämpften Systems  $\rightarrow (\nu_{\text{ged}} - \nu_0) / \nu_0 \leq 5\%$   
und schnelles Abklingen der Eigenschwingungen bei Erregung

- Gesamtsystem entsprechend Abb. 4211-2 in 6 Einzelsysteme unterteilbar, die als kanalähnliche Gebilde ( $\ell/d > 1$ ) betrachtet werden und über die Randbedingungen gekoppelt sind
- Strömungsgeschwindigkeit des Fluids gegenüber der Schallgeschwindigkeit vernachlässigbar
- Fluides Medium als schwingend und umgebende Strukturen als starr angenommen.

Damit war es möglich, die Einzelsysteme mit Hilfe der eindimensionalen, linearisierten Wellengleichung der folgenden Form zu behandeln: [3]

$$\frac{\partial^2 p}{\partial x^2} = \frac{1}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 p}{\partial t^2}$$

p: Stördruckamplitude  
c: Schallgeschwindigkeit  
x: Ortskoordinate  
t: Zeit

Mit Hilfe eines Produktansatzes und unter Beachtung der Randbedingungen ergeben sich aus der Wellengleichung die Eigenfrequenzen  $\nu_n$ , wobei gilt: [4]

a) für das beidseitig offene oder geschlossene Rohr (System)

$$\nu_n = n \cdot \frac{c}{2\ell} ; \quad \nu_0 = \frac{c}{2\ell} \quad \begin{array}{l} n = 1, 2, \dots \\ \ell : \text{Rohrlänge} \end{array}$$

b) für das einseitig offene bzw. geschlossene Rohr (System)

$$\nu_n = \left| 2n-1 \right| \frac{c}{4\ell} ; \quad \nu_0 = \frac{c}{4\ell}$$

Die Frequenzgleichungen zeigen einmal die funktionale Abhängigkeit von c und  $\ell$  und zum anderen, daß die Eigenfrequenzen durch ganzzahlige Vielfache aus den Grundfrequenzen  $\nu_0$  hervorgehen.

Werden die Verhältnisse von Blowdown Nr. 14, etwa 70 sec nach Blowdown-Beginn zugrunde gelegt und die Schallgeschwindigkeit nach der von Böckh und Chawla in [5] angegebenen Gleichung (11) ermittelt, so ergeben sich für die Einzelsysteme die in Tab. 4211-1 aufgeführten Eigenfrequenzen.

Bei der Kopplung der Einzelsysteme - wurde bisher nicht vorgenommen - ergeben sich für das Gesamtsystem andere Eigenfrequenzen als für die Einzelsysteme. Aus ersten Ansätzen geht jedoch hervor, daß die Grundfrequenz des Gesamtsystems tiefer liegt als die in Tab. 4211-1 angegebenen, und daß im 4 Hz-Bereich Systemeigenschwingungen zu erwarten sind.

Im Verlauf dieser Untersuchungen wurde auch der Frage nachgegangen, warum die Resonanzphänomene erst in der zweiten Hälfte der starken Blowdown-Phase in Erscheinung traten. Der Grund dafür dürfte sehr wahrscheinlich bei der Schallgeschwindigkeit liegen, die in einer 2-Phasenströmung neben den Stoffdaten und der Temperatur hauptsächlich vom Gasvolumenanteil  $\alpha$  abhängt [5,6].

Böckh und Chawla geben in [5] ein Rechenmodell an, mit dem die Schallgeschwindigkeit in Luft-Wassergemischen und in Wasserdampf-Wassergemischen bestimmt werden kann, wobei gute Übereinstimmung zwischen gerechneten und gemessenen Werten besteht. Auf Abb. 4211-3 ist der typische Verlauf, der nach diesem Modell ermittelten Schallgeschwindigkeit in einem 2-Phasengemisch - es handelt sich dabei um ein Luft-Wassergemisch - angegeben. Die Schallgeschwindigkeit nimmt über einen großen  $\alpha$ -Bereich relativ kleine Werte an und steigt für  $\alpha \rightarrow 1$  (dieser Bereich interessiert besonders) und  $\alpha \rightarrow 0$  sehr steil auf die Werte für reines Gas bzw. Flüssigwasser an.

In Abstimmung auf die MARVIKEN-Verhältnisse erhält man ein ähnliches Diagramm, das infolge der höheren Temperaturen und des geringeren Molekulargewichtes des Wasserdampfanteils im ganzen Bereich eine etwas höhere Schallgeschwindigkeit aufweist (s.Tab. 4211-1).

Angewandt auf die Wasser-Blowdown-Versuche, bei denen stets eine Zunahme des Flüssigwasseranteils bzw. eine Abnahme des Gasvolumenanteils festgestellt wurde, bedeutet der Diagrammverlauf, daß wäh-

rend der Blowdown-Phase auch eine Absenkung der Schallgeschwindigkeit und damit der Systemeigenfrequenzen stattgefunden hat [7].

Bei den Versuchen Nr. 10 und 13 könnte sich demnach folgender Vorgang abgespielt haben:

Die größte Erregerenergie wurde dem System im 4 Hz-Bereich durch die Vorgänge in der Wasservorlage aufgeprägt. Das System antwortete im 4 Hz-Bereich mit kleiner Amplitude, da die anregbaren Systemeigenfrequenzen zunächst höher lagen, als die Erregerfrequenz. Mit abnehmendem Dampfvolumenteil nahmen die Schallgeschwindigkeit und damit auch die Eigenfrequenzen ab, bis schließlich bestimmte Eigenfrequenzen des Zuströmssystems in den Frequenzbereich der Erregung rückten, so daß Resonanz eintrat, die dann zu großen Amplituden führte.

Warum bei den anderen Wasser-Blowdown-Versuchen diese Phänomene nicht so deutlich in Erscheinung traten, hängt wahrscheinlich mit den anders gelagerten Ausgangsbedingungen zusammen, die ebenso wie der Einfluß der anfangs zugrunde gelegten vereinfachenden Annahmen noch näher untersucht werden müssen. [9,11,13]

## 1.2 Experimentelle Arbeiten

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

Für die kontinuierliche Bestimmung der Gemischzusammensetzung und des Massenstromes einer H<sub>2</sub>O-Zweiphasenströmung mit Luft als zusätzlicher Komponente wird zusammen mit dem Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe ein Infrarot-Absorptionsmeßverfahren entwickelt. Die hierzu am ITS installierte Versuchsstrecke wurde inzwischen instrumentiert und in Betrieb genommen.

Die eigentliche Meßeinrichtung besteht aus einem optischen Strahlungsgeber und einem Empfangsteil, bei dem durch Interferenzfilter verschiedene Wellenlängen im Bereich der Absorptionsbanden des flüssigen Wassers und der Dampfphase ausgeblendet werden. Der prinzipielle Meßaufbau ist auf Abb. 4211-4 dargestellt. Durch Anordnung einer zweiten Meßebene in Strömungsrichtung kann durch Laufzeitkorrelation der Meßsignale die Strömungsgeschwindigkeit ermittelt werden. [17]

Wesentliche Vorteile des Infrarot-Meßverfahrens sind:

- hohe Ansprechempfindlichkeit
- gutes zeitliches Auflösungsvermögen
- keine Rückwirkung auf den Strömungszustand
- einfacher Meßaufbau durch robuste, handelsübliche Teile
- Gemischzusammensetzung und Strömungsgeschwindigkeit aus gleichen Meßsignalen ermittelbar.

Die bisherigen Versuche haben gezeigt, daß dieses Meßprinzip für den Einsatz bei Blowdown-Experimenten aussichtsreich ist. Dies bezieht sich insbesondere auf die Marviken II-Versuche, deren Ziel es ist, die Druckoszillationen im Gesamtsystem zu untersuchen, die in unmittelbarem Zusammenhang zu den Massenstromschwankungen stehen. Es ist deshalb geplant, dort eine ent-

---

x Dr.-Ing. D.Barschdorff ist Wiss.Rat u. Professor am Institut für Thermische Strömungsmaschinen der Universität Karlsruhe

sprechende Meßeinrichtung einzusetzen.

Bei den Testversuchen hat sich bei großem Flüssigwasseranteil das Beschlagen der Fenster für den Strahlengang als größte Schwierigkeit herausgestellt, die aber inzwischen durch konstruktive Maßnahmen weitgehend beseitigt werden konnte.

Der erste Versuchsabschnitt - Parameteruntersuchungen und Fragen zur Meßgenauigkeit bei stationären Verhältnissen - wird in Kürze durch einen Versuchsbericht abgeschlossen. Im Anschluß daran sind Versuche bei instationären Strömungsverhältnissen geplant.

## 2. Versuche im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL

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

Die im Oktober 1974 im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL durchgeführten Messungen des durch die Dampfkondensation induzierten Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage des Druckabbausystems, sowie der entsprechenden dynamischen Reaktion des Sicherheitsbehälters (Versuchsreihe BRUNSBÜTTEL I) wurden im Berichtszeitraum vorläufig ausgewertet (hauptsächlich die Abblaseversuche Nr. 67 und 68). Dabei wurde festgestellt, daß die Energie der Druckpulsationen in einigen schmalen Frequenzbänder mit den Mittenfrequenzen von ca. 10,5, 13,5 und 22 Hz konzentriert ist. Mit Hilfe der Kreuzspektraldichteanalyse wurde gezeigt, daß vom jeweiligen aktiven Abblaseventil sich im Laufe des Abblasevorganges in beiden Umfangsrichtungen kohärente Umfangsdruckwellen durch die Wasservorlage der ringförmigen Kondensationskammer fortpflanzen. Die entsprechende Wellenlänge beträgt im Falle des 10,5 und 13,5 Hz-Peaks im Energiespektrum die Hälfte und im Falle des 22 Hz-Peaks ein Viertel des Umfangs der Kondensationskammer. Das Feld der laufenden Druckwellen bleibt aber in der gesamten Wasservorlage nicht bestehen, da durch die Überlagerungseffekte teilweise stehende Wellen gebildet werden. Die Bildung dieser Wellen in der Wasservorlage kann durch folgende Gleichung beschrieben werden:

$$p(\alpha', t) = A \{ \exp(-\xi\alpha') \sin [2\pi\nu_m t - \alpha'n] + \\ + \exp[-\xi(2\pi-\alpha')] \sin [2\pi\nu_m t - (2\pi-\alpha')n] \}$$

In dieser Gleichung bezeichnet  $\alpha'$  die Winkel-Koordinate, die vom abblasenden Ventil im Uhrzeigersinn gemessen wird,  $t$  ist die Zeit,  $A$  die Amplitude und  $n$  die Anzahl der laufenden Druckwellen per Umfang der Kondensationskammer,  $\xi$  ist der Dämpfungsquotient. Mit Hilfe dieser Gleichung wurden einige typische Fälle der Druckwellenform berechnet und mit den experimentellen Resultaten verglichen. Dabei ergab sich eine gute Übereinstimmung. Wie sich die Druckwelle während einer Periode aufbaut, zeigt die Abb. 4211-5. In dieser Abbildung ist die nach der angegebenen Gleichung berechnete Form der

Druckwelle für den Fall  $\nu_n = 13,5$  Hz,  $n = 2$  für 8 verschiedene Zeitmomente ( $t = 0, T/8, T/4, 3T/8, T/2, 5T/8, 3T/8 - T$  bezeichnet die Periode  $T = 1/\nu_n$ ) in relativen Einheiten graphisch dargestellt. In diesem Diagramm ist ersichtlich, daß die Druckkräfte in ziemlich breitem Umfangsbereich die Kugelschale des Sicherheitsbehälters kohärent belasten. Die großflächig wirkenden Druckkräfte der Schwingungsbäuche haben zur Folge, daß trotz der kleinen mittleren Amplitude der Druckwellen (im Bereich einiger Hundertstel bar) erzwungene Schwingungen der Kugelschale des Sicherheitsbehälters mit meßbaren Auslenkungen (im Bereich einiger Zehntel Millimeter) induziert werden.

In der ersten Juniwoche d.J. wurde im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL die zweite Reihe der Abblaseversuche (Versuchsreihe BRUNSBÜTTEL II) realisiert. Im Gegensatz zu der Versuchsreihe BRUNSBÜTTEL I, wo mit einem oder zwei Sicherheitsventilen (mit angeschlossenen Kondensationsdüsen) in die Wasservorlage abgeblasen wurde, wurde in dieser Versuchsreihe ein echtes Kondensationsrohr (Rohrdurchmesser 0,6 m) eingesetzt. Zum Abblasen wurde der im Hilfsdampfkessel erzeugte Dampf (14 bar abs., 250 °C) verwendet, dessen Überhitzung durch Wassereinspritzung reduziert wurde. In diesen Dampf wurde bei einigen Versuchen Luft beigemischt. Insgesamt wurden 15 Abblaseversuche durchgeführt, an denen sich das IRE mit Personal und einem Registrierbandgerät, aber ohne eigene Instrumentierung (die dabei eingesetzten Druck- und Wegaufnehmer und die Dehnungsmeßstreifen wurden von der Fa. KWU installiert) beteiligt hat. Es ist vorgesehen, die dabei parallel zur KWU registrierten Druckpulsationssignale im Laufe des 3. und 4. Quartals d.J. im IRE auszuwerten. [10,12]

### 3. Berechnung dynamischer Containmentbeanspruchungen

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

Im Berichtszeitraum wurde die neue verbesserte Version des Finit-Element Programms STRUDL- DYNAL implementiert, mit der jetzt sowohl statische wie dynamische Berechnungen durchgeführt werden können. Für dynamische Rechnungen hat sich die Zahl der beherrschbaren Freiheitsgrade auf rund 2500 verdoppelt, so daß es möglich war, die Diskretisierung des Containments an den kritischen Stellen weiter zu verfeinern. Dies war vor allem an den zylindrischen und konischen Teilen des Containments erforderlich, bei denen zur niedrigsten Eigenfrequenz schon eine recht komplizierte Eigenschwingungsform mit 10 bzw. 9 Wellen in Umfangsrichtung gehört, während einfachere Schwingungsformen wesentlich höhere Eigenfrequenzen haben. Abb.4211-6 zeigt die Ergebnisse einer Kontrollrechnung eines in der Literatur untersuchten einseitig eingespannten Zylinders. Abb.4211-7 zeigt in der gleichen Form das dynamische Verhalten des Innenzylinders der Kondkammer, Abb.4211-8 zeigt zwei in der Frequenz benachbarte Eigenschwingungsformen des oberen kegelförmigen Daches der Kondkammer. Beim Übergang von DYNAL zu STRUDL/DYNAL änderten sich auch die finiten Elemente, die zur Darstellung der Schalen benutzt werden. Diese Änderung führte bei gleichbleibender Diskretisierung zu einer Änderung der berechneten Eigenfrequenzen. So reduzierten sich z.B. die niedrigsten Eigenfrequenzen des kegelförmigen Dachs der Kondensationskammer bei gleichbleibender Schwingungsform (Umfangsordnungen 9 und 10) von 11Hz auf 7 Hz. Dieser letztere Wert bestätigte sich in Kontrollrechnungen, die am Institut für Baustatik (Prof. B. Fritz) der Universität Karlsruhe mit einem Schalenprogramm durchgeführt wurden.

Nach Rechnungen der KWU sind auch an der Kugelschale im Bereich der Wasserkammer lokale Schwingungen der Umfangsordnung 0 mit kleinen Wellenlängen zu erwarten. Bisher durchgeführte Kontrollrechnungen mit einem fein diskretisierten Kugelausschnitt von  $30^{\circ}$  in Umfangsrichtung haben diesen Effekt nicht bestätigt. Diese Fragestellung wird aber weiter verfolgt.

Die Diskretisierung des Containments wurde an das o.g. komplizierte Verhalten der Kegel- u. Zylinderschalen weitgehend angepaßt, so daß ein Netz mit 389 Knoten u. 740 finiten Elementen (2118 Freiheitsgrade) entstand. Dabei wurden neuere Angaben der KWU hinsichtlich der Wandstärken der Strukturen berücksichtigt. Mit dieser Diskretisierung wurden erneut Eigenfrequenzen und -schwingungsformen berechnet.

Die einfachen globalen Schwingungsformen stimmen gut mit den vorherigen DYNAL Ergebnissen überein; bei höheren Ordnungen in den globalen Modes ergaben sich Abweichungen in der Frequenz von bis zu 10%.

Infolge der notwendig gewordenen Neudiskretisierungen und Detailuntersuchungen mußten die transienten Rechnungen zurückgestellt werden. 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. Außerdem wird versucht, das Fluidodynamikprogramm SMAC (inkompressible transiente Strömungen) auf das Problem der Druckstöße bei Blaskollabieren einzusetzen. Erste Testrechnungen in dieser Richtung deuten die Anwendbarkeit der in SMAC enthaltenen Theorie an.

#### 4. Kondensationsversuche bei KWU in Großwelzheim

(M. Cramer, E. Erb, E. Fischer, E. Wolf)

Seit Juni dieses Jahres werden bei der Firma KWU in Großwelzheim Kondensationsversuche zur Bestimmung der dynamischen Beanspruchungen von Druckabbausystemen von SWR bei Kühlmittelverlustunfällen durchgeführt. Dieses Vorhaben beinhaltet neben Grundlagen- und Modellversuchen auch Großversuche mit reaktormaßstäblichen GAU- Rohren, an denen sich auch das IRE mit eigener Instrumentierung beteiligt. Für das IRE stellt diese Versuchsbeteiligung, die aufgrund des freundlichen Entgegenkommens der Fa. KWU ermöglicht wurde, eine logische Fortsetzung der bisherigen Arbeiten dar und erlaubt darüber hinaus, die hier in Vorbereitung befindlichen Prinzipversuche auch auf reale Rohrgeometrien auszudehnen. Die Experimente wurden in einem offenen Behälter ( $d_i = \phi 7m$ ) als Ein- und Mehrrohrversuche ( $d_i = \phi 600$  u.  $\phi 300$  mm) durchgeführt. Wesentliche Versuchsparameter sind die Dampfmassenstromdichte, die Temperatur in der Wasservorlage, das anteilige Speichervolumen (Simulation der Druckkammer) und das zugehörige Wasservolumen. Das Versuchsvorhaben soll Anfang September 1975 abgeschlossen sein.

Soweit es sich um Einrohrversuche handelt, ist als IRE- Versuchsziel vorgesehen, Aussagen über die Häufigkeit des Auftretens von Kondensationsdruckpulsen, über die Störungsausbreitung (Geschwindigkeit, Abschwächung und etwaige Richtungsabhängigkeiten) sowie über die Quellstärke und den Ort des Blasen kollabierungszentrums zu gewinnen. Bei Mehrrohrversuchen soll zusätzlich die Problematik der Überlagerungseffekte studiert werden.

Die Untersuchungen sollen vor allem dazu dienen, den physikalischen Zusammenhang dieser Vorgänge zu verstehen und schließlich die Entwicklung eines Blasen kollabierungsmodells ermöglichen.

Tab. 4211-1: Eigenfrequenzen  $\nu$ , Schallgeschwindigkeit  $c$  und Gasvolumen-Anteil  $\alpha$  bei Blowdown Nr. 14

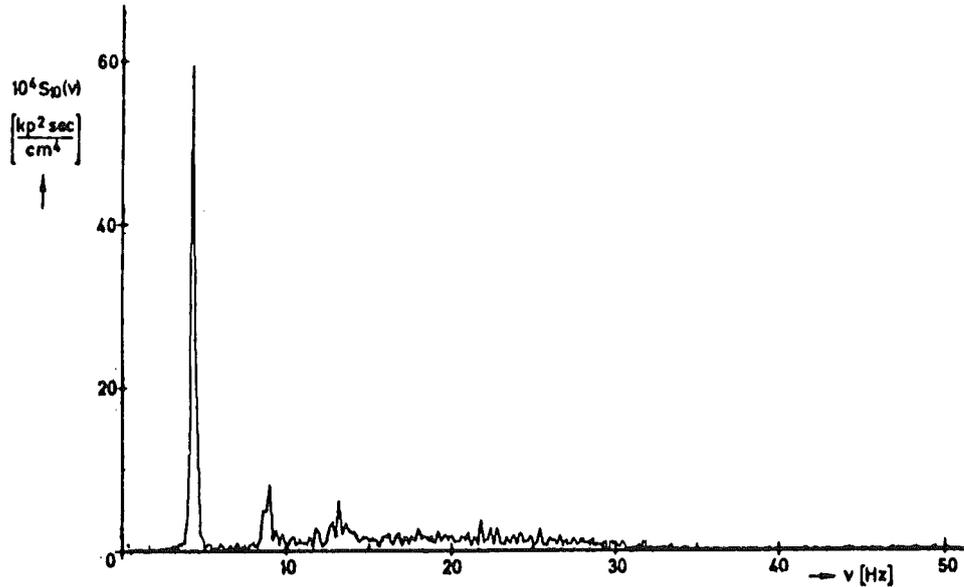
System	$\alpha$	$c$	Eigenfrequenz [ $\bar{\text{Hz}}$ ]				
	[ $\bar{1}$ ]	[ $\bar{\text{m/s}}$ ]	$\nu_0$	$\nu_1$	$\nu_2$	$\nu_3$	$\nu_4$
I	1,0	413	3,8	11,4	19	26,6	34,2
II	0,985	157	6	12	18	24	30
III	0,985	157	3,9	7,8	11,7	15,6	19,6
IV	0,985	157	7,5	22,5	37,5	52,5	67,5
V	0,0134	175	9,3	27,9	46,5	65	83,7
VI	1,0	358	11,7	23,4	35,1	46,8	58,5

Literatur

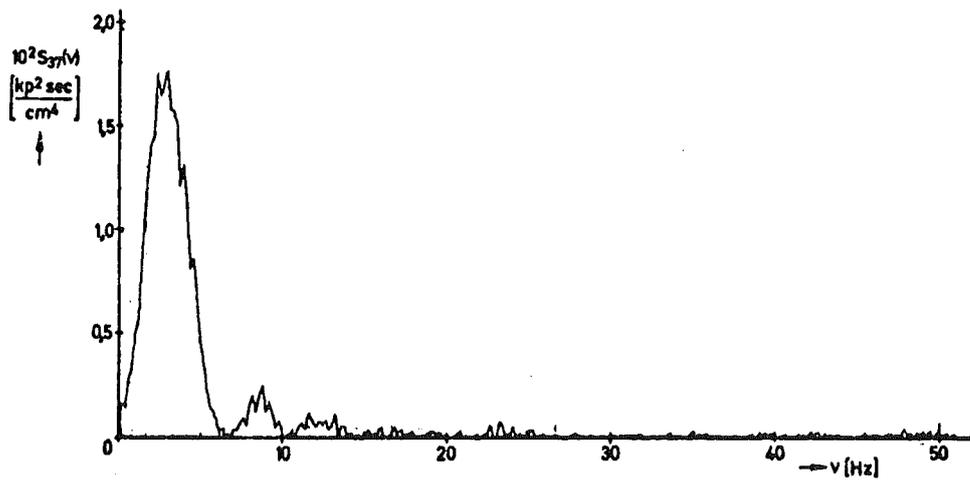
- [<sup>-</sup>1\_] Appelt, K.D., Bönisch, G., Eberle, F., Kadlec, J., Müller, R.A., Philipp, P., Wolf, E.:  
Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen.  
Projekt Nukleare Sicherheit, 2. Halbjahresbericht 1974,  
KFK 2130, Mai 1975
- [<sup>-</sup>2\_] Klotter, K.:  
Technische Schwingungslehre, Band I, 2. Auflage,  
Springer Verlag, Berlin, Göttingen, Heidelberg 1951
- [<sup>-</sup>3\_] Zierep, J.:  
Vorlesungen über theoretische Gasdynamik  
Verlag G. Braun, Karlsruhe, 1963
- [<sup>-</sup>4\_] Trendelenburg, F.:  
Einführung in die Akustik  
Springer Verlag, Berlin, Göttingen, Heidelberg, 1961
- [<sup>-</sup>5\_] Von Böckh, P. und Chawla, J.M.:  
Ausbreitungsgeschwindigkeit einer Druckstörung in Flüssigkeits-/Gasgemischen. Brennstoff-Wärme-Kraft 26 (1974)  
Nr. 2, Februar
- [<sup>-</sup>6\_] Sameith, H.J.:  
Untersuchungen zur Ausbreitung von Stoßwellen in relaxierenden Zweikomponenten-Blasengemischen.  
Diss. Uni Karlsruhe 1973, Fakultät für Maschinenbau
- [<sup>-</sup>7\_] Appelt, K.D., Bönisch, G., Kadlec, J., Müller, R.A., Philipp, P., Wolf, E.:  
Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen.  
Projekt Nukleare Sicherheit, 2. Halbjahr 1973  
KFK 1908, April 1974
- [<sup>-</sup>8\_] Sewall, J.L. and Pusey, C.G.:  
Vibration Study of Clamped- Free Elliptical Cylindrical Shells.  
AIAA-Journal, Vol. 9, No. 6, June 1971, S. 1004-1011

Eigene Veröffentlichungen

- / 9 / Appelt, K.D., Kadlec, J., Wolf, E.:  
Untersuchungen der beim Blowdown im Druckabbausystem des Kernkraftwerkes MARVIKEN aufgetretenen Druckpulsationen.  
Gemeinsame Fachtagung der Fachgruppen "Reaktorsicherheit" und "Thermo- und Fluidodynamik" der Kerntechnischen Gesellschaft im DAfF vom 28. bis 30. Jan. 1975 in Stuttgart
- / 10 / Appelt, K.D., Cramer, M., Eberle, F., Göller, B., Kadlec, J., Laursen, B.M., Schlechtendahl, E.G.:  
Vorläufige Ergebnisse von Untersuchungen zum dynamischen Verhalten des Containments für das Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL beim Blowdown.  
Gemeinsame Fachtagung der Fachgruppen "Reaktorsicherheit" und "Thermo- und Fluidodynamik" der Kerntechnischen Gesellschaft im DAfF vom 28. bis 30. Jan. 1975 in Stuttgart
- / 11 / Appelt, K.D., Kadlec, J., Wolf, E.:  
Untersuchungen der beim Blowdown im Druckabbausystem des Kernkraftwerkes MARVIKEN aufgetretenen Druckpulsationen.  
Reaktortagung des Deutschen Atomforums e.V., Berlin, 8.-11. April 1975
- / 12 / Appelt, K.D., Cramer, M., Eberle, F., Kadlec, J.:  
Vorläufige Resultate der Untersuchungen des Druckpulsationsfeldes in der Wasservorlage der Kondensationskammer und der entsprechenden dynamischen Reaktion des Sicherheitsbehälters während der Entlastungsventilversuche im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL.  
Reaktortagung des Deutschen Atomforums e.V., Berlin, 8.-11. April 1975
- / 13 / Appelt, K.D., Kadlec, J., Wolf, E.:  
"Investigation of the Resonance Phenomena in the PS-Containment of the MARVIKEN Reactor during Blowdown",  
European Nuclear Conference, Paris, April 21-25, 1975



Spektraldichtefunktion (DA 10, Wasservorlage)



Spektraldichtefunktion (DA 37, Dampfverteilerkammer)

Abb. 4211-1: Spektraldichtefunktion der Aufnehmer DA10 und DA 37 bei Blowdown Nr. 13

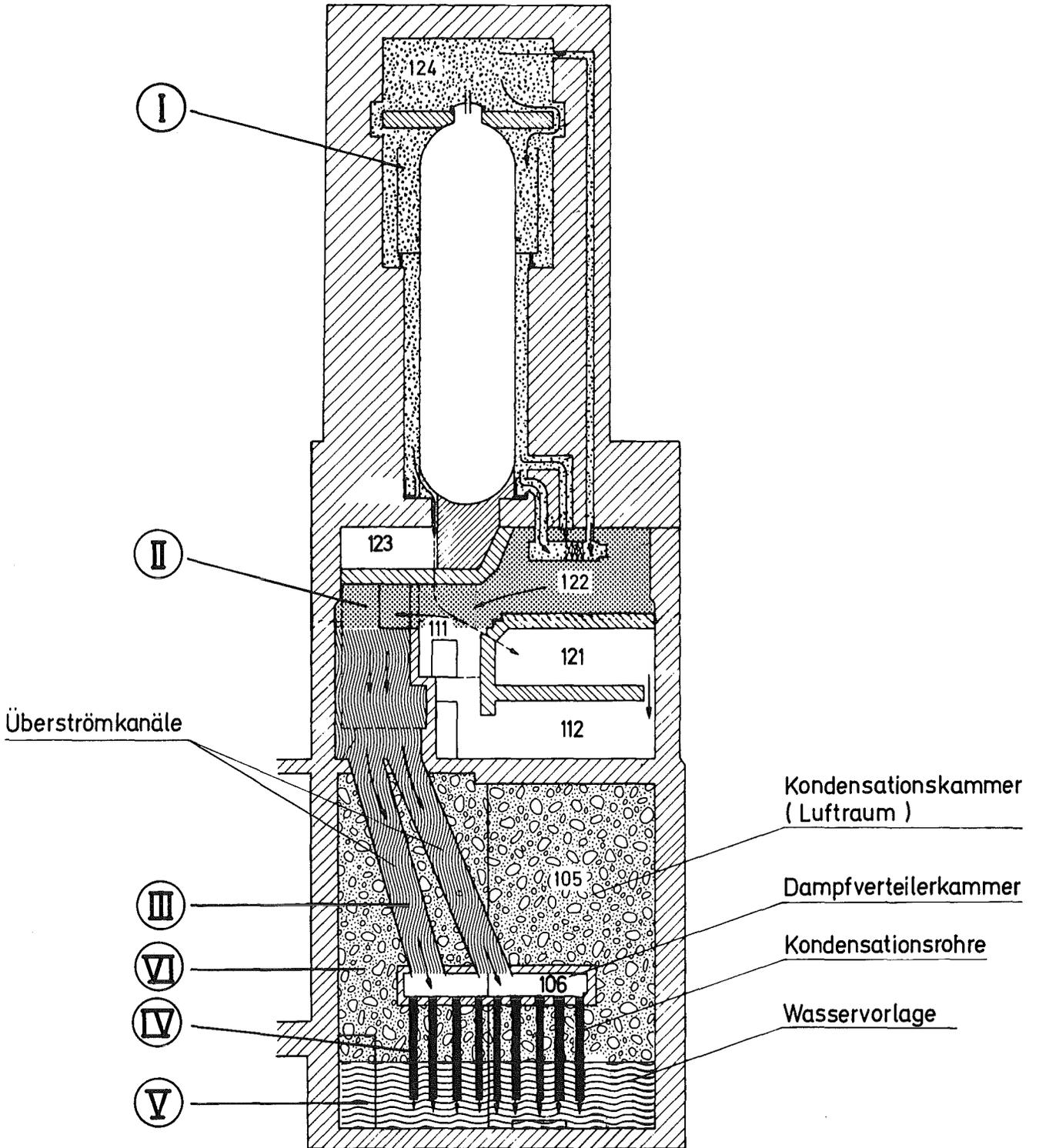


Abb. 4211-2: Aufteilung der Anlage Marviken  
in 6 Einzelsysteme I bis VI

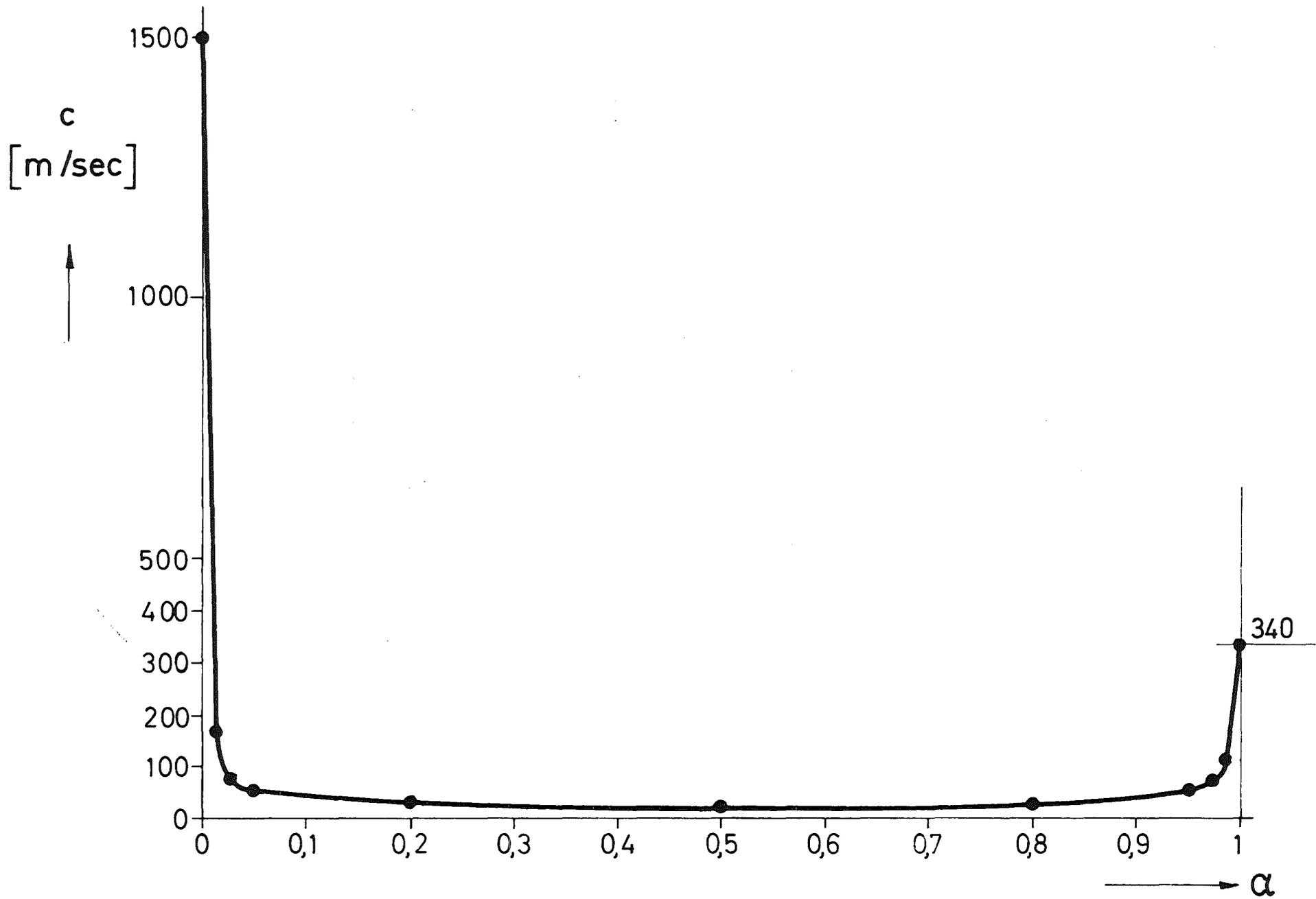
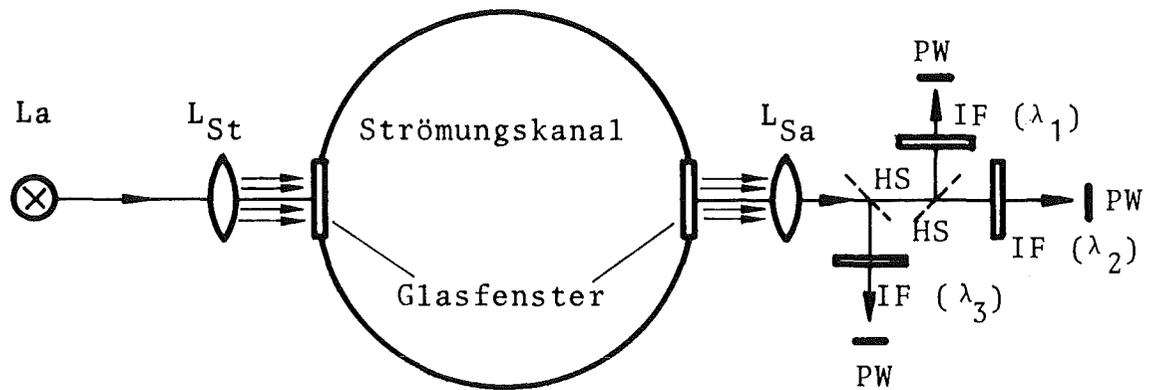


Abb. 4211-3: Schallgeschwindigkeit in einem Wasser - Luftgemisch  
 (  $T = 20^{\circ}\text{C}$  ,  $p = 1\text{bar}$  )



La : Strahlungsgeber	HS : Halbdurchlässiger Spiegel
L <sub>St</sub> : Streulinse	IF : Interferenzfilter
L <sub>Sa</sub> : Sammellinse	PW : Photowiderstand

Abb. 4211-4: Schema der Meßeinrichtung

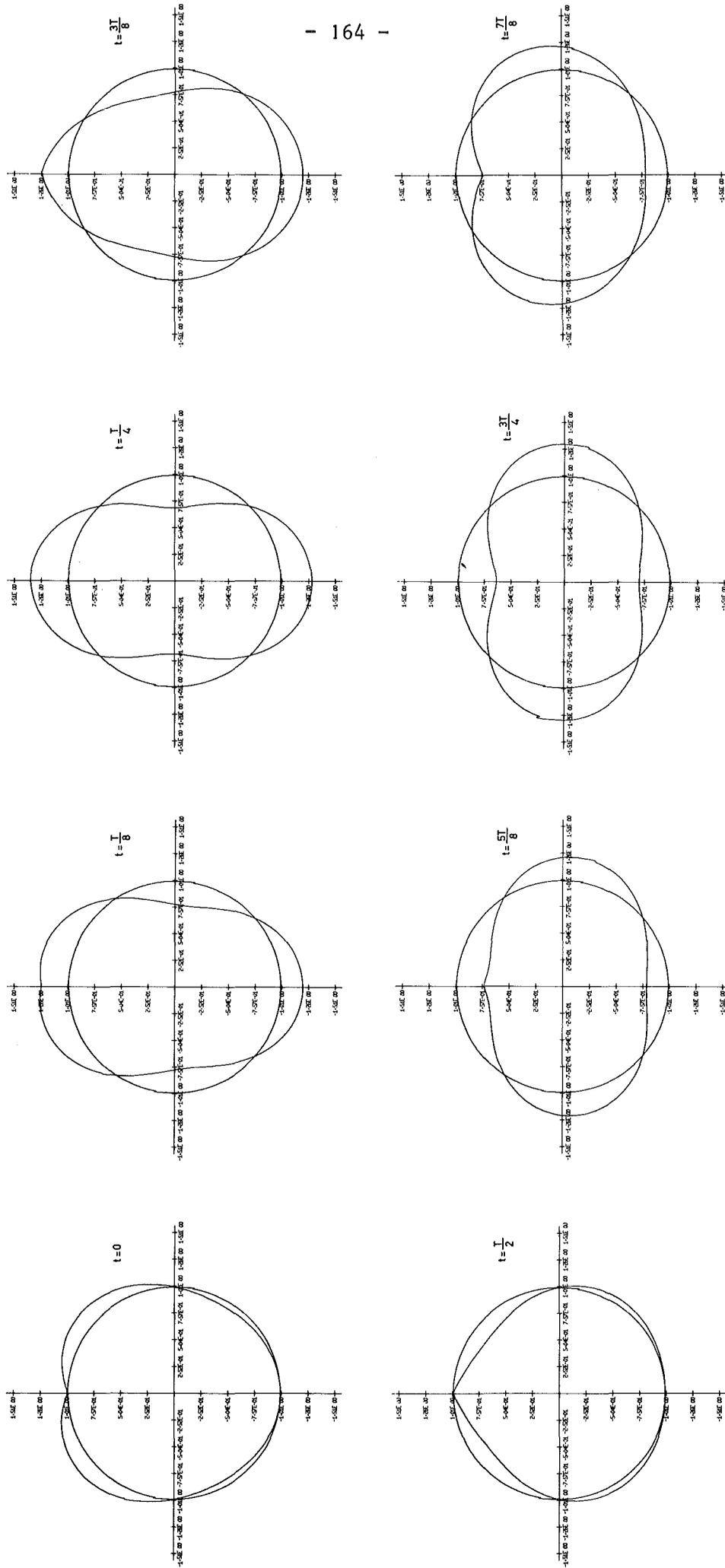


Abb. 4211-5: Zeitverlauf des Aufbaus der stehenden Druckwelle in der Wasservorlage

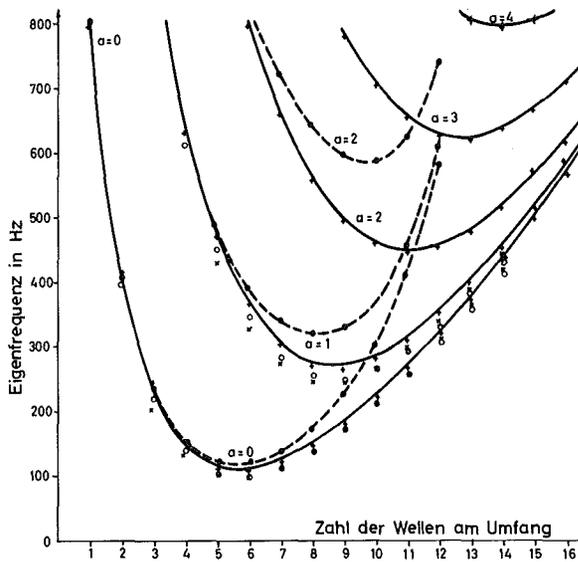


Abb. 4211-6:

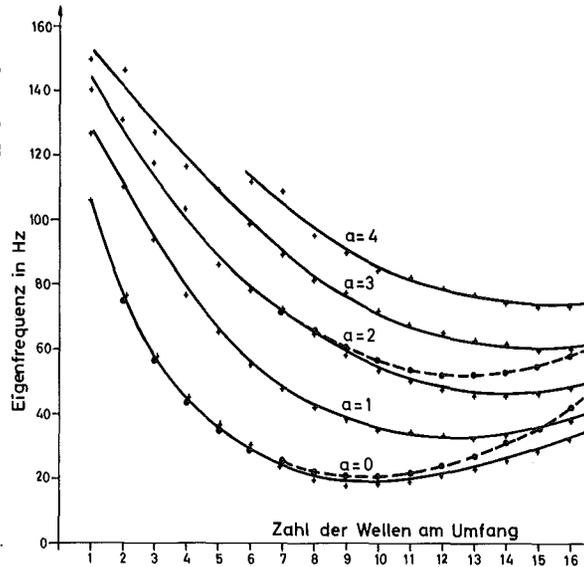


Abb. 4211-7:

Eigenfrequenzen von Zylinderschalen als Funktion der Umfangsordnung und der axialen Ordnung (a)

- STRUDL- DYNAL Rechnung mit feiner Diskretisierung
- - - STRUDL- DYNAL Rechnung mit einer Diskretisierung von 30 bzw. 50 Knoten am Umfang

Abb. 4211- 6: Einseitig eingespannter Zylinder nach Sewall [1] mit experimentellen (x) und analytischen (o) Ergebnissen

Abb. 4211- 7: Innere Zylinderschale des Containments, beidseitig eingespannt

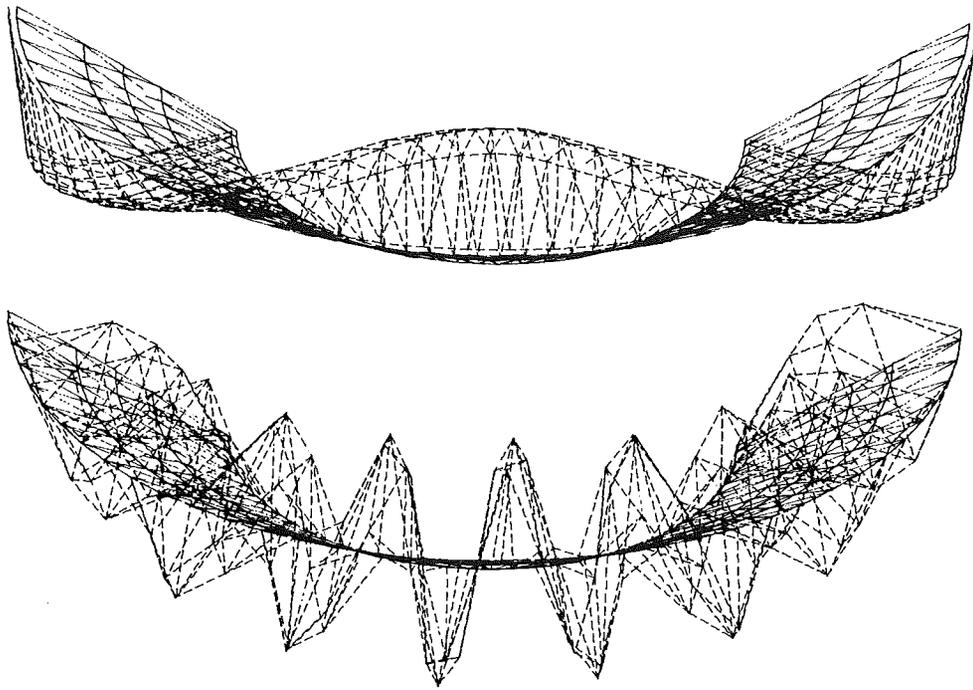


Abb. 4211- 8: Zwei benachbarte Eigenschwingungsformen des kegel-  
förmigen Daches der Kondensationskammer

- (a) Umfangsordnung 2 bei 16.1 Hz
- (b) Umfangsordnung 17 bei 16.9 Hz

## 4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen

(R. Löffel, W. Golly, H. Meichelböck, D. Wolf,  
W.-D. Zeidler, LIT; A. Suppan, RBT)

Die Zielsetzung des Vorhabens und die wichtigsten bereits 1974 begonnenen Arbeiten wurden in den vorhergehenden Halbjahresberichten |1,2| beschrieben. Es wird daher hier nur über die im 1. Halbjahr 1975 durchgeführten Arbeiten berichtet. Im wesentlichen sind dies Arbeiten zur:

- Markierungstechnik
- Injektionstechnik
- Meßtechnik
- Auswertetechnik

### 1. Markierungstechnik

#### 1.1 Markierung der Gasphase

Die Ende 1974 im FR 2 erstellte Argonaktivierungsanlage |3| wurde erstmals in Betrieb genommen. Sie arbeitete bei allen bisherigen Entnahmen gut und kann in ihrer derzeitigen technischen Ausführung bis zu 15 Ci Ar-41 pro Tag liefern. Diese Kapazität reicht für die 1975 und 1976 geplanten internen (GfK) und externen (BATTELLE) Einsätze des Radionuklidverfahrens gut aus. Eine Steigerung der Kapazität auf 100 Ci Ar-41 pro Tag ist möglich durch Erhöhung des Betriebsdruckes im Bestrahlungsraum, Vergrößerung der Gasvolumina und gegebenenfalls Umsetzen des Bestrahlungseinsatzes in Positionen höherer Neutronenflußdichte. Da für den Einsatz des Radionuklidmeßverfahrens bei den HDR-Blowdown-Experimenten (1977 - 1980) Aktivitätsmengen von bis zu 100 Ci Ar-41 pro Tag benötigt werden, sollte die Umrüstung der Anlage bis Ende 1976 abgeschlossen werden.

Die am FR 2 stationierte Argon-Aktivierungsanlage zeichnet sich durch folgende Vorzüge aus:

- hohe und variable Kapazität: 0 bis 15 Ci Ar-41 pro Tag (ab Ende 1976 0 bis 100 Ci)
- die Anlage kann auch zur Aktivierung anderer Gase benutzt werden
- geringer Personal- und Zeitaufwand für Entnahme und innerbetriebliche Handhabung
- niedrige Strahlenbelastung des Betriebspersonals bei der Bedienung der Anlage
- hoher Reinheitsgrad des aktivierten Gases
- ständige und kurzfristige Entnahmebereitschaft
- schnelle Verfügbarkeit
- sofortige Transportbereitschaft.

#### 1.2 Markierung der Flüssigphase

Die zur Markierung der Flüssigphase mit Mn-56 erforderlichen Einrichtungen wurden fertiggestellt und in Betrieb genommen. Mit Hilfe der in Abb. 4214-1 gezeigten Anlage wird das zuvor im FR 2 bestrahlte Manganacetat in Wasser gelöst und in den bereitstehenden Transportbehälter (7) gepumpt. Um eine endgültige Aussage über die Eignung von Manganacetat zur Markierung der Flüssigphase zu erhalten, wurden Testversuche an der Autoklavenanlage des IRB (PNS 4123) begonnen.

Die bisherigen Versuche ergaben, daß Manganacetat auch im Bereich hoher Drücke und Temperaturen ausreichend lange Zeit in der flüssigen Phase stabil bleibt. Eine nach langen Standzeiten erfolgende Manganoxydbildung und damit verbundene Sedimentationsvorgänge sind für das eigentliche Meßergebnis ohne Bedeutung. Da die Autoklavenversuche nur unter quasistationären Bedingungen durchgeführt werden können, müssen diese Untersuchungen später noch im instationären Bereich (z.B. an dem "Gemeinsamen Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren von Zweiphasenmassen-

strommeßverfahren" (PNS 4215/RS 145) des IRB fortgesetzt werden.

## 2. Injektionstechnik

Das im letzten Jahr entwickelte schnelle Injektionsventil wurde für den Einsatz im Bereich hoher Drücke und Temperaturen ausgelegt und weiter verbessert.

Die gesamte Injektionsvorrichtung wurde an der Autoklavenanlage des IRB und an der Containmentanlage des BATTELLE-Instituts in Frankfurt unter Blowdown-Bedingungen ( $p = 1$  bis 160 bar,  $t = 20$  bis  $350$  °C) erfolgreich erprobt. Dabei konnten Injektionsfrequenzen von 0 bis 50 Hz für die Flüssig- und Gasinjektion erzielt werden. Zur Ermittlung der Öffnungszeiten der Ventile sowie zur Überprüfung der Funktionstüchtigkeit der gesamten Injektionseinrichtung wurden die zeitlichen Druckverläufe in den Pufferspeichern der Ventile mittels schneller Druckaufnehmer gemessen und zusammen mit den Steuerimpulsen synchron aufgezeichnet. Abb. 5214-2 zeigt als Beispiel hierzu einen Ausschnitt aus den bei dem Blowdown-Versuch C7 bei BATTELLE gewonnenen Meßergebnissen. Daraus ist zu entnehmen, daß sowohl Gas- als auch Flüssiginjektion bei der hier gewählten Injektionsfrequenz von  $f_i = 33$  Hz einwandfrei erfolgten. Ähnlich gute Ergebnisse wurden auch an der Autoklavenanlage für  $f_i = 0$  bis 50 Hz erzielt.

Da sich das neu entwickelte Injektionsventil sowohl für die Gas- als auch für die Flüssiginjektion hervorragend eignet und damit bereits gute Fortschritte erzielt werden konnten, wird der als Alternative vorgesehene Einsatz einer Einspritzpumpe vorläufig zurückgestellt.

### 3. Meßtechnik

Eine Radiotracer-Geschwindigkeitsmeßeinrichtung, bestehend aus 12 NaJ-Detektoren, 12 Hochspannungseinheiten, 24 Einkanal-Diskriminatoren, 24 Frequenz-Spannungs-Convertern und einer Mehrkanal-Bandmaschine wurde aufgebaut und an der Wasser-Luft-Teststrecke installiert (vgl. Abb. 4214-3 bis 4214-6).

Der Aufbau der Wasser-Luft-Teststrecke und der Geschwindigkeitsmeßeinrichtung konnte im Juni abgeschlossen werden, so daß nunmehr die Voraussetzungen für die Durchführung eines umfangreichen Versuchsprogramms für das 2. Halbjahr geschaffen sind.

Ein erstes an der Wasser-Luft-Teststrecke erzieltetes Ergebnis zur Zweiphasengeschwindigkeitsmessung ist ausschnittsweise in Abb. 4214-8 wiedergegeben. Wie auch in dem Schema-bild Abb. 4214-7 angedeutet, traten neben den Hauptpeaks auch Streupeaks auf, die jedoch eliminiert werden können. Die dick ausgezogenen Kurven in Abb. 4214-9 stellen den Verlauf der Hauptpeaks nach Elimination der Streupeaks dar. Ein Vergleich der gemessenen Streupeaks und Hauptpeaks zeigt jedoch, daß die Meßelektronik noch nicht stabil genug ist. Die auftretenden Schwankungen und Störeffekte sind auf Peakverschiebungen und Pile-up-Effekte zurückzuführen. Dies bedeutet, daß die Meßelektronik vom NaJ-Detektor bis zum Einkanal-Diskriminator noch verbessert werden muß.

### 4. Auswertetechnik

Als erstes Ziel der Auswertung wurde die Ermittlung der Geschwindigkeit der beiden Phasen in Abhängigkeit von der Zeit auf der Basis der Flächenschwerpunkte der Impulsraten-Peaks festgelegt. Bezeichnen  $t_{s_{1n}}$  und  $t_{s_{2n}}$  die zeitliche Lage der Flächenschwerpunkte der Peaks eines Tracers in

zwei Meßebenen und ist  $a$  der Abstand zwischen den beiden Meßebenen, dann beträgt die mittlere Momentangeschwindigkeit zur Zeit der  $n$ -ten Injektion jeder Phase

$$v_n = \frac{a}{t_{s_{2n}} - t_{s_{1n}}}$$

Neben der behelfsmäßigen graphischen Auswertung werden zwei Auswerteverfahren verfolgt:

- Auswertung mit eigenen Programmen unter Zuhilfenahme von SEDAP
- Auswertung mittels Korrelationsanalyse

#### 4.1 Eigene Programme mit SEDAP

Das im IRE entwickelte und auf der IBM/370 benutzbare Programm-System SEDAP ist als Hilfsmittel zur Auswertung gut geeignet:

- Die Menge der bearbeitbaren Daten reicht für die Behandlung der Daten eines 80 Sekunden langen Versuchs aus, wenn 14 Meßstellen mit einer Abtastfrequenz von 1 kHz je Meßstelle aufgezeichnet werden.
- Der Befehlsvorrat von SEDAP enthält eine Reihe von Routinen, wie insbesondere Ein- und Ausgaben, Datenverwaltung und Sortierung sowie die Erweiterungsmöglichkeit mit einem eigenen Fortran-Programm, die mit Vorteil für die Auswertung eingesetzt werden können.

In dem Fortran-Programm kann der Auswerte-Algorithmus zur Bestimmung der Geschwindigkeit der beiden Phasen programmiert werden.

- Die in analoger Form vorliegenden Versuchsdaten können an der im IRE vorhandenen ERA-Anlage SEDAP-gerecht "digitalisiert" werden.

#### 4.2 Korrelationsanalyse

Parallel zu der Auswertung mit eigenen Programmen mit Hilfe von SEDAP wird die Anwendung von Korrelationsanalyseverfahren verfolgt, da

- 1) sie kurz- und mittelfristig eine schnellere Auswertung verspricht,
- 2) vorhandene Programme benutzt und falls notwendig, modifiziert werden können (z.B. GfK/IRE und IKT-TU-Berlin),
- 3) vorhandene Einrichtungen (Rechner, Zeitserienanalytoren u.a.) bei GfK und externen Partnern (TU Berlin, AB ATOMENERGI STUDSVIK) benutzt werden können und
- 4) Korrelationsanalyse sich vor allem auch zur Auswertung stochastisch verteilter Tracersignale gut eignet.

Erste Ergebnisse einer Auswertung mittels Korrelationsanalyse werden im nächsten Halbjahresbericht vorgestellt.

#### Literatur

- | 1 | KFK 2050  
1. Halbjahresbericht 1/1974 des Projektes Nukleare Sicherheit
- | 2 | KFK 2130  
2. Halbjahresbericht 2/1974 des Projektes Nukleare Sicherheit, Mai 1975
- | 3 | R. Löffel, B. Räßle  
Anlage zur Neutronenaktivierung von Gasen  
(wird demnächst veröffentlicht).

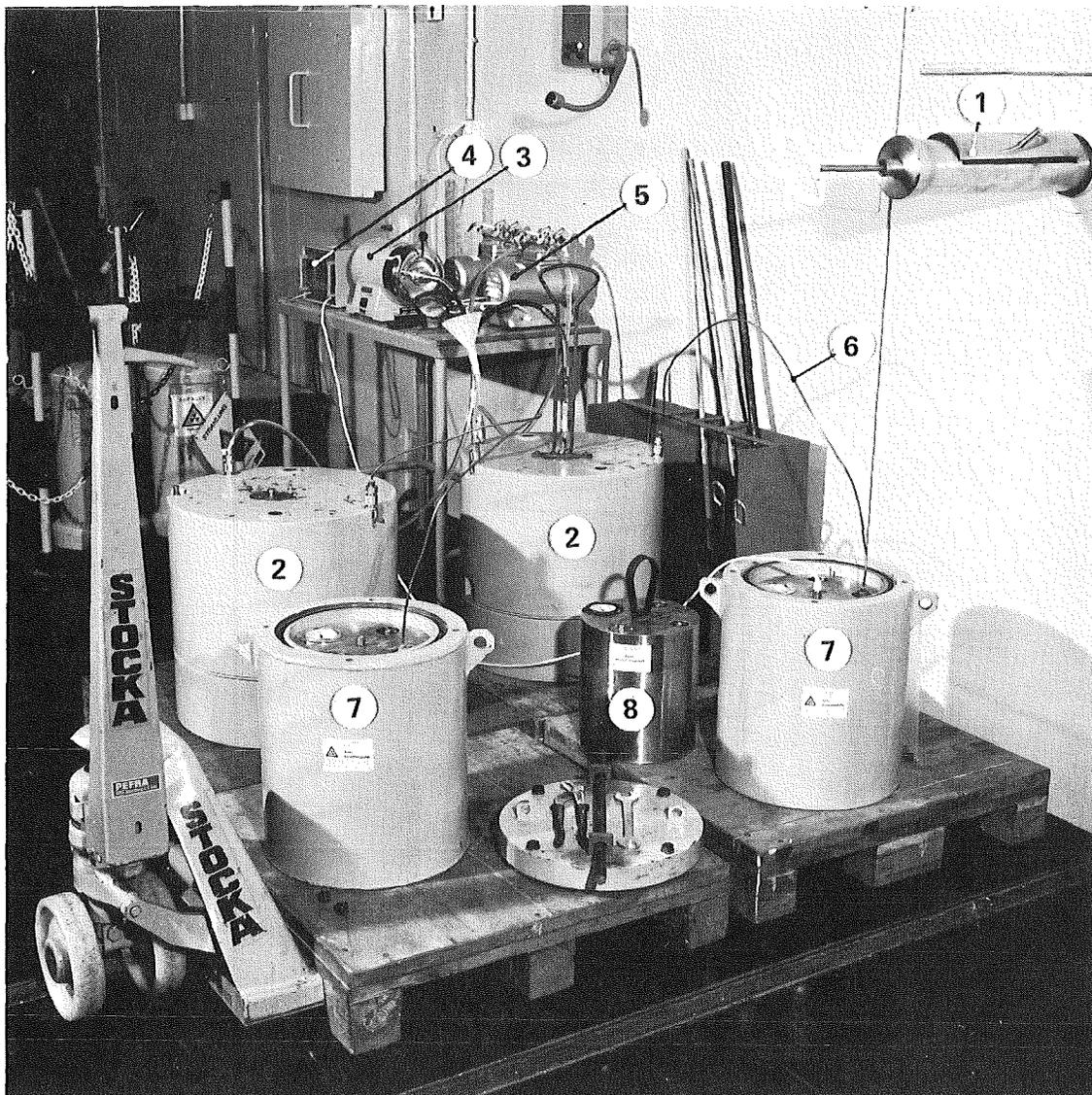


Abb. 4214-1: ANLAGE ZUR AUFBEREITUNG DES FLÜSSIGTRACERS

- |   |                          |   |  |
|---|--------------------------|---|--|
| 1 | Schleuse                 | 5 | Förderpumpe  |
| 2 | Mischbehälter            | 6 | Kapillarrohrleitung                                      |
| 3 | Antriebsmotor für Rührer | 7 | Transportbehälter mit<br>eingesetztem Aktivitätsspeicher |
| 4 | Steuergerät              | 8 | Aktivitätsspeicher                                       |

Gas	Steuerimpuls 5/30 ms	(1)
	Druck im Pufferspeicher	(2)
Flüssig	Steuerimpuls 6/30ms	(3)
	Druck im Pufferspeicher	(4)
	Triggersignal v. Battelle	(5)

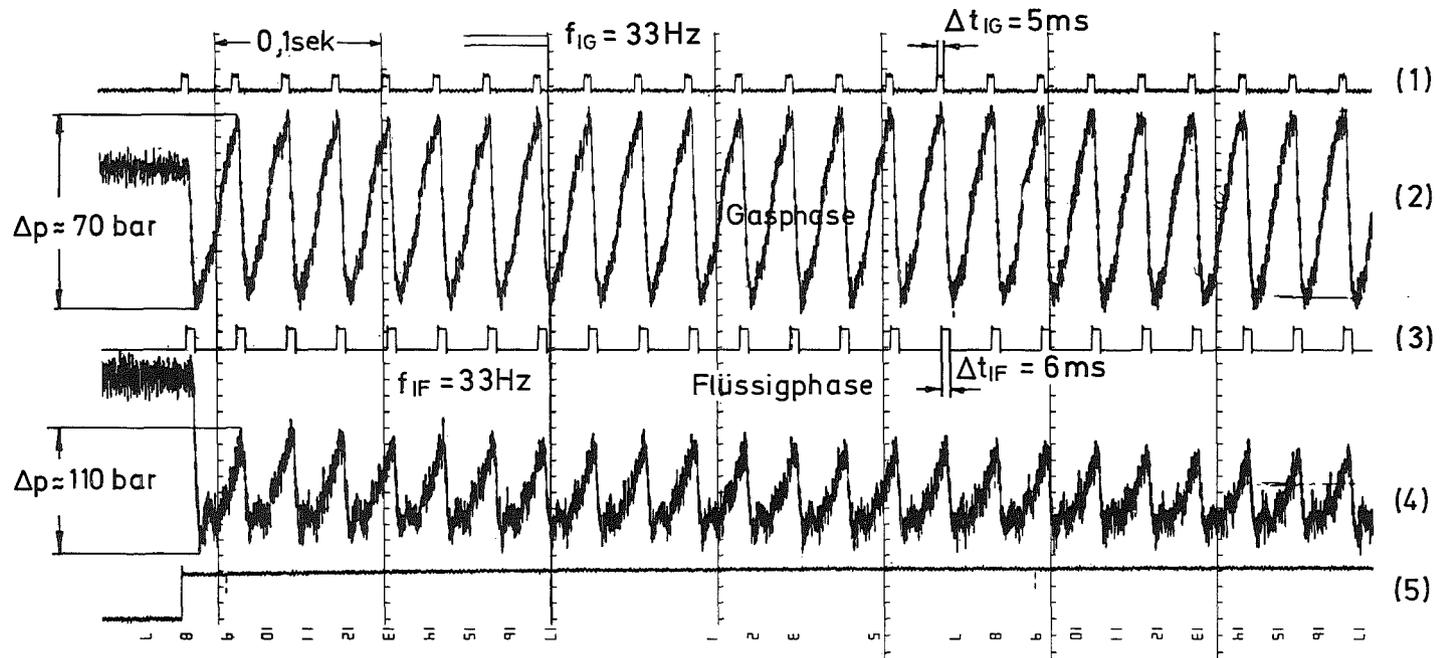


Abb.4214-2 Blowdown - Versuch C7 bei BATTELLE

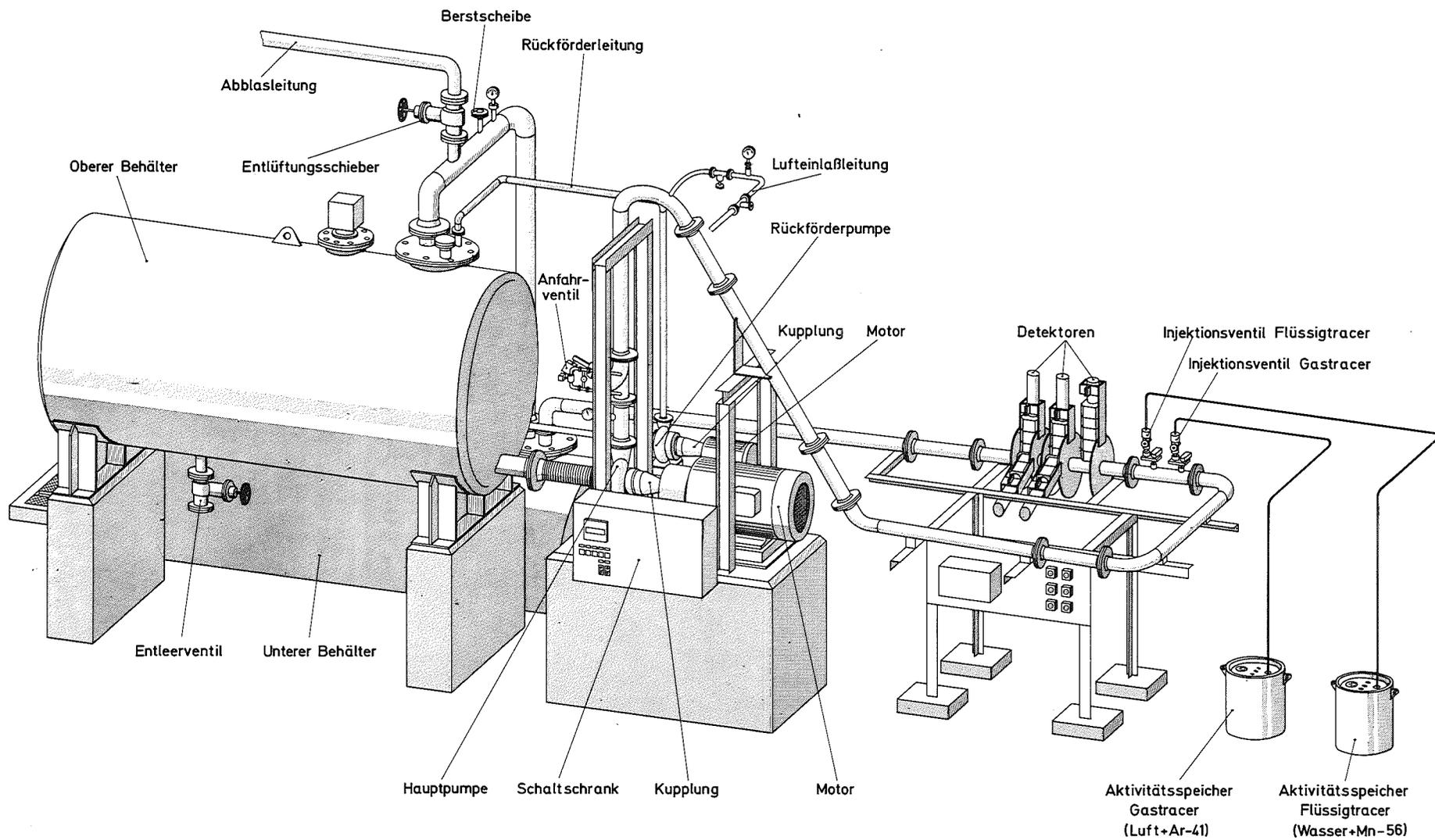
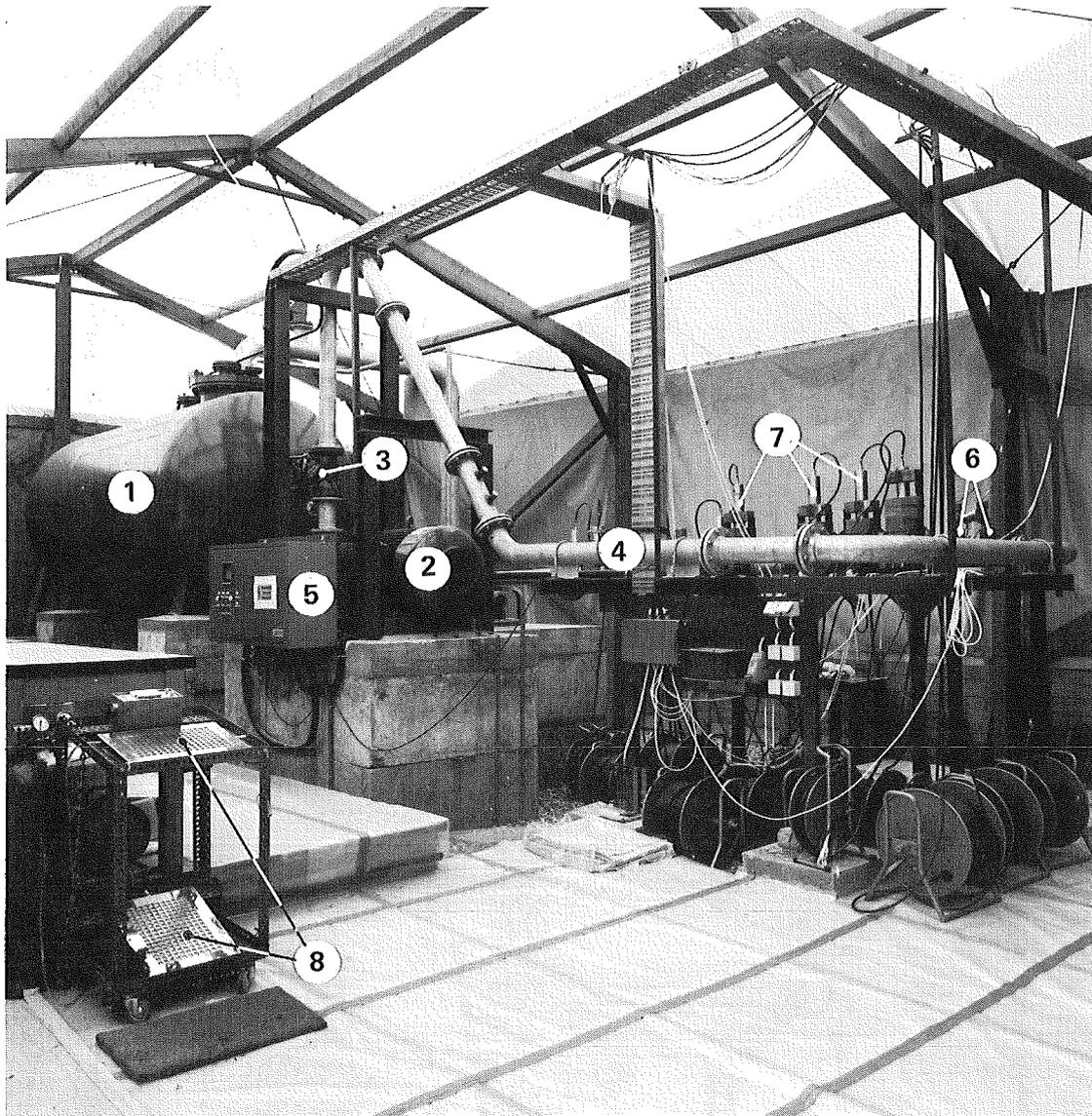
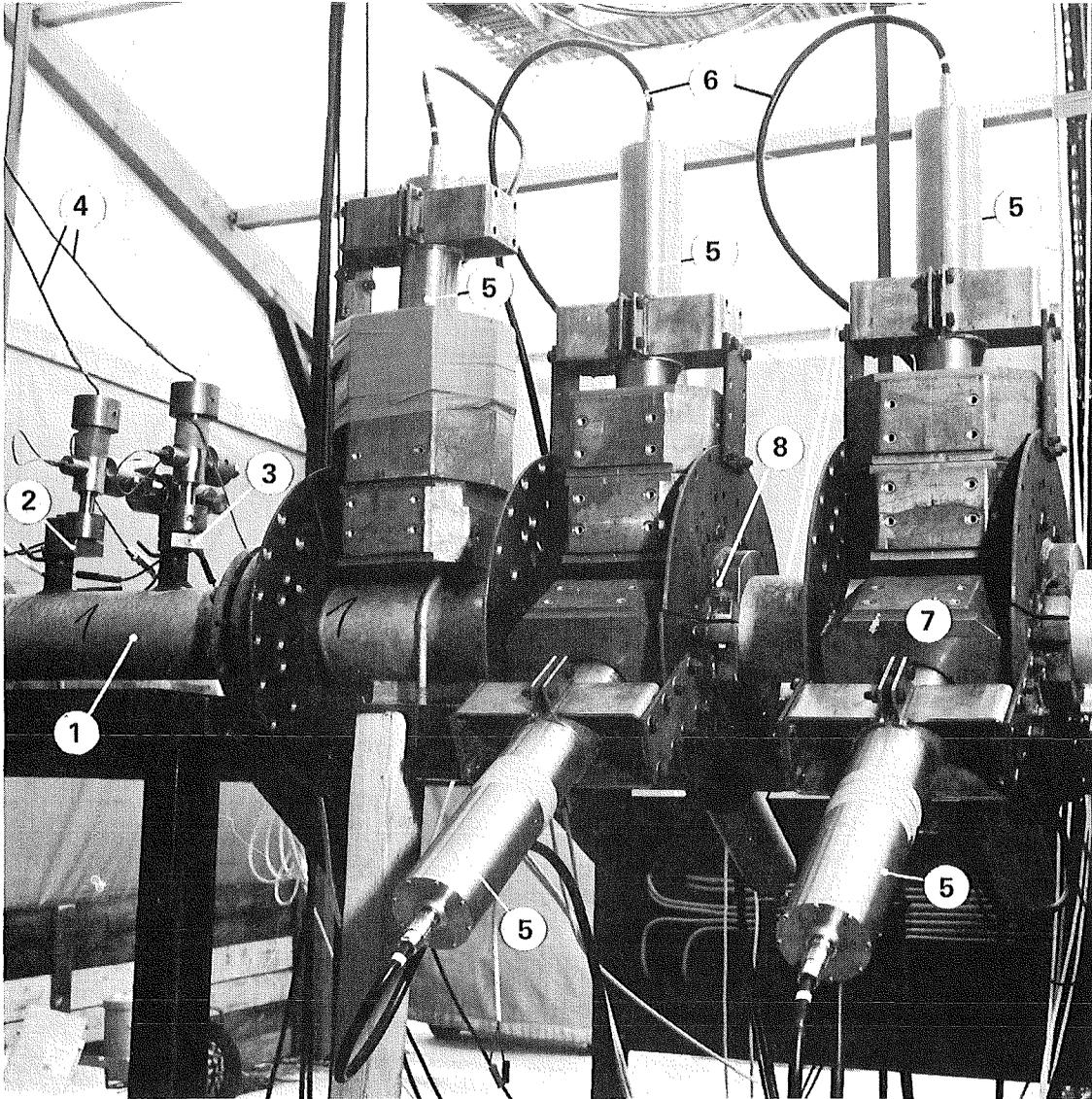


Abb. 4214-3: WASSER-LUFT-TESTSTRECKE



**Abb. 4214-4: WASSER – LUFT – TESTSTRECKE**

- |          |                             |          |                          |
|----------|-----------------------------|----------|--------------------------|
| <b>1</b> | <b>oberer Behälter</b>      | <b>5</b> | <b>Steuerschrank</b>     |
| <b>2</b> | <b>Hauptpumpe mit Motor</b> | <b>6</b> | <b>Injektionsventile</b> |
| <b>3</b> | <b>Anfahrventil</b>         | <b>7</b> | <b>Detektoren</b>        |
| <b>4</b> | <b>Rohrleitung</b>          | <b>8</b> | <b>Monitor</b>           |



**Abb. 4214-5: WASSER – LUFT – TESTSTRECKE**  
(Teilansicht mit Injektionsventilen und Detektoren)

- |          |   |          |                          |
|----------|---|----------|--------------------------|
| <b>1</b> | <b>Rohrleitung</b>                        | <b>5</b> | <b>Detektor</b>          |
| <b>2</b> | <b>Injektionsventil für Gastracer</b>     | <b>6</b> | <b>Detektorkabel</b>     |
| <b>3</b> | <b>Injektionsventil für Flüssigtracer</b> | <b>7</b> | <b>Bleiabschirmung</b>   |
| <b>4</b> | <b>Kapillarrohrleitung</b>                | <b>8</b> | <b>Detektorhalterung</b> |

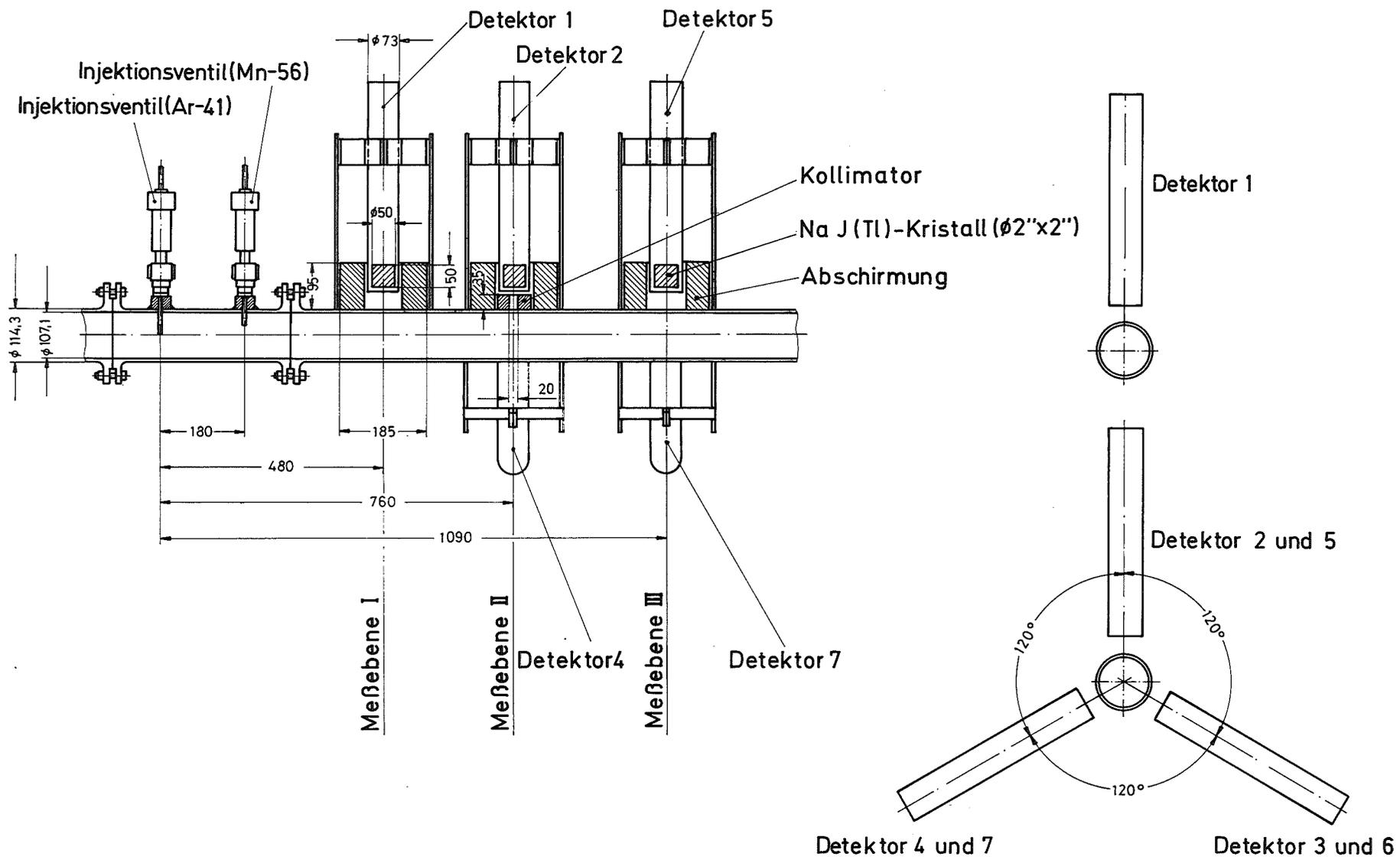


Abb. 4214-6 : Anordnung der Injektionsventile und der Detektoren

PRINZIP DES RADIONUKLIDMESSVERFAHENS ZUR ZWEIFHASENGESCHWINDIGKEITSMESSUNG

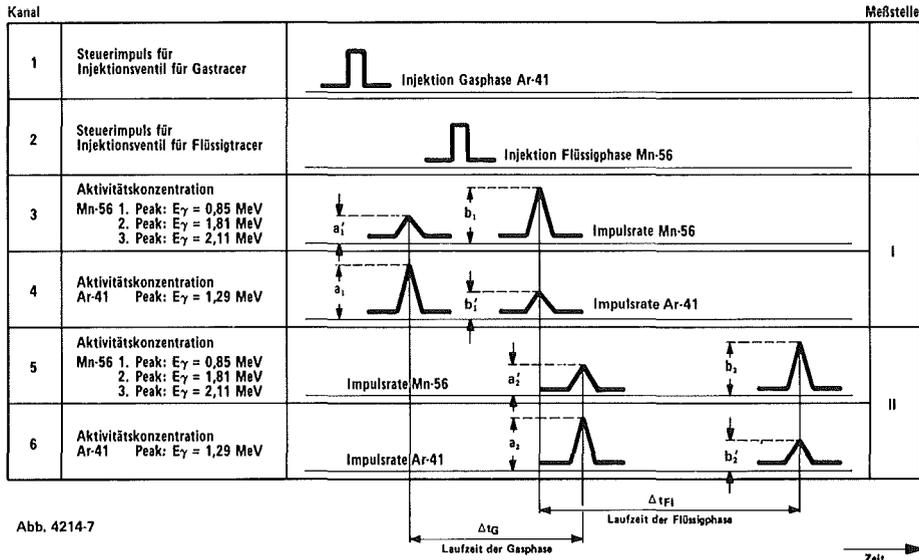


Abb. 4214-7

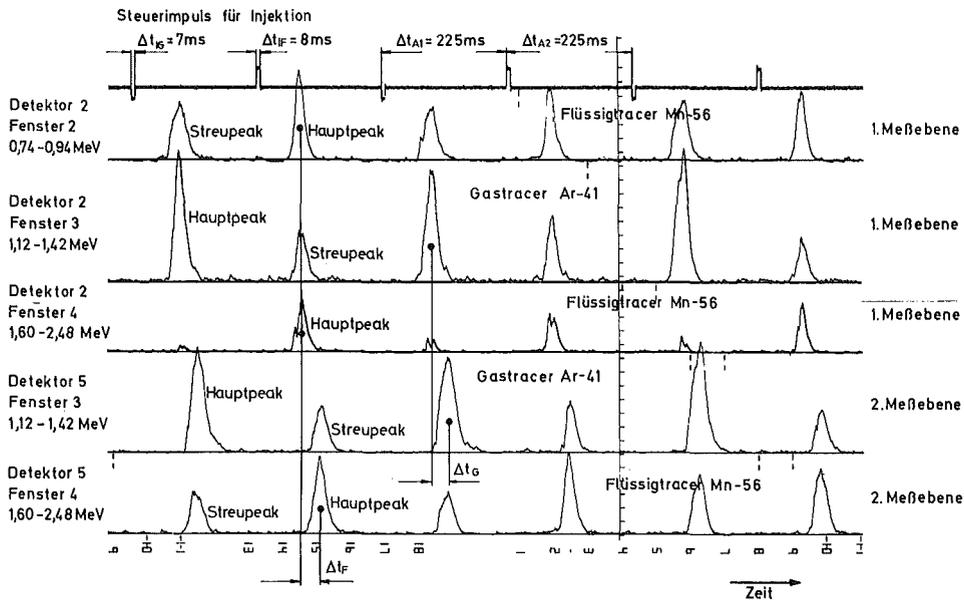


Abb. 4214-8: Versuch 7 an der Wasser-Luft-Teststrecke  
 Meßergebnisse mit Hauptpeaks und Streupeaks

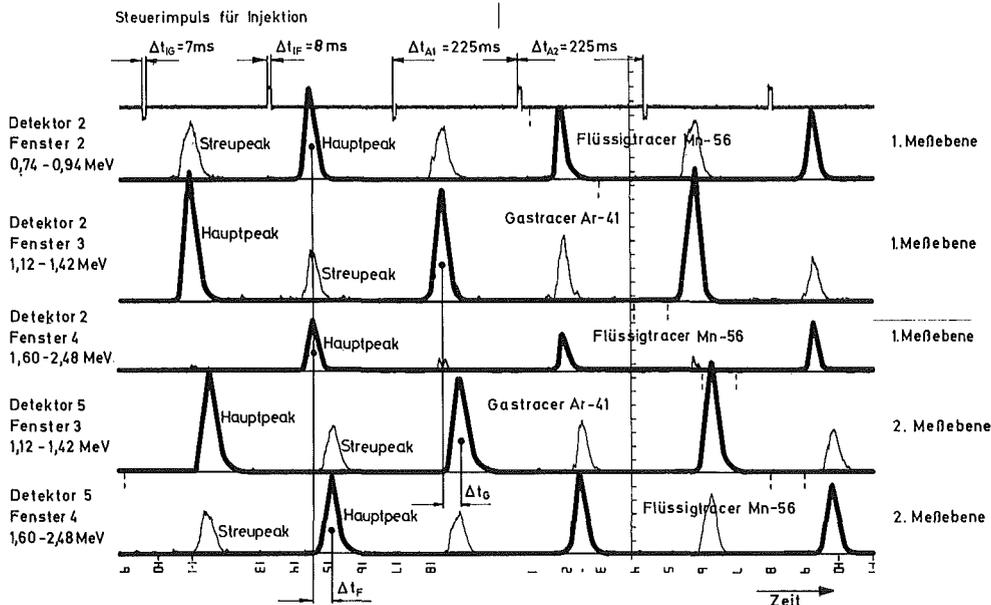


Abb. 4214-9 Versuch 7 an der Wasser-Luft-Teststrecke  
 Aufgearbeitete Meßergebnisse (Betonung der Hauptpeaks)

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

Um in Zweiphasenströmungen verschiedene Massenstrommeßverfahren testen und kalibrieren zu können, wird im IRB ein Versuchsstand erstellt, der für stationären Betrieb bei reaktortypischen Bedingungen ausgelegt ist. Die einzelnen Komponenten des Versuchskreislaufs haben folgenden Entwicklungsstand erreicht:

### 1. Rohrleitungen

Der 8 m lange Teststreckenabschnitt des Versuchsstandes, in dem die diversen Massenstrommeßgeräte und das Phasenidentifikationsgerät eingesetzt werden, wird zunächst für die 3 Nennweiten 20, 50 und 80 ausgebaut. Für jede Nennweite ist eine Reihe von 6 geflanschten und besonders zentrierten Rohrabschnitten mit Längen von 0,5; 1; und 2 m vorgesehen, um bezüglich des Einbauortes der genannten Geräte flexibel zu sein. Durch entsprechende Übergangsstücke können Rohrabschnitte verschiedener Nennweiten kombiniert werden.

Unter Mitwirkung eines Rohrleitungskonstruktors einer Fremdfirma wurde das gesamte Rohrleitungsnetz des Versuchsstandes fertigungsreif konstruiert und ausgeschrieben. 5 eingegangene Angebote wurden geprüft. Die Rohrleitung wurde zur Bestellung vorbereitet.

### 2. Mischkammer

In der Mischkammer werden die von den Kesselanlagen kommenden Siedewasser- und Sattdampfströme vereint. Die Mischkammer wurde so variabel gestaltet, daß die Zweiphasenströmung bei Eintritt in die Teststrecke bereits eine definierte Struktur wie Blasen- oder Ringströmung aufweisen kann. Auf diese Weise kann die hydrodynamische Anlaufstrecke verkürzt werden und es ist gewährleistet, daß im hinteren Bereich der Teststrecke auch bei großen Nennweiten noch die ausgebildete Strömung vorhanden ist.

Abb. 4215-1 zeigt die Mischkammer mit einem Einsatz, der aus einem gelochten konischen Rohr besteht. Strömt Wasser durch das Innere des Rohres und wird Dampf durch die Löcher in das Wasser eindispersiert, so wird bei kleinen Dampfgehalten eine Blasenströmung erzeugt.

Werden die Anschlüsse vertauscht, d.h. wird die Mischkammer um  $180^\circ$  um ihre Achse gedreht, so wird sich bei hohen Dampfgehalten bereits in der Mischkammer eine Strömung ausbilden, die stark ringförmigen Charakter hat. Durch einen Einsatz, der wie ein Injektor arbeitet, kann eine Strömung erzeugt werden, die noch stärker einer Ringströmung gleicht. Die Mischkammer ist in Fertigung.

### 3. Instrumentierung

Das Meß- und Regelschema von Abb. 4215-2 zeigt in seiner Mitte das Konzept der Neuinstrumentierung des Versuchsstandes und rechts und links davon die für das Verständnis der Gesamtanlage wesentlichen Teile der beiden vorhandenen Kesselanlagen.

Eine Kesselanlage liefert jeweils siedendes Wasser (leicht unterkühlt) und die andere leicht überhitzten Satttdampf. Beide Ströme werden in der Mischkammer zum gewünschten Zweiphasen-Gemisch zusammengeführt.

Die Aufgabe der Versuchsstandinstrumentierung ist es, die folgenden wichtigsten Größen auf vorzugebende Sollwerte zu steuern.

- Massenstrom (Massenstromdichte)
- Systemdruck (Temperatur)
- Dampfmassenanteil  $x$

Der Systemdruck in der Teststrecke wird durch das vordruckgeregelter Zweiphasen-Drosselventil VR2 eingeregelt. Es ist vorgesehen, den Sollwert im Bereich von

10 - 150 ata

variieren zu können.

Beide Kesselanlagen haben eine interne Speisewassermengenregelung, eine Austrittstemperaturregelung und externe Druckregelung. Für die Massenströmeinstellung des Versuchsstandes werden die externen Druckregelungen

der Kessel benutzt. Mit den beiden vordruckgeregelten Drosselventilen VR 1 und VR 3 werden die Kesseldrucke so lange variiert, bis bei vorgegebenem Systemdruck der gewünschte Massenstrom und das gewünschte Massenstromverhältnis zwischen Dampf und Wasser erreicht ist.

Das Mengenverhältnis der beiden Massenströme, die in der Mischkammer vereinigt werden, ist in erster Linie von der Druckdifferenz am Mischkammer-eintritt abhängig. Es ist deshalb zweckmäßig, diese Druckdifferenz als Leitgröße für eine Kesselregelung heranzuziehen. Wie das Regelschema zeigt, kann das Drosselventil VR 3 von der Kesselenddruckregelung auf Mischkammerdifferenzdruckregelung umgeschaltet werden. Das soll gemacht werden, wenn nach Hochfahren beider Kessel ein Gleichgewichtszustand erreicht ist, der in der Nähe des gewünschten Betriebspunktes liegt. Die weitere Feinregelung des Mengenverhältnisses ( $x$ ) erfolgt dann mittels dieser  $\Delta P$ -Regelung, während das bezogene Druckniveau von der Druck-Regelung des Ventils VR 1 gehalten wird.

Zur Massenstrombestimmung wurden zwischen jedem Kessel und der Mischkammer und für jede Betriebsweise der Kessel (Wasser, Dampf) je eine Meßstrecke mit Meßblende vorgesehen. Jede der 4 Meßstrecken ist mit elektrischen Meßsignalgebern bzw. Meßumformern für Druck und Temperatur des Mediums vor der Blende und für die Druckdifferenz an der Meßblende ausgestattet. Wegen der großen Variation des Massenstrombereiches und des Systemdruckes ergeben sich für die Meßblenden so große Differenzdruckbereiche, daß 3 von ihnen mit je 2 Meßumformern mit unterschiedlichem Meßbereich bestückt wurden. Die für die Massenstrombestimmung notwendigen Meßwerte: Temperatur, Druck und Differenzdruck werden mit einem 12-Punkte-Drucker hoher Genauigkeit aufgezeichnet. Der laufende Ausdruck gestattet zusätzlich die Überwachung der Stabilität der Regelkreise.

Eine Genauigkeitsberechnung der geschilderten versuchsstandseigenen Massenstrom-Referenzmessung hat ergeben, daß (unter Berücksichtigung der realistischen Fehler der Meßparameter) der gesamte Zweiphasen-Massenstrom mit einem statistischen Fehler von ca.  $\pm 1,5\%$  angegeben werden kann.

Jeder Rohrabschnitt der Teststrecke wird mit einem Thermoelement mit entsprechender Registrierung und einem Vorort-Rohrfedermanometer ausgestattet.

Zur genaueren Bestimmung des Druckabfalles längs der Teststrecke sind Quecksilber-Manometer vorgesehen.

Beide Kesselanlagen haben ein internes Sicherheitssystem, das bei Annäherung an bedrohliche Betriebszustände für die Anlage (Druck, Temperatur) Warn- bzw. Abschaltsignale auslöst.

Bei der Erprobung des Massenstrommeßverfahrens mittels Radionuklidtechnik (LIT) ist zur Vermeidung einer Kreislaufkontamination eine Sicherheits-schaltung notwendig:

Wie aus dem Regelschema ersichtlich ist, wird während der Injektionszeit der Radio-Tracer der gesamte Massenstrom mit einem Wechselventil in einen Behälter mit kaltem Wasser geleitet und dort kondensiert. Dieser Betrieb ist etwa 3 Min. lang möglich. Um die Injektionszeit mit dem "Notkondensatorbetrieb" zu synchronisieren, ist ein elektrisches Freigabe- und Verriegelungssystem mit entsprechenden Warnsignalen vorgesehen.

Die eine bereits aus dem Jahre 1963 stammende Dampfkesselanlage (Bensonkessel) wurde inzwischen einer Funktionsprüfung unterzogen. Es hat sich dabei gezeigt, daß die regel- und meßtechnische Ausstattung einer Überholung und z.T. einer Bereichserweiterung bedarf. Ein entsprechender Auftrag wurde bereits vergeben.

#### 4. Bestimmung der Strömungsform

Die Kenntnis der Strömungsform ist von großem Interesse, weil die Genauigkeit einiger Meßverfahren u.U. vom Strömungszustand abhängt.

Nach einer Studie der verschiedenen Methoden wurde mit der Entwicklung einer Leitfähigkeitssonde begonnen, die auf dem Prinzip der Änderung der elektrischen Leitfähigkeit bei Phasenwechsel beruht. Solche Sonden wurden bisher nur in einem sehr viel niedrigeren Temperaturbereich und meist bei viel kleineren Geschwindigkeiten eingesetzt. Die Sonde besteht aus einem dünnen Draht umgeben von einem Metallröhrchen mit einem Außendurchmesser von weniger als 0,5 mm. Zwischen Draht und dem elektrisch isolierten Rohr wird eine Spannungsdifferenz angelegt, das strömende Medium zwischen Sondenspitze und Rohr bildet den elektrischen Widerstand. Bei Vorhandensein von Dampf oder Gas an der Sondenspitze ist der Widerstand sehr groß, bei Flüssigkeit dagegen sehr viel geringer. Der zeitliche Verlauf des

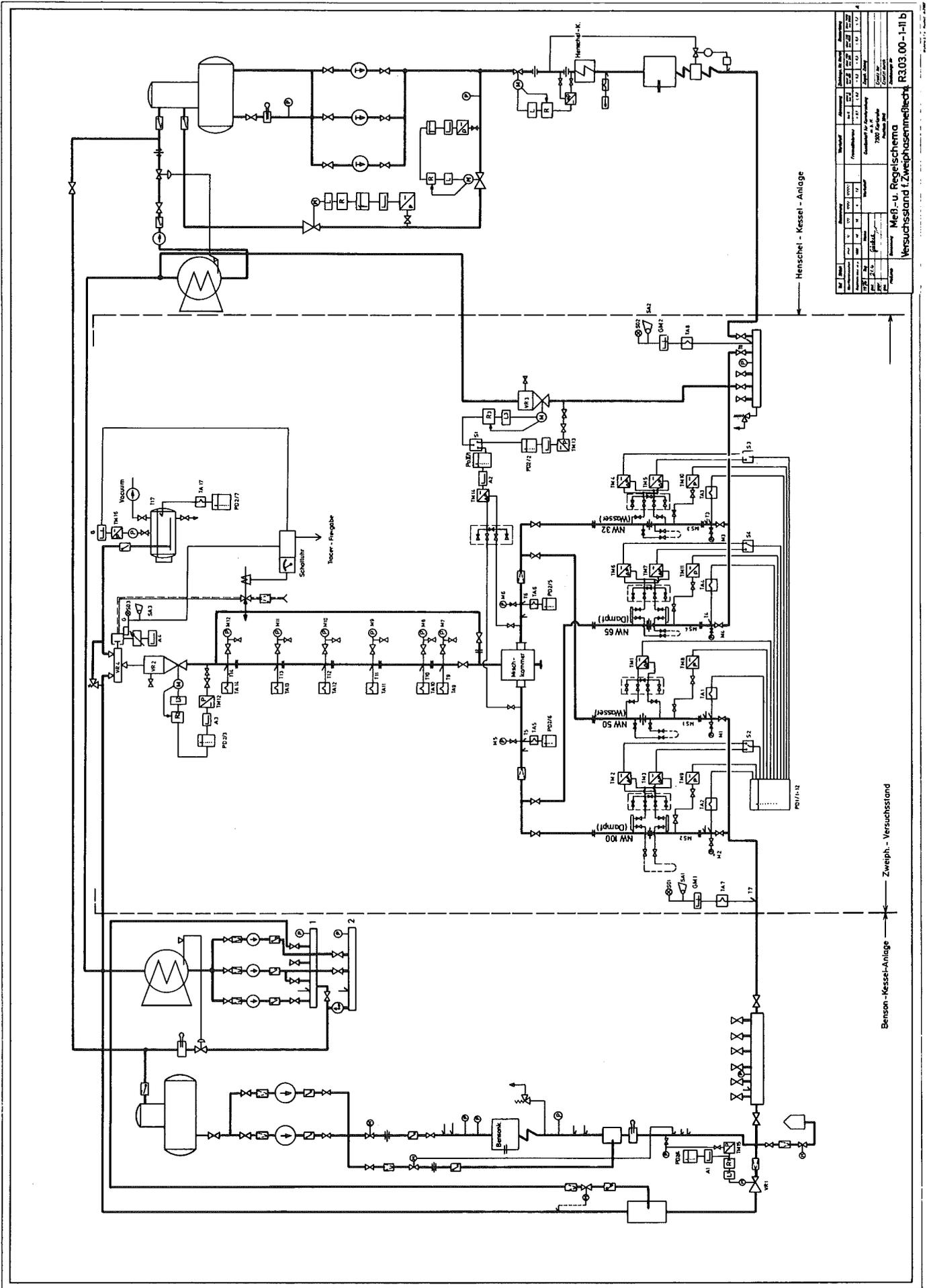
Ausgangssignals ist charakteristisch für die Strömungsform. Bei Blasenströmung mit kleinem Dampfvolumenteil ist vorwiegend Flüssigkeit an der Sondenspitze vorhanden, die Blasen verursachen einzelne peaks in Abb. 4215-3 nach unten. Bei Kolbenströmung ergeben sich ausgeprägte Bereiche, in denen Dampf an der Sondenspitze vorhanden ist, gefolgt von kurzen Einzelimpulsen, die von kleinen Blasen herrühren. Die Ringströmung ist dadurch gekennzeichnet, daß in Rohrmitte vorwiegend Dampf strömt. Einzelne peaks werden durch das Auftreffen von Tröpfchen oder Flüssigkeitsrippen verursacht.

Diese Klassifizierung ist noch nicht ganz eindeutig. Eine Verbesserung läßt sich evtl. durch die Bildung der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Durchlaufzeiten erreichen. Zu diesem Zweck wird das Ausgangssignal der Sonde in eine Folge von Rechtecksignalen verarbeitet und dann die Verteilung der Durchlaufzeiten der verschiedenen großen Blasen aufgezeichnet (s. Abb. 4215-3). Von den Durchlaufzeiten kann auf die Größe der Blasen geschlossen werden. Blasenströmung zeichnet sich durch eine große Wahrscheinlichkeit des Auftretens kleiner Blasen aus, bei der Kolbenströmung ist die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion bimodal; bei Ringströmung werden die Zeiten in denen ununterbrochen Dampf an der Spitze vorhanden ist sehr groß, das Maximum der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion liegt bei sehr großen Durchmessern.

Ein Prototyp einer Sonde für Wasser-Luft-Strömung wurde fertiggestellt. Ein entsprechender Versuchsstand für hohe Geschwindigkeiten ist in Fertigung.

Parallel zu den Wasser-Luft-Versuchen sollen diverse Werkstoffe, speziell die Isolierung unter Betriebsbedingungen, d.h. 350 °C, in einem Autoklaven getestet werden.

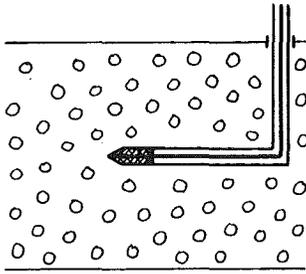




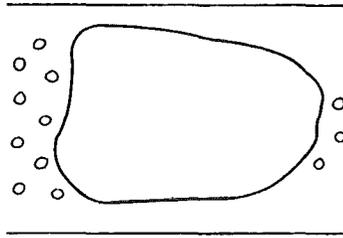
Mess- u. Regelschema		Versuchsstand f. Zweiphasenmeßboch		R303.00-1-11 b	
Art	Bezeichnung	Art	Bezeichnung	Art	Bezeichnung
1	100	1	100	1	100
2	200	2	200	2	200
3	300	3	300	3	300
4	400	4	400	4	400
5	500	5	500	5	500
6	600	6	600	6	600
7	700	7	700	7	700
8	800	8	800	8	800
9	900	9	900	9	900
10	1000	10	1000	10	1000

Abb. 4215-2

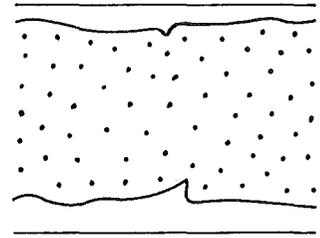
Blasenströmung



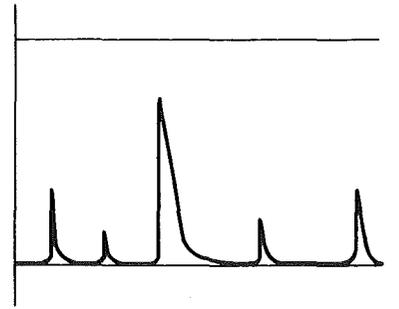
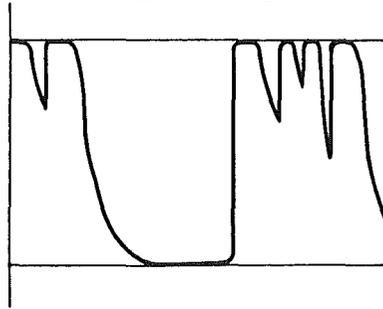
Kolbenströmung



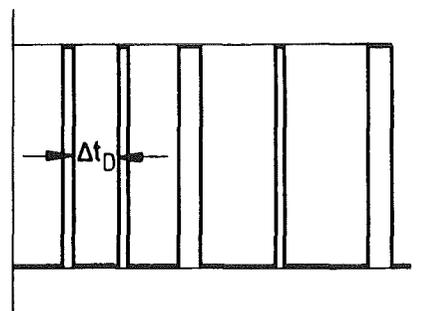
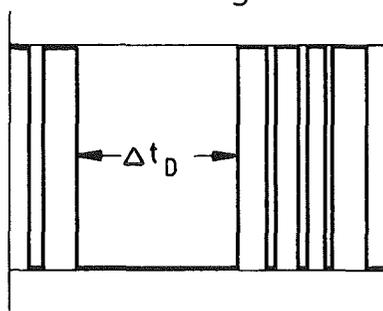
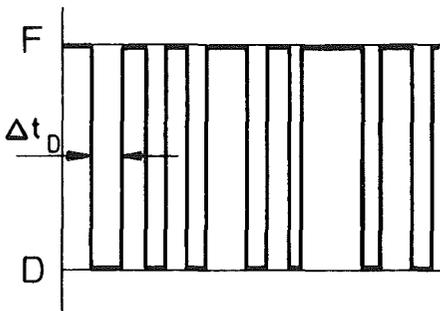
Ringströmung



Ausgangssignal

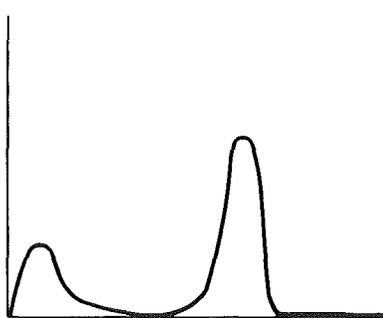


Rechtecksignal



Wahrscheinlichkeits-Dichte-Funktion ( PDF )

der Durchlaufzeit  $\Delta t_D$



$\Delta t_D$

Abb.4215-3 Bestimmung der Strömungsform

4220 Untersuchung der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverlustunfällen

4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten (R. Krieg, E.G. Schlechtendahl)

Neben der Lieferung kleinerer Beiträge, die bei der Mitarbeit im Arbeitskreis HDR-Blowdown-Versuche anfielen, konzentrierten sich die Aktivitäten auf die Erstellung eines Versuchsprogrammes und die festigkeitsmäßige Auslegung des Kernmantels.

Soweit es die dynamische Beanspruchung der Kerneinbauten betrifft, sollen die HDR-Blowdown-Versuche in erster Linie einen Rohrbruch im kalten Strang der Kühlmittelleitung eines Druckwasser-Reaktors simulieren. Mit Rücksicht auf diese Aufgabenstellung war das Versuchsprogramm auszulegen. Zuerst wurde ein sogenannter Referenzversuch definiert, der - unter Berücksichtigung der HDR-Randbedingungen - von Daten ausging, die dem Normalzustand eines typischen Druckwasserreaktors ähnlich waren. Darauf aufbauend wurden die Daten für die anderen Versuche so geändert, daß - soweit das möglich und absehbar ist - entweder nur der Druckabfall im unterkühlten Bereich, oder nur der transiente Massenstrom im Blowdownstutzen, oder nur die Größe der Ringraumbereiche, in denen Sieden zu erwarten ist, variiert wurde. Die Versuchsreihenfolge wurde so gewählt, daß eine schrittweise Zunahme der Kernmantelbeanspruchung zu erwarten ist. Es wurde festgestellt, daß der Bruchstutzendurchmesser des HDR nur etwa halb so groß ist wie der entsprechende Stutzendurchmesser eines Druckwasserreaktors vergleichbarer Größe. Aus diesem Grunde ist zu erwarten, daß die Beanspruchung der Struktur relativ mild sein wird.

Für die Berechnung der Kernmantelwandstärke wurde der Kernmantel als einseitig eingespannte, träge, biegesteife Schale behandelt. Die transiente Belastung wurde den Druckwellenausbreitungsrechnungen für den Ringraum entnommen, die vom LRA und IRS durchgeführt wurden. Die Rückwirkung der Kernmantelnachgiebigkeit auf die Höhe der Kernmantelbelastung durch die Druckpulse im Fluid, sowie der Einfluß der Trägheit des mit dem Kernmantel

bewegten Fluids konnte bei diesem Vorgehen natürlich nicht berücksichtigt werden. Die Untersuchung dieser Problematik ist vielmehr eines der wesentlichen Ziele der Versuche. Sehr grobe Abschätzungen, die mit ganz anderen Modellen vorgenommen wurden, lassen vermuten, daß das zuvor beschriebene Verfahren für die Kernmantelauslegung wahrscheinlich sehr konservativ ist. Überschätzungen um den Faktor 3 bis 5 oder mehr sind nicht unwahrscheinlich.

Diesen Unzulänglichkeiten bei der Auslegung steht die Forderung gegenüber nicht nur, wie normalerweise verlangt, sicherzustellen, daß der elastische Beanspruchungsbereich nicht verlassen wird, sondern zu erreichen, daß auf der anderen Seite auch das elastische Verformungspotential möglichst voll ausgenutzt wird, d.h., daß bei den Kernmantelverformungen möglichst große Meßausschläge auftreten.

Die numerische Durchführung der Schalenberechnung erfolgte mit dem dynamischen finite element Programm STRUDL/DYNAL. Unter den zuvor beschriebenen Annahmen ergab sich, daß bei einer Kernmantelwandstärke von nur 30 mm auch an der am höchsten beanspruchten Stelle die Fließgrenze nicht überschritten wird. Berücksichtigt man die oben diskutierte Konservativität des Rechenmodells, so wäre eine erhebliche Reduktion dieser Wandstärke angebracht. Dies ist jedoch aus konstruktiven Gründen nicht ohne weiteres möglich. Als günstig ist die Tatsache zu vermerken, daß das Eigenschwingverhalten (d.h. die ersten Eigenschwingungsformen) des HDR-Kernmantels demjenigen des ebenfalls mit STRUDL/DYNAL berechneten BIBLIS-A-Kernmantels sehr ähnlich ist.

4222      Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche  
(K.D. Appelt, F. Eberle, J. Kadlec, G. Lang, IRE)

Ziel des Vorhabens ist die experimentelle Bestimmung der dynamischen Beanspruchung der RDB-Einbauten während eines Kühlmittelverlustunfalles bei DWR- und SWR-Reaktoren. Belastungen der Einbauten als Folge dreidimensionaler Druck- und Strömungsprofilverteilung sollen meßtechnisch erfaßt werden,

um eine Verifizierung bzw. Weiterentwicklung bestehender Rechenprogramme für fluid- und strukturdynamische Probleme zu ermöglichen.

Ausgehend von den theoretischen Überlegungen und den realen technischen, finanziellen und zeitlichen Möglichkeiten wurde im Berichtszeitraum für die Messungen am HDR ein Instrumentierungsplan ausgearbeitet. Zur Erfassung des auf den Kernmantel wirkenden transienten Druckpulsationsfeldes wurden darin insgesamt 45 Differenzdruckaufnehmer vorgeschlagen, die dynamische Reaktion des Kernmantels soll mit 18 Wegaufnehmer, 12 Beschleunigungsaufnehmer und 25 Dehnmeßstreifen gemessen werden. Für die Registrierung der Meßsignale wurden 5 Magnetbandgeräte vorgeschlagen; dies entspricht einer Kapazität von 70 Meßkanälen. Die Aufnehmer werden nach den jeweiligen Versuchsspezifikationen in verschiedenen Kombinationen an die entsprechenden Verstärker- und Registrierkanäle angeschlossen.

Die weiteren Arbeiten werden sich auf die Auswahl und Entwicklung geeigneter Meßaufnehmer konzentrieren. Als erstes Teilziel wird die Bereitstellung einer zweckentsprechenden, optimierten Instrumentierung angesehen.

Eine genauere Beschreibung des Vorhabens sowie ein detaillierter Meßstellenplan wurde in die HDR-Detailspezifikation eingearbeitet.

4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid- und strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverlustunfällen in LWR (R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

Das Vorhaben umfaßt die begleitenden theoretischen Arbeiten zu den HDR-Blowdown-Versuchen (PNS 4221, PNS 4222), insbesondere die Entwicklung fluid-strukturdynamischer Codes zur Berechnung der Blowdownvorgänge insoweit, als sie zur Bestimmung der maximalen Beanspruchung des Kernmantels von Bedeutung sind. Einfache Abschätzungen lassen vermuten, daß bei einer hinreichend realistischen Analyse die Rückwirkung der Strukturbewegung auf die fluiddynamischen Vorgänge auf keinen Fall vernachlässigt werden darf.

Auf Seiten der Fluidodynamik wird überwiegend von den in Los Alamos Scientific Laboratory (LASL) durchgeführten Entwicklungen ausgegangen. Als Grundlage für die erste Code-Entwicklung wird der von der LASL erstellte Code YAQUI benutzt. (A.A. Amsden, C.W. Hirt: YAQUI, An Arbitrary Lagrangian - Eulesian Computer Program für Fluid Flow at All Speeds, LA-5100, März 1973). YAQUI wurde im Berichtszeitraum auf P1/1 umgestellt und läuft jetzt als REGENT-Subsystem auf der IBM 370/169 der GfK. Die in den Veröffentlichungen zu YAQUI angegebenen Beispiele wurden, soweit ihre Ausgangsdaten hinreichend dokumentiert waren, nachgerechnet und erbrachten übereinstimmende Ergebnisse. Als weiterer Test wird gegenwärtig eine Vergleichsrechnung mit dem im IRE verfügbaren REXCO-Code vorbereitet.

Im Hinblick auf die Anwendung des YAQUI auf die Blowdownprobleme wurden einige wesentliche Modifikationen geplant, die es erlauben werden, die Strömung im Ringraum zwischen Reaktordruckbehälter und Kernmantel zweidimensional zu berechnen: Es muß die Möglichkeit einer vorgebbaren Senke eingebaut werden, damit die Ausströmung aus dem Bruchstutzen erfaßt wird; die Ausströmrate am Übergang zwischen Stutzen und Ringraum muß aus anderen Rechnungen entnommen werden. Ferner wurde der Einbau einer 2 1/2-dimensionalen Berücksichtigung der Kernmantelverformung geplant; die dritte Dimension wird dazu in den Gleichungen für Massen- und Energieerhaltung, nicht jedoch in den Impulsgleichungen berücksichtigt.

Auf der Seite der Strukturodynamik wurde in einem ersten Schritt ein sehr einfaches statisches, linear-elastisches, biegeschlaffes Schalenmodell zur Beschreibung des Kernmantels erstellt. Die Erweiterung zu einem dynamischen Modell sollte dadurch vorgenommen werden, daß in einem iterativen Prozeß die Trägheitskräfte als äußere Belastung vorgegeben werden. Erste Rechnungen ergaben jedoch, daß die Vernachlässigung der Biegesteife zu einer nicht unerheblichen Verfälschung des dynamischen Verhaltens des Kernmantels führen kann.

Deswegen wurde in einem zweiten Schritt ein linear-elastisches, biegesteifes Schalenmodell zur Beschreibung des Kernmantels gewählt. Ausgangsbasis waren die Donnell'schen Gleichungen für dünnwandige Kreiszyylinder. Sie wurden gemäß eines Vorschlages von L.S.D. Morley verbessert und um einen Trägheitsterm erweitert, der die radiale Beschleunigung, nicht aber Beschleunigungen in der

Schalenebene berücksichtigt. Dies bedeutet, daß als Ergebnis direkt die Schalenverformungen als Funktion der Zeit anfallen, wenn die auf der Schalenoberfläche verteilte Last als Funktion der Zeit vorgegeben wird.

Bei der später vorzunehmenden Koppelung dieses strukturdynamischen Modells mit der Fluidodynamik wird es sehr hilfreich sein, wenn der Computeraufwand für den strukturdynamischen Teil nicht zu groß ist. Für die Schalenverformungen werden deshalb geeignete analytische Ansätze gemacht, in die Differenzgleichungen eingesetzt und geschlossene Lösungen gesucht. Die Bestimmung der Integrationskonstanten erfolgt hierbei unter Verwendung der Rand- und Anfangsbedingungen nach einem speziellen point matching Verfahren.

Die bisher erzielten homogenen Lösungen, die Eigenfrequenzen der Zylinderschalen darstellen, stimmen in der Tendenz mit den Eigenfrequenzen überein, die mit Hilfe des finite element-Programmes STRUDL/DYNAL berechnet wurden. Insbesondere wurde bestätigt, daß die niedrige Eigenfrequenz nicht etwa bei einer Ovalisierungsschwingung, sondern bei einem höheren Schwingungsmodus mit 3,4,5, ... Perioden am Schalenumfang auftritt.

- 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 Erweiterung und Vervollständigung von Moduln zum Code-System SSYST. Dazu wurden neue Moduln erstellt und alte verbessert.

## 1. Neue Moduln

### 1.1 Implementierung eines neuen Systemkerns (I. Brestrich, W. Gulden)

Bei der Implementierung des Stuttgarter Systemkerns RSYST auf der IBM/370-165 in Karlsruhe mußten zunächst einige Vereinfachungen vorgenommen werden. Inzwischen wurde eine erweiterte Version RSYSTK entwickelt, die folgende Möglichkeiten zusätzlich enthält:

- Zur besseren Nutzung von durch Löschungen entstandenen Lücken auf einer Bibliothek kann die Bibliothek zusammengeschoben werden.
- Reservierung von Datenblöcken an definierten Stellen, so daß sie bei System- oder Fehlerabbruch nicht verlorengehen.
- Verbesserung des Plattenzugriffs durch Definition einer optimalen Datenblockgröße durch den Benutzer. (Diese Maßnahme bringt

eine wesentliche Senkung der Peripheriekosten).

- Installierung einer temporären Datei im Kernspeicher-Bereich
- Steuerung der Protokollierung
- Automatische Integrierung neuer Steuerworte

## 1.2 Moduln zur Berechnung der Strömungsvorgänge in der Wiederauffüllphase (R. Schützle)

Als erster Schritt zur Darstellung der Wiederauffüllphase wurde das Programm WAK der KWU an SSYST angeschlossen. Das in WAK verwendete Modell setzt voraus, daß das eingespeiste Notkühlwasser zunächst zur Auffüllung des unteren Plenums dient. Ab Erreichen der Kernunterkante werden über eine Massenbilanz die Anstiegsgeschwindigkeit der Benetzungsfront, die Dampfproduktion sowie der Zustand im oberen Plenum berechnet.

Eine Kopplung der Strömungsvorgänge mit der Wärmeleitrechnung im Brennstab ist derzeit nicht möglich. Vielmehr werden die von WAK vorab berechneten zeitabhängigen Größen Wasserspiegelhöhe, Nachzerfallsleistung und axiale Leistungsverteilung dazu benutzt, um einseitige Randbedingungen für die Wärmeleitrechnung zu formulieren. Diesem Zweck dient ein neu entwickelter Hilfsmodul RAWAK, der zu jedem Zeitschritt aus den WAK-Ergebnissen die Wärmequell-dichte und die Wärmestromdichten an der Brennstaboberfläche für die Wärmeleitprogramme erzeugt.

Um die Rückkopplung zwischen Wärmeleitung und Hydraulik erfassen zu können, wurde der Modul HYDRA-F konzipiert, in dem das Fluten parallel zur Wärmeleitrechnung behandelt wird. In den grundsätzlichen Modellen lehnt er sich an WAK an, d.h. es wird zu jedem Zeitschritt die Wärmeerzeugung im Brennstab und die Speicherwärme oberhalb der Benetzungsfront ermittelt. Zusätzlich werden geeignete Modelle für die Wärmeübergangsbeziehungen eingebaut, da in WAK die Wärmeübergangszahl ein Eingabeparameter ist.

Weiter wird in HYDRA-F der Wärmeübergang in der Phase zwischen Blowdown-Ende und dem Zeitpunkt, an dem der Wasserspiegel die

Kernunterkante erreicht, berücksichtigt. Der in dieser Zeit aus dem unteren Plenum aufsteigende Dampf trägt ebenfalls zur Kühlung des Brennelements bei.

### 1.3 Deformationsmodul

(M. Schindler)

Der Entwicklung des Deformationsmoduls STADEF ging eine Studie des Instituts für Reaktortechnik der TH Darmstadt /1/ voraus, in der geklärt werden sollte, welche Methoden zur Berechnung der rotationssymmetrischen Hüllrohrdehnung geeignet sind. Als wesentliches Resultat ergab sich, daß angesichts der Unsicherheiten in experimentell ermittelten Materialgesetzen die Genauigkeit verschiedener Methoden von untergeordneter Bedeutung ist. Für die Entwicklung des Deformationsmodul wurde eine Schalentheorie empfohlen, weil sie bei genügender Genauigkeit die geringsten Schwierigkeiten hinsichtlich der Zeitsteuerung innerhalb einer Modulfolge bietet. Desgleichen kann auf eine geometrisch nichtlineare Theorie verzichtet werden, wenn die Dehnungsinkremente innerhalb eines Zeitschrittes selbst klein gehalten werden.

Im einzelnen enthält das Hüllrohrmodell folgende Voraussetzungen:

- Das Dehnungsinkrement setzt sich additiv aus einem elastischen, einem zeitabhängig plastischen und einem thermischen Anteil zusammen.
- Die zeitabhängig plastische Dehnungsgeschwindigkeit hängt nur von den momentanen Spannungen und der Temperatur ab.
- Die Krümmungsradien sind klein gegen die Wandstärke.

Die Gleichgewichts- und Verträglichkeitsbedingungen führen zusammen mit dem Materialgesetz zu einer Differentialgleichung für den axialen Verlauf der Dehnung, die in STADEF nach einem Differenzenverfahren gelöst wird.

Bei der Entwicklung des Deformationsmodells für die Brennstoffsäule wurde davon ausgegangen, daß die wesentlichsten Dehnungen unter Notkühlbedingungen von den schnellen Temperaturänderungen herrühren. Daneben werden elastische Verformungen beim Aufschumpfen der Hülle

auf den Brennstoff berücksichtigt. Die Kenntnis des Anpressdrucks hat dabei Rückwirkungen auf die Berechnung des Wärmeübergangs zwischen Brennstoff und Hülle. Vereinfachend wurde angenommen, daß der Brennstoff praktisch keine Zugspannungen aufnehmen kann. Unter dieser Voraussetzung sind elastische Dehnung und Wärmedehnung entkoppelt.

#### 1.4 Hüllrohr-Korrosion

(M. Schindler)

Ein neu entwickelter Modul ZIRKOX berücksichtigt die Hüllrohr-Korrosion durch die Reaktion von Zirkon und Wasserdampf bei hohen Temperaturen. Grundlage ist das von Baker und Just /2/ ermittelte parabolische Gesetz für die Reaktionsrate.

Die von ZIRKOX berechnete Oxidationswärme wird als Wärmequelle in den Wärmeleitmoduln berücksichtigt. Weiter kann die Oxidschicht bei der Deformationsrechnung als Schwächung des Hüllrohrs berücksichtigt werden.

## 2. Vorarbeiten für neue Moduln

### 2.1 Zry-Eigenschaften (S. Raff)

Die wichtigsten Einflußparameter für das Stoffverhalten während des Kühlmittelverlustunfalls wurden zusammengestellt.

Seitens der chemischen Wechselwirkung des Hüllrohres mit seiner Umgebung wurde die Oxidation bzw. Sauerstoffdiffusion untersucht. Anhand des Schichtdickenwachstums und der integralen Sauerstoffaufnahme werden durch Vergleich mit am IMF durchgeführten Oxidationsversuchen Eingabegrößen mit Diffusionskonstanten und Phasengrenzkonzentrationen eines Diffusionscodes verbessert. Dazu wird ein Optimierungsprogramm erstellt.

Mit der Auswertung von Zugversuchen im superplastischen Bereich wurde begonnen. Eine Approximation der Meßwerte an das Norton'sche Kriechgesetz brachte noch keine befriedigenden Ergebnisse.

### 2.2 Statistik des Hüllrohrblähens (W. Sengpiel)

Die Arbeiten zur Statistik des Hüllrohrblähens während eines hypo-

thetischen LWR-Kühlmittelverlustunfalles konzentrierten sich auf das Erstellen eines probabilistischen Modelles zur Untersuchung des Hüllrohrblähens an einem Einzelstab. Durch die Diskretisierung der Wärmeleitungsgleichung in Ort und Zeit und die Kopplung zwischen Temperatur und Hüllrohrdehnung tritt das Problem der statistischen Abhängigkeit einzelner Parameter auf. Diese statistische Abhängigkeit erschwert eine zeitschrittweise Berechnung der Dichten der Wahrscheinlichkeitsverteilungen von Temperaturen und Dehnungen und damit die direkte Berechnung der Wahrscheinlichkeiten des Auftretens kritischer Temperaturen und Dehnungen außerordentlich. Lösungsmethoden werden zur Zeit untersucht, u.a. die Brauchbarkeit von Monte Carlo-Methoden. Als Nahziel wird auf der Grundlage der näherungsweise Berechnung von Erwartungswerten und Varianzen der Hüllrohrtemperaturen und -dehnungen bei Vorgabe statistischer Einflußgrößen (Stoffwerte, Geometriedaten, Nachwärmeerzeugung, Wärmeübergangszahlen Kühlmittel-Brennstab) eine Abschätzung von Grenzwerten für die Wahrscheinlichkeiten des Auftretens von Hüllrohrblähens an verschiedenen Stabpositionen durchgeführt.

### 3. Anwendungsrechnungen

(S. Raff, W. Sengpiel)

Die Arbeiten zur thermo- und fluiddynamischen Vorausberechnung des Blowdown-Versuchsstandes PNS 4236 wurden weitergeführt; über vorläufige Ergebnisse ist berichtet worden /3/. Auf der Basis von RELAP 4 ist damit begonnen worden, ein Programm zur Auswertung der experimentellen Ergebnisse von PNS 4236 zu erstellen.

Mit den Moduln WUEZ, ZET-1D und HRODE2 wurden erste Rechnungen für den Blowdown-Versuchsstand (4236) bezüglich des Hüllrohrverhaltens durchgeführt. Variationen der Stoffparameter im Deformationsmodul zeigten deren großen Einfluß für das Hüllrohrverhalten.

(R. Schützle, W. Sengpiel)

Im Rahmen der deutschen Beteiligung an der Berechnung von "Standard-Problemen" der USNRC, (CASP-Programm) wurde die Nachrechnung des Standard-Problemes 2 mit RELAP3 (IKE) und RELAP4 (IRE) durchgeführt (Notkühlexperiment 1011 an der "1-1/2 Lopp Semiscale Test Facility" von ANC, Idaho); die Rechnungen stehen vor dem Abschluß, die Ergebnisse sollen mit entsprechenden Ergebnissen von Rechnungen des LRA

München und des IRS Köln verglichen werden.

(M. Schindler)

Mit dem neu erstellten Modul STADEF wurden Ballooning Experimente der KWU nachgerechnet. Das zugrunde gelegte Kriechgesetz war

$$\dot{\epsilon} = A \cdot \sigma^n \cdot \exp\left(\frac{-Q}{R \cdot T}\right) \quad A, n, Q, \text{ const.}$$

Während in einem Fall durch leichte Variation von Q die im Experiment erreichte Enddehnung eingestellt werden konnte, gelang dies in einem anderen Fall noch nicht. Die Untersuchungen werden weitergeführt.

### Literatur

- /1/ H. Fabian, U. Krugmann, K. Laßmann, R. Schwarz  
Methodenvergleich für die Berechnung großer Hüllrohrdeformationen beim Kühlmittelverlustunfall von Leichtwasserreaktoren  
KFK 2176
- /2/ L.R. Baker, Jr. und L.C. Just  
Studies of Metal-Water Reactions at High Temperatures  
ANL-6548 (1962)
- /3/ W. Gulden, S. Raff, W. Sengpiel  
KTG-Fachtagung, Stuttgart,  
Januar 1975

4234 Messung der Nachzerfallswärme von  $^{235}\text{U}$  im Zeitbereich  
10 - 1000 s

---

(K. Baumung, INR)

Die ungenügende Genauigkeit, mit der man die Nachwärmeproduktion der Spaltprodukte und Aktiniden angeben kann, stellt einen der wesentlichen Unsicherheitsfaktoren bei der Beschreibung des Kühlmittelverluststörfalles dar. Daraus ergibt sich die Notwendigkeit neuer experimenteller Daten, mit denen die Diskrepanzen geklärt werden können, die den gegenwärtigen Stand der Kenntnis der Nachzerfallswärme kennzeichnen:

#### Gegenwärtiger Stand:

Am Beginn der Arbeiten zum Vorhaben 4234 stand ein ausführliches Literaturstudium, nach dem sich der augenblickliche Stand wie folgt darstellt: Für die rechnerische Behandlung von Problemen, die mit der Nachzerfallswärme verknüpft sind, wurde von der American Nuclear Society 1971 die ANS-5.1-Standardkurve vorgeschlagen /1/, die auch in der Industrie weitgehend benutzt wird. Dieser Standard beschreibt die Nachzerfallswärme nach unendlich langer thermischer Bestrahlung von  $^{235}\text{U}$  im Zeitbereich zwischen  $10^{-1}$  s und  $10^9$  s. Er geht auf eine Arbeit von SHURE /2/ zurück (1961), die sich auf Rechnungen und im Bereich unter 1000 s auf eine Zusammenfassung von  $\beta$ - bzw.  $\gamma$ -Einzelmessungen stützt.

Für die Analyse von Kühlmittelverluststörfällen ist vor allem die Kenntnis der Nachwärmeproduktion in den ersten 1000 s nach Abschalten des Reaktors wichtig. In diesem Zeitbereich wird die Genauigkeit der ANS-Kurve mit +20%/-40% angegeben. Daher wurde von SHURE 1972 eine Neuberechnung mit Hilfe von 5 verschiedenen Datensätzen und 3 verschiedenen komplexen Rechenprogrammen durchgeführt /3/. Es zeigte sich, daß die Rechnungen untereinander konsistent sind, aber erst für Kühlzeiten ab einigen 100 s vertrauenswürdig sind. Bei kürzeren

Kühlzeiten, für die die Daten der beteiligten Isotope weitgehend nicht bekannt sind und aus statistischen Modellen abgeleitet werden müssen, ergeben sich größere Unsicherheiten.

PERRY, MAIENSCHEN und VONDY faßten 1973 alle damals verfügbaren experimentellen Daten (sämtlich  $\beta$ - oder  $\gamma$ -Einzelmessungen) zu einer neuen Kurve zusammen /4/, für die sie eine Standardabweichung von 7% für den Zeitbereich  $1-10^4$  s angeben und die eine Anhebung des ANS-Standards im Bereich von 1000 s um etwa 12% nahelegt.

Neuere Rechnungen von TASAKA und SASAMOTO /5/ (1974) und DEVILLERS et al. /6/ (1973) zeigen zwar gute Konsistenz (was möglicherweise auf einen gemeinsamen Ursprung der Datensätze hindeutet), weisen aber zum Teil erhebliche Diskrepanzen zu experimentellen  $\beta$ - und  $\gamma$ -Messungen auf, was aber auch für diese untereinander gilt /7/.

Die erste direkte Bestimmung der Nachzerfallswärme, die von LOTT et al. 1973 auch für kürzere Kühlzeiten (ab 70s) kalorimetrisch durchgeführt wurde /8/, gilt mit einer Unsicherheit von  $\pm 5\%$  als eine der vertrauenswürdigsten Arbeiten. Sie weist jedoch nachdrücklich darauf hin, daß der ANS-Standard, aber auch die Werte von PERRY et al. im Bereich 200-500 s um 20-30% zu hoch liegen. Aus dieser gegenwärtigen Situation ergibt sich der Wunsch nach neuen experimentellen Daten, die zu einer Klärung der Diskrepanzen beitragen sollen.

#### Geplante Experimente und Rechnungen:

Im INR ist dazu geplant, die Nachzerfallswärme von  $^{235}\text{U}$  im Zeitbereich von etwa 10-1000 s nach thermischer Bestrahlung kalorimetrisch zu messen. Dabei sollen im Hinblick auf die LWR-Sicherheitsprobleme neben Messungen an metallischen Uranproben auch solche an  $\text{UO}_2$ -Pellets vorgenommen werden,

die es erlauben, die Ergebnisse (z.B.  $\gamma$ -Escape) direkt auf die Verhältnisse in LWR zu übertragen.

Da eine stark zeitabhängige Größe gemessen werden soll, muß das Kalorimeter eine hohe Empfindlichkeit und gleichzeitig eine geringe Trägheit aufweisen. Diese beiden Forderungen lassen sich mit üblichen Kalorimetern nicht gleichzeitig erfüllen. Daher wird im INR ein rechnergesteuertes adiabatisches Mikrokalorimeter entwickelt, das durch Weglassen des Kalorimeterblocks (in den die Probe gewöhnlich eingebracht wird und an dem dann der Temperaturanstieg gemessen wird) und durch direkte Messung der Temperaturerhöhung der Probe Wärmeübergangsprobleme vermeidet. Dadurch reduzieren sich die Ansprechzeiten auf ein Minimum, nämlich auf die Relaxationszeiten innerhalb der Proben selbst und die sich daher nicht umgehen lassen. Diese betragen bei den metallischen Proben etwa 2s, beim Oxid 20-30s und müssen am Anfang der Messung bis zum Zerlaufen des Temperaturprofils, das sich während der Bestrahlung im Reaktor in den Proben ausgebildet hat, rechnerisch korrigiert werden. Die Wärmequellenverteilung in den Proben scheint nach den bisher vorliegenden Rechnungen weitgehend homogen zu sein, so daß von daher keine großen Korrekturen zu erwarten sind.

Der Energieverlust der Proben durch entweichende  $\gamma$ -Strahlung, der je nach Probendurchmesser und Dichte zwischen 20% und 40% der Gesamtleistung ausmacht, wird mit einem MOXON-RAE-Detektor in der Äquatorebene der Probe außerhalb des Kalorimeters registriert.

Literaturverzeichnis

- /1/ American Nuclear Society: DRAFT-Standard ANS-5.1  
(October 1971)
  
- /2/ K. SHURE: WAPD-BT-24 (1961)
  
- /3/ K. SHURE: WAPD-TM-1119 (1972)
  
- /4/ A.M. PERRY, F.C. MAIENSCHIN, D.R. VONDY:  
ORNL-TM-4197 (1973)
  
- /5/ K. TASAKA und N. SASAMOTO:  
Nuclear Sci. Eng. 54 (1974) 177
  
- /6/ C. DEVILLERS et al.: IAEA Symposium on Appl. Nucl.  
Data in Science and Technology, Paper IAEA-SM-170/63,  
Paris (1973)
  
- /7/ M. LOTT et al.: IAEA Pavel on Fiss. Prod. Nucl. Data  
Review-Paper no. 15, Bologna (1973)
  
- /8/ M. LOTT et al.: Journal Nuclear Energy 27 (1973) 597

4235. Untersuchungen zum Materialverhalten beim Kühlmittelverlustunfall.

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial beim Kühlmittelverlustunfall.

(M. Boček<sup>V</sup>, C. Petersen, W. Schweiger IMF/II)

1. Das plastische Verhalten von Zircaloy-4 bei höheren Temperaturen in Luftatmosphäre.

Zur Ermittlung von Kennwerten über das plastische Verhalten eines Werkstoffes werden im allgemeinen folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Untersuchung der Verformungskenngrößen und deren Abhängigkeit von der Verformungstemperatur bzw. der Verformungsgeschwindigkeit. Die Verformungskenngrößen sind z. B.: Die Streckgrenze  $\sigma_{SG}$ , die Bruchspannung  $\sigma_B$ , der Verfestigungsanstieg  $\theta$ , die Gesamtdehnung  $\epsilon_{ges}$  und die Gleichmaßdehnung  $\epsilon_{gl}$ .
- Strukturuntersuchungen:  
z. B. Textureinfluß und Gefügebau
- Bruchverhalten.

Im Berichtszeitraum wurden nun folgende Untersuchungen an Zircaloy-4 Flachzugproben durchgeführt.

- Temperaturabhängigkeit der Gesamtdehnung
- Geschwindigkeits- und Temperaturabhängigkeit der Streckgrenze bzw. der Fließspannung
- Makroskopisches Bruchverhalten
- Metallographische Gefügeuntersuchungen.

1.1 Temperaturabhängigkeit der Gesamtdehnung.

In Abb. 4235-1 ist die Gesamtdehnung als Funktion der Temperatur dargestellt. Diese Untersuchung wurde an Proben mit unterschiedlicher Orientierung zwischen Probenachse und Walzrichtung (Winkel  $\gamma$ ) durchgeführt. Die Gesamtdehnung wächst mit wachsender Temperatur. Die Meßergebnisse für unterschiedliche Orientierungen wurden zu einem Werteband zusammengefaßt.

Um Aussagen über die Meßwertstreuung zu ermöglichen, wurden fünf Proben einheitlicher Orientierung verformt. Die Maximal- und Minimalwerte sind als Bal-

ken in das Diagramm eingezeichnet. Bis 850° C sind diese Maximal- und Minimalwerte jedoch geringer als die Beträge des Wertebandes bei der jeweiligen Temperatur.

Besonders bemerkenswert ist die starke Streuung der Meßwerte bei 900° C. Dies kann, wie weiter noch gezeigt wird, mit der Änderung des m-Wertes und damit des Verformungsverhaltens in diesem Temperaturbereich zusammenhängen.

In Abb. 4235-1a ist die Gesamtdehnung in Abhängigkeit von der Temperatur bei zwei Verformungsgeschwindigkeiten aufgetragen. Offensichtlich wird bei der geringeren Verformungsgeschwindigkeit der höhere Dehnbetrag erreicht.

Bei Temperaturen über 1000° C nimmt die Gesamtdehnung offensichtlich als Folge der drastischen Oxidation schnell ab.

Das vermutlich bei der kleineren Verformungsgeschwindigkeit ( $\dot{\epsilon} = 6,6 \times 10^{-4} \text{ (s}^{-1}\text{)}$ ) um 1050° C auftretende Nebenmaximum wurde in ausgeprägter Form von H. M. Chung, A. M. Garde und T. F. Kassner /1/an voroxidierten, jedoch in inerte Atmosphäre verformten Proben gefunden.

## 1.2 Geschwindigkeits- und Temperaturabhängigkeit der Streckgrenze bzw. der Fließspannung

In Abb. 4235-2 ist die Streckgrenze in Abhängigkeit von der Temperatur für zwei Verformungsgeschwindigkeiten dargestellt.

Entgegen dem üblicherweise zu erwartenden monotonen Abfall der Streckgrenze mit wachsender Temperatur wird ein Anstieg der Streckgrenze oberhalb 1050° C beobachtet, der wiederum auf die starke oxidative Einwirkung schließen läßt. Der Abb. 4235-2 ist ferner zu entnehmen, daß für hohe Temperaturen der Einfluß der Verformungsgeschwindigkeit auf die Streckgrenze abnimmt.

Aus der Geschwindigkeitsabhängigkeit der Streckgrenze kann der sogenannte Geschwindigkeitsexponent

$$m = \left( \frac{\delta \log \sigma}{\delta \log \dot{\epsilon}} \right)_T$$

bestimmt werden. Dieser ist ein Maß für die "Geschwindigkeitsempfindlichkeit" der Fließspannung, und sein Wert ermöglicht Aussagen anzustellen über das Verformungsverhalten des Werkstoffes. Im Bereich der Hochtemperaturverformung metallischer Werkstoffe, die normalplastisches Verhalten aufweisen, ist  $m \sim 0,2 \div 0,25$ . Werte im Bereich  $0,3 \leq m \leq 1$  sind charakteristisch für superplastisches Verformungsverhalten.

In unserer Untersuchung wurden zwei Methoden zur Bestimmung des Geschwindigkeitsexponenten verwendet.

1. Die unstetige Versuchsführung  
(Geschwindigkeitswechselversuche)
2. Die stetige Versuchsführung  
(Geschwindigkeitsabhängigkeit der Streckgrenze).

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Abb. 4235-3 dargestellt.

Die Unterschiede zwischen den z. T. auch sehr großen  $m$ -Werten, ermittelt durch die unterschiedlichen Methoden, zeigen keinen systematischen Gang. Vielmehr ist anzunehmen, daß diese auf Unzulänglichkeiten in den Auswerteverfahren selbst zurückzuführen sind.

In Abb. 4235-3a ist der Geschwindigkeitsexponent  $m$  in Abhängigkeit von der Verformungsgeschwindigkeit für verschiedene Temperaturen aufgetragen. Bei Temperaturen oberhalb  $850^{\circ} \text{C}$  und Verformungsgeschwindigkeiten von  $\dot{\epsilon} = 10^{-4} \div 10^{-3} \text{ (s}^{-1}\text{)}$  werden  $m$ -Werte über 0,3 erreicht.

In Abb. 4235-4 ist der Geschwindigkeitsexponent  $m$  in Abhängigkeit von der Temperatur für drei Verformungsgeschwindigkeiten aufgetragen. Dabei werden für die niedrigeren Verformungsgeschwindigkeiten in den beiden oberen Teilbildern im Temperaturbereich von  $860 \div 950^{\circ} \text{C}$   $m$ -Werte über 0,3 erreicht. Für höhere Verformungsgeschwindigkeiten bleiben die  $m$ -Werte unter 0,2.

In Abb. 4235-4a sind die Ergebnisse von Verformungsversuchen von D. Lee und W. A. Backofen /2/, die in inerter Atmosphäre durchgeführt wurden, den eigenen Messungen (in Luftatmosphäre) für annähernd gleiche Verformungsgeschwindigkeiten gegenübergestellt. Die Übereinstimmung ist recht gut. Inwiefern die bestehenden Differenzen auf einen Sauerstoffeinfluß zurückzuführen sind, sollen weitere Untersuchungen aufklären.

Der Abb. 4235-5 kann der Einfluß der Probenorientierung auf den  $m$ -Wert bei unterschiedlichen Temperaturen entnommen werden. Die Meßwerte der Versuche an Proben mit  $\gamma = 0^\circ$  und  $\gamma = 90^\circ$  erreichen bei  $900^\circ\text{C}$  und  $860^\circ\text{C}$   $m$ -Werte über 0,3. Lediglich für  $\gamma = 45^\circ$  bleiben die  $m$ -Werte im gesamten Bereich der Verformungsgeschwindigkeiten unterhalb 0,3. Bei der Temperatur  $820^\circ\text{C}$  ist  $m < 0,2$  unabhängig von der Probenorientierung.

### 1.3 Makroskopisches Bruchverhalten

Abb. 4235-6 zeigt das Bruchverhalten von Flachzugproben, die bei unterschiedlichen Temperaturen verformt wurden. Unterhalb von  $840^\circ\text{C}$  erfolgt der Bruch bei relativ hohen Dehnwerten mit Einschnürung. Dies kennzeichnet das normalplastische Verhalten.

Für Verformungstemperaturen im Bereich oberhalb  $860^\circ\text{C}$  erfolgt der Bruch ohne Einschnürung. Die bei  $1200^\circ\text{C}$  verformte Probe erwies sich infolge der starken Oxidation als sehr spröde.

### 1.4 Metallographische Gefügeuntersuchungen.

In Abb. 4235-7 ist das Korngefüge in der Meßlänge zweier Proben dargestellt. Das linke Schliffbild zeigt die langgestreckten Kristalle der bei  $600^\circ\text{C}$  verformten Proben, deren  $m$ -Wert und Bruchverhalten auf normalplastisches Verhalten schließen lassen. Im rechten Bild ist das relativ grobkörnige, aber nicht in Zugrichtung ausgerichtete Gefüge der bei  $860^\circ\text{C}$  sich superplastisch verformenden Probe zu erkennen. Der mittlere Korndurchmesser dieser Probe ist um etliches größer als der des Ausgangsmaterials bzw. der Proben, die bei niedrigen Temperaturen verformt wurden. Offenbar ist mit der beobachteten Änderung

des Verformungsverhaltens ein Kornwachstum verbunden.

## 2. Metallographische Untersuchungen von aufgeschweißten Thermoelementen auf Zircaloy-4 Hüllrohre

In Abb. 4235-8a ist der linke Schweißpunkt einer Zircaloy-4 Schelle dargestellt. Durch die starke Oxidation während der ersten Transiente wurde das dünne Blech der Schelle völlig in sprödes  $ZrO_2$  umgewandelt und bei der Längendehnung des Probestabes dann abgerissen. Durch die Anhäufung von Material an der Schweißstelle wurde die Hüllrohrwandung an dieser Stelle weniger geschwächt. Als Befestigung der Thermoelementzuführungen würde sich dieses Verfahren nur bei Verwendung von dickerem Schellenblech eignen.

Weiter wurden Schweißversuche von RBT/PC (PNS 4237) durchgeführt, um optimale Schweißverbindungen mit dem günstigsten Mantelmaterial für Thermo-elemente zu ermitteln. Als bestes Material erwies sich ein Platinmantel, dessen Schweißverbindung in Abb. 4235-8b im ungeätzten Zustand dargestellt ist. Daraus ergab sich eine Spezifikation zur TE-Bestellung, die vorsieht, daß aus Kostengründen das eigentliche Thermoelement mit einem Mantel aus Edelstahl ausgeführt wird und lediglich an der Spitze eine Platinhülse aufgehämert und zusammengepreßt wird, die dann nach dem Widerstandsschweißverfahren auf das Hüllrohr aufgeschweißt wird.

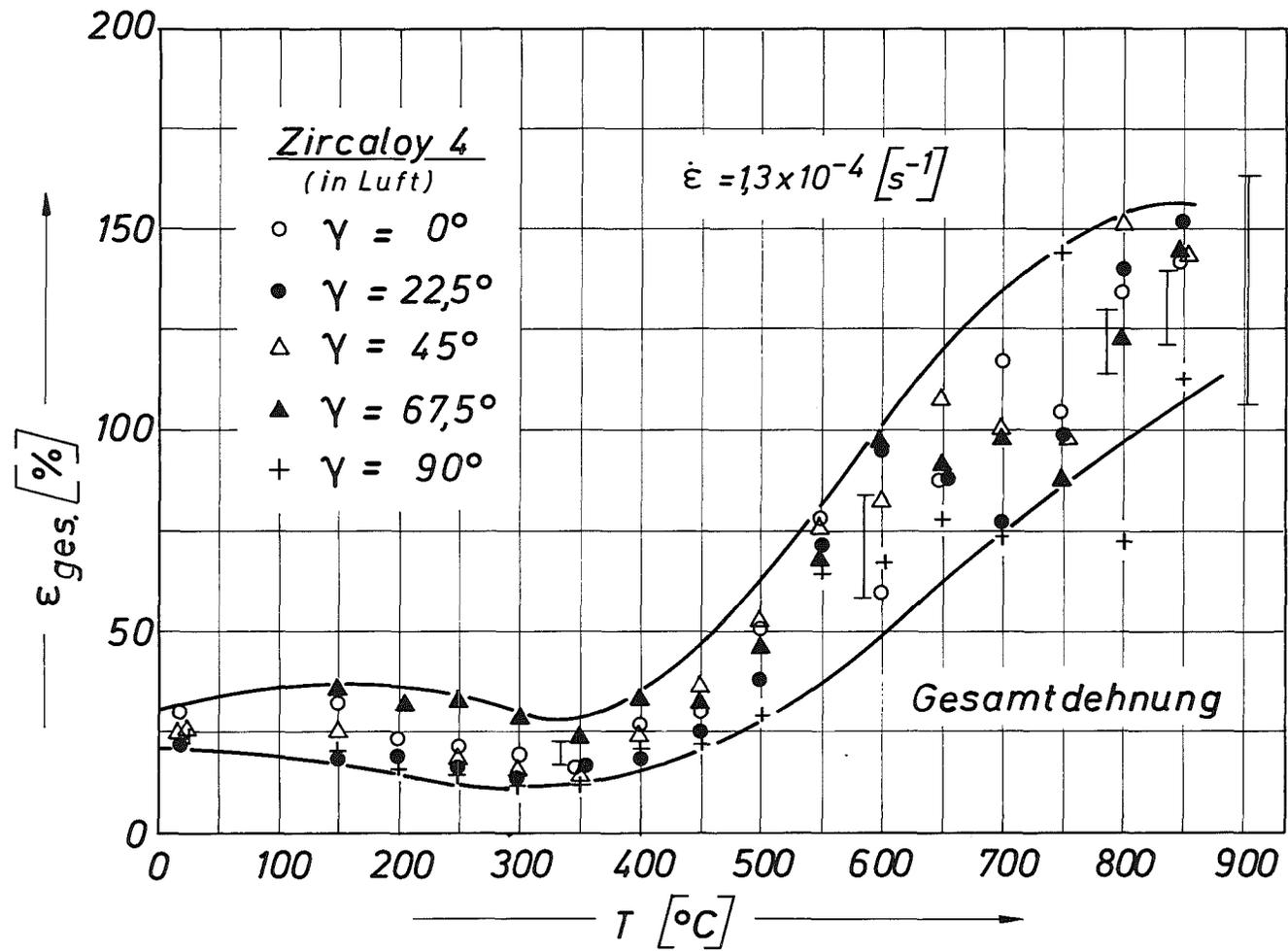


Abb. 4235-1 Die Gesamtdehnung als Funktion der Temperatur für unterschiedliche Probenorientierungen

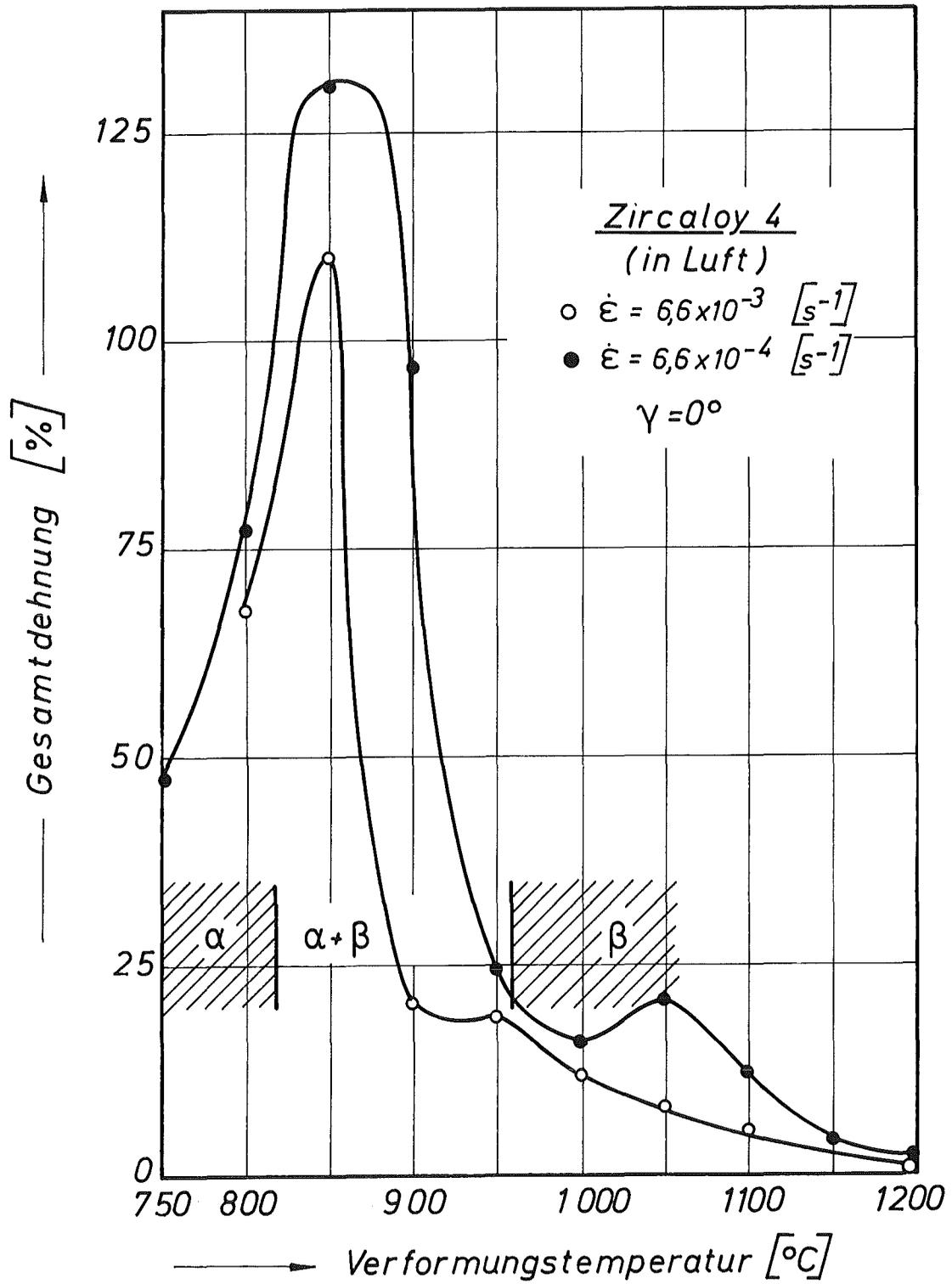


Abb. 4235-1a Die Gesamtdehnung als Funktion der Temperatur für zwei Verformungsgeschwindigkeiten

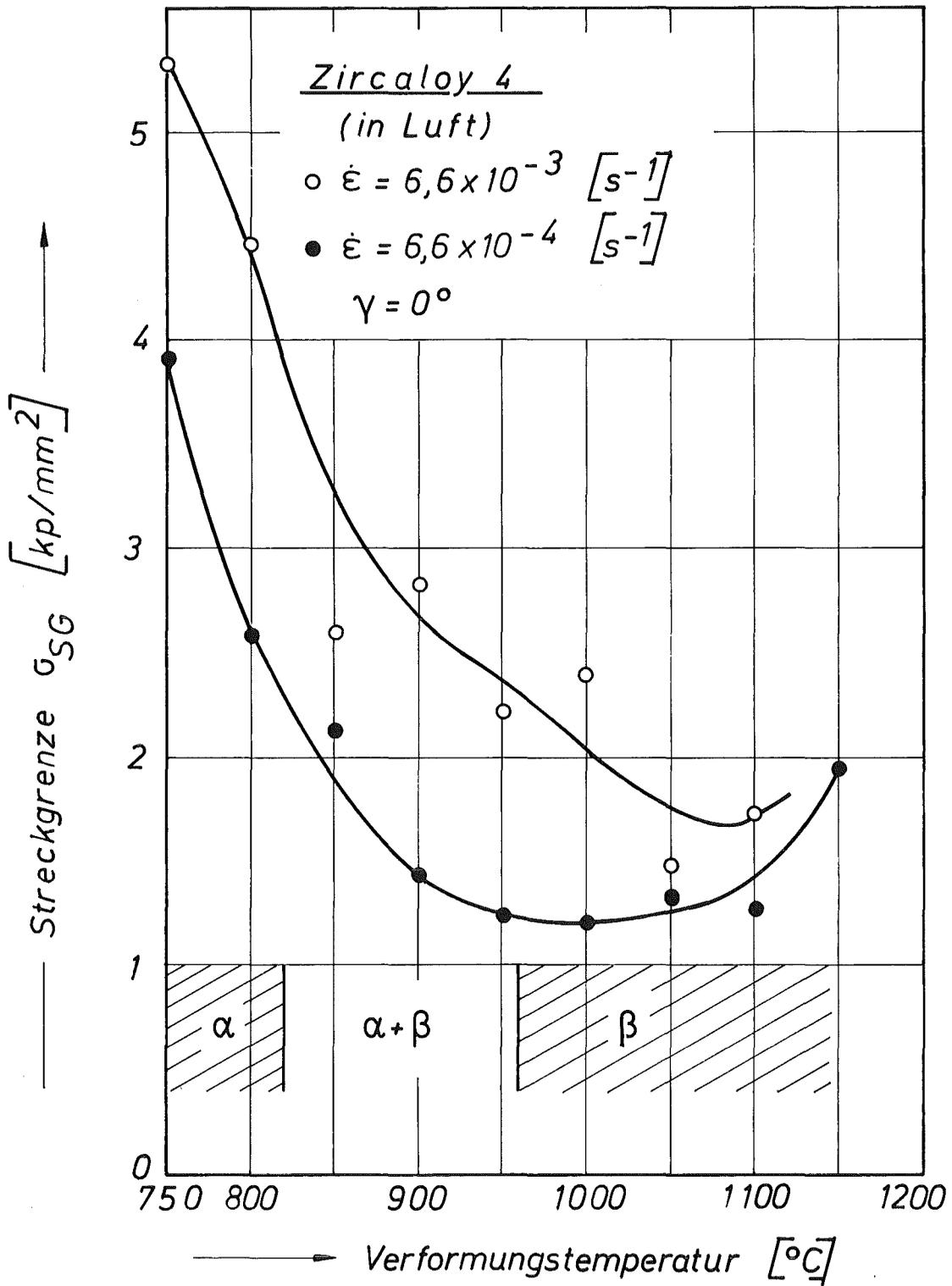


Abb. 4235-2 Die Streckgrenze als Funktion der Temperatur für zwei Verformungsgeschwindigkeiten

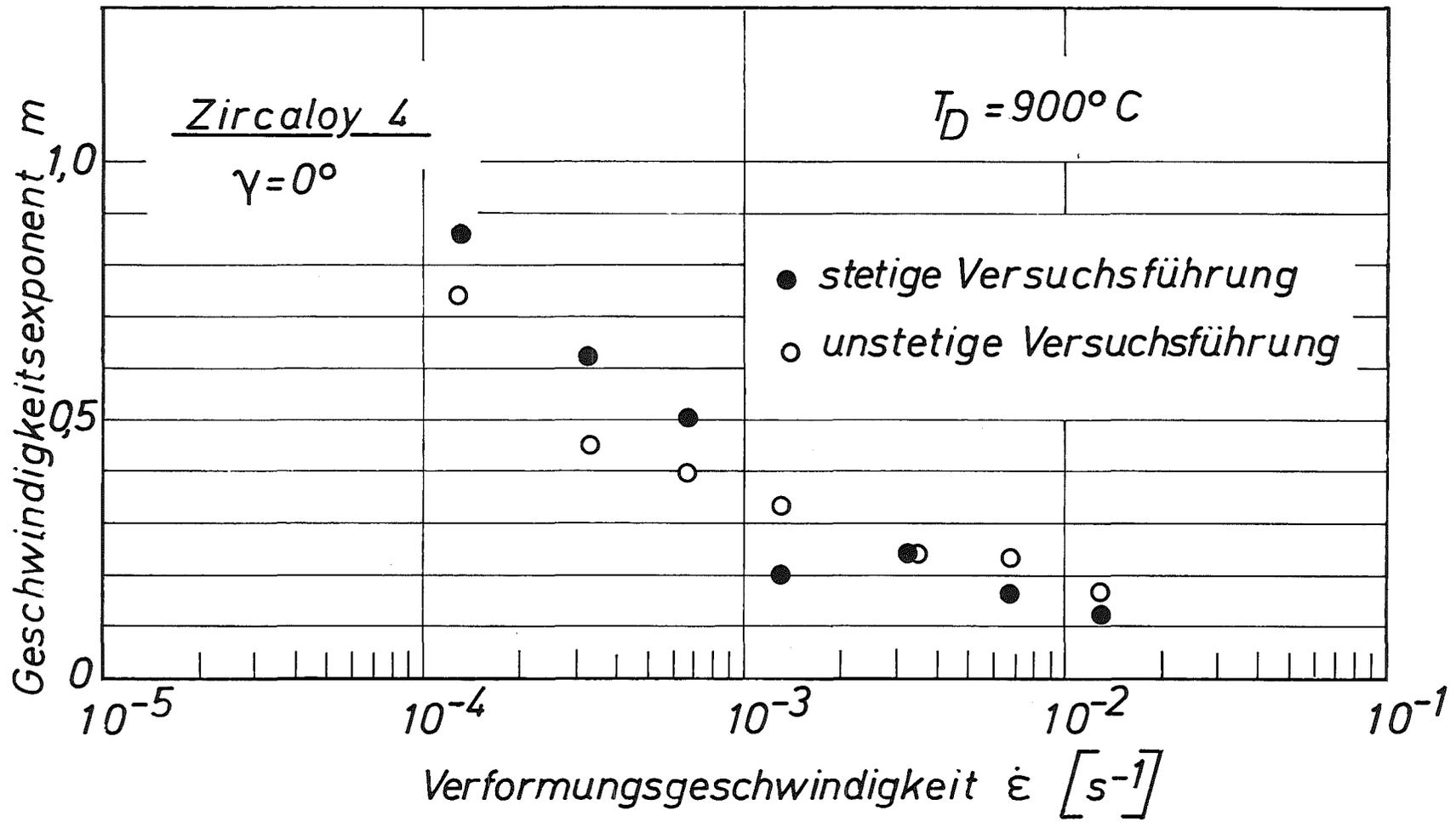


Abb. 4235-3 Der Geschwindigkeitsexponent als Funktion der Verformungsgeschwindigkeit bei unterschiedlicher Versuchsführung

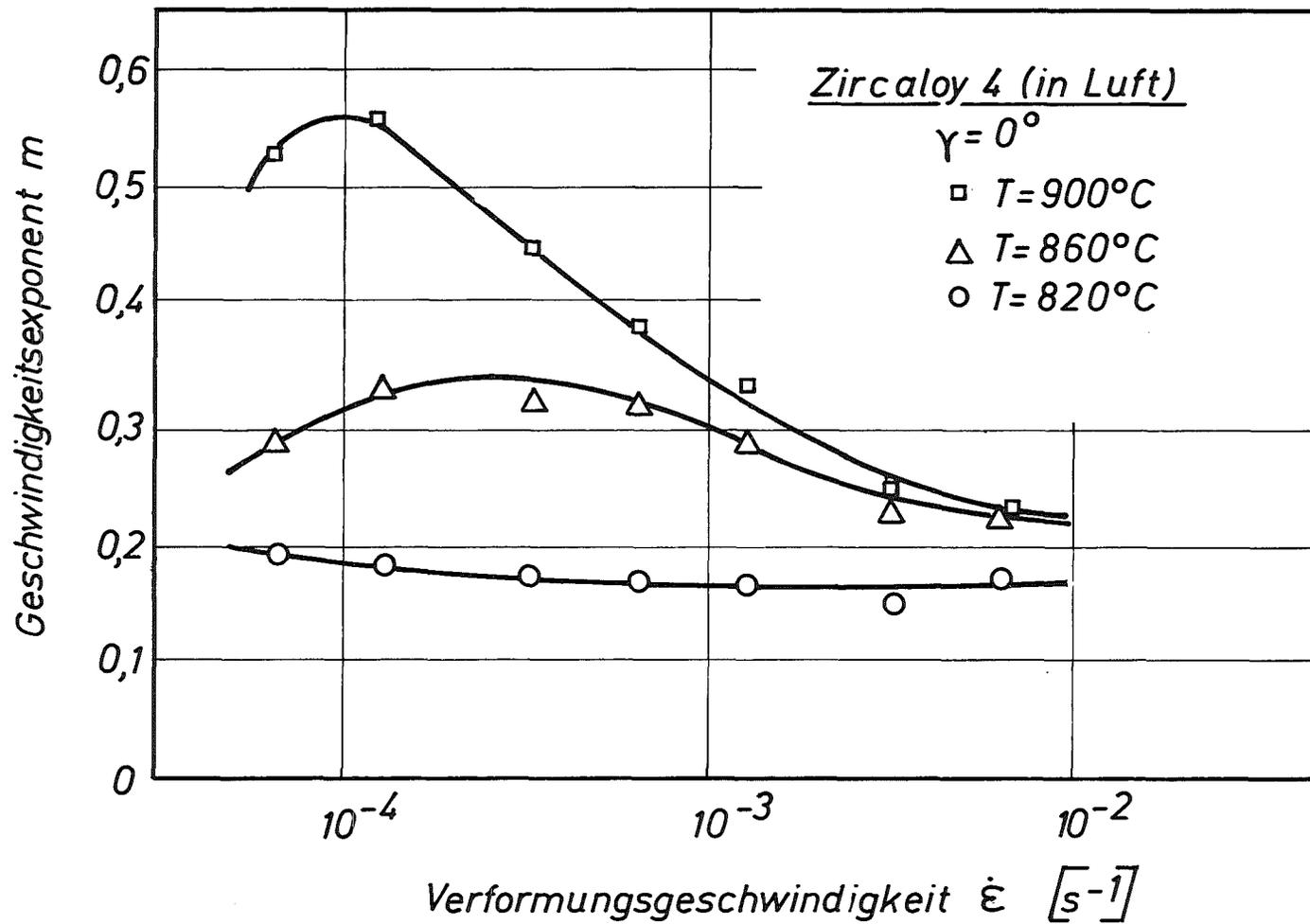


Abb. 4235-3a Der Geschwindigkeitsexponent als Funktion der Verformungsgeschwindigkeit für drei Temperaturen

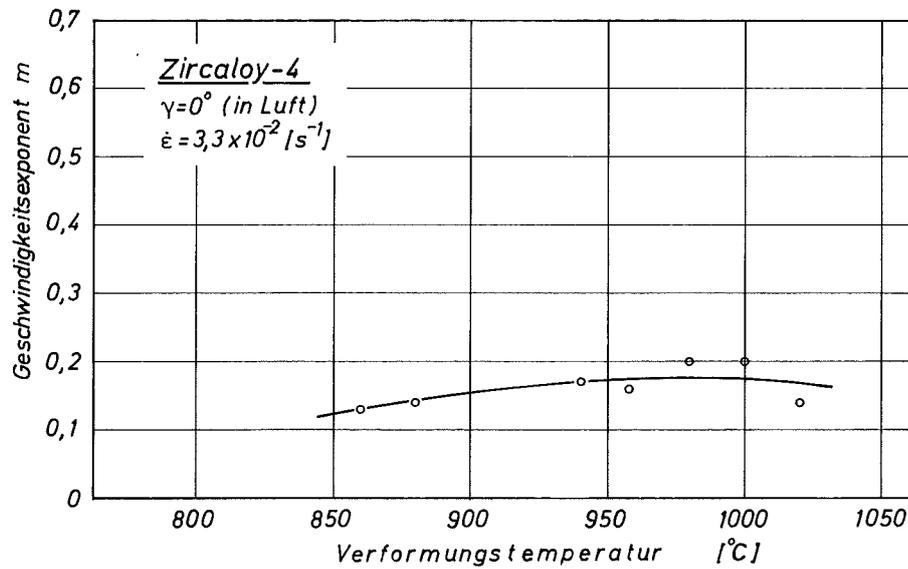
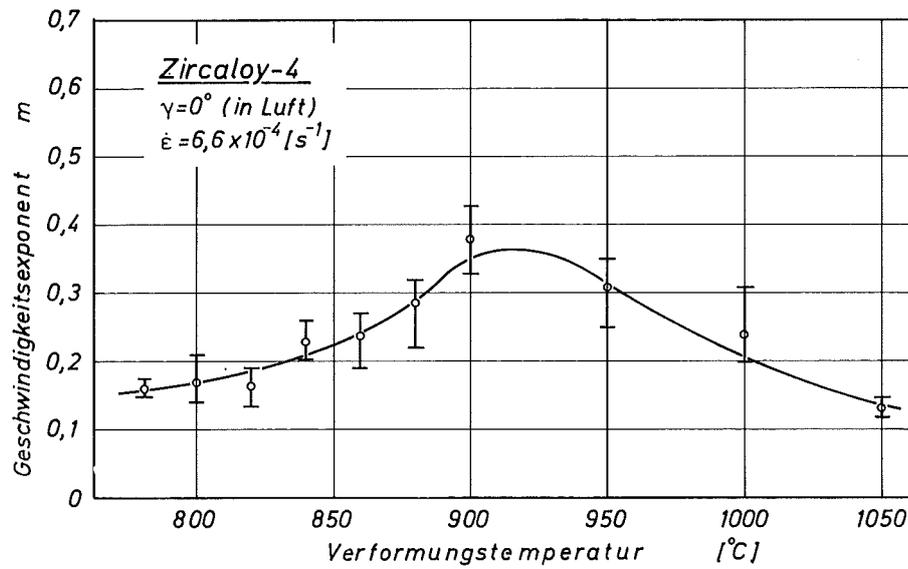
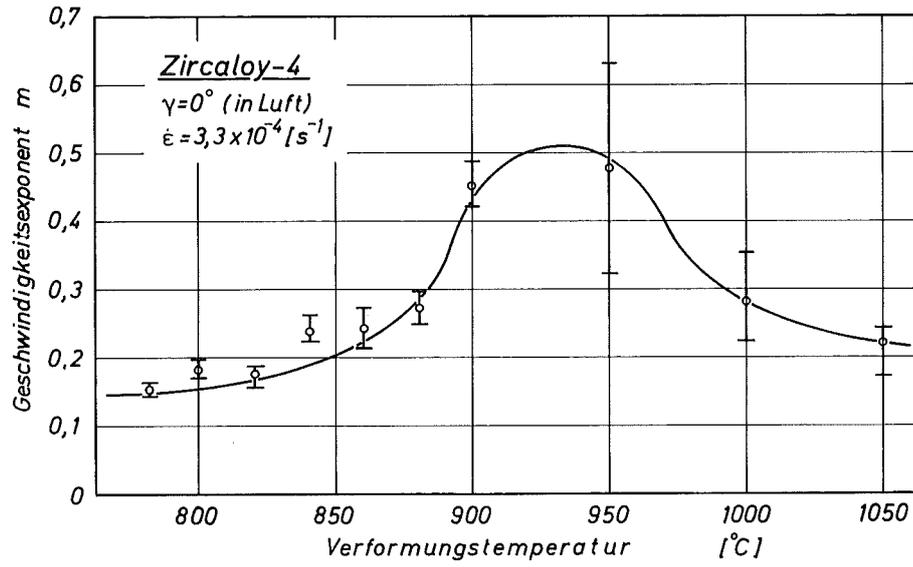


Abb. 4235-4 Der Geschwindigkeitsexponent als Funktion der Temperatur für drei Verformungsgeschwindigkeiten

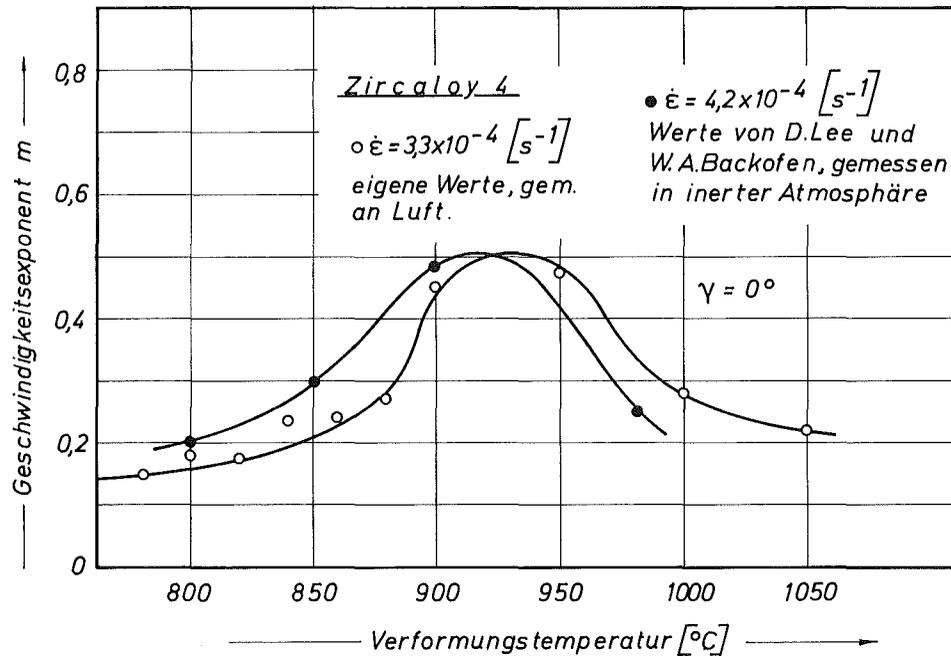


Abb. 4235-4a Der Geschwindigkeitsexponent als Funktion der Temperatur. Eigene Messung im Vergleich mit Literaturwerten<sup>2)</sup>

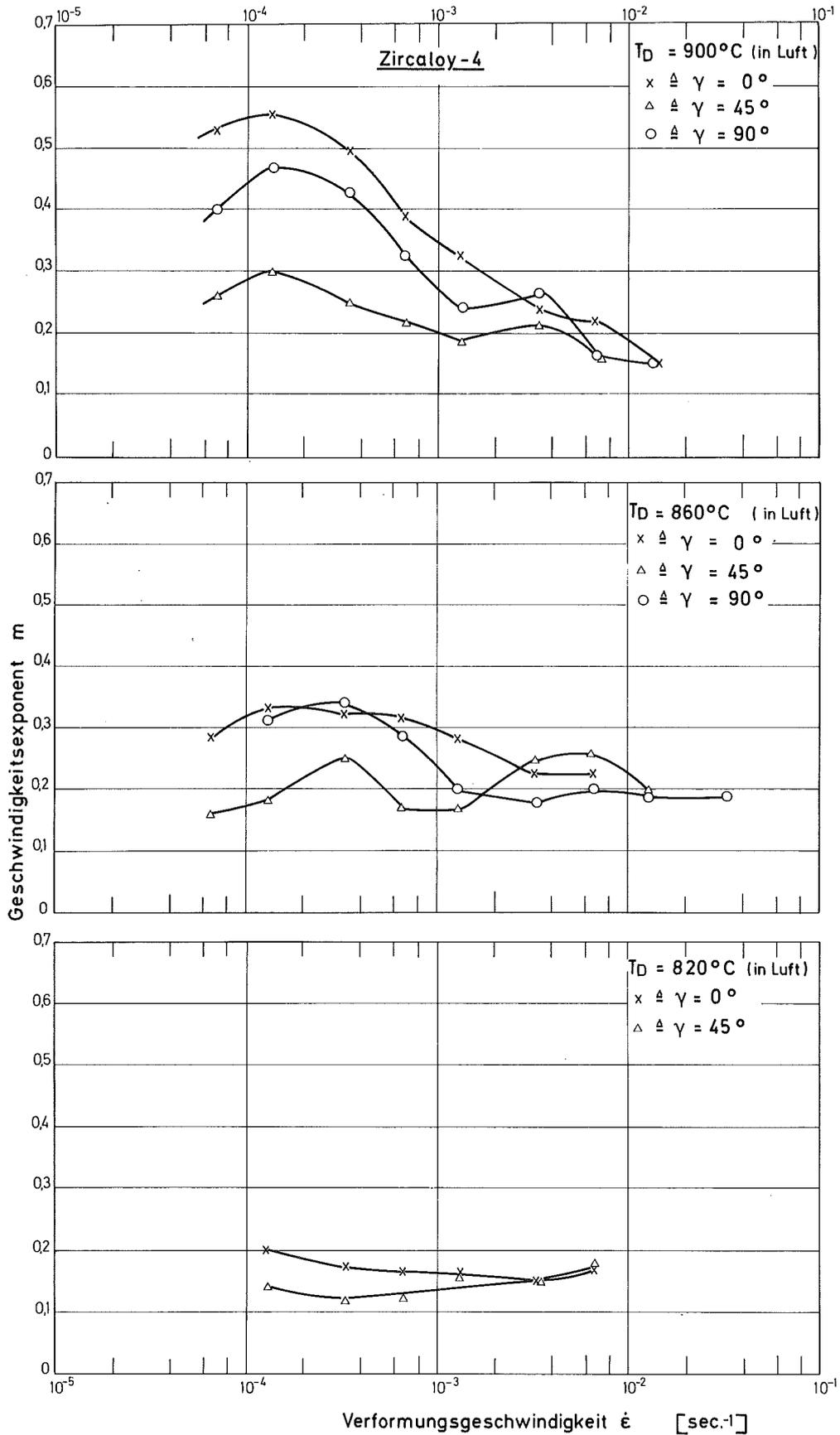


Abb. 4235-5 Der Geschwindigkeitsexponent als Funktion der Verformungsgeschwindigkeit für drei Temperaturen und drei Probenorientierungen

Zircaloy-4 (in Luft)

Verformungstemperatur  $T_D$

Verformungsgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}$

Geschwindigkeitsexponent  $m$

$T_D = 1200^\circ\text{C}$

$\dot{\epsilon} = 6,6 \times 10^{-4} [\text{s}^{-1}]$

$T_D = 860^\circ\text{C}$

$\dot{\epsilon} = 3,3 \times 10^{-4} [\text{s}^{-1}]$

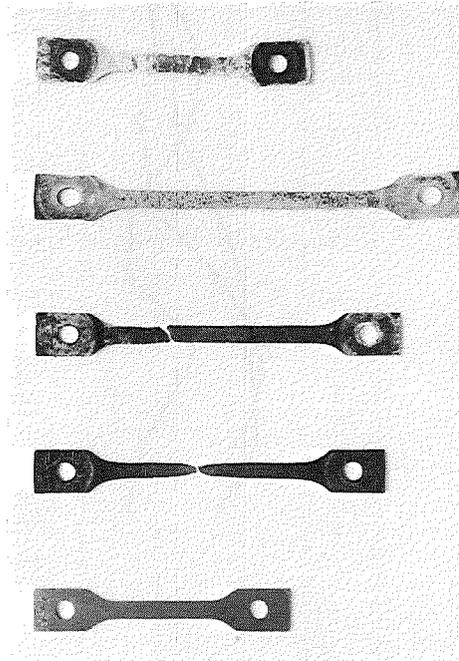
$T_D = 860^\circ\text{C}$

$\dot{\epsilon} = 6,6 \times 10^{-4} [\text{s}^{-1}]$

$T_D = 800^\circ\text{C}$

$\dot{\epsilon} = 3,3 \times 10^{-3} [\text{s}^{-1}]$

unverformt



$m = 0,5$

$m = 0,4$

$m = 0,25$

Abb. 4235-6 Das makroskopische Bruchverhalten von Flachzugproben

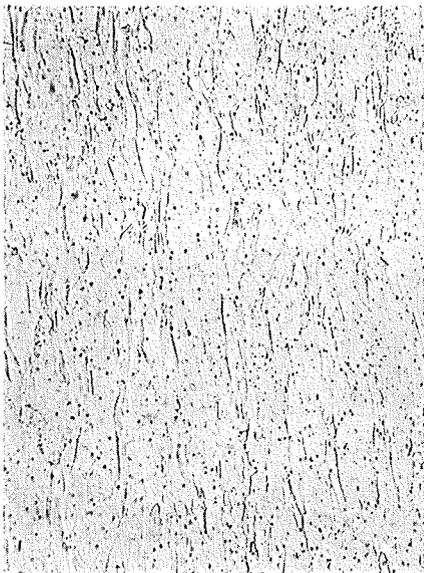
Zircaloy 4

Längsschliffe von Flachzugproben

*Normal plastisch*

$$T_D = 600^\circ\text{C}$$

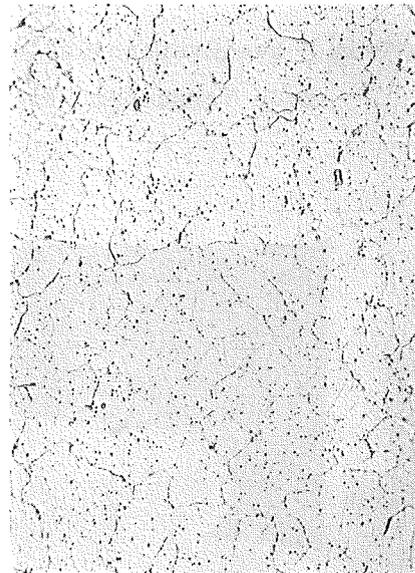
$$\dot{\epsilon} = 1,3 \times 10^{-4} \text{ [s}^{-1}\text{]}$$



*Super plastisch*

$$T_D = 860^\circ\text{C}$$

$$\dot{\epsilon} = 1,3 \times 10^{-4} \text{ [s}^{-1}\text{]}$$



20  $\mu\text{m}$

Abb. 4235-7 Längsschliffe aus der verformten Zone von Flachzugproben

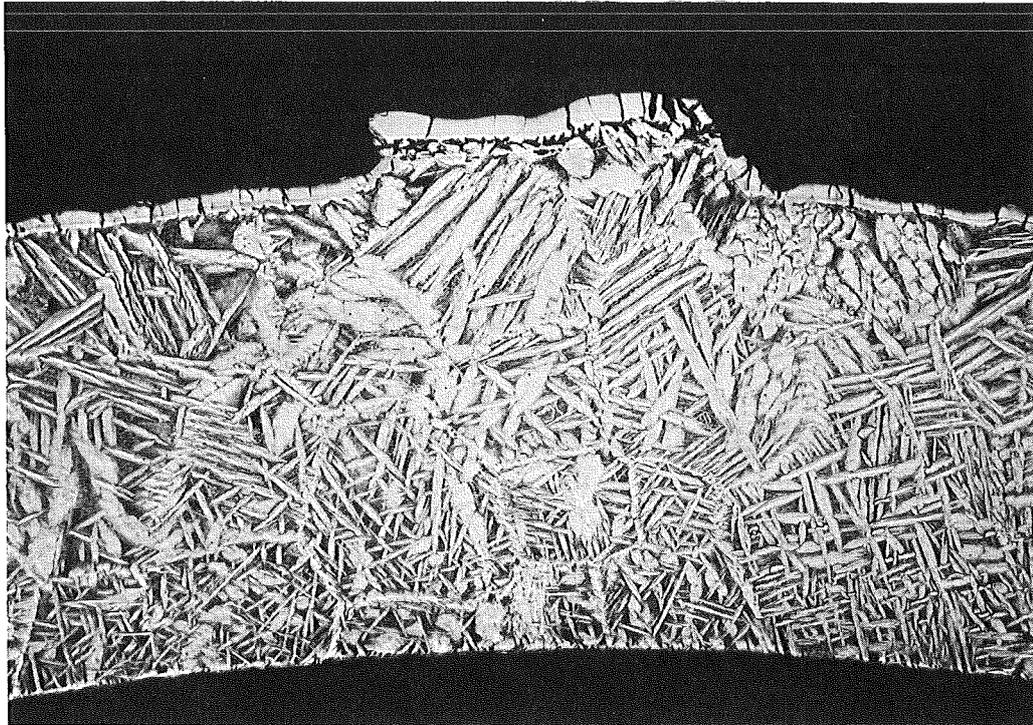


Abb. 4235-8a Schweißverbindung einer Befestigungsschelle an einem Probestab nach Versuchen bei höheren Temperaturen in Dampf (100 x, geätzt)

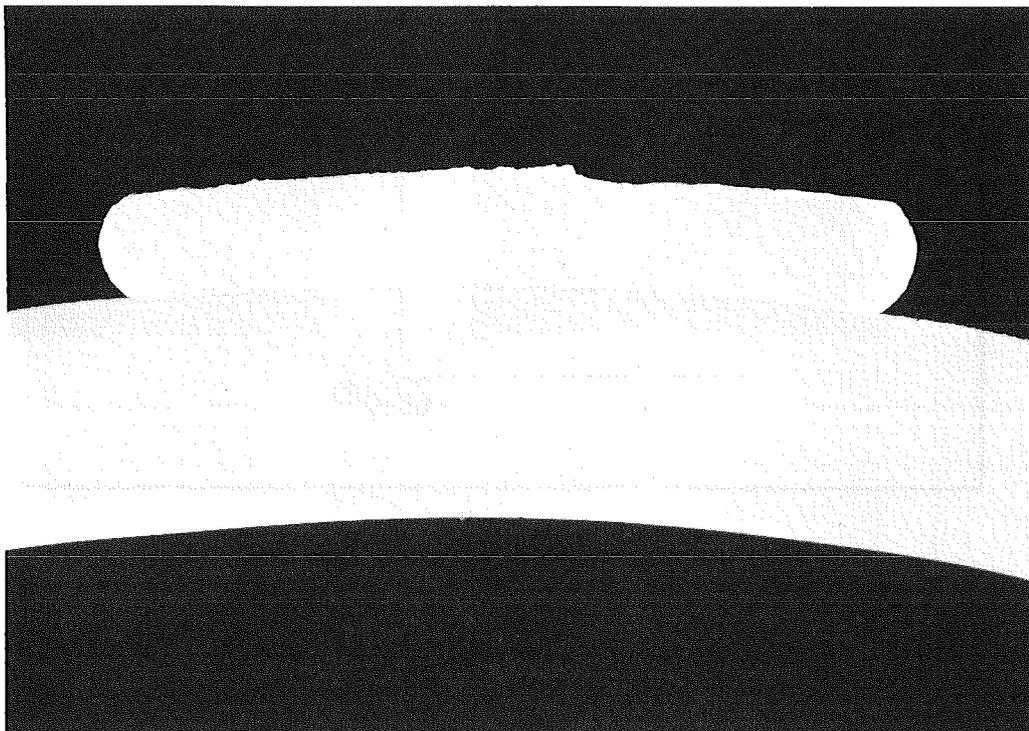


Abb. 4235-8b Schweißverbindung eines Pt-Mantelthermoelementes mit dem Hüllrohr (50 x, ungeätzt)

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von  
Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall  
(S. Leistikow, H. v. Berg, D. Jennert, R. Kraft u. G. Schanz)

### 1. Kinetische Untersuchungen

#### 1.1 Auswertung der Meßergebnisse eigener Oxidationsversuche

Die Ergebnisse von Oxidationsversuchen an Hüllrohrproben aus Zircaloy 4 wurden zur Ermittlung der Oxidationskinetik und zum Vergleich mit den Ergebnissen anderer Experimentatoren ausgewertet.

Die aufzubereitenden Daten resultieren aus Versuchen mit transienter Temperaturführung: Die Proben werden in dem vorgeheizten Ofen eingeschoben und erreichen nach einer kurzen Aufheizphase (maximaler Temperaturanstieg ca.  $50^{\circ}/\text{sec}$ ) die Versuchstemperatur, von der sie nach 2, 5 und 15 Minuten Reaktionszeit abgeschreckt werden. Als Beginn der Reaktionszeit wird der Zeitpunkt festgesetzt, zu dem 90% des Temperaturanstiegs durchlaufen sind. Aufgrund dieser Definition entsprechen die Ergebnisse etwa denen, die bei einer idealisierten isothermen Versuchsführung ohne Aufheizphase und ohne Überschwingen der Temperatur durch Freiwerden der Reaktionswärme zu erwarten wären. Die Reaktionstemperaturen ( $900-1300^{\circ}\text{C}$ ) werden durch ein an der Innenwand der korrodierenden Rohrprobe anliegendes Thermoelement gemessen. Die Proben werden in strömendem Dampf einer Geschwindigkeit von ca.  $1 \text{ m/s}$  beidseitig oxidiert.

Als Meßergebnisse stehen für alle Versuche die Gewichtszunahme der rückgewogenen Proben und für einen Teil der Versuche mit 5 und 15 Minuten Reaktionszeit die metallographisch ermittelten Schichtdicken des Oxids und der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Phase zur Verfügung. Einwachsungen der  $\alpha$ - in die  $\beta$ -Phase wurden planimetrisch vermessen und die daraus bestimmte mittlere Dicke getrennt berücksichtigt.

Die Meßdaten Gewichtszunahme bzw. Schichtdicken wurden zunächst gegen die Temperatur aufgetragen, um graphisch die Mittelwerte für 900, 1000, 1100, 1200 und  $1300^{\circ}\text{C}$  bestimmen zu können, da diese Temperaturen im Versuch nicht immer exakt erreicht worden waren. Diese Mittelwerte wurden gegen die Wurzel aus der Reaktionszeit aufgetragen (Bild 4235-9 und 4235-10).

Wie aus Bild 4235.9 zu ersehen ist, läßt sich der Gewichtszunahme-Zeit-Verlauf bis 15 Minuten Reaktionszeit für alle Temperaturen durch Geraden darstellen, die im Streubereich der Einzelmeßwerte liegen. Das parabolische Zeitgesetz ist somit eine gute Näherungsfunktion zur Beschreibung des Gewichtszunahme-Zeit-Verlaufs. Zum Vergleich sind Ausgleichsgeraden für 1200°C eingetragen, die auf Zeitgesetzen nach Baker u. Just, Lemmon und Hobson beruhen sowie Einzelmeßwerte nach ORNL. Während die Meßwerte etwa denen dieser Arbeit entsprechen, sind die Zeitgesetze im Vergleich zu unseren Messungen als konservativ zu betrachten.

Entsprechend der im Bild 4235-9 ausgewiesenen Sauerstoffaufnahme läßt Bild 4235-10 erkennen, daß das zeitliche Wachstum der Doppelschicht Oxid +  $\alpha$ -Phase mit guter Näherung ebenfalls durch ein parabolisches Zeitgesetz beschrieben werden kann. Die Berücksichtigung der mittleren Dicke der Einwachungen der  $\alpha$ - in die  $\beta$ -Phase ergibt jedoch einen zusätzlichen, in Bild 4235-10 durch Schraffur hervorgehobenen Beitrag, der mit der Zeit und der Temperatur stark ansteigt.

Aus den in Bild 4235-9 gezeigten Ausgleichsgeraden läßt sich durch Quadrieren der Geradensteigung und Umrechnung der Gewichtszunahme auf die konsumierte Metallmenge (unter der Annahme des vollständigen Umsatzes zu Oxid) die parabolische Geschwindigkeitskonstante der Oxidationsreaktion für die verschiedenen Temperaturen errechnen. In Bild 4235-11 ist die Geschwindigkeitskonstante gegen die reziproke absolute Temperatur aufgetragen (Arrhenius-Auftragung). Im untersuchten Temperaturbereich läßt sich die Temperaturabhängigkeit der Geschwindigkeitskonstante durch ein Exponentialgesetz mit einheitlicher Aktivierungsenergie beschreiben. Zum Vergleich sind gemäß den Zeitgesetzen nach Baker u. Just sowie Klepfer /3/ die entsprechenden Geraden eingetragen. Auch in dieser Darstellung kommt zum Ausdruck, daß die genannten Zeitgesetze eine konservative Beschreibung der Zircaloy-Oxidation darstellen.

Aus dem in Bild 4235-10 dargestellten Wachstum der Doppelschicht Oxid +  $\alpha$ -Phase läßt sich eine gemäß der Näherungsbeziehung  $D = x^2/t$  ( $D$  = Diffusionskonstante,  $x$  = Diffusionsweg,  $t$  = Zeit) definierte "mittlere Diffusionskonstante" errechnen, um das Schichtwachstum zu beschreiben. Diese "Diffusionskonstante" ist in Arrhenius-Auftragung in Bild 4235-12 dargestellt, zusammen mit entsprechenden Werten nach Hobson und Rittenhouse /4/,

die in guter Übereinstimmung mit den eigenen Daten stehen. (Aus Gründen des Vergleichs mit den ORNL-Daten ist als Diffusionsweg die Dicke der Doppelschicht Oxid+ $\alpha$ -Phase verwendet worden und nicht das von der ursprünglichen Probenoberfläche aus gemessene Eindringen der  $\alpha$ -Phase).

Die Arrhenius-Auftragung der Geschwindigkeitskonstante (Bild 4235-11) ergab eine Aktivierungsenergie von etwa 47 kcal/Mol (45,5 kcal/Mol nach Baker u. Just), die der "mittleren Diffusionskonstante" (Bild 4235-12) ergab ca. 51 kcal/Mol.

Literaturwerte /5/ für die Aktivierungsenergien der Diffusion in  $ZrO_2$  und  $\alpha$ -Zr im hier interessierenden Temperaturbereich sind ca. 28-33 kcal/Mol für die Diffusion von Sauerstoff in  $ZrO_2$  und ca. 41-51 kcal/Mol für die Diffusion in  $\alpha$ -Zirkon. Der Vergleich mit den aus den eigenen Messungen resultierenden Daten legt den Schluß nahe, daß sowohl die Sauerstoffaufnahme als auch die Geschwindigkeit des Wachstums der Doppelschicht Oxid +  $\alpha$ -Phase wesentlich durch die Sauerstoffdiffusion in der  $\alpha$ -Phase mitbestimmt werden.

## 1.2 Computerberechnung im Vergleich mit Meßergebnissen eigener Oxidationsversuche

Hierzu steht ein von Herrn Malang (IRB) entwickeltes Computerprogramm zur Verfügung, das die Berechnung von Diffusion und Wärmeleitung gestattet, und das von ihm in Zusammenarbeit mit ORNL für die Berechnung der Oxidation von Zircaloy erprobt ist. Mit diesem Code wurde die Oxidation von Zircaloy-Rohrmaterial unter isothermen Bedingungen bei 900, 1000, 1100, 1200 und 1300°C und maximal 15 Minuten Reaktionszeit berechnet, um die Ergebnisse mit einem Datensatz aus eigenen Experimenten vergleichen zu können.

Der Computercode berechnet, ohne idealisierte Annahmen zur Oxidationskinetik zu benötigen, aus Diffusionskoeffizienten und Gleichgewichtskonzentrationen im System Zirkon-Sauerstoff die Sauerstoffaufnahme, das Wachstum der Oxidschicht und der sauerstoffstabilisierten  $\alpha$ -Phase sowie das Sauerstoff-Konzentrationsprofil in der Probe unter den jeweils eingegebenen Randbedingungen. Als solche wurden die Probenabmessungen, die ursprüngliche Sauerstoffkonzentration sowie unbegrenztes Dampfangebot vorgegeben. Von den Ausgabedaten wurden die Sauerstoffaufnahme und die Schichtdicken von

Oxid und  $\alpha$ -Phase zum Vergleich mit eigenen experimentellen Daten herangezogen. Die Versuchsführung der Experimente entspricht aufgrund der Definition des Reaktionsbeginns (Zeitpunkt, zu dem 90% des Temperaturanstiegs bei der Aufheizphase durchlaufen sind) mit guter Näherung einem idealisiert isothermen Versuch.

Bild 4235-13 zeigt <sup>als</sup> ein Ergebnis des Vergleichs die Gewichtszunahme als Funktion der Oxidationszeit mit der Temperatur als Parameter. Die ausgezogenen Kurven stellen den computerberechneten Verlauf der Gewichtszunahme dar, die graphisch bestimmten Mittelwerte der experimentell gefundenen Gewichtszunahmen und der zugehörige Streubereich der Meßwerte sind ebenfalls eingetragen. Die experimentellen Werte stimmen gut mit den nach dem Code errechneten überein, insbesondere im Temperaturbereich 1000 bis 1200°C und in der Zeitabhängigkeit. Für 1300°C liegen die errechneten Werte um etwa 10% niedriger, für 900°C um etwa 30 bis 60% höher als die experimentellen Daten. Aus dieser Tendenz ist zu erwarten, daß die Optimierung der dem Code zugrundeliegenden Diffusionsdaten, die vom IRE durchgeführt werden soll, eine noch bessere Übereinstimmung erbringen kann.

Eine recht gute Übereinstimmung der metallographisch gemessenen Schichtdicken von Oxid und  $\alpha$ -Phase mit den Ergebnissen der Computerberechnung bestätigt im wesentlichen den für die Gewichtszunahme beschriebenen Befund.

### 1.3 Transiente Oxidationsversuche unter verminderter Dampfgeschwindigkeit

Diese Versuche sollten zeigen, in welchem Maße sich geringere Strömungsgeschwindigkeiten des Wasserdampfes als die bislang angewandten auf die Hochtemperatur-Oxidation von Zircaloy 4-Rohrmaterial auswirken. Bisher wurden sämtliche Versuche bei einer Dampfgeschwindigkeit von 100 cm/sec durchgeführt.

1. Bei der Absenkung der Dampfgeschwindigkeit auf 22 cm/sec konnte ein leichter Abfall der Sauerstoffaufnahme bis knapp unterhalb des Streubandes unserer Standard-Dampfgeschwindigkeit festgestellt werden.
2. Eine weitere Absenkung der Dampfgeschwindigkeit auf 7 cm/sec ergab schließlich einen deutlichen Rückgang der Sauerstoffaufnahme, vor allem bei kurzen Haltezeiten. Dabei lag die Gewichtszunahme des sogen. Aufheizversuches, bei dem die Rohrproben innerhalb ca. 30 sec

von 180°C auf 1000°C gebracht und danach sofort abgeschreckt wurde, um 26,8% niedriger. Bei Haltezeiten von 2 und 5 Minuten wurde nur noch eine um 9,1 resp. 3,1% reduzierte Gewichtszunahme gemessen. Gegenüber den sog. Aufheizversuchen ohne Haltezeit, bei denen die Ofentemperatur um 200°C höher eingestellt wurde, konnte bei den Versuchen mit Haltezeiten die gewünschte Reaktionstemperatur erst über längere Aufheizzeiten erreicht werden. Dadurch erhöhte sich die Aufheizzeit bis 90% (900°C) der Endtemperatur (1000°C) auf 45 sec; die Haltezeit wurde jedoch jeweils schon ab 900°C gemessen.

#### 1.4 Transiente Oxidationsversuche mit nachgeordneter mechanischer Prüfung bei Raumtemperatur und 370°C

Zur mechanischen Prüfung oxidierteter Blechproben wurden 0,82 mm starke Flachzerreißproben bei 900-1200°C während 2, 5, 10 und 15 min Reaktionszeit der Hochtemperatur-Oxidation durch Wasserdampf ausgesetzt. Da aus technischen Gründen die mechanische Prüfung zum gegebenen Zeitpunkt nur an Luft durchgeführt werden konnte, beschränkten sich die Untersuchungen auf Raumtemperatur (RT) und 370°C.

Die Ergebnisse sind in der Abb. 4235-14 wiedergegeben. Sie lassen sich nicht ausschließlich durch die zunehmende Oberflächen- und Gefüge-Oxidation erklären und bedürfen noch der Überprüfung durch Messungen der mechanischen Eigenschaften im unoxidierten Zustand nach transienten Temperaturverläufen unterschiedlicher Dauer in Inertgasatmosphäre.

Die Kurvenverläufe der Zugfestigkeit steigen von unterschiedlichen Anfangswerten (260 resp. 510 N/mm<sup>2</sup>) gleichsinnig mit der Sauerstoffaufnahme zu flachen Maxima an, um schließlich wieder abzufallen. Die gemessenen Maximalwerte liegen etwa 31 resp. 12% über den Ausgangswerten.

Die Streckgrenzenmessungen zeigen in Abhängigkeit von der Sauerstoffaufnahme bei Raumtemperatur eine angenäherte linear ansteigende Tendenz, während sie bei 370°C über ein flaches Maximum (+ 57%) verlaufen und dann leicht abfallen.

Die Bruchdehnungen zeigen bei beiden Prüftemperaturen mit zunehmender Sauerstoffaufnahme einen steilen Abfall der Meßwerte, der sich sodann zunehmend verlangsamt und auf unterschiedlichem Niveau, das für die höhere Prüftemperatur deutlich höher liegt, dem Nullwert entgegenläuft.

Eine genauere Deutung der Versuchsergebnisse kann erst durch weitere Untersuchungen der oben vorgeschlagenen Art bei höheren Prüftemperaturen erfolgen, um für die Praxis gültige Aussagen zu liefern. Eine eventuelle Abhängigkeit der Kurvenverläufe von der Reaktionstemperatur der Voroxidation wird sich dann herausstellen.

## 2. Vorbereitende Untersuchungen

### 2.1 Voroxidation bei 350-450°C für nachfolgende transiente Hochtemperatur-Oxidationsversuche

Zum Aufbau von LWR-ähnlichen Oxidschichten durch Oxidation bei mittleren Temperaturen wurden Zircaloy 4-Rohrabschnitte bei 350, 400 und 450°C der Wasserdampf-Oxidation ausgesetzt. Erste Zwischenergebnisse dieser Langzeit-Voroxidationsversuche (2000 Std.) sind in der Tabelle zusammengestellt:

Temp. für Voroxidation [°C]	Schichtdicke des oxidierten Zircaloy 4 [µm]		
	500 Std	1000 Std	1500 Std
350	0,633 + 0,096 - 0,062	0,833 + 0,099 - 0,068	0,955 + 0,076 - 0,072
400	1,308 + 0,106 - 0,128	2,229 + 0,400 - 0,596	3,221 + 0,651 -
450	4,548 + 0,329 - 0,354	8,725 + 0,100 - 0,100	

Die maximal erreichten korrodierten Metallschichtdicken stellen etwa 1/2 des Langzeit-Metallverlustes während eines LWR-Brennstablebens dar.

### 2.2 Schweißverbindungen für die Druckzuleitung von Rohrkapseln

Im Rahmen der Korrosionsversuche an innendruckbeaufschlagten, einseitig verschlossenen Rohrkapselproben stellten die erforderlichen Schweißverbindungen zwischen Anschlußstopfen und Druckzuleitungsrohr an die Rohrproben, die bis zu Temperaturen von 1300°C druckdicht sein müssen, ein für die experimentelle Durchführung des Versuchsprogrammes entscheidendes Problem dar. Die Verbindungen wurden nach verschiedenen Verfahren hergestellt und im Anschluß daran einem Festigkeitsversuch, der in seinem Charakter einem Kurzzeit-Zeitstandversuch gleichkommt, bei Drücken zwischen 2 und 19 bar

und Temperaturen zwischen 900 und 1200° C an Luft unterworfen.

### 2.2.1 Autobrazing

Autobrazing ist ein Verfahren, das hinsichtlich der Ausführung zwischen Löten und Schweißen einzuordnen ist. Mit einem Elektronenstrahl wurde das höher schmelzende Niob auf Bindetemperatur gebracht und anschließend die Kante des bei niedrigerer Temperatur schmelzenden Zircaloy abgeschmolzen (Abb. 4235-15).

Im Eidgenössischen Institut für Reaktorforschung (EIR) in Würenlingen (DI. Wiedemann, Ing. Limon) (Schweiz) wurden auf diese Weise vier Proben mit dem Übergang V4A/Nb/Zr sowie zwei Proben mit V4A/Mo/Zr verschweißt. Davon war bei der Druckprüfung eine Probe des Types V4A/Mo/Zr an der Schweißnaht undicht.

Die restlichen fünf Proben blieben unter den in Tabelle 4235-1 angegebenen Versuchsbedingungen an den Schweißnähten dicht, so daß drei Proben bis zum Bruch (Abb. 4235-16.1) beansprucht werden konnten. Bei Prüfung der beiden anderen Proben wurde der Versuch zur schadlosen Erhaltung des gedehnten Zustandes abgebrochen.

Metallographische Untersuchungen zeigten später, daß im Versuch dichte Proben beim Abkühlen - offensichtlich durch thermische Spannungen - kurz hinter der Schweißnaht gerissen war.

### 2.2.2 Sprengschweißung

Bei der Sprengschweißung (Sprengplattierung) wird mittels einer Sprengladung ein Material meist anderer Zusammensetzung auf einen Trägerwerkstoff "geschossen". Die so erreichte Verbindung ähnelt stark der Diffusionsverschweißung.

Im Institut für Chemie der Explosiv- und Sprengstoffe in Berghausen (Dr. Prümmer) wurden einige Sprengschweißungen an Rohrproben des im folgenden beschriebenen Types 1.4828/Ti/Zr durchgeführt. Dabei wur-

de auf ein Rohr von 6 x 1 mm aus Werkstoff Nr. 1.4828 zuerst eine Titanhülse aufgesprengt. Titan wurde wegen der schnellen Beschaffbarkeit und im Vertrauen auf eine hinreichende Beständigkeit mit Edelstahl während sehr kurzen Einsatzzeiten gewählt. Über die Titanhülse wurde in einem zweiten Schuß die Zircaloyhülse, an welche die Rohrprobe angeschweißt war, geschossen. Abb. 4235-15 zeigt die über eine Titanzwischenlage hergestellte Verbindung zwischen Stahl und Zircaloy. Aus Tab. 4235-1 ist ersichtlich, daß sich von vier so hergestellten Proben zwei Stück während des Versuches von dem Basisrohr (Werkstoff Nr. 1.4828) ablösten, so daß nur zwei des in Abb. 4235-16.2 dargestellten Probentypes für Versuche zur Verfügung standen.

### 2.2.3 Verschweißung gleichen Materials

#### 2.2.3.1 Zircaloy-Ganzrohrproben

Die Verwendung langer, aus der heißen Prüfzone des Ofens herausragender, einseitig verschlossener Zircaloy-Rohre erwies sich als völlig ungeeignet. Bei einer der eingesetzten Proben trat die größte Dehnung und damit der Bruch außerhalb der heißesten Stelle (Tab. 4235-1) auf, außerdem entstanden über die Rohrlänge starke Rohrverbiegungen (Abb. 4235-16.3).

Die Abb. 4235-17 und -18 zeigen die metallographische Auswertung eines Ganzrohr-Probequerschliffs im heißesten, geborstenen Rohrabschnitt. Abb. 4235-17 zeigt drei Bilder des ungeätzten Anschliffs in verschiedenen Positionen der korrodierten äußeren Oberfläche, in denen

- ein lokal verstärkter ebenmäßiger Oberflächenangriff,
- mehrere örtliche Oxidschichtdurchbrüche mit verstärkter Oxidation und
- mäßige Oxidschichtbildung im Bereich stark gedehnter Wandung beobachtet werden konnte.

Abb. 4235-18 gibt im geätzten Anschliff zuerst das Ausmaß der ebenmäßigen Oberflächenoxidation und vergleichsweise die spannungsbedingte lokal verstärkte Oberflächen-Oxidation nach Primärschichtdefekten wieder.

#### 2.2.3.2 Zircaloy-Proben mit Zircaloy-Kapillardruckzuleitungen

Diese konnten wegen der bisher nicht beschaffbaren Zuleitungskapillarrohre noch nicht hergestellt werden. Allerdings läßt noch eine Anfrage bei Sandvik eine Liefermöglichkeit aus den USA erwarten.

#### 2.2.4 Verschweißungen mit ähnlichem Material (z.B. Titan)

Titan ist mit Zircaloy direkt verschweißbar. Mechanische Festigkeit und Oxidationsbeständigkeit, besonders der Schweißnaht Zr/Ti, lassen jedoch zu wünschen übrig. Aus diesem Grund wurde dieses Verfahren anfänglich nicht vorrangig behandelt. Erst die nachteiligen Ergebnisse der beschriebenen Verbindungsversuche und der Ausblick auf deren Kosten ließen eine diesbezügliche, verstärkte Aktivität berechtigt erscheinen. Sie führte nunmehr zu einer brauchbaren Lösung.

Die jetzt gewählte Ausführung basiert auf der Anwendung eines Doppelrohres. Im Inneren befindet sich das mit der Versuchsprobe verschweißbare Titan-Rohr, das zum Zweck der Sicherung der Formbeständigkeit und zum Korrosionsschutz außen von einem hochwarmfesten Stahlrohr (Werkstoff-Nr. 1.4571) umgeben wird. Es erwies sich, daß auf diese Weise die Durchbiegung des Titanrohres während des Versuches verhindert wurde, und daß die Oxidation des Titanrohres und der Schweißnaht (Abb. 4235-16.4) während der maximal vorgesehenen Einsatzzeit von 15 min durchaus erträgliches Ausmaß hatten.

Aus Tab. 4235-1 ist zu ersehen, daß sämtliche Schweißnähte dieser Art den Versuchsanforderungen entsprachen. Da auch die Herstellungskosten der Proben relativ günstig liegen, wird dieses Verfahren für weitere Versuche Anwendung finden.

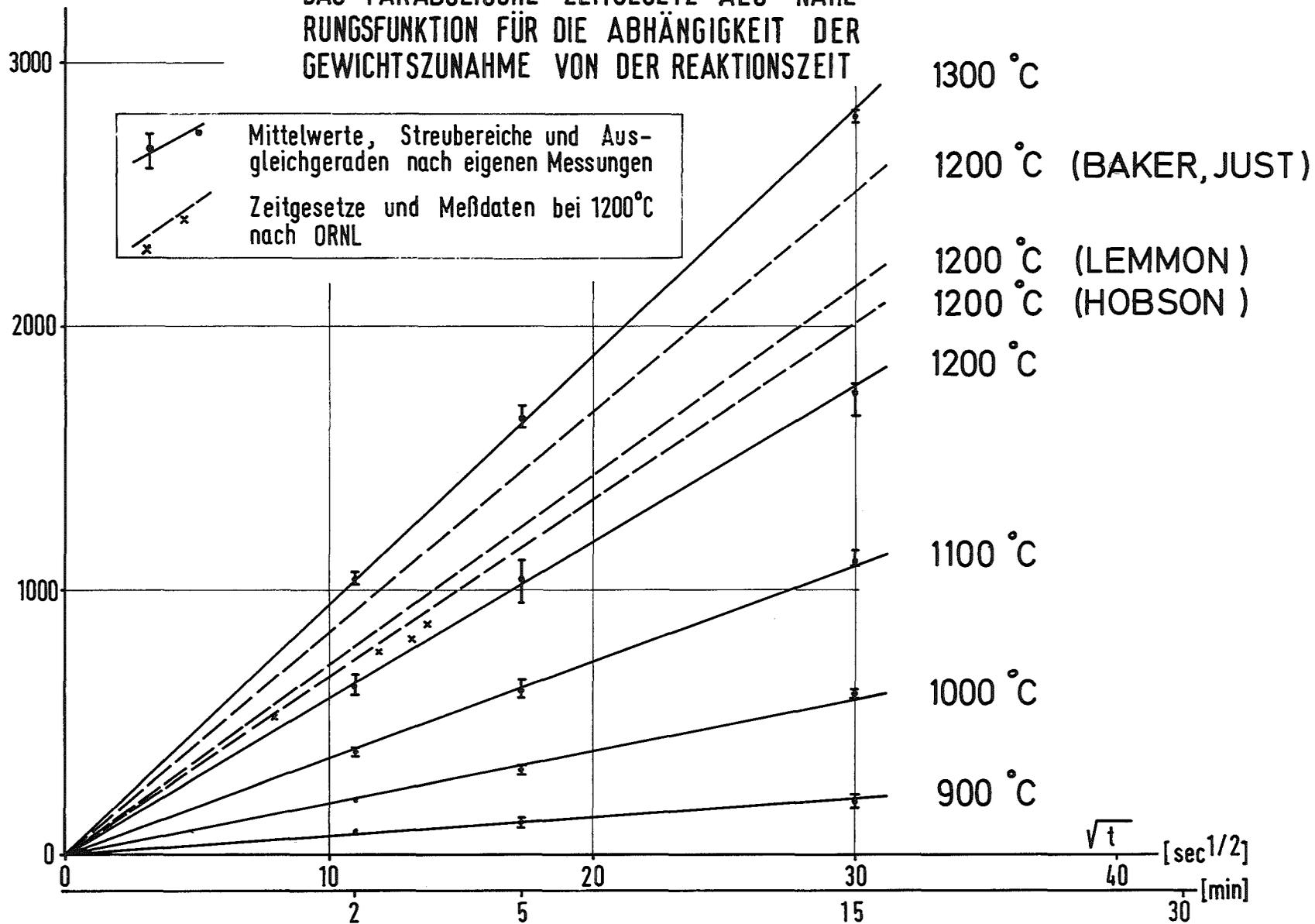
Probe	Verbindung	Einsatzzeit	Temp. °C	Druck bar	t kp/mm <sup>2</sup>	Schaden	Kosten* DM
1	V4A/Nb/Zr-Autobr.	26"	1200	19	1,2	an Probe	330,-
2	V4A/Nb/Zr-Autobr.	5' + 10'	1200 1200	2 6	0,1 0,4	kein Schaden	"
3	V4A/Mo/Zr-Autobr.	38"	1200	10	0,6	an Probe	"
4	V4A/Nb/Zr-Autobr.	30'	1200	3	0,2	kein Schaden	"
5	V4A/Nb/Zr-Autobr.	6'27"	1200	3	0,2	an Probe	"
6	1.4828/Ti/Zr-Spreng.	55"	1200	7,5	0,5	an Probe	330,-
7	1.4828/Ti/Zr-Spreng.	2'30" +1'16"	1200 1200	5 2	0,3 0,1	an Probe	"
8	1.4828/Ti/Zr-Spreng.	1'44"	1200	5	0,3	abgeschossen	
9	1.4828/Ti/Zr-Spreng.	1'20"	1200	3	0,2	abgeschossen	
10	Ganzrohr-Probe	1'24"	1200	5	0,3	Nähe h.Stelle	220,-
11	Ganzrohr-Probe	11'	1200	3	0,2	kalte Stelle	"
12	Ti-Zuleitung	9'30"	1200	3	0,2	an Probe	240,-
13	Ti-Zuleitung	11'	900	17,5	1,1	an Probe	"
14	Ti-Zuleitung	2'53"	1000	9,4	0,6	an Probe	"
15	Ti-Zuleitung	4'07"	1000	9,4	0,6	an Probe	"
16	Ti-Zuleitung	7'16"	1100	5,9	0,4	an Probe	"

\* Vorkalkulierte Kosten für teilweise erforderliches, zusätzliches Material und Schweißung (ohne Probe und Endstopfen, jedoch mit Zuleitung) je Probe -bezogen auf ca. 100 Stück

Gewichtszunahme  
[mg / dm<sup>2</sup>]

# ZIRCALOY 4 / DAMPF-HT- OXIDATION

DAS PARABOLISCHE ZEITGESETZ ALS NÄHERUNG  
FUNKTION FÜR DIE ABHÄNGIGKEIT DER  
GEWICHTSZUNAHME VON DER REAKTIONSZEIT



Stärke der Doppelschicht Oxid+ $\alpha$ -Phase  
[  $\mu\text{m}$  ]

### ZIRCALLOY 4/ DAMPF- HT-OXIDATION

DAS WACHSTUM DER DOPPELSCHICHT OXID +  $\alpha$ -PHASE IN ABHÄNGIGKEIT VON DER WURZEL AUS DER REAKTIONSZEIT

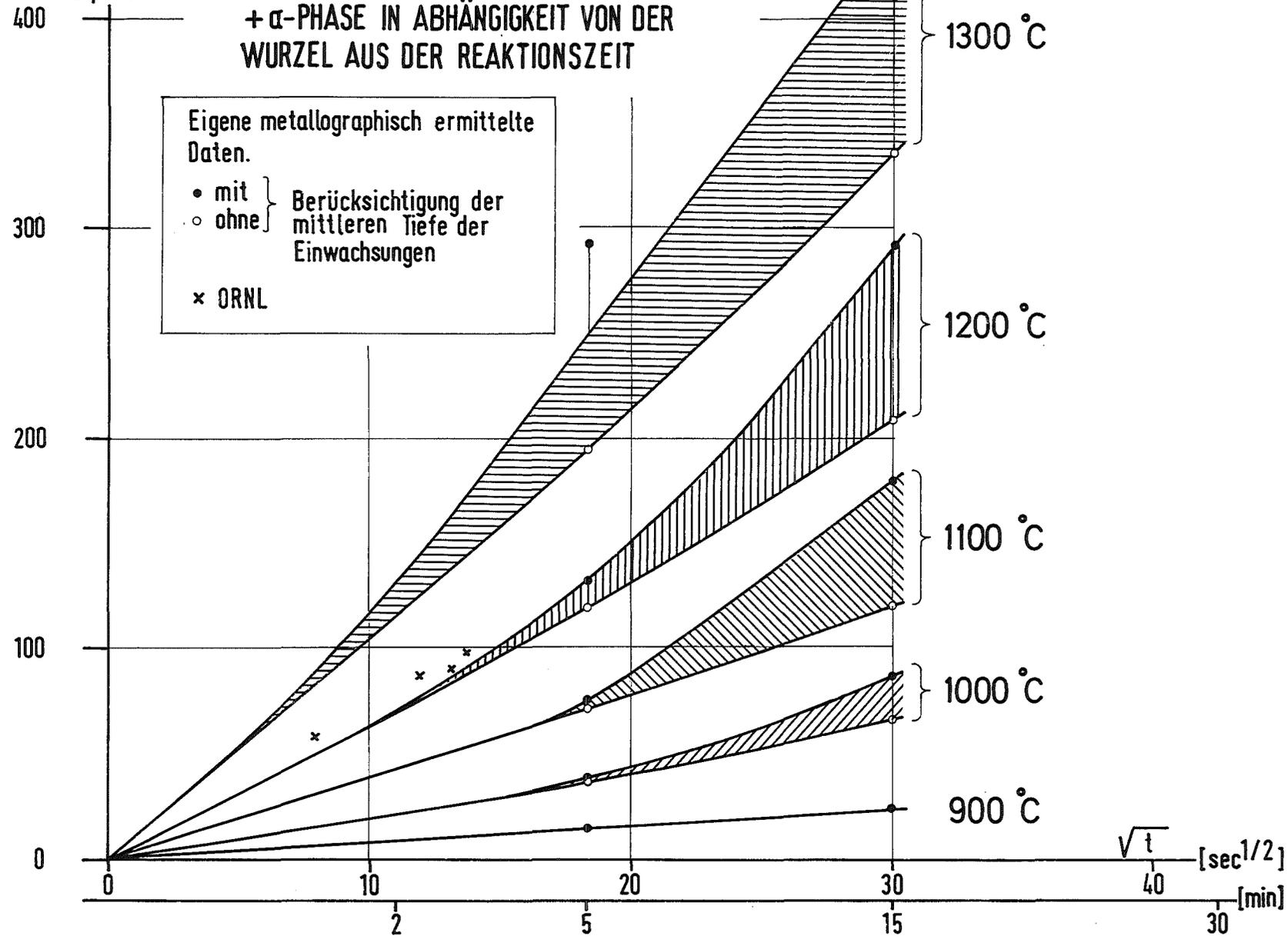
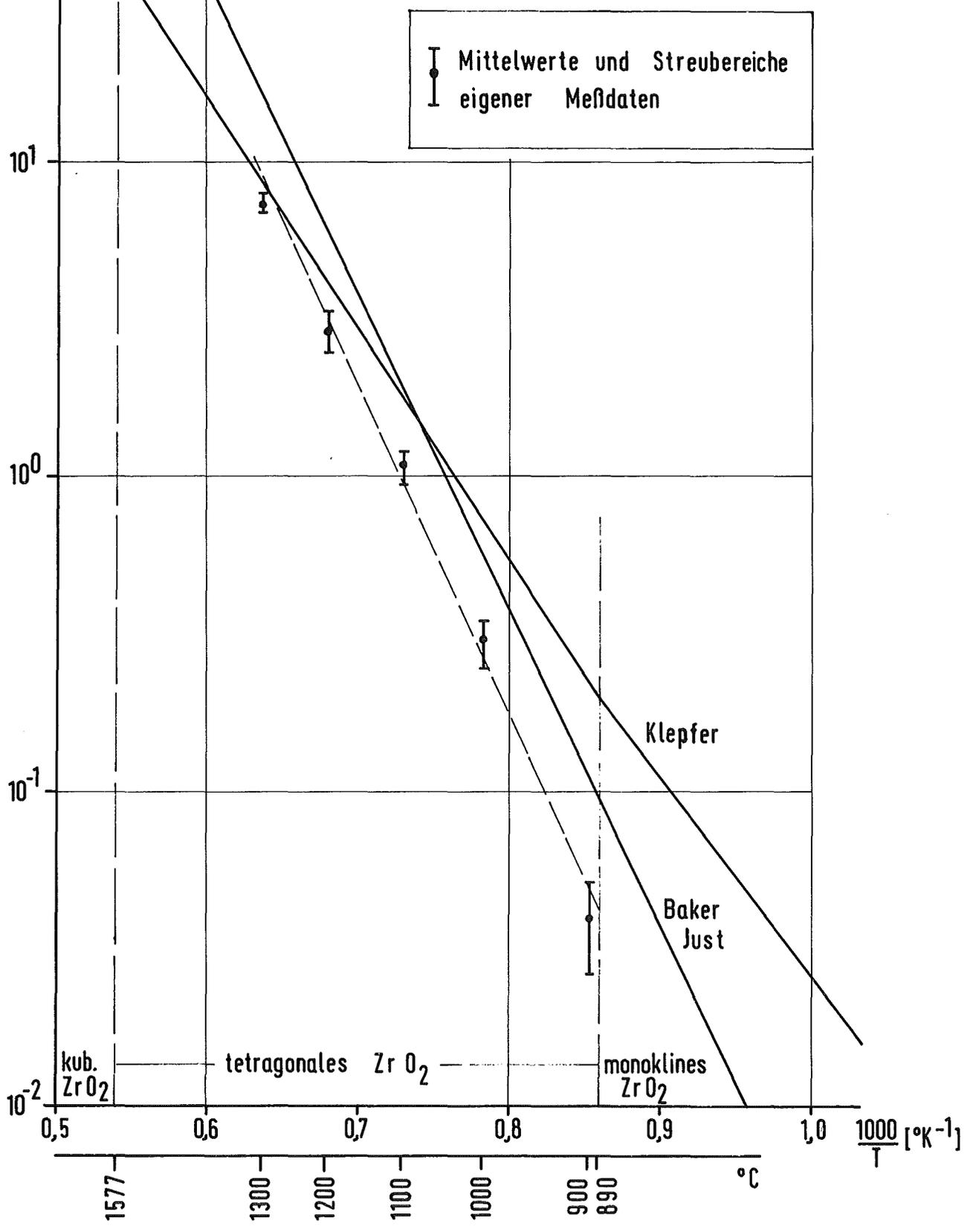


Abb. 4235-10

Geschwindigkeitskonstante  
 $K_p$  [(mg Zr/cm<sup>2</sup>)<sup>2</sup>/sec]

# ZIRCALOY 4/DAMPF - HT-OXIDATION

GESCHWINDIGKEITSKONSTANTE DER OXIDATIONSREAKTION  
 IN ABHÄNGIGKEIT VON DER TEMPERATUR

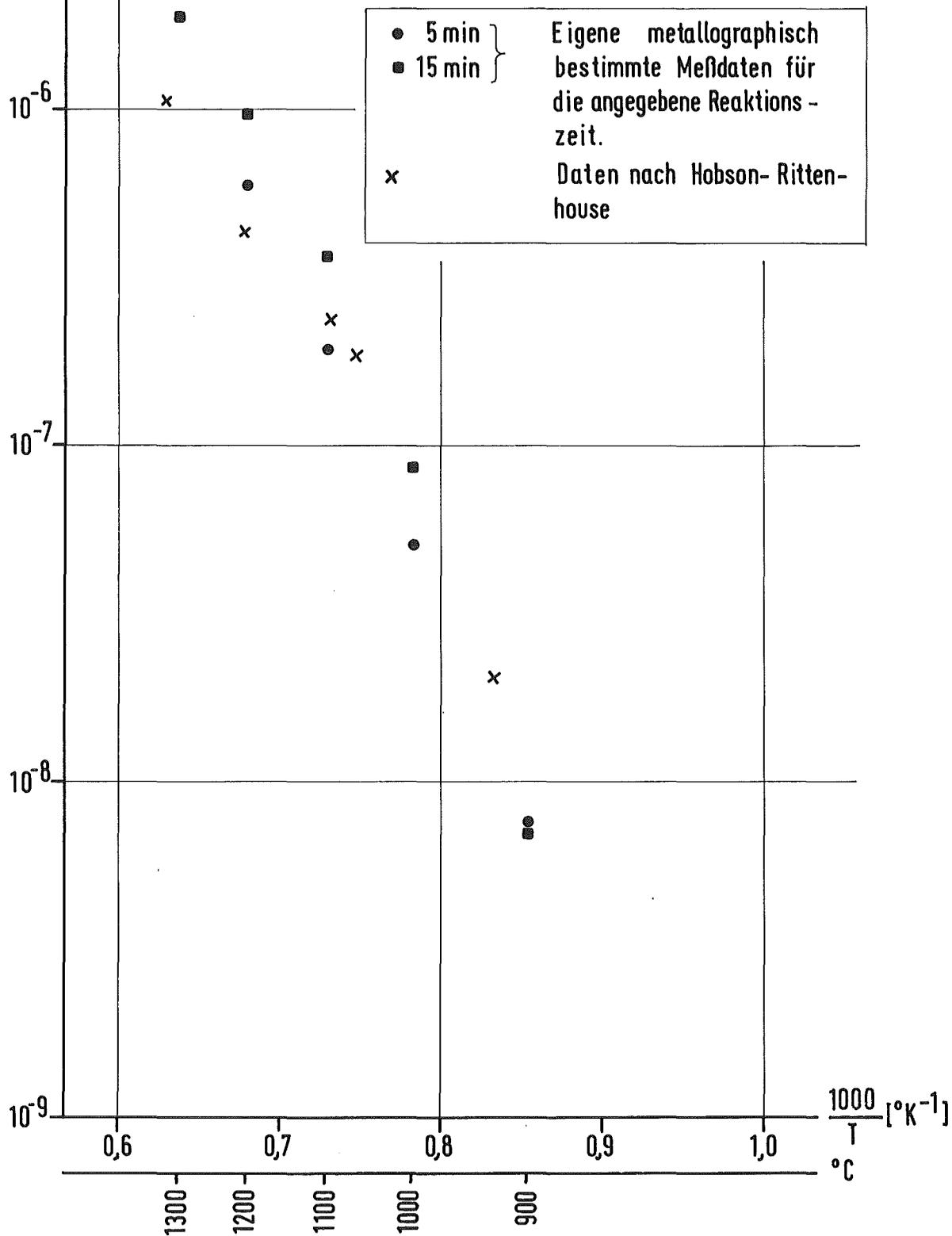


„Mittlere Diffusions-  
konstante“

[ cm<sup>2</sup>/sec ]

### ZIRCALOY 4/DAMPF-HT-OXIDATION

GESCHWINDIGKEITSBESTIMMENDE „MITTLERE  
DIFFUSIONSKONSTANTE“ FÜR DAS WACHSTUM  
DER DOPPELSCHICHT OXID + α-PHASE IN  
ABHÄNGIGKEIT VON DER TEMPERATUR



# ZIRCALOY 4 / DAMPF-HT-OXIDATION

Gewichtszunahme  
[mg/dm<sup>2</sup>]

VERGLEICH COMPUTERBERECHNETER UND  
TRANSIENT GEMESSENER GEWICHTSZU-  
NAHMEN ALS FUNKTION DER REAKTIONS-  
ZEIT (2-15min, 900-1300°C, 1at, 1m/sec)

2500

1271-1300°C

- - - Computerberechneter Verlauf  
 I Streubereich der Meßdaten  
 im angegebenen Bereich der  
 Meßtemperatur

2000

1300 ° C

1275-1300°C

1187-1200°C

1500

1200 ° C

1292 -  
1308°C

1000

1192-1215°C

1180-1187°C

1100 ° C

500

1090-1093°C

1087-1100°C

1000 ° C

995-1000°C

995-1010°C

900 ° C

900°C

900-910°C

987-1010°C

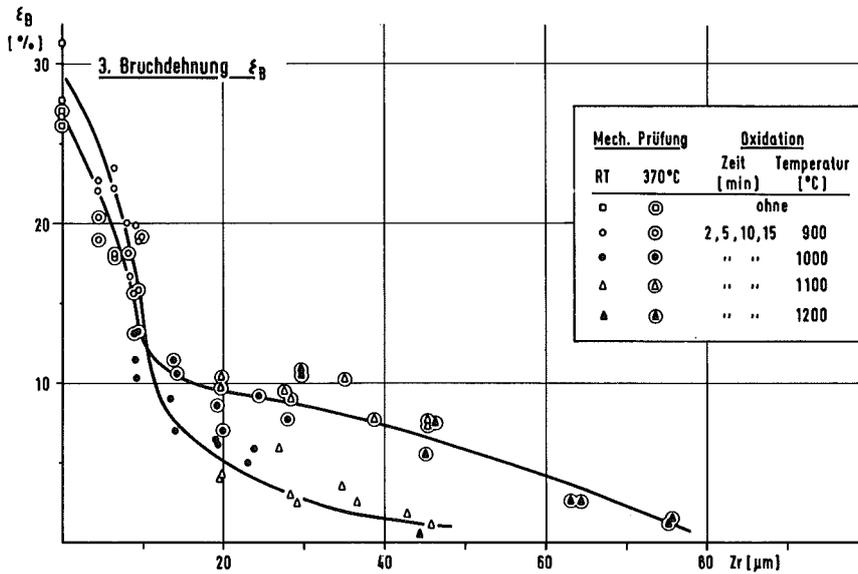
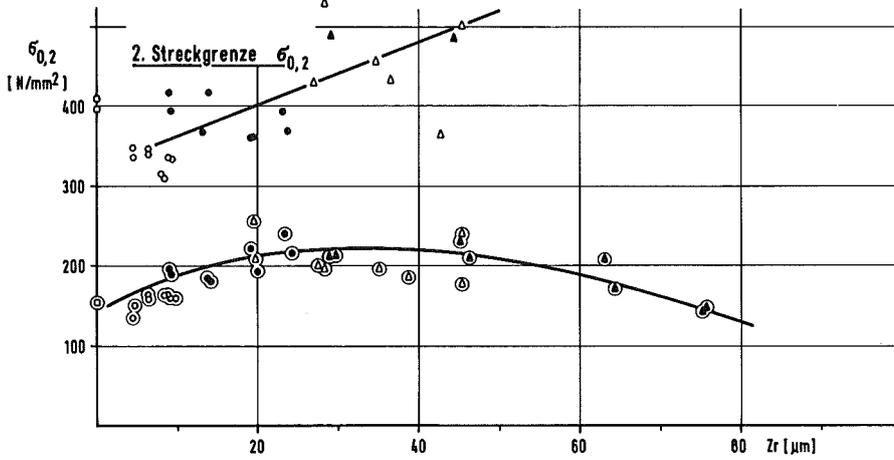
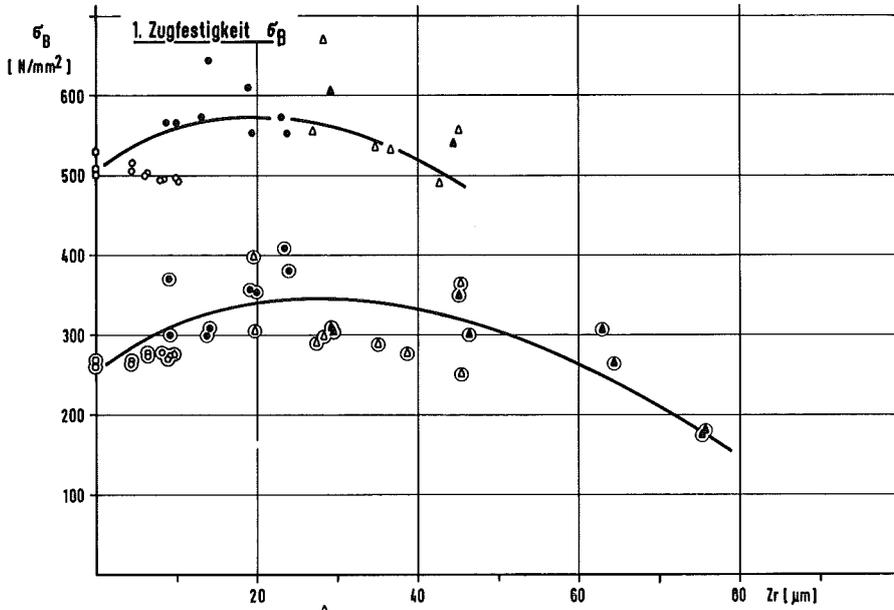
900-914°C

1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 [min]

JE

**MECHANISCHE EIGENSCHAFTEN VON ZIRCALOY 4-ZERREISSPROBEN NACH DAMPF-OXIDATION**

ALS FUNKTION DER AUFGENOMMENEN O<sub>2</sub>-MENGE RESP. OXIDIERTER Zr-SCHICHTDICKE  
 PRÜFTEMPERATUR: RT, 370°C



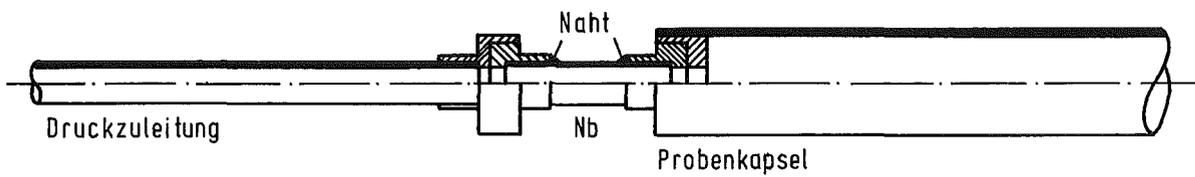
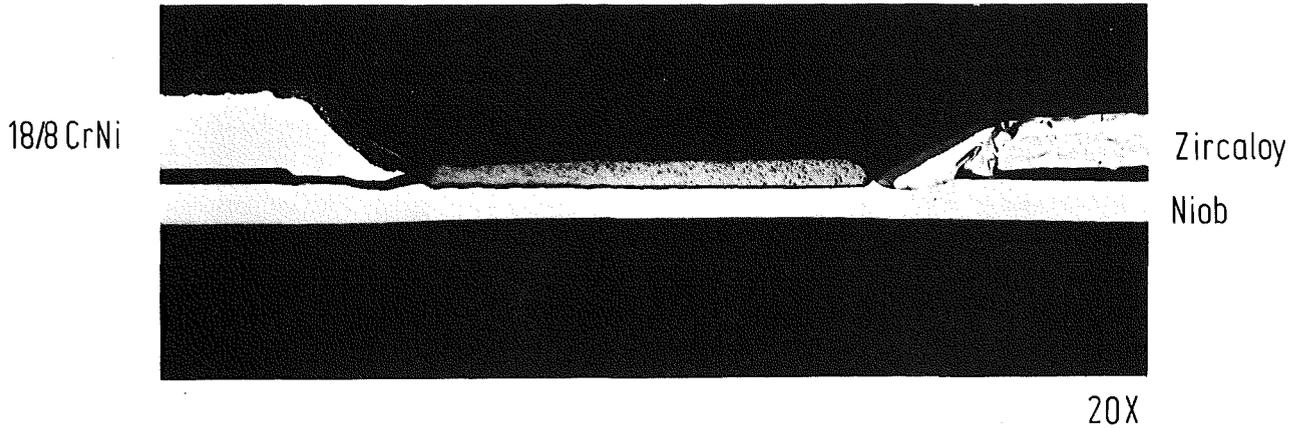
Mech. Prüfung		Oxidation	
RT	370°C	Zeit [min]	Temperatur [°C]
○	⊙	ohne	
○	⊙	2, 5, 10, 15	900
●	⊙	" "	1000
△	⊙	" "	1100
▲	⊙	" "	1200

# "AUTOBRAZING"-SCHWEISSVERSUCH

Abb.4235-15

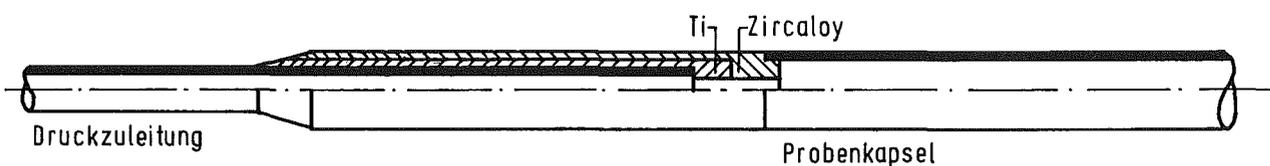
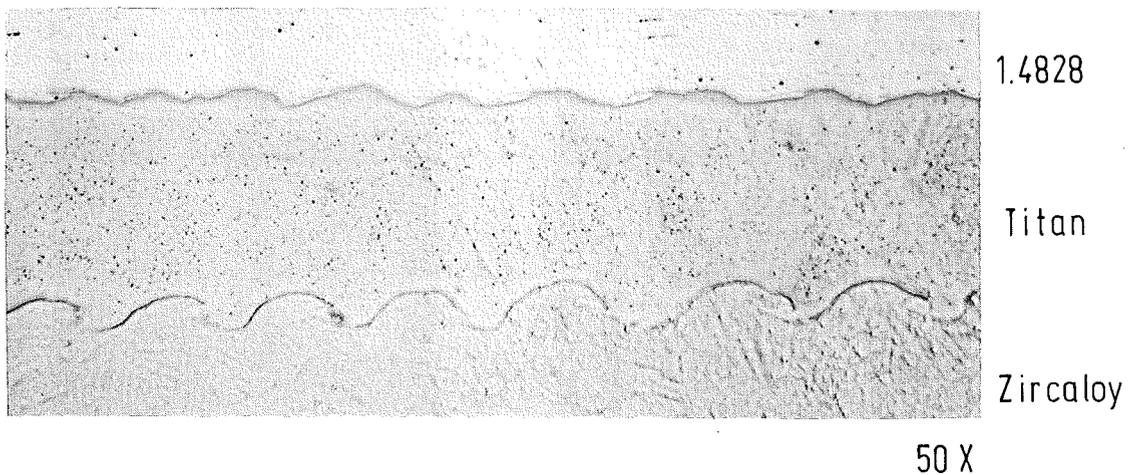
Einsatz: 5 min, 2 bar  $\approx 0,1 \text{ kp/mm}^2$ , 1200°C, +  
10 min, 6 bar  $\approx 0,4 \text{ kp/mm}^2$ , 1200°C  
in Dampf 1 bar

- 235 -



# SPRENGSCHWEISSVERSUCH

Einsatz: 55 sec, 7.5 bar  $\approx 0,5 \text{ kp/mm}^2$ , 1200°C  
in Luft 1 bar



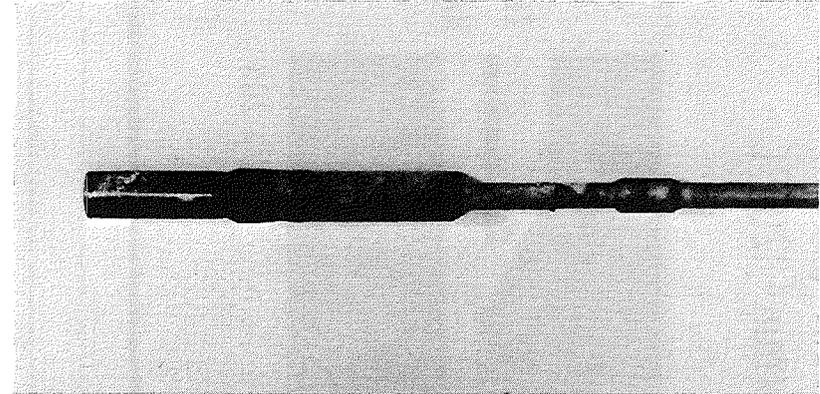
# SCHWEISSVERSUCHSPROBEN FÜR ZIRCALOY 4 / HT-INNENDRUCK - OXIDATIONSVERSUCHE NACH DEM EINSATZ IN LUFT

1



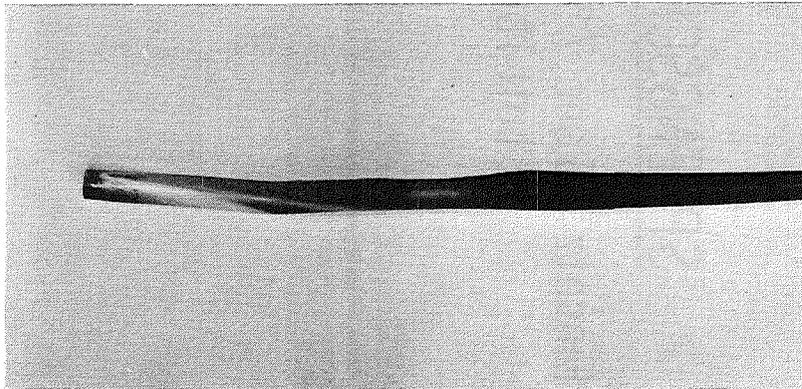
“Autobrazing”  
38 sec, 10 bar  $\approx 0,6 \text{ kp/mm}^2$ , 1200°C

2



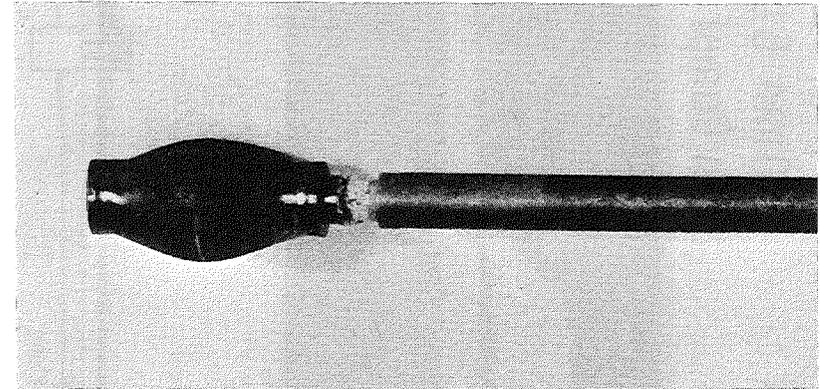
Sprengschweißung  
1 min 20 sec, 3 bar  $\approx 0,2 \text{ kp/mm}^2$ , 1200°C

3



“Ganzrohrprobe”  
11 min, 3 bar  $\approx 0,2 \text{ kp/mm}^2$ , 1200°C

4

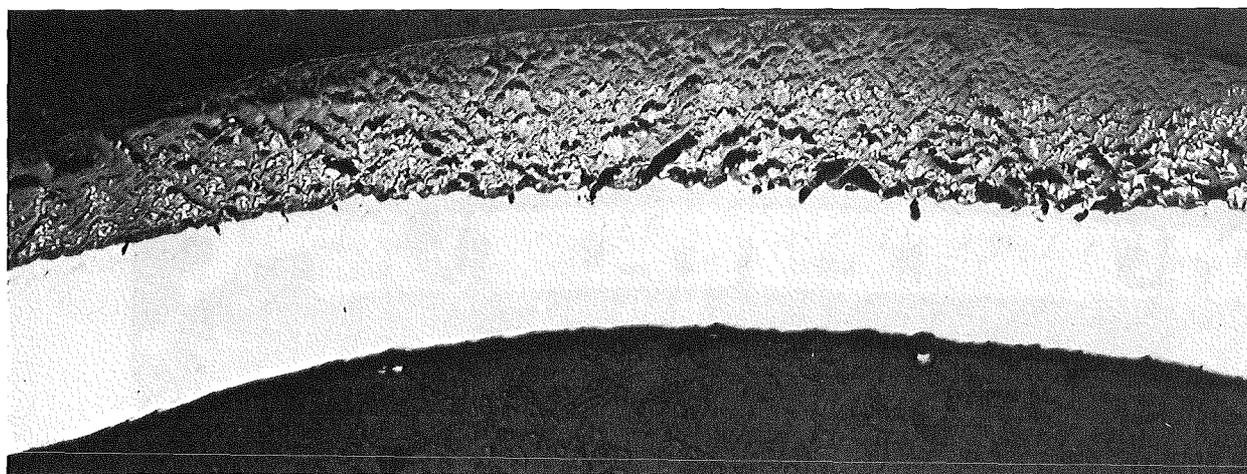


Probe mit Titanzuleitung  
7 min 16 sec, 5.9 bar  $\approx 0,4 \text{ kp/mm}^2$ , 1100°C

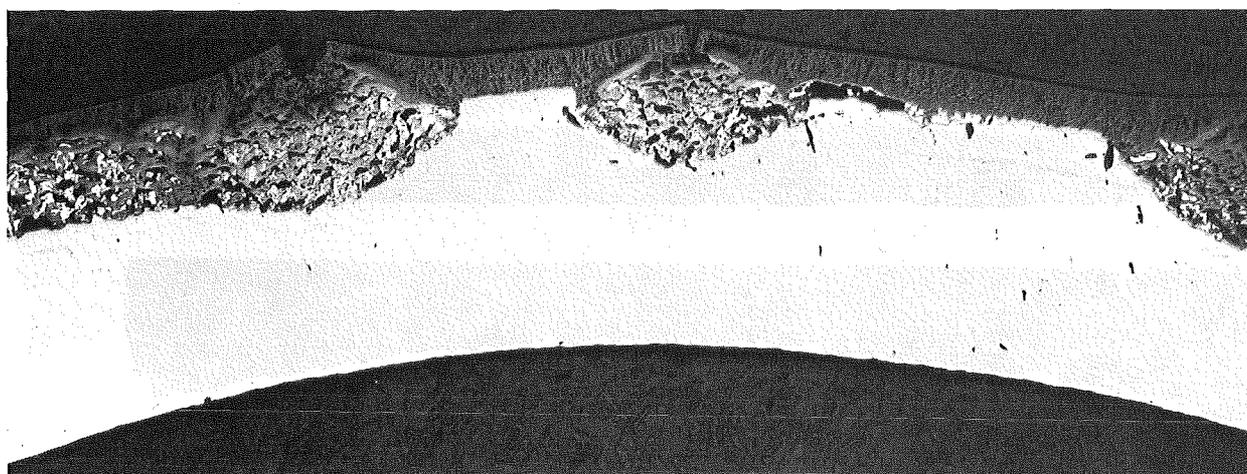
# ZIRCALOY 4/DAMPF-HT-OXIDATION

VORVERSUCHE AN ROHRKAPSELN UNTER  
ARGON-INNENDRUCK

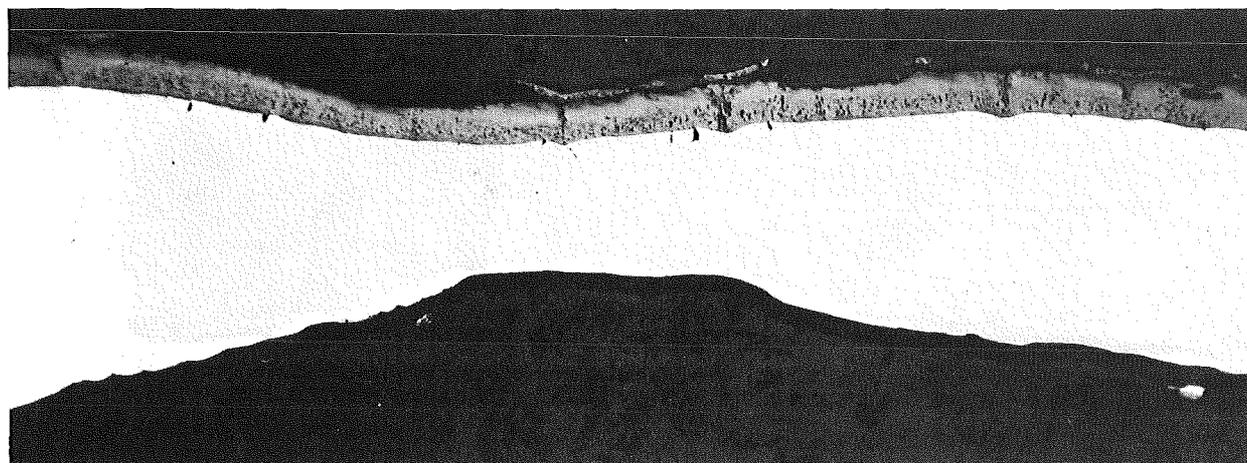
1'24" , 1200°C , 5 bar, Luft



50 X



50 X



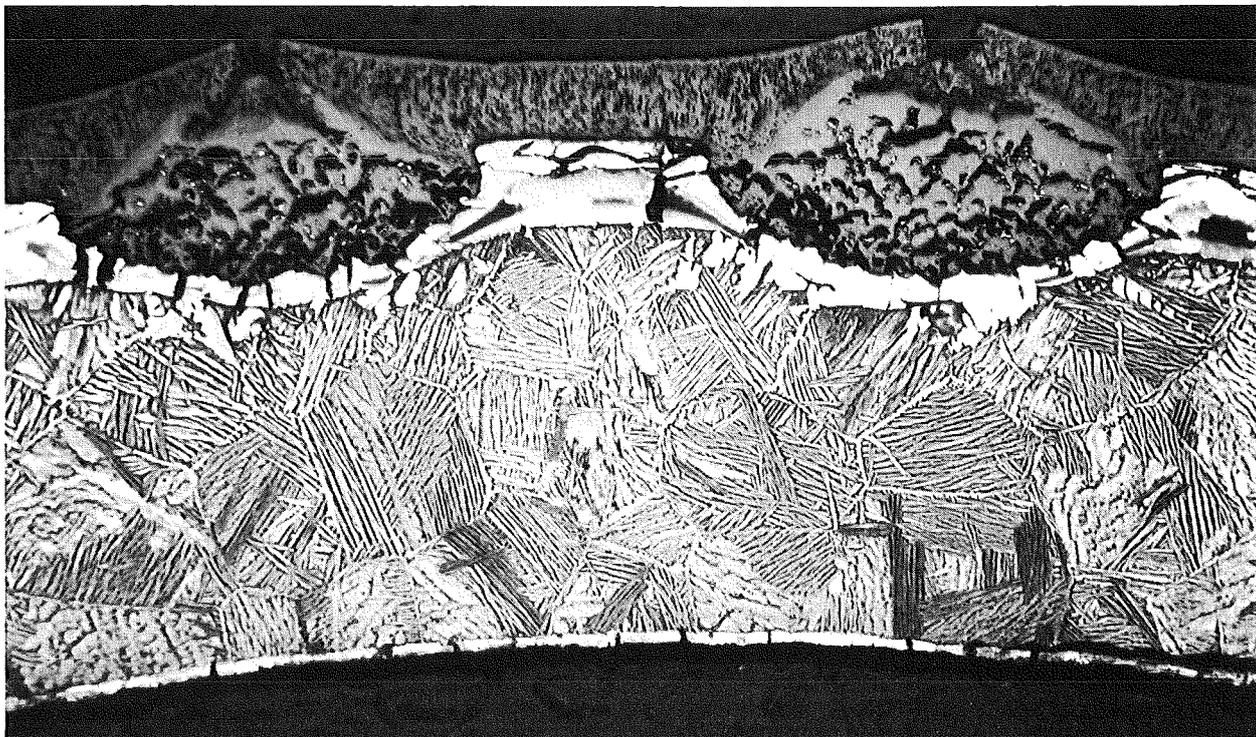
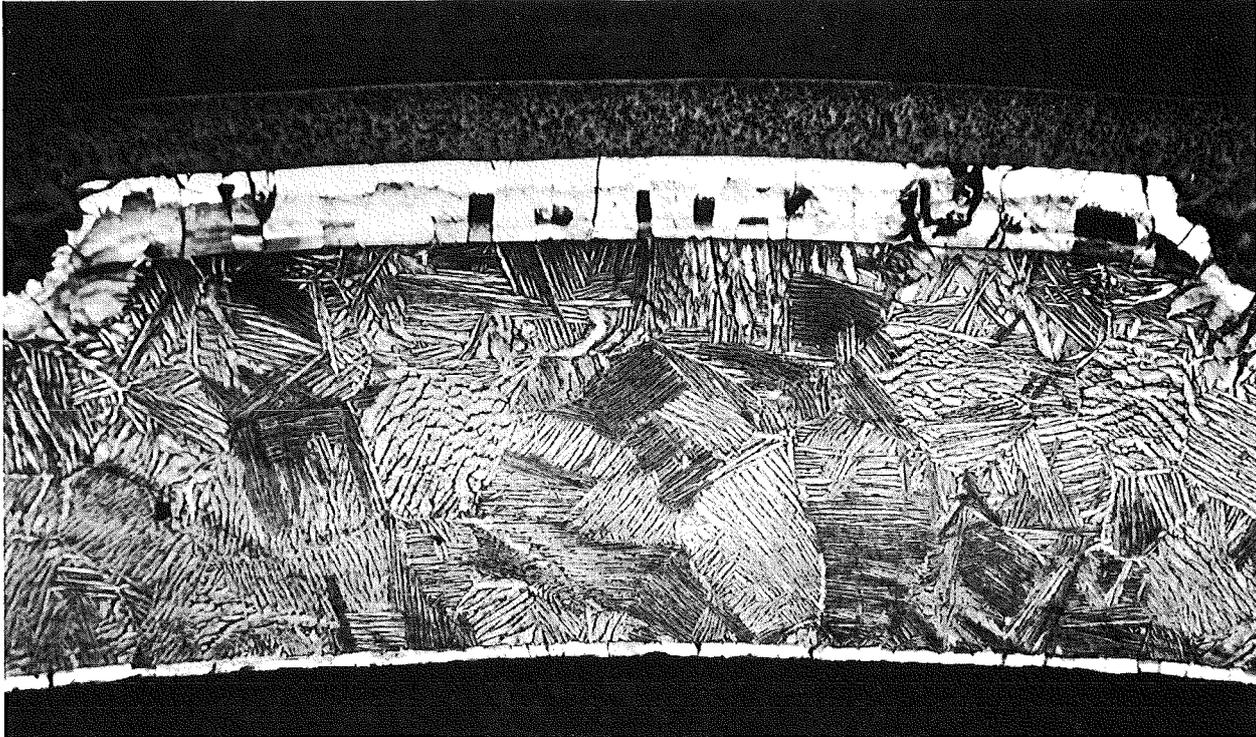
100 X

# ZIRCALOY 4/DAMPF-HT-OXIDATION

VORVERSUCHE AN ROHRKAPSELN UNTER  
ARGON-INNENDRUCK

1'24'', 1200°C, 5 bar, Luft

100 X



4235.3 Untersuchungen zur chemischen Wechselwirkung Brennstoff/  
Zircaloy-Hülle

(P. Hofmann, H. Metzger, B. Scheckel, IMF/I)

Während eines Kühlmittelverlustunfalls werden die mechanischen Eigenschaften des Zry-4-Hüllrohres durch das Sauerstoffpotential des Oxidbrennstoffes offenbar stärker beeinflusst als durch das Reaktionspotential der Spaltprodukte Cäsium, Jod und Tellur [6]. Es wurde deshalb im Berichtszeitraum die Änderung der mechanischen Eigenschaften von Zry-4 in Abhängigkeit des O/U-Verhältnisses und der spezifischen Oberfläche des  $UO_2$  ( $UO_2$ -Pellet, -Pulver), der Temperatur und der Aufheizgeschwindigkeit untersucht. Die Glühexperimente wurden unter Schutzgas durchgeführt. Der Innendruck im Hüllrohr entsprach bei Raumtemperatur dem Atmosphärendruck, d.h. die Druckverhältnisse sind für den Siedewasserreaktor spezifisch.

Zunächst wurden jedoch theoretische Abschätzungen über die max. mögliche Hüllinnenoxidation durch den bei der Kernspaltung des  $UO_2$  bzw.  $(U,Pu)O_2$  freigesetzten Sauerstoff durchgeführt.

Stöchiometrieverschiebung des Brennstoffs während des Abbrandes

Spaltproduktausbeute bei der Spaltung von U-235 und Pu-239

Um thermodynamische Betrachtungen über das komplexe Vielstoffsystem Hüllmaterial-Kernbrennstoff-Spaltprodukte anzustellen und Experimente mit simulierten Spaltprodukten durchführen zu können, ist es wichtig zu wissen, welche Spaltprodukte und in welcher Konzentration sie bei der Spaltung von Uran und Plutonium gebildet werden. Die Spaltproduktausbeute ist von verschiedenen Parametern, wie der Massenzahl des gespaltenen Isotops, dem Neutronenspektrum, der Dauer des Neutronenflusses, der Wirkungsquerschnitte für Neutroneneinfangsreaktionen und der Abklingzeit abhängig. Die Spaltproduktausbeute für die Spaltung der Nuklide U-235 und Pu-239 in Abhängigkeit der genannten Parameter wurde berechnet und in einem Bericht zusammengestellt [7].

Bei der Spaltung von U-235 und Pu-239 durch thermische Neutronen erhält man für eine Abklingzeit von 1 Jahr die in Tabelle 4235-1 angegebenen Spaltproduktausbeuten.

Spaltprodukte	Spaltproduktausbeute	
	U - 235	Pu - 239
Cs, Rb	22,95	21,63
Ba, Sr	16,04	9,35
Se, Te	2,98	3,83
I, Br	1,31	2,37
Kr, Xe	25,41	25,12
Ru, Rh, Pd	15,38	39,89
Lanthanide	48,79	43,64
Zr	31,13	19,39
Nb	0,19	0,16
Mo	24,73	23,83
Tc	6,16	5,90
Y	5,00	1,80

Tabelle 4235-1: Vergleich der Spaltproduktausbeuten in At % bei der Spaltung von U-235 und Pu-239 durch thermische Neutronen;  
Abklingzeit: 1 Jahr

Für Verträglichkeitsuntersuchungen ist es sinnvoll, die Spaltprodukte in Form chemischer Gruppen zusammenzufassen. Die Spaltproduktkonzentration dieser Gruppen (Alkalimetalle, Erdalkalimetalle, Lanthanide) ist dann nahezu unabhängig von der Bestrahlungs- und Abklingzeit [7].

Da in der Zukunft in LWR-Brennstäben auch Pu-239 als spaltbares Isotop verwendet werden soll, wurde es neben dem U-235 bei den thermodynamischen Abschätzungen berücksichtigt.

Thermodynamische Abschätzung des chemischen Zustandes der Spaltprodukte im Oxidbrennstoff

Bei der Kernspaltung eines oxidischen Brennstoffs wird Sauerstoff freigesetzt, der von den entstandenen Spaltprodukten, dem Kernbrennstoff und dem Hüllmaterial gebunden wird. In welchem Umfang der Sauerstoff mit den verschiedenen Substanzen reagiert, ist von der thermodynamischen Stabilität der Oxide, der Konzentration der sauerstoffbindenden Spaltprodukte und dem Ausgangs-O/M-Verhältnis des Brennstoffes abhängig (M=U,Pu). Die Art der Reaktionen wird durch die Größe der partiellen freien Enthalpie  $\Delta\bar{G}(\text{O}_2)$  des Sauerstoffs im Brennstoff, durch die freie Bildungsenthalpie  $\Delta G^\circ$  der Spaltproduktoxide und des Hüllmaterialoxides ( $\text{ZrO}_2$ ) sowie durch die partiellen freien Enthalpien der Spaltprodukt-Brennstoff-Mischphasen  $(\text{U,Pu,SP})\text{O}_{2\pm x}$  bestimmt. Der freiwerdende Sauerstoff verteilt sich im stabilen Gleichgewichtszustand so, daß der Energieinhalt des Systems  $\Delta\bar{G}(\text{O}_2)$  einem Minimum entspricht.

Die freien Bildungsenthalpien der verschiedenen Spaltproduktoxide sind in Abhängigkeit der Temperatur in Abb. 4235-19 dargestellt. Durch einen Vergleich dieser Werte mit der partiellen freien Enthalpie des Brennstoffes ergibt sich, daß alle diejenigen Spaltprodukte als Oxide vorliegen, deren Betrag der freien Bildungsenthalpie negativer ist als die freie Enthalpie des Oxidbrennstoffs.

Die Spaltprodukte kann man nach der Stabilität der Oxide einteilen in

- die sehr stabilen Lanthanide (SE: seltene Erdmetalle) einschließlich Y, Zr, Ba und Sr, die als Oxide entweder als Mischkristalle mit dem Brennstoff, oder als reine Spaltproduktphasen vorliegen.
- Spaltprodukte, deren integrale freie Bildungsenthalpie in der Nähe der partiellen freien Enthalpie des stöchiometrischen Brennstoffes (O/M  $\sim$  2.00) liegen, wie Cs, Rb und Mo.
- Ru, Rh und Pd, die keine Oxide bilden und deshalb als Metalle oder intermetallische Phasen im Brennstoff vorliegen.

Nach den thermodynamischen Daten (Abb. 4235-19) wird der überschüssige Sauerstoff von der Zry-Hülle abgebunden und das  $UO_{2+x}$  wird bis zu seiner unteren Phasengrenze  $UO_{2.000(-)}$  reduziert. Die Spaltprodukte Cs, Rb und Mo liegen daher metallisch, die Lanthanide sehr wahrscheinlich als Sesquioxide (3-wertig) im Brennstoff vor. Der Oxidationszustand der Lanthanide (3- oder 4-wertig) im stationären Betrieb des Reaktors wird durch das Sauerstoffpotential im Brennstab bestimmt. Stellt sich ein Gleichgewicht zwischen der Sauerstofffreisetzung bei der Kernspaltung des Oxidbrennstoffs und der Sauerstoffgetterung durch die Zry-Hülle ein, so sind die Lanthanide als 3-wertig zu betrachten. Bei Temperaturen, wie sie bei einem Kühlmittelverlustunfall zu erwarten sind, wird das Gleichgewicht zugunsten der Sauerstoffgetterung verschoben sein.

Anhand der thermodynamischen Daten der Abb. 4235-19 und der Spaltproduktausbeuten der Tabelle 4235-1 kann man -unter Berücksichtigung obiger Randbedingungen- die mittlere Wertigkeit der Spaltprodukte berechnen und mit der des Oxidbrennstoffs ( $WK \approx 4^+$ ) vergleichen. Sowohl bei der Spaltung von U-235 als auch Pu-239 ist die mittlere Wertigkeit der Spaltprodukte kleiner als die des Brennstoffes, d.h. es wird weniger Sauerstoff von den Spaltprodukten abgebunden als bei der Spaltung von  $UO_2$  bzw.  $(U,Pu)O_2$  freigesetzt wird. Der Abbrand hat deshalb einen entscheidenden Einfluß auf das chemische Verhalten des abgebrannten Systems.

Berechnet man nun die bei der Spaltung freigesetzte Sauerstoffmenge in Abhängigkeit vom Abbrand und nimmt aus versuchstechnischen Gründen an, daß dieser Sauerstoff zu einer O/M-Erhöhung, d.h. Stöchiometrieverschiebung des Oxidbrennstoffs führt, so erhält man die in Abb. 4235-20 dargestellten Kurvenverläufe. Die "fiktive" O/U-Erhöhung des  $UO_2$  mit dem Abbrand ist dabei entscheidend vom chemischen Zustand der Lanthanide abhängig. Das max. erreichbare O/M-Verhältnis für einen bestimmten Abbrand bestimmt das Ausmaß der inneren Zry-Oxidation. "Fiktiv" heißt in diesem Zusammenhang, daß der überschüssige Sauerstoff dem  $UO_2$  zugeschlagen wird, obwohl aus thermodynamischen Gründen (Abb. 4235-19) dieser bei höheren Temperaturen vom Zry abgebunden wird. Während der Glühexperimente wird das  $UO_{2+x}$  jedoch durch das Zry ausreichend schnell reduziert und man erhält so den praxisrelevanten Zustand. Die O/U-Verhältnisse des  $UO_2$  lassen sich experimentell relativ genau einstellen, und man kann so die verschiedenen Abbrandzustände des Brennstoffs einfach simulieren.

Die Ausbeute der sauerstoffbindenden Spaltprodukte und damit die gebundene bzw. die freigesetzte Sauerstoffmenge hängt stark vom spaltbaren Isotop ab. In Abb. 4235-21 ist die "fiktive"-Änderung des O/M-Verhältnisses für die Spaltung von U-235 und Pu-239 als Funktion des Abbrandes dargestellt. Die Wertigkeit der Lanthanide wurde einmal als 3- und einmal als 4-wertig angenommen. Man erhält daher ein Streuband, in dem sich die O/M-Erhöhung des Oxidbrennstoffs bewegt. Bei der Spaltung von Pu-239 ist mit einer größeren Sauerstofffreisetzung als bei U-235 zu rechnen, da weniger sauerstoffbindende Spaltprodukte entstehen. Mit dem max. erreichbaren "fiktiven" O/M-Verhältnis des Brennstoffes für einen bestimmten Abbrand, steht die max. Sauerstoffmenge fest, die von der Zry-Hülle, aufgrund seiner hohen Sauerstoffaffinität, abgebunden werden kann. So beträgt bei einem O/U-Verhältnis von 2,03, bei vollständiger Reduktion des  $UO_{2+x}$  zu  $UO_{2,000(-)}$ , die berechnete oxidierte Zry-Metallschichtdicke etwa 16  $\mu m$  (Annahme: Sauerstoff im Zry liegt als  $ZrO_2$  vor).

#### Änderung der mechanischen Eigenschaften von Zry-4 infolge chemischer Wechselwirkungen mit dem $UO_{2+x}$

##### Versuchsdurchführung

Die Experimente erfolgten mit  $UO_2$ -Pellets und  $UO_2$ -Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse (2,000 - 2,12). Die Pellets bzw. das Pulver wurden in ca. 60 mm lange Zry-4-Hüllrohre (Außendurchmesser: 10,75 mm, Wandstärke: 0,73 mm) gasdicht eingeschweißt. Die Zry-Rohre wurden im Anlieferungszustand eingesetzt. Zum Vergleich wurden auch Ar-gefüllte Rohrproben untersucht. Der Innendruck betrug bei allen Proben bei Raumtemperatur 1 bar.

Die Aufheizung der Rohrproben erfolgte in einem Rohrofen. Die Glühanordnung ist der Abb. 4235-22 zu entnehmen. Die Versuchsprobe befand sich in einem Quarzrohr, das in den auf eine bestimmte Temperatur befindlichen Rohrofen geschoben wurde. Die Aufheizgeschwindigkeit konnte über die eingestellte Ofentemperatur variiert werden (Abb. 4235-22). Die Aufheizgeschwindigkeit für das  $UO_2$ -Pulver bzw.-Pellets ist, aufgrund der unterschiedlichen Dichten, nicht gleich groß. Die Experimente wurden unter Schutzgas in Gegenwart von Zr-Getterpulver durchgeführt.

Die Aufweitung der Rohrproben und das Bersten konnte durch eine seitliche Öffnung im Ofen beobachtet werden. Der Versuch war beendet, wenn die Rohrprobe geborsten war, ansonsten wurde sie 1 h bei der betreffenden Ofentemperatur geglüht.

Die Messung der Hüllmaterial- und Brennstofftemperatur erfolgte durch Ni, Cr-Ni-Thermoelemente an Vergleichsproben. Ein Thermoelement war mittels einer Nb-Folie mit der Hülle verbunden, das andere befand sich im Zentrum des  $UO_2$ . Die Thermoelement-Anbringung und den Aufbau der Versuchsproben kann man der Abb. 4235-23 entnehmen. Beim Hochheizen beträgt die Temperaturdifferenz zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial etwa  $30^\circ C$ .

Nach dem Glühen wurden die Proben ausgemessen, metallographisch präpariert und Mikrohärtmessungen durchgeführt. Darüberhinaus wurden Mikrosondenaufnahmen angefertigt und bei einem Teil der Proben der Sauerstoffgehalt der Zry-Hülle und des  $UO_2$  nach der Glühbehandlung chemisch analysiert.

### Versuchsergebnisse

Die Versuchsergebnisse der bei einer stationären Ofentemperatur von  $1100$  und  $1200^\circ C$  durchgeführten Experimente mit  $UO_2$ -gefüllten Zry-4-Hüllrohren sind in Abb. 4235-24 dargestellt. Es wurde die maximale Umfangsdehnung über dem O/U-Verhältnis des  $UO_2$  aufgetragen. Man kann diesem Diagramm entnehmen, daß die Aufweitung der Zry-Hüllrohre vom O/U-Verhältnis und der spezifischen Oberfläche des  $UO_2$ , sowie der Glühtemperatur abhängt.

Der Vergleich der Umfangsdehnung der Ar-gefüllten Rohrproben mit den  $UO_2$ -gefüllten zeigt deutlich, daß durch das Sauerstoffpotential des  $UO_2$  die mechanischen Eigenschaften des Zry verändert werden, d.h. es kommt zu stärkeren plastischen Verformungen des Rohres. Bei gleichen O/U-Verhältnissen des Brennstoffes ist die Aufweitung der Rohre offenbar von der spezifischen Oberfläche des  $UO_2$  abhängig. Da die Reduktion des  $UO_{2+x}$  durch das Zry über die Gasphase erfolgt, kann pro Zeiteinheit von einer großen Oberfläche ( $UO_2$ -Pulver) mehr Sauerstoff abgegeben werden als von einer kleinen ( $UO_2$ -Pellet). Die maximale Sauerstoffmenge, die insgesamt zur Oxidation des Zry zur Verfügung steht, wird durch das O/U-Verhältnis des Brennstoffes bestimmt. Die Sauerstoffaufnahme hat eine Versprödung

des Zry zur Folge, was sich in einer Abnahme der Duktilität, d.h. der Umfangsdehnung mit zunehmendem O/U-Verhältnis bemerkbar macht.

Bei O/U-Verhältnissen  $\geq 2,05$  kommt es bereits beim Hochheizen zum Bersten der Zry-Rohre (der genaue O/U-Grenzwert muß noch ermittelt werden). Bei sehr großen O/U-Verhältnissen ( $>2,08$ ) ist die Bruchdehnung vom Sauerstoffpotential relativ unabhängig (Abb. 4235-24). Auch die Aufheizgeschwindigkeit hat offenbar keinen Einfluß auf die Bersttemperatur des Hüllrohres. Die Bersttemperatur (gemessen) und der Berstdruck (abgeschätzt) der einzelnen Proben kann man der Abb. 4235-24 entnehmen. Der Berstdruck ist bei den angegebenen Temperaturen z.T. bis zu einem Faktor 20 kleiner, als der von unkorrodierten Rohrproben [8]. Der tatsächliche Berstdruck liegt aber noch unterhalb der angegebenen Werte, da bei der Druckberechnung das Ausgangsvolumen zugrunde gelegt wurde.

Der O/U-Bereich zwischen 2,02 und 2,05 muß noch genauer untersucht werden, um den kritischen Grenzwert zu bestimmen, der zum Versagen des Hüllrohres führt.

Das Ausbeulverhalten der Zry-Hüllrohre ist stark vom O/U-Verhältnis des Brennstoffes abhängig, wie die Abb. 4235-25 und 4235-26 zeigen. Obwohl die Umfangsdehnungen z.T. gleich groß sind, ist die Volumenzunahme der Rohrproben stark unterschiedlich.

Die Zry-Hüllrohre versagen offenbar nach einem Mechanismus der mit der Spannungsrißkorrosion vergleichbar ist, da zum Versagen die gleichzeitige Wirkung des Sauerstoffpotential des Brennstoffs ( $O/U \geq 2,05$ ) und die mechanische Beanspruchung durch den Innendruck erforderlich ist. Wurden die Rohre zunächst ohne Einwirkung von Kräften oxidiert und dann mechanisch beansprucht, bei gleichen Temperatur-Zeit-Verläufen wie die  $UO_2$ -gefüllten Proben, so entsprach die plastische Verformung ungefähr der von nichtoxidierten Ar-Vergleichsproben.

Literatur:

- [1] H.M. Chung, A.M. Garde und T.F. Kassner  
"Mechanical Properties of Zircaloy Containing Oxygen"  
Quarterly Progress Report of Argonne National Laboratory,  
Materials Science Division. 31. March 1975: ANL-75-28
  
- [2] D. Lee und W.A. Backofen  
Trans. AIME 239 (1967) 1034
  
- [3] G.J. Scatena  
NEDO-10674 (1972)
  
- [4] D.O. Hobson und P.L. Rittenhouse  
ORNL-4758 (1972)
  
- [5] C.J. Rosa  
J. Less-Comm.Met. 16 (1968) 173
  
- [6] 2. Halbjahresbericht 1974, KFK 2130 (1975)
  
- [7] P. Hofmann  
"Spaltproduktausbeuten bei der Spaltung von U-235, U-238,  
Pu-239 und Pu-241 mit Neutronen verschiedener Energien"  
Ext. IMF-Bericht, IMF 6/70-2 (1970)
  
- [8] D.O. Hobson, P.L. Rittenhouse  
ORNL - 4727 (1971)

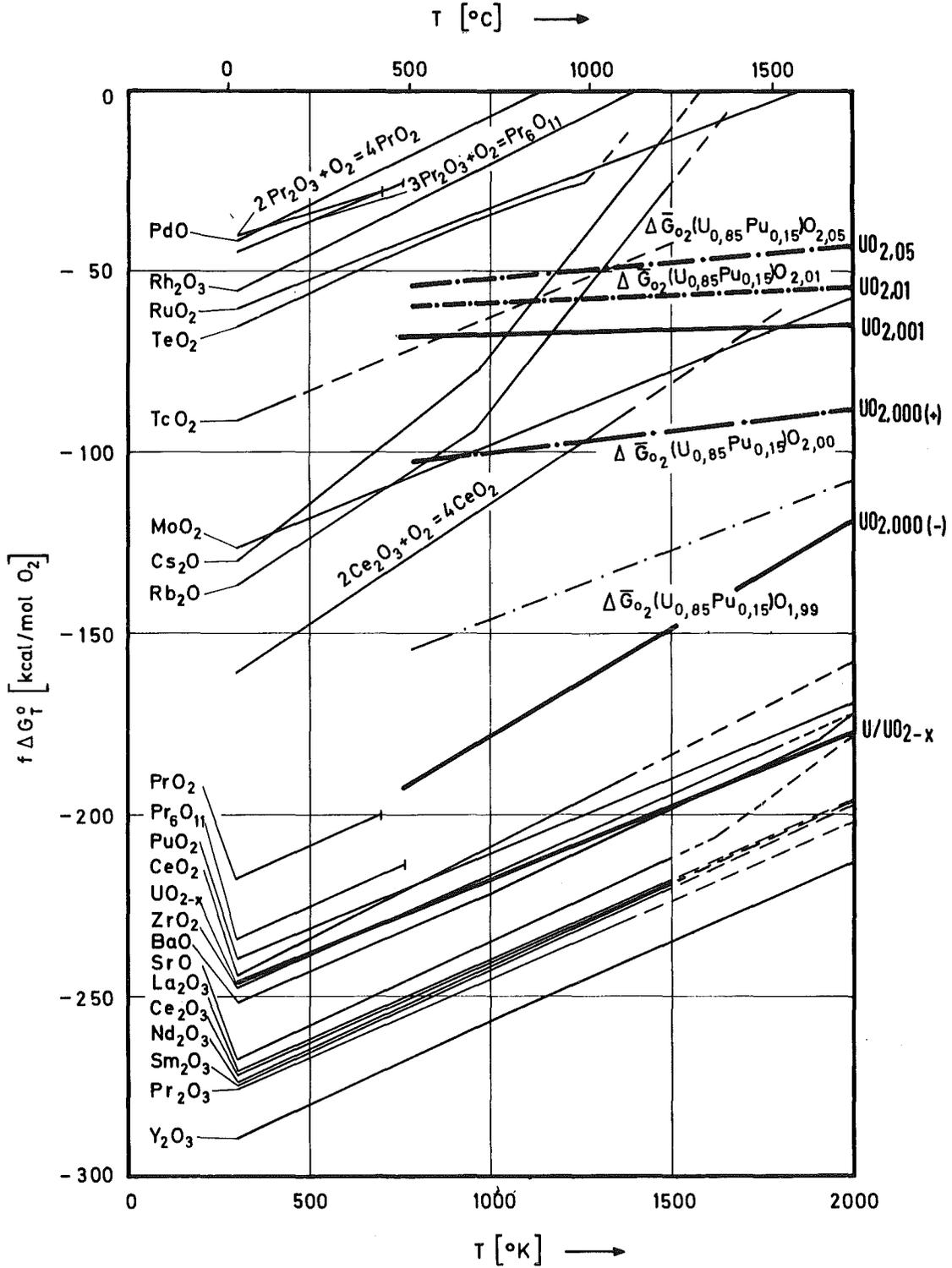


Abb. 4235-19: Sauerstoffpotential von  $UO_2$ ,  $(U,Pu)O_2$  und Spaltprodukt oxiden in Abhängigkeit der Temperatur

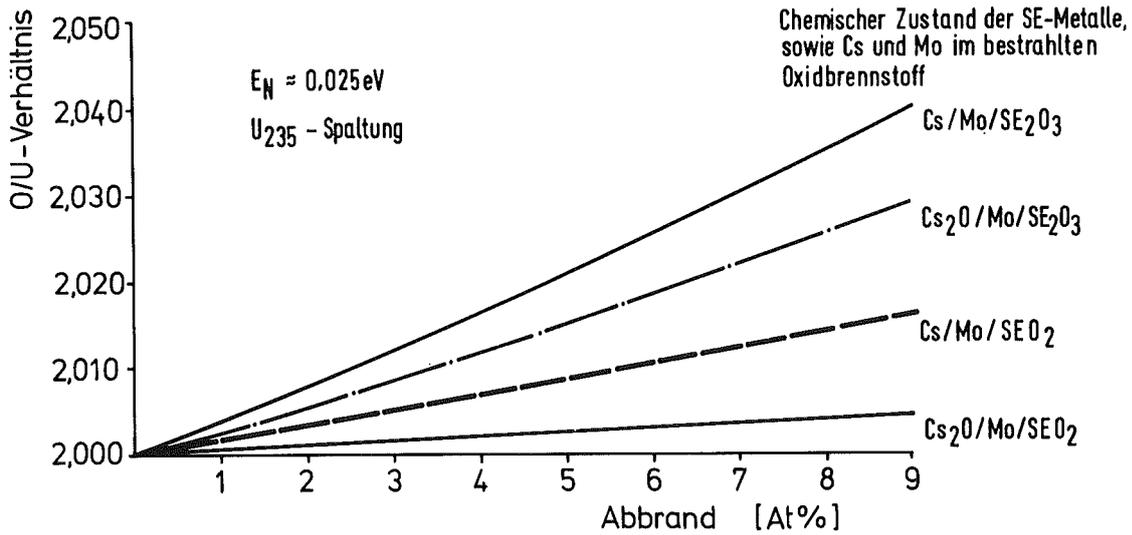


Abb. 4235-20: Fiktive O/U-Verschiebung des UO<sub>2</sub> in Abhängigkeit des Abbrandes für verschiedene Oxidationszustände von Cs, Mo und der Lanthanide(seltene Erdmetalle).

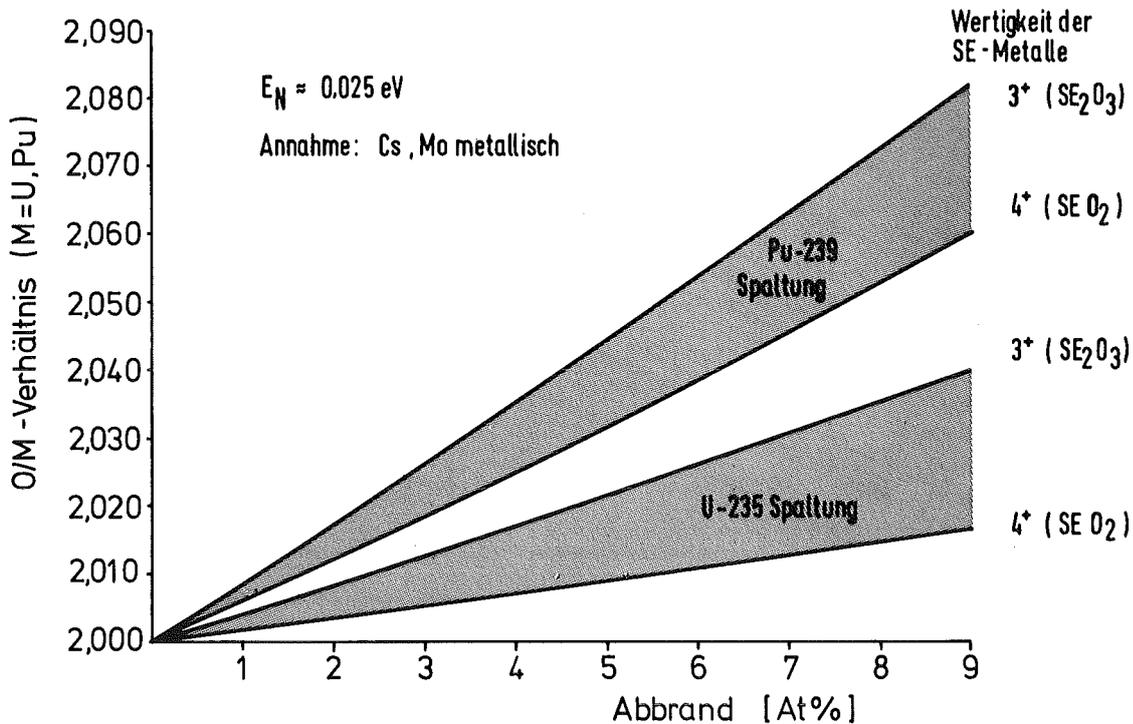


Abb. 4235-21: Fiktive O/M-Verschiebung des Oxidbrennstoffs in Abhängigkeit des Abbrandes für die Spaltung von U-235 und Pu-239.

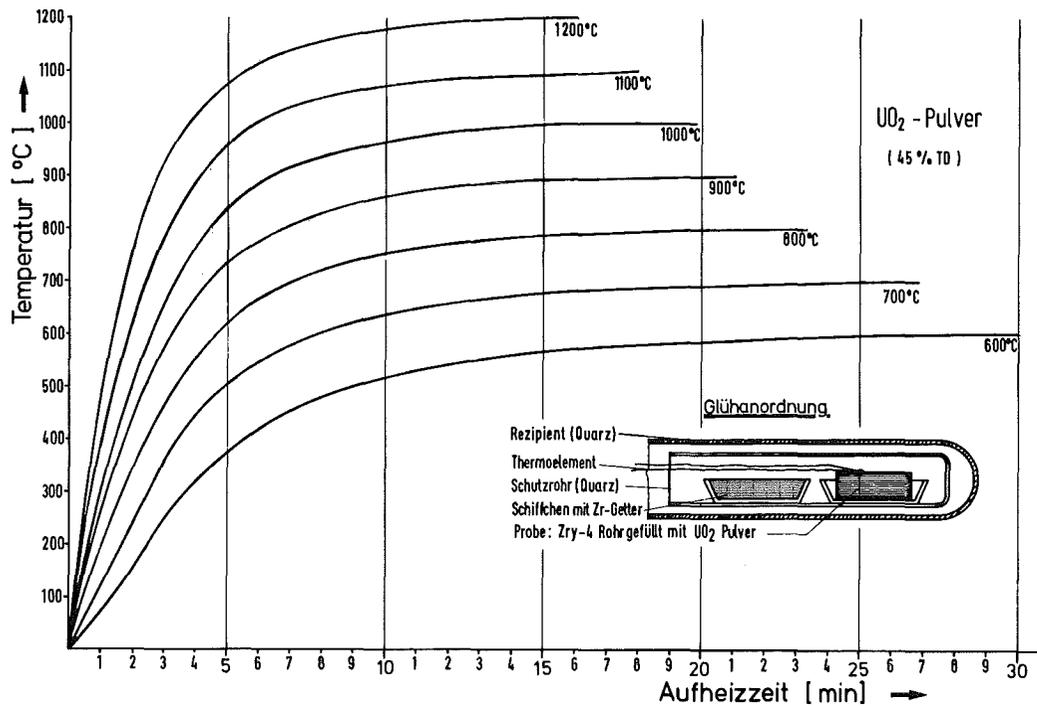
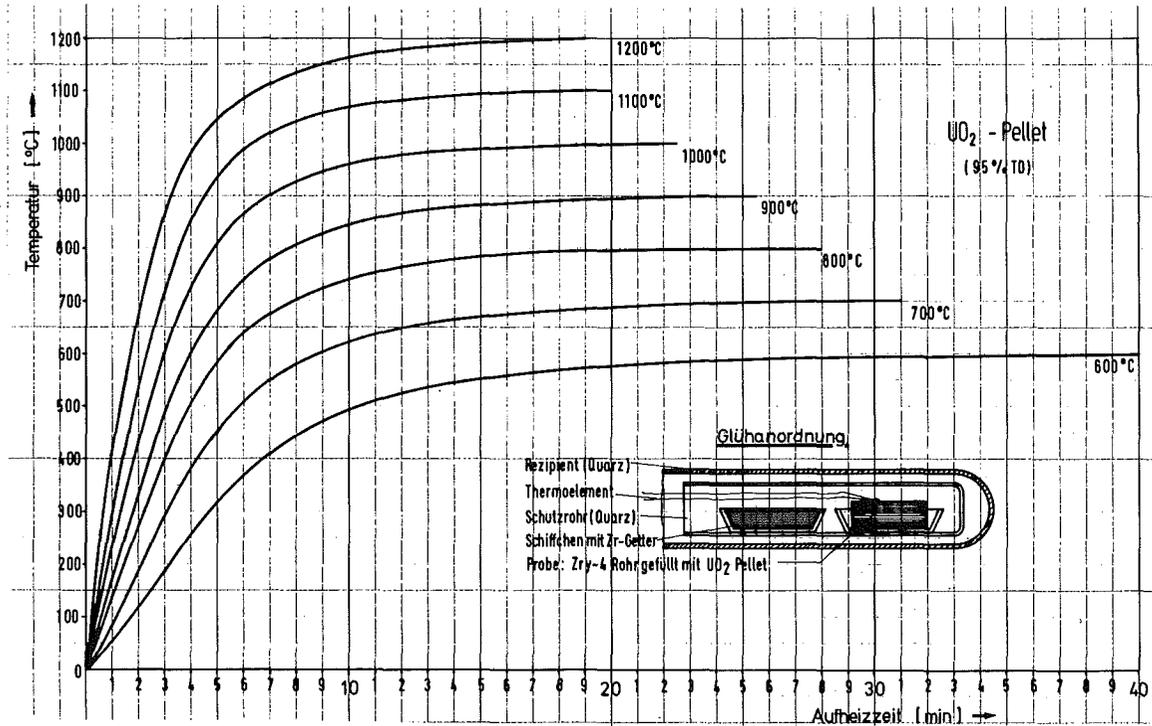


Abb. 4235-22: Aufheizgeschwindigkeit der Zry-Rohrproben gefüllt mit  $UO_2$ -Pulver (oben) bzw.  $UO_2$ -Pellets (unten) Versuchsanordnung.

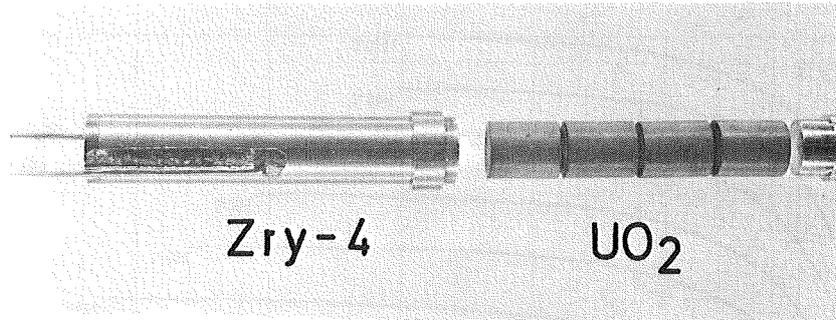


Abb. 4235-23: Zry-4-Rohrprobe mit  $UO_2$ -Pellets und Verschlußstopfen. Anbringung der Ni, Cr-Ni-Thermoelemente an der Hülle, mittels einer Nb-Folie

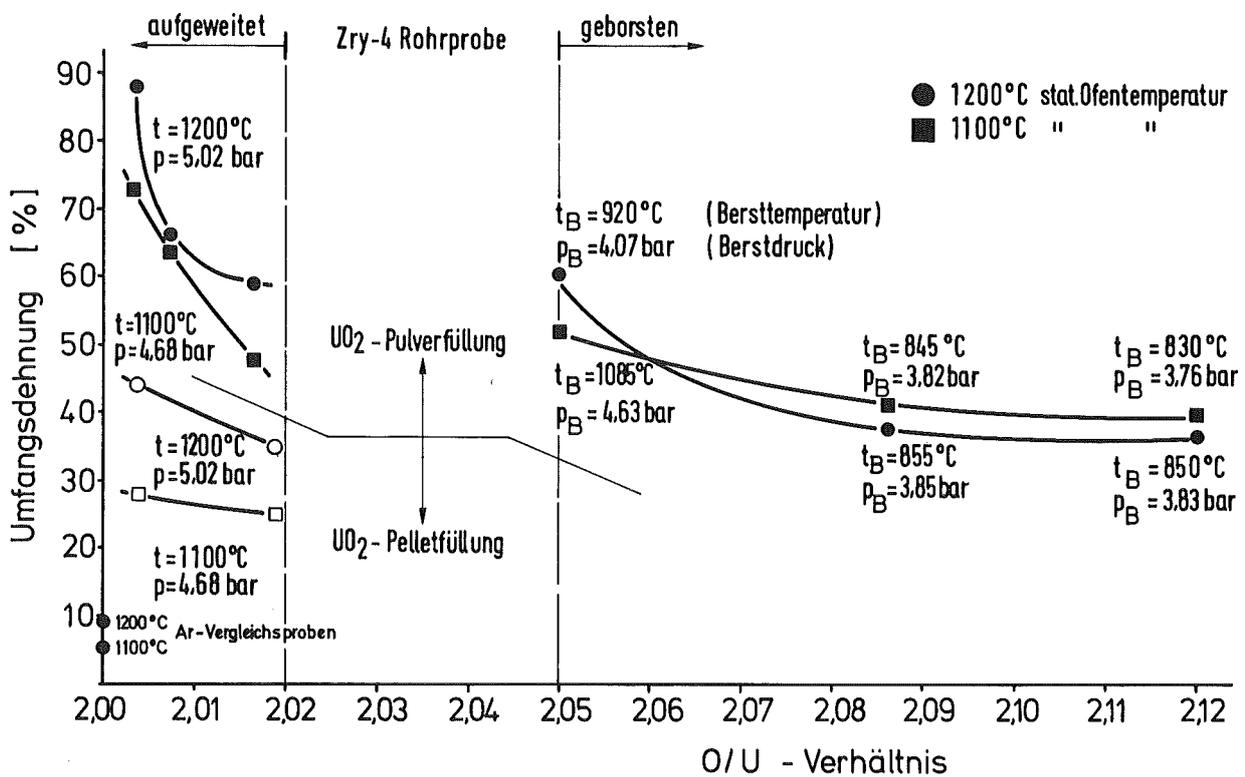
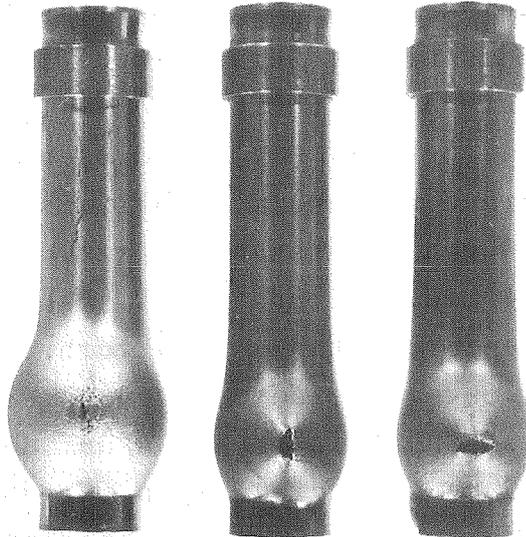


Abb. 4235-24: Einfluß des O/U-Verhältnisses des  $UO_2$  und dessen Zustandes (Pellets, Pulver) auf die mechanischen Eigenschaften der Zry-4-Rohre. Bei O/U-Verhältnissen  $\leq 2,02$  blähen sich die Rohrproben nur auf, bei  $O/U \geq 2,05$  kommt es zum Bersten.



O/U-Verhältnis: < 2,005      2,007      2,017

Abb. 4235-25: Zry-4-Rohrproben nach der Glühung bei 1200°C/1h unter Schutzgas. Die Rohre waren mit  $UO_{2+x}$ -Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt.



O/U-Verhältnis: 2,050      2,086      2,12

Abb. 4235-26: Die Zry-4-Rohrproben waren gefüllt mit  $UO_{2+x}$ -Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse. Die Proben bersten bereits beim Hochheizen (Berstbedingungen siehe Abb. 4235-24). Die Ofentemperatur betrug 1200°C.

4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der  
Blowdown-Phase eines Kühlmittelverlustunfalles

Out-of-pile-Versuche mit elektrisch beheizten Eizelstäben

(G. Class, M. Cramer, D. Fömpe, IRE; K. Hain, F. Brüderle,  
H. Naschwitz, N. Paroth, T. Vollmer, K. Wagner, RBT/IT)

### 1. Brennstabsimulator

Mit dem schon im 2. Halbjahresbericht 1974 (KFK 2130) angesprochenen Wärmeleit-Rechenprogramm RESIM wurde eine Empfindlichkeitsstudie hinsichtlich der Geometrie- und Stoffdaten für den Brennstabsimulator mit  $UO_2$ - Ringpellets durchgeführt. Bei den Geometriedaten wurden die vorgegebenen Fertigungstoleranzen berücksichtigt; die Materialdichten wurden um 5 % und die Wärmeleitfähigkeiten, spezifischen Wärmen und Wärmedehnungszahlen um 10 % variiert. Die meisten dieser Varianten beeinflussten die Simulationsqualität nicht wesentlich; am empfindlichsten war die Reaktion auf die Änderungen folgender Daten: Wärmeleitfähigkeit des  $UO_2$ , spezifische Wärme des Zircaloy, spezifische Wärme des Graphitheizers und Dichte des Zircaloy (da diese wesentlich besser als auf  $\pm 5$  % bekannt ist, ist deren Einfluß praktisch vernachlässigbar). Die bei diesen Varianten bewirkten vorübergehenden Veränderungen im Verhältnis der Wärmeströme an den Staboberflächen von Brennstabsimulator und Referenzbrennstab betragen 6,6 bzw. 4 bzw. 2,7 und 2,1 %. Dabei wurden die Eigenschaften des Referenzbrennstabes (Reaktorbrennstab) nicht verändert. Wirkt sich dagegen eine der genannten Geometrie- oder Stoffdatenänderungen in gleicher Weise auf den Simulator und den Referenzstab aus, dann sind die Folgen für das Wärmestromverhältnis stets vernachlässigbar. Insgesamt gesehen bestätigt diese Studie die Richtigkeit des gewählten Stabkonzeptes mit indirekter Beheizung.

Die beiden für die Versuche benötigten Brennstabsimulatoren, nämlich der bereits oben erwähnte Simulator (SIM) und ein elektrisch direkt beheizter Rohrstab zur Messung von Wärmeübergangszahlen (WUS), wurden im Detail weiterentwickelt und in Vorversuchen teilerprobt. Beispielsweise wurden die Cosinus-Leistungsprofilerzeugung beim WUS durch Umhämmern einer von außen eingedrehten Profilkurve ins

Rohrinnere erprobt, druck- und temperaturfeste Stromdurchführungen entworfen und in Auftrag gegeben, die Ausführung der Temperaturmeßstellen unmittelbar unter der Außenoberfläche des WUS und die potentialfreie Weiterführung der Thermoelementleitungen im Stabinnern fertigungstechnisch erprobt u.s.f. Die Entwicklung der Stäbe mit allen Einzelbauteilen ist jetzt soweit abgeschlossen, daß mit der Prototypfertigung begonnen werden kann.

Nachdem die Beschichtung der  $UO_2$ -Pellets für SIM mit einem 0,1 mm starken festhaftenden Überzug aus  $Al_2O_3$  zur Erzielung einer bei hohen Temperaturen elektrisch nichtleitenden Sperrschicht gelungen war, wurde in einer kurzen Teststabanordnung deren Isolationswirkung bei Stabelastungen von 650 W/cm und einer angelegten elektrischen Differenzspannung zwischen Graphitheizer und Zircaloyhülle von ca. 20 und 80 V an zwei Teststäben untersucht. Dabei ergab sich bei dem Versuch mit 80 V ein elektrischer Durchschlag des Isolators, dessen Ursache bisher noch nicht erkannt ist und der zu weiteren gezielten Untersuchungen Anlaß gibt.

Parallel zu den SIM-Versuchen mit  $UO_2$ -Ringpellets wurden Stabheizversuche mit Ringpellets aus  $Al_2O_3$  bis zu Stabelleistungen von über 700 W/cm durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Versuche sind voll zufriedenstellend, so daß am grundsätzlichen Stabkonzept des SIM keine Änderungen mehr notwendig sind und von daher SIM mit  $Al_2O_3$ -Ringpellets für den Einsatz im Blowdown-Versuchsstand zur Verfügung steht. Allerdings sind die thermischen Eigenschaften von SIM mit  $Al_2O_3$ -Pellets gegenüber denjenigen mit  $UO_2$ -Pellets deutlich verschlechtert, so daß die Weiterentwicklung des Stabes mit  $UO_2$ -Ringpellets weiterhin im Vordergrund steht.

In den Abb. 4236-1 und -2 sind die Verläufe der Simulationsqualität von SIM mit  $UO_2$ - und  $Al_2O_3$ -Ringpellets unter Berücksichtigung von Verschiebungen des sonst bei 1,5 s angenommenen DNB-Zeitpunktes dargestellt. Derartige zeitliche Verschiebungen des DNB-Zeitpunktes treten immer dann entlang eines Stabes auf, wenn der DNB-Punkt nicht an allen axialen Positionen gleichzeitig erreicht wird. Besonders aus Abb. 4236-3 kann ersehen werden, daß die Simulationsqualität des  $UO_2$ -Stabes wesentlich besser ist als diejenige des  $Al_2O_3$ -Stabes, besonders auch im Hinblick auf Unsicherheiten in der Voraussage des DNB-Zeitpunktes. Trotzdem stellt SIM mit  $Al_2O_3$ -

Ringpellets ein als back-up-Lösung brauchbares Konzept dar. - Die in den Abb. 4236-1 und -2 gezeigten Heizleistungsverläufe sind im übrigen noch nicht endgültig optimiert, wie man auch aus Abb. 4236-3 entnehmen kann. Der Grund für die schlechtere Simulationsqualität des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Stabes liegt vor allem in seiner zu kleinen Speicherwärme beim Stationärbetrieb, so daß zu viel Nachwärme zugeführt werden muß.

Zur Bestimmung des zentralen axialen Temperaturprofiles im Elektrodenübergangsbereich des Simulationsbrennstabes und zur Festlegung der Länge der notwendigen Zwischenelektrode wurde das FORTRAN-IV-Programm AXIAL erstellt. Das Ergebnis der Rechnungen für SIM zeigt Abb. 4236-4. Ein direkter Anschluß der Kupferelektrode an die Graphitelektrode ist wegen der hohen Temperaturen an der Berührungsstelle nicht möglich. Die Länge einer Zwischenelektrode aus Tantal ist mit 2 cm ausreichend bemessen. Die Einwirkungstiefe des Temperaturabfalles im Graphitheizer ist nur etwa 3 cm.

## 2. Versuchsanlage

Nachdem bis zum Ende des letzten Jahres alle größeren Kreislaufkomponenten in Auftrag gegeben waren, lag auch hier das Schwergewicht der Arbeiten auf der Lösung von Detailproblemen. Dazu gehören die Entwicklung des Prototyps der Wärmeheizstäbe für die Teststrecke (Leistungsbereich über  $180 \text{ W/cm}^2$ ) zur Erzielung einer Enthalpieschichtung im Kühlmittel und der Saphirfenstereinheit für die pyrometrische Hüllrohrtemperaturmessung in der Teststrecke u.a.m.

Das zweigeschossige Experimentiergerüst für den Einbau der Teststrecke wurde montiert, so daß mit dem Eintreffen der Kreislaufkomponenten die Anlagenmontage beginnen kann. Als erste Großkomponente ist der Kondensationsbehälter für das beim Blowdown-Vorgang ausströmende Dampf-Wasser-Gemisch eingetroffen. Mit der Rohrmontage in diesem Anlagenbereich wurde mittlerweile begonnen.

Eine Nachrechnung auf Wechselbeanspruchung der Teststrecke durch Druck- und Temperaturänderungen entsprechend den neuen TRD 301, Anlage 1, ergab die Notwendigkeit, in den Kugelplena Schockbleche einzubauen. Zur Kontrolle der tatsächlich beim Blowdown auftretenden

den Beanspruchungen wurde eine Meßstelle für die Wandtemperatur vorgesehen, um das Wandtemperaturprofil nachrechnen zu können. Die zulässige Temperaturdifferenz zwischen Innen- und Außenwand des Druckhalters und des Heißwasserkessels beim Kesselabfahren wurde berechnet und als Kesselbetriebskennwert definiert.

Bei den Konstruktionsarbeiten wurden Kleinkomponenten in Abstimmung auf die Hauptanlagenteile bearbeitet. Dazu gehören die Teststreckenhalterung, die Formstücke der Kühlkanalkontur zur Umgebungssimulation des Teststabes und die Meßeinsätze für Temperatur- und Druckmeßstellen.

Die Auslegung der Heizstromversorgung für die einzelnen Heizkreise wurde abgeschlossen, wobei insbesondere bei dem Konzept für SIM und WUS die Auswirkung von Leistungsänderungen bzw. -oszillationen auf die Meßergebnisse durch eine aufwendige Regeleinrichtung klein gehalten werden muß. Die Stromversorgungseinheiten wurden inzwischen bestellt.

Die Realisierung des ausgearbeiteten Meßwerterfassungssystems im Zusammenspiel mit der CALAS-Anlage mußte aus Kapazitätsgründen an die Industrie vergeben werden, wodurch eine umfangreiche Anpassungsabstimmung notwendig wurde.

### 3. Instrumentierung

Die Untersuchung des Prinzips des "True Mass Flow Meter" (TMFM) zur Messung des Massenstromes von Zweiphasenströmungen und die Weiterentwicklung des Meßgerätes wurden fortgeführt. Es zeigte sich vor allem, daß die Strömungsführung innerhalb des Laufrades einen erheblichen Einfluß auf das Auftreten von Hystereseeffekten des Meßsignals hat. Außerdem wurde der Drehzahleinfluß untersucht.

In Abb. 4236-5 ist eine Kennlinie einer TMFM-Ausführung gezeigt, die ähnlich derjenigen ist, die der noch zu erstellenden Spezifikation für die Betriebsausführung zugrunde liegen wird. Die Meßpunkte in Abb. 4236-5 beinhalten alle Mischungsverhältnisse von reinem Wasser bis zur reinen Luft. Eine systematische Abweichung von der eingezeichneten Geraden mit der Bezeichnung "Messung" existiert nicht mehr in erkennbarem Ausmaß. Die Standardabweichung der Meßpunkte von der Eichgeraden beträgt hier 1,1 % des Meßwertes bei einem

Durchsatz von 1,0 kg/s. Dabei ist noch zu bemerken, daß die Meßfehler bei der Ermittlung des zugeführten Massenstromes mit Schwebekörper-Durchflußmessern von ähnlicher Größe sind. - Die mit der Bezeichnung "Theorie" in Abb. 4236-5 gekennzeichnete Gerade wurde durch Belastung des Meßsystemes mit Drehmomenten bekannter Größe und Umrechnung in einen nach der Theorie des TMFM äquivalenten Massendurchsatz gewonnen. Der Unterschied zwischen Theorie und Messung ergibt sich aus dem Einfluß der endlichen Schaufelteilung der Strömungsgitter und läßt sich mit bekannten Näherungsformeln sehr gut abschätzen. - Damit ist gezeigt, daß mit dem TMFM ein Meßverfahren zur Massenstrommessung von Zweiphasenströmungen zur Verfügung steht, dessen Eigenschaften (Eichung) quantitativ theoretisch abgeleitet werden können und das daher nicht unbedingt der Eichung mit Zweiphasenströmungen bedarf.

Das bereits im letzten Halbjahr entwickelte Konzept einer pyrometrischen und damit die Vorgänge am Hüllrohr (Ballooning) nicht beeinflussenden Oberflächentemperaturmessung im Bereich von 550 bis 1000 °C, wurde zu einer im Blowdownexperiment anwendbaren Meßeinrichtung weiterentwickelt. Gegenüber einem kommerziellen Teilstrahlungs-pyrometer mit Durchlichtoptik und kameraähnlichem Aufbau, enthält der spezielle Meßeinsatz nur noch die Meßzelle und davon getrennt die zugehörige Elektronik. Die Meßeinheit, Abb. 4236-6, wird durch einen Stutzen mit Schnellverschluß durch die Füllkörper der Teststrecke mit definiertem Abstand zur Hüllrohr-oberfläche an den Simulationsstab herangeführt.

Eine Blende begrenzt den Meßfleck auf der Hüllrohr-oberfläche. Die Wärmestrahlung gelangt durch ein druckwasserresistentes Saphirfenster und einen wegen der besseren Ausbeute starren Lichtleitstab in die Si-Meßzelle, die eine spektrale Empfindlichkeit von 0,4 bis 1,1 µm besitzt. Acht derartige Meßeinsätze sind über die beheizte Stablänge von 500 mm verteilt; die zugehörige Elektronik bis zu einem Ausgangssignal von 0 bis 20 mA ist in einem zentralen Schrank zusammengefaßt. Durch diese Anordnung sind die Meßeinsätze mit geringem Aufwand auswechselbar und können in einer gesonderten Eichanordnung überprüft werden.

Der Einfluß des Zweiphasengemisches beim Blowdown-Vorgang auf die

Absorption der Wärmestrahlung ist wegen der kleinen Absorptionsbanden sowohl des Dampfes wie des Wassers im interessierenden Wellenlängenbereich unbedeutend. Von wesentlichem Einfluß ist dagegen die wechselnde Reflexion an den Phasengrenzflächen der Dampfblasen. In den durchgeführten Versuchen wurden für diesen Einfluß Abweichungen von maximal 30 °C jeweils zu tieferen Temperaturen hin ermittelt. Durch eine Spitzenwertmessung mit Maximalwertspeicherung bei einem zur Erfassung transienter Temperaturgänge ausreichend kurzen Meßzeitintervall, kann dieser Fehler kleiner 3 % (bezogen auf Celsiusskala) gehalten werden. Durch Änderungen des Emissionsvermögens von Zircaloy 4 während der kurzen Blowdown-Zeit ist kein ausschlaggebender Einfluß auf das Meßergebnis zu erwarten, was nach Literaturangaben zu erwarten war und auch durch eigene Versuche bestätigt wurde.

Das Gamma-Absorptionsmeßsystem zur Ermittlung der integralen Kühlmitteldichte in den Plena der Teststrecke befindet sich in der Beschaffungsphase. Es besteht im wesentlichen aus einem Cs-137-Isotop einer Aktivität von 10 Ci, sowie aus einem Plastikszintillator mit Photomultiplier, den zugehörigen Versorgungseinrichtungen und einer Impulszählelektronik.

Ausgehend von einer Betrachtung über die Lösungsmöglichkeiten der instationären Wärmeleitgleichung in Differenzform wurde untersucht, wie aus gemessenen Temperatursignalen zeitabhängige Wärmeübergangszahlen experimentell ermittelt werden können. Zusammen mit einer Diskussion der Fehlermöglichkeiten und der Anforderungen von den gegebenen Randbedingungen her wurden günstige Formen von Meßstellen für Wärmeübergangszahlen an Wandstrukturen definiert und solche Meßstellen für die Teststrecke, die Plena und den Wärmeübergangs-Meßstab WUS konzipiert.

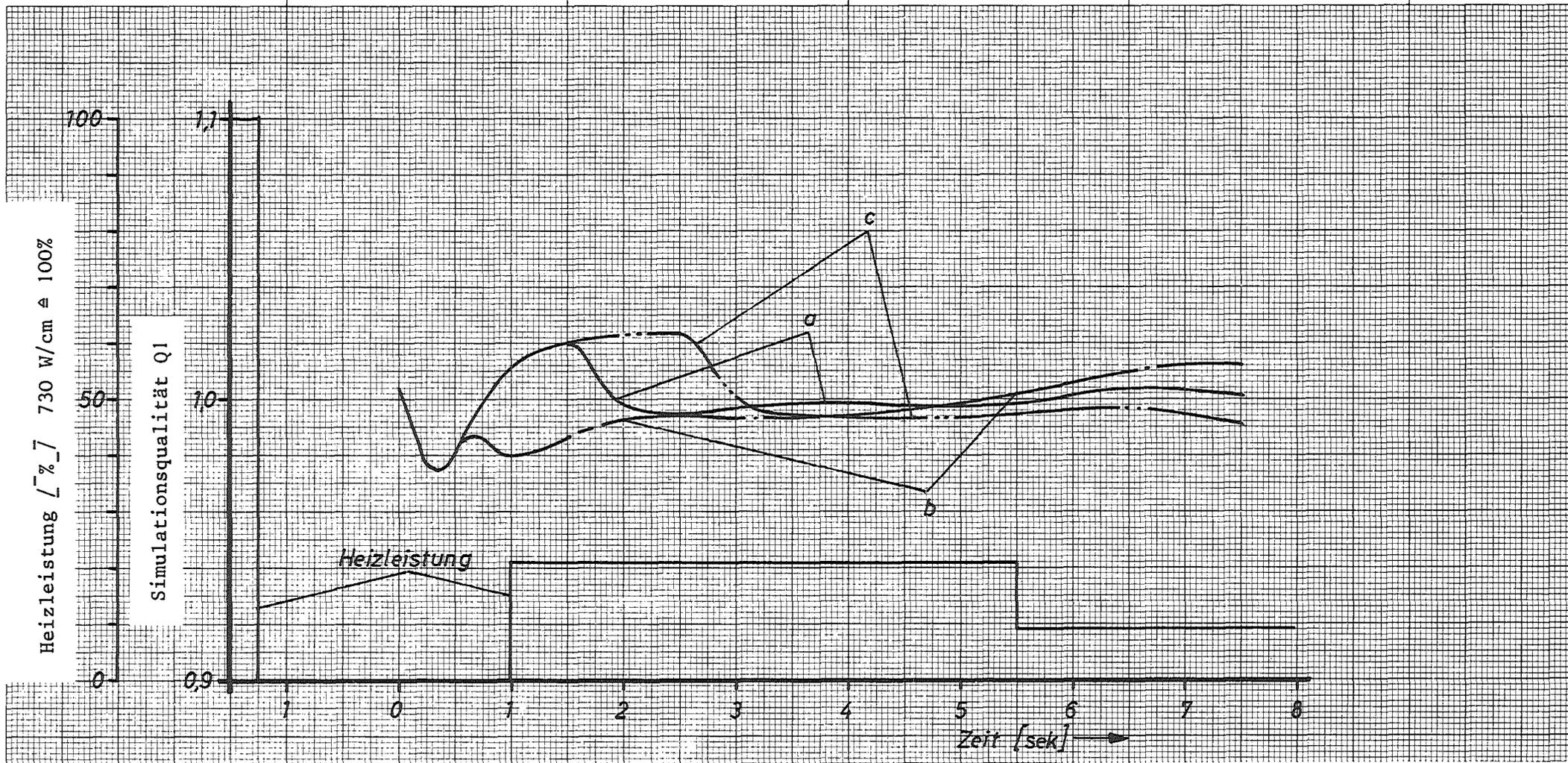


Abb. 4236- 1

Verlauf der Simulationsqualität Q1 bei verschiedenen DNB- Zeitpunkten und konstanter Heizleistungsfunktion.

Simulationsstab mit  $UO_2$ - Pellets

$Q1 = \text{Sim- Stableistung} / \text{Referenzstableistung}$

a = DNB bei 1,5sek (Auslegungszeitpunkt für Heizleistungsfunktion)

b = DNB bei 0,5sek

c = DNB bei 2,5sek

Verlauf der Simulationsqualität Q1 bei verschiedenen DNB- Zeitpunkten und konstanter Heizleistungsfunktion. Sim- Stab mit Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- Pellets  
Q1 = Sim- Stableistung / Referenzstableistung  
a = DNB bei 1,5 sek (Auslegungszeitpunkt für Heizleistungsfunktion)  
b = DNB bei 0,5 sek  
c = DNB bei 2,5 sek

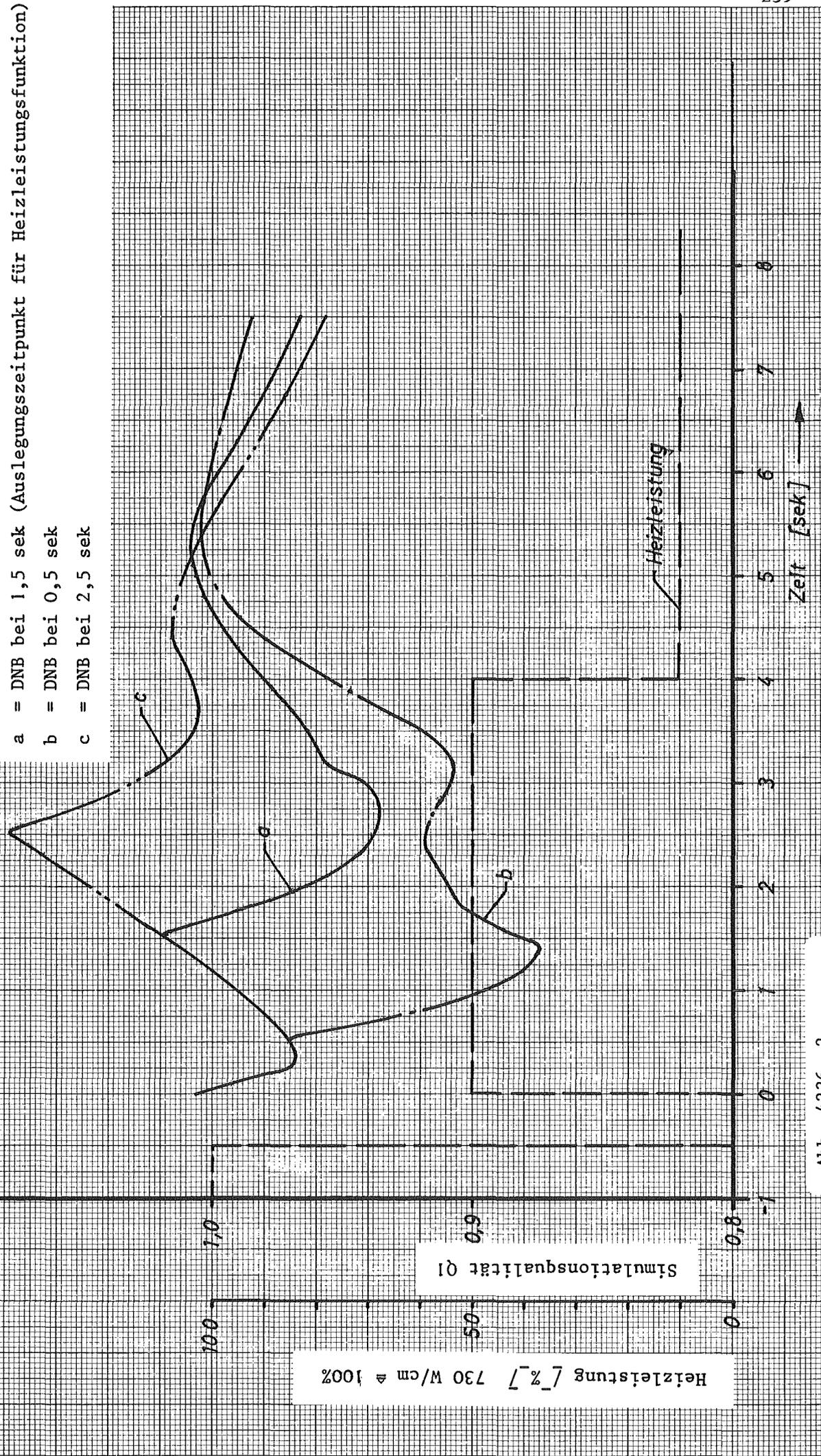


Abb. 4236- 2

Absolutwert der Fehlerquadratsummen der  
Simulationsqualität Q1 bei Abweichung des  
DNB- Zeitpunktes vom Auslegungszeitpunkt  
1,5 sek  
Zeitschrittgröße 0,1 sek  
 $f = Q1 - 1$   
 $Q1 = \text{Sim- Stableistung} / \text{Referenzstableistung}$

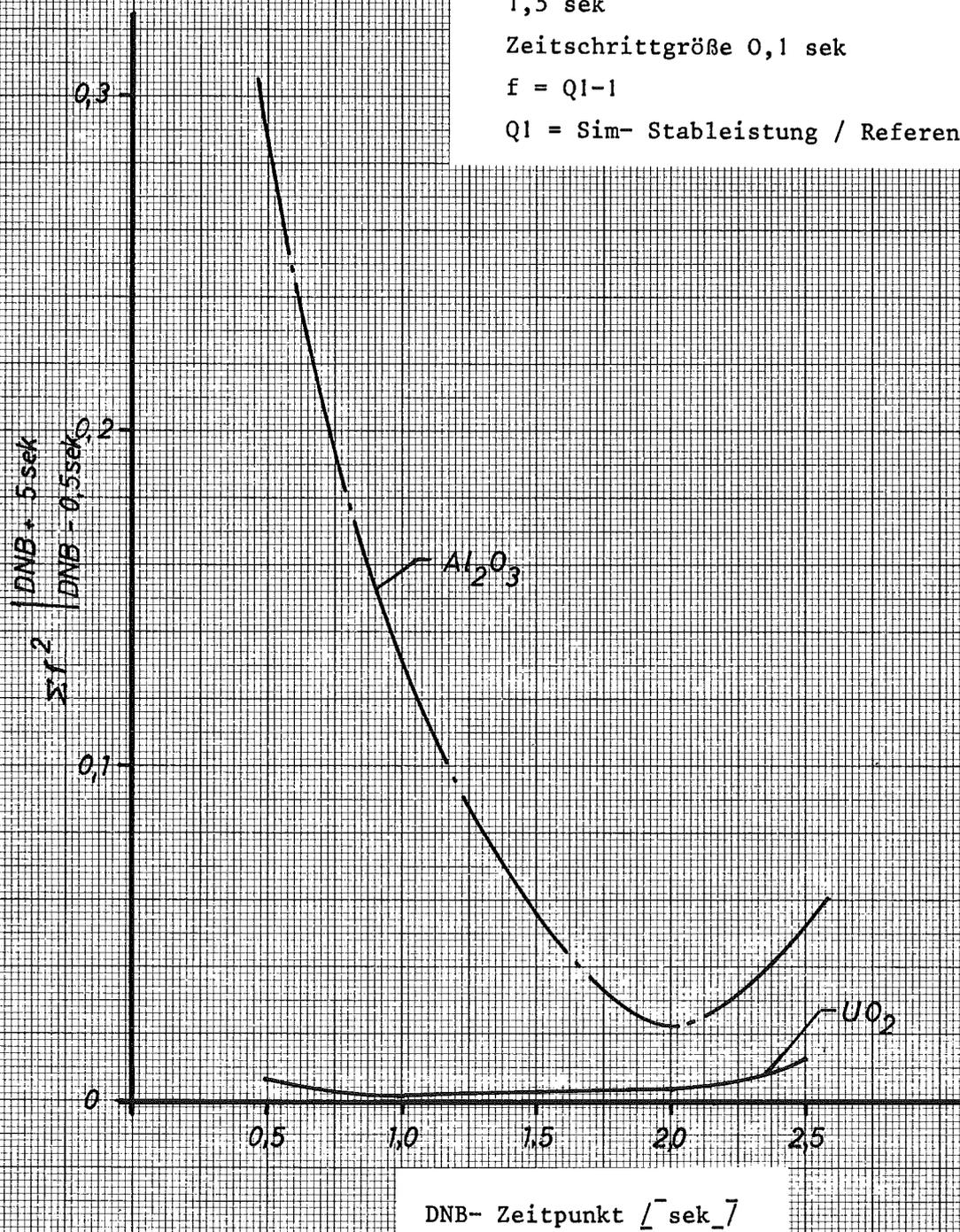
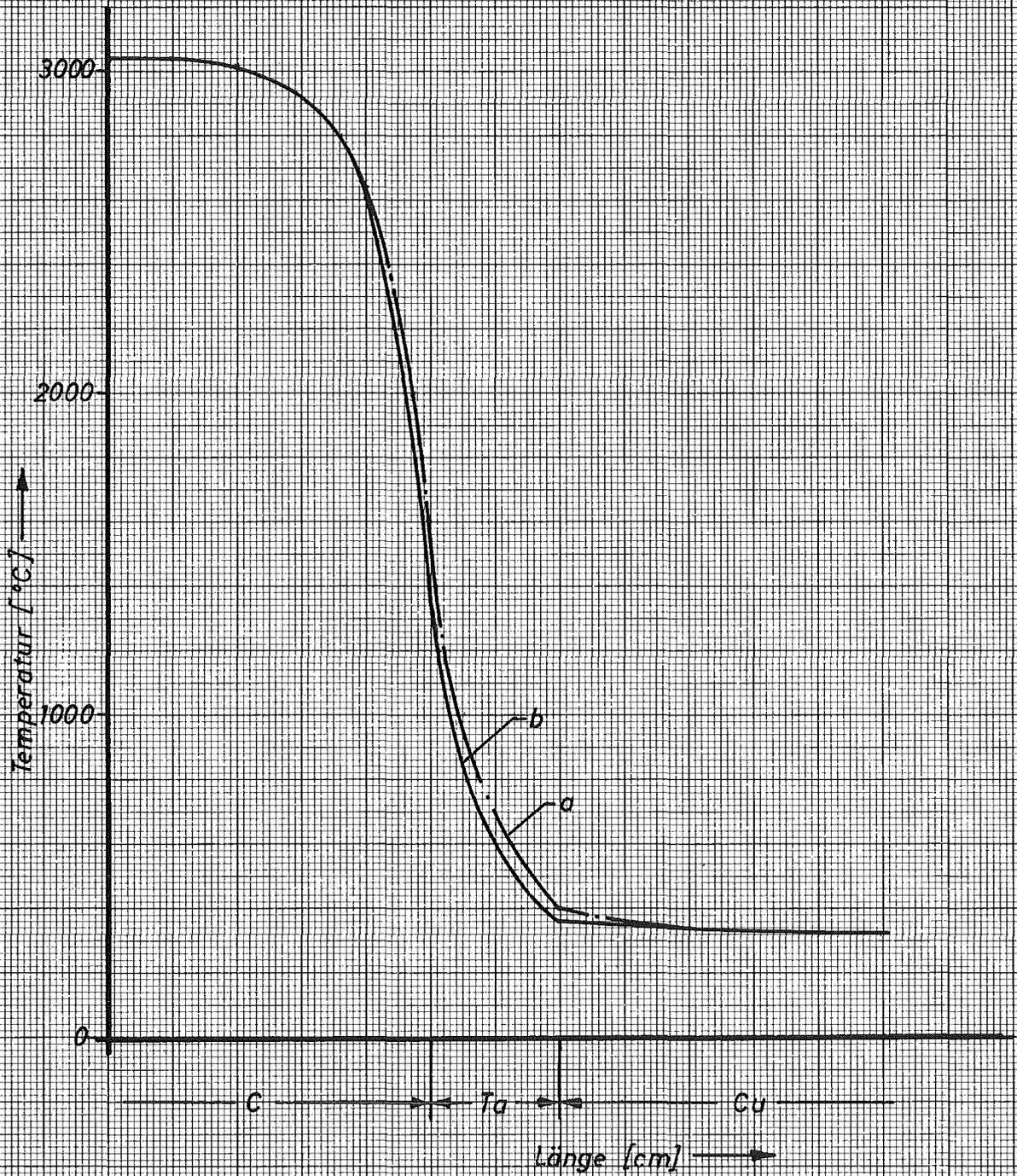


Abb. 4236- 3



Zentrales axiales Temperaturprofil im Elektrodenübergangsbereich  
des Simulationsbrennstabes

- a) C - 2cm Ta - Cu      Tantal von  $UO_2$ - Pellets umgeben
- b) C - 2cm Ta - Cu      "    "     $Al_2O_3$     "    "

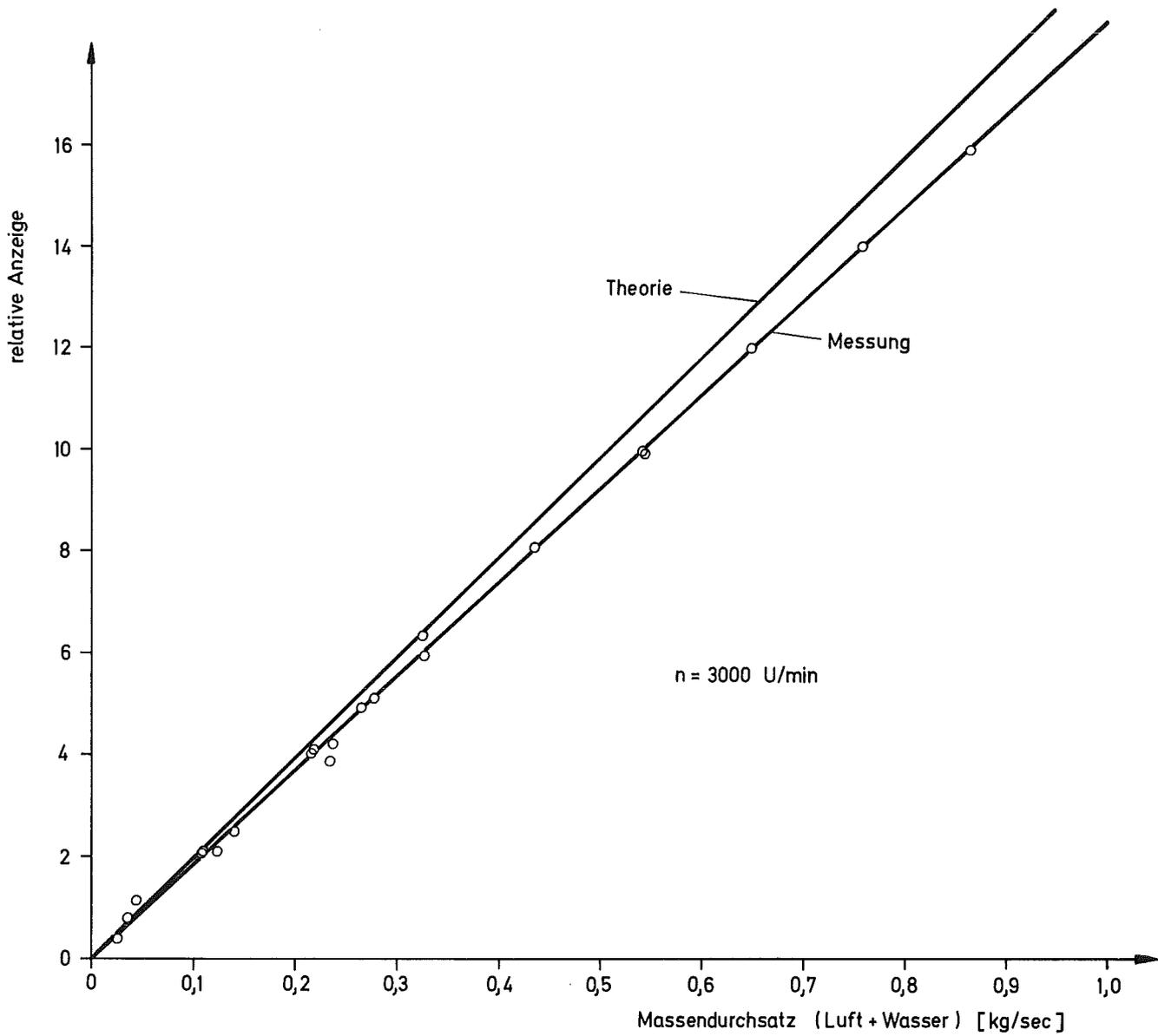
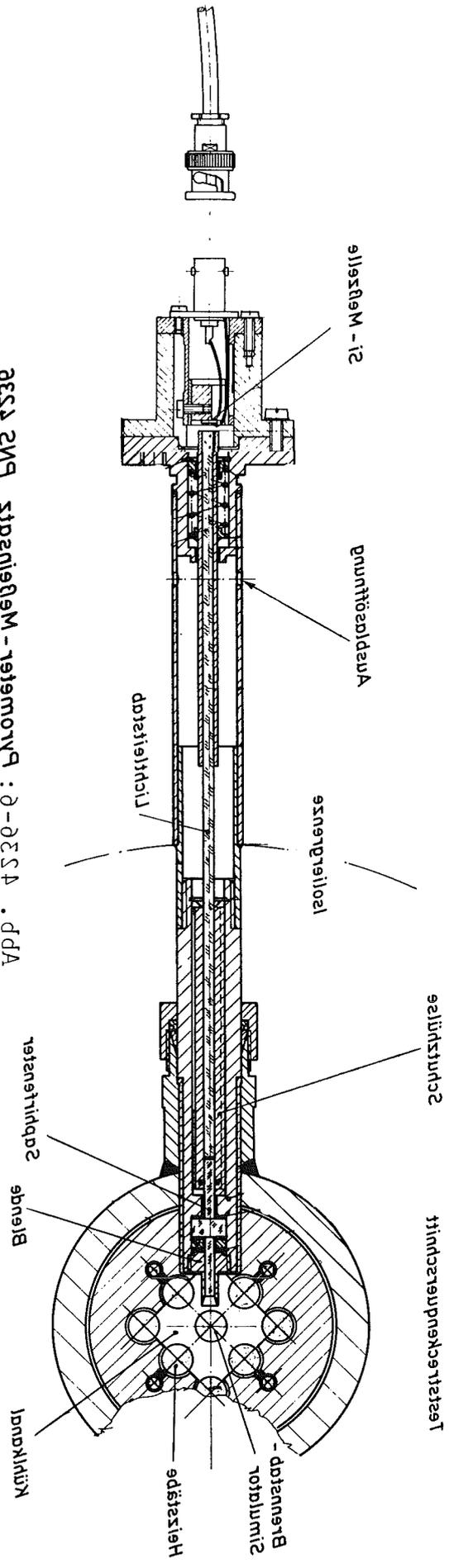


Abb. 4236- 5 : Vergleich zwischen Meßwerten und Theorie für das "True Mass Flow Meter" bei Luft- Wasser- Zweiphasenströmung (die Meßpunkte repräsentieren Gasvolumenanteile  $\alpha$  im Bereich von 0 bis 1)

Abb. 4330-0: Pyrometer - Meßkopf BWS 4330



- 4237.1 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverlustunfalls. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2.  
(E. Karb, L. Sepöld, K. Baumgärtner, G. Harbauer, W. Leiling, H. Lukitsch, K. Wagner, RBT)

Im ersten Halbjahr 1975 waren die Arbeiten vorwiegend auf den Beginn der Versuche im FR2-Reaktor ausgerichtet. Dabei galt die Vorbereitung Versuchen mit 2 Stabtypen :

- a) Versuche mit Nuklearstäben (verkürzte DWR-Ausführung),
- b) Versuche mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (BSS), die mit dem Forschungsvorhaben PNS 4237.2 kombiniert sind.

Die Zielsetzung der BSS-Versuche ist im letzten Halbjahresbericht dargelegt worden.

#### 1. Brennstabsimulatoren (BSS)

Die BSS selbst sowie der Stand der Arbeiten sind im folgenden Beitrag PNS 4237.2 beschrieben.

#### 2. Nuklearprüflinge für die Hauptversuche

Die Spezifikation für die Nuklearprüflinge konnte, wie geplant, Anfang dieses Jahres abgeschlossen werden. Die letzte dazu notwendige Arbeit war die Auslegung des Plenums. Hierbei galt es, die unterschiedlichen Gaszustände im Stab in axialer Richtung während eines Beulvorganges (ballooning) zu berechnen. Der zeitliche Verlauf des Beulendruckes sollte beim verkürzten DWR-Stab mit dem echten DWR-Stab so gut wie möglich übereinstimmen. Es zeigte sich jedoch, daß die örtlich verschiedenen Druckverläufe im Stab nicht zu jedem Zeitpunkt bei verkürztem und echtem DWR-Stab übereinstimmen konnten. Es gelang, für den wichtigsten Zeitbereich des Versagensablaufs, nämlich den Bereich ab etwa 1 Sekunde, eine gute Übereinstimmung zu erzielen. Ergebnis : Gleich großes Plenumvolumen wie im DWR-Stab. Die Rechenergebnisse konnten durch Gasströmversuche mit Helium und Argon unter den erwarteten Druckbedingungen im Stab erhärtet werden.

Diese Versuche wurden kurzfristig in den Projektablauf eingeschoben.

Daraufhin konnten die Brennstäbe im Frühjahr bestellt werden, sie werden im Juli eintreffen.

### 3. Vorbestrahlung

Die ersten sechs Versuchsstäbe sollen dann umgehend in den vorbereiteten Vorbestrahlungseinsatz eingebaut werden. Der erste Vorbestrahlungseinsatz ist bereits fertiggestellt. Die Bestückung des Einsatzes mit Durchflußmesser, Thermoelementen, Vanadiumdetektor (zur Neutronenfluenzmessung) erfolgt zur Zeit. Zur Erprobung wird der Vorbestrahlungseinsatz dann im Prüfstand den üblichen BE-Tests auf Durchfluß und Druckabfall hin unterzogen. Diese Erprobung wird Anfang Juli stattfinden. Zu diesem Zweck wird der Einsatz mit Brennstabattrappen versehen. Das Einbringen des Einsatzes in den FR2 soll nach Plan im August erfolgen.

### 4. Zu den Versuchen mit Nuklearstäben

Noch im 2. Halbjahr 1975 werden diese Versuche beginnen. Die ersten Versuche sollen mit unbestrahlten Stäben durchgeführt werden. Sie werden vor allem der Kalibrierung von Meßgeräten und -verfahren dienen.

Die inaktive, also von Radioaktivität freie, Erprobung der Einzelkomponenten des Versuchseinsatzes dauert noch an.

Im Rahmen der Arbeiten zum Sicherheitsbericht für die Versuche im Reaktor mit bestrahlten Stäben wird zur Zeit die radiologische Belastung der Umgebung durch die Versuche unter verschiedenen Randbedingungen berechnet.

Die Erstellung der Soft- und Hardware zum Anschluß an die Datenverarbeitungsanlage CALIAS findet zur Zeit statt. Es wird eine Kontrolle und Protokollierung der Meßwerte am Versuchsstand während der Versuche durch Hardcopy-Geräte möglich sein, ferner eine Auswertung der Versuche vom Magnetband, auf das alle Daten aufgezeichnet werden. Eine Erprobung der Datenverarbeitungsanlage muß noch vor den Versuchen erfolgen.

Die notwendigen Änderungen am Kreislauf zielen in erster Linie auf eine Verbesserung der Meßgenauigkeiten hin. Aus diesem Grund wurde die Meßblende zur Durchsatz- und damit zur Leistungsbestimmung neu ausgelegt. Die Fertigung läuft zur Zeit. Die Eichung wird im Anschluß daran vorgenommen. Der Einbau kann allerdings erst nach umfangreichen Versuchen zur Meßstranganordnung vor der Bartonzelle erfolgen. Diese Versuche werden im IRB durchgeführt, wo die gleichen Dampfzustände wie im Reaktorkreislauf (DK-Loop) realisierbar sind. Verzögerungen ergaben sich durch einen mit PNS 4237.1 nicht zusammenhängenden Umbau der IRB-Dampfanlage.

##### 5. Temperaturmessung der Stabhülle

Für die Beschaffung einer Vorserie Thermoelemente zur Bestückung der ersten Nuklear- sowie Elektrostäbe (BSS) mußte der Kenntnisstand des Frühjahres 1975 zur Erstellung einer TE-Spezifikation genügen. Daraus ergab sich der Aufbau des TE, wie er in Abb. 4237.1-1 gezeigt wird :

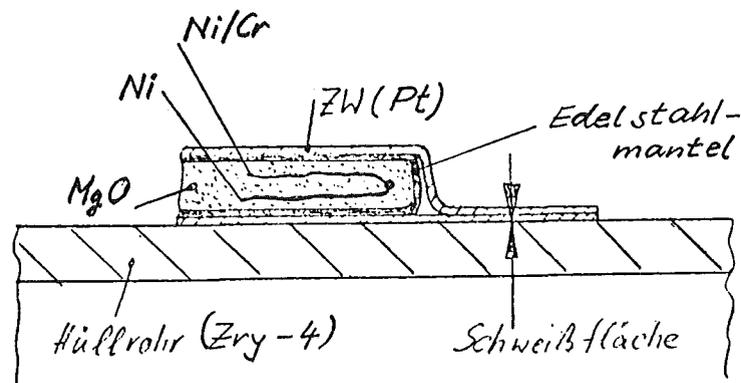


Abb. 4237.1-1 - TE-Aufbau der Vorserie

Zur Vermeidung von Eutektikumbildungen mit dem Hüllwerkstoff Zircaloy erweisen sich derzeit Titan und Platin als beste Zwischenmaterialien. Die Aufschweißversuche (Widerstandspunktschweißung) mit diesen beiden Materialien ergaben bis jetzt die besten Ergebnisse, auch bezüglich der Reproduzierbarkeit der Schweißung sowie der Dampfverträglichkeit.

Titan ist nach Anfrage bei allen namhaften TE-Herstellern nicht kurzfristig lieferbar.

Die derzeitige Lösung sieht demnach wie folgt aus : Adern aus Ni/Cr-Ni mit isolierter Meßspitze und Edelmantel, Zwischenwerkstoff (ZW) Platin. Das Platin soll als Hülse auf die TE-Meßspitze aufgehämmert werden. Die ersten Ergebnisse dieser Verarbeitung werden Anfang Juli erwartet.

Die Schweißversuche mit anderen Materialien sollen systematisch weitergeführt und die Ergebnisse zusammengestellt werden.

Die Arbeiten zur optimalen TE-Verlegung (durch Simulation der Strömungsverhältnisse im Versuchseinsatz) wurden begonnen. Der Einfachheit halber werden die Versuche mit Inertgas statt Wasserdampf durchgeführt. Die Ergebnisse werden für die Montage der Versuchseinsätze benötigt.

Noch in der zweiten Jahreshälfte 1975 soll mit der Konzeption für die TE-Anschweißung an bestrahlte Stäbe unter Heißen-Zellen-Bedingungen begonnen werden, so daß 1976 die Versuche mit abgebrannten Stäben begonnen werden können.

Parallel dazu soll noch vor Jahresende bzw. Anfang 1976 mit Versuchen zur TE-Meßfehlerbestimmung begonnen werden.

4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten PNS 4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (Einzelstäbe) (B. Räßle, K. Baumgärtner, G. Harbauer, M. Prüßmann, W. Knappschneider, M. Hespeler, RBT)

Zum Jahresbeginn 1975 lag ein erstes Heizstabkonzept für den elektrisch beheizbaren Brennstabsimulator vor, der in der in-pile-Teststrecke des DK-Loops am FR2 verwendet werden soll.

Das Aufbauprinzip sieht einen MgO-gefüllten Rohrheizkörper (Inconel 600) von 3,5 mm  $\phi$  vor, der auf der beheizten Länge von 50 cm ein annähernd cos-förmiges Leistungsprofil aufweist. Der Heizstab ist von einer weiteren MgO-Isolierschicht und einem Inconel-Mantelrohr 6 x 0,6 mm umgeben, das über den Plenumsbereich reicht und dort an das Kaltende anschließt.

Bedingt durch die FR2-Geometrie ist das Kaltende ca. 5 m lang. Die elektrischen Anschlüsse für den Heizstab können nur am oberen Ende angebracht werden, was eine Stromrückführung über das Heizstab-Mantelrohr und das aus diesem Grunde coaxial aufgebaute Kaltende notwendig macht.

Auf diesem Prinzip aufbauend, wurden im IRB umfangreiche Untersuchungen zu den Fertigungsparametern unternommen, insbesondere zu dem geforderten Leistungsprofil, das durch 7 Stufen im Rohrheizkörper einem cos-Verlauf angenähert wurde. Auf dieser Basis wurde ein Prototyp-Heizstab angefertigt, einem elektrischen Probetrieb unterzogen und vermessen. Die Auswertung ergab nur geringe Änderungen für eine 1. Serie von 5 Stäben, die z.Z. gefertigt werden. Für den vorgesehenen Leistungsvergleich nuklear/thermisch/elektrisch ist eine gute Kenntnis der in der Heizzone freiwerdenden elektrischen Leistung wichtig. Da der Abgriff zur Leistungsbestimmung nur am Kopfende möglich ist, ist es notwendig, die Leistungsanteile des Kaltendes bestimmen zu können. Hierzu wurden ebenfalls am Prototyp die partiellen Widerstände in Abhängigkeit der Temperatur gemessen, die in geeigneter Form der Datenverarbeitung als Korrekturglied zur Verfügung gestellt werden.

Der Leistungsvergleich elektrisch/nuklear soll über einen kombinierten Heizstab erfolgen, der sowohl elektrisch wie auch nuklear beheizt werden kann. Dazu ist eine Bestückung des Heizstabes mit  $UO_2$ -Ringpellets erforderlich, deren äquivalente U 235-Anreicherung zu 9,6 % bestimmt wurde. Wegen der mit ansteigender Temperatur größer werdenden elektrischen Leitfähigkeit von  $UO_2$  wurden Versuche zum  $Al_2O_3$ -Plasmabeschichten des Heizleitermantels mit gutem Erfolg durchgeführt. Z.Z. laufen ferner Versuche zur Frage, inwieweit die Isolierfähigkeit von  $UO_2$ - und  $Al_2O_3$ -Pellets durch metallische Ablagerungen beeinträchtigt wird, die bei den im Versuch auftretenden Temperaturen selbst in He-Atmosphäre beobachtet wurden.

Die Konstruktion des kompletten Versuchseinsatzes wurde im Berichtszeitraum abgeschlossen, die Einzelteile für zunächst 3 vollständige Anordnungen - bis auf die Hüllrohre, wo ein Engpaß in der Schweißerei besteht - gefertigt, die zusammen mit den vom IRB zu liefernden Heizstäben im 2. Halbjahr 1975 montiert und im Nov./Dez. 1975 zum Einsatz kommen sollen.

In der Zwischenzeit müssen die erwähnten Vorversuche abgeschlossen und deren Auswertung vorgenommen sowie alle Handling-Fragen im Hinblick auf diese Versuche geklärt und notwendige Vorrichtungen beschafft werden. Im Verbund mit PNS 4237.1 wird die Kalibrierung und Erprobung der Instrumentierung sowie die Erprobung der Meßwertverarbeitung (CALAS) durchgeführt. Die weitere Auslegung und gegebenenfalls Verbesserung des Heizstabes wird fortgesetzt. In diesem Sinne dienen die 1975 durchzuführenden Versuche der in-pile-Erprobung des Heizstabes und der Versuchsanordnung.

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, Dr. Reimann, P. Schäffner, He. Schmidt, IRB)

Zielsetzung des Vorhabens ist die Untersuchung des Aufblähvorganges von Zircaloyhüllen während der Niederdruckphase eines Kühlmittelverlustunfalles. Aus Einzelstab- und Bündelexperimenten sollen Informationen zur Erstellung und Überprüfung von Rechenprogramm-Ansätzen des Brennstabverhaltens-Codes SSYST gewonnen werden.

Zur Vorbereitung der Experimente wurden im 1. Halbjahr 1975 folgende Arbeiten durchgeführt:

#### 1. Brennstabsimulatoren

Für die Überprüfung der Gleichmäßigkeit in der Fertigung der Brennstabsimulatoren wurden zehn weitere Heizleiterrohre vorbereitet (MgO-gefüllt, spitzenlos auf das vorausbestimmte Stufenprofil geschliffen und auf 4 mm Ø Außenmaß gehämmert.) Die Abweichung von der beheizten Sollmaßlänge von 3900 mm lag bei max. 15 mm. Die Abweichung gegenüber dem gewünschten Stufen- und Gesamtwiderstand war kleiner als 1%.

Nur drei der zehn Heizleiter konnten zu Heizstäben weiterverarbeitet werden, da die Ersatzlieferung für das im Oktober 1974 wegen ungenügender Rieselfähigkeit bei Union Carbide Corporation reklamierte Bornitrid bis Mitte Juni 1975 nicht zu erhalten war.

Die Heizstäbe wurden elektrisch auf Fertigungsfehler überprüft und als sehr gut befunden. Ein Stab wurde bis zur axialen Mitte mit einer Nut versehen, in die ein 3,6 mm  $\varnothing$  Mantelthermoelement eingelegt wurde. Dieser Heizstab wurde zu einem kompletten Brennstabsimulator fertiggestellt, jedoch noch ohne das untere Ausdehnungskompensationsstück und ohne Gasinnendruck.

Die Funktionstüchtigkeit dieses Prototyps wurde überprüft, indem die volle Auslegungsleistung von 30 KW mehrmals spontan zu- und abgeschaltet wurde. Es wurden an der Hülle Temperaturen bis zu 900<sup>0</sup> C zugelassen. Dabei konnte beobachtet werden, wie sich der Heizstab mit steigender Temperatur bis zu 50 mm aus der Zircaloyhülle hinausschob und sich bei Abkühlung wieder auf seine Ausgangslänge zurückzog.

Nach diesen Aufheizversuchen ließ sich der Heizstab einwandfrei demontieren. Die Ringpellets waren bis auf wenige völlig intakt und eine Wiedermontage für eine anschließende, mehrmalige erneute Aufheizung konnte vorgenommen werden. Nach diesen Versuchen erscheint es möglich, den Heizleiter mehrmals für den Einsatz in blähenden Brennstabsimulatoren zu verwenden, was eine deutliche Kosteneinsparung bei den Experimenten bedeuten würde.

Zur rationellen Fertigung von gleichzeitig vier Brennstabsimulatoren gleicher Länge wurde eine Einrüttel- und Montagevorrichtung entwickelt und gebaut.

Für die Schweißverbindung zwischen Zircaloy 4 und Inconel 600 waren spezielle Entwicklungsarbeiten erforderlich. Die Materialien Zircaloy 4 und Inconel 600 bilden beim Verschweißen intermetallische Phasen, die hart und sehr spröde sind. Da beim normalen Schmelzschweißen die Zone dieser intermetallischen Phase sehr dick wird, reißt die Schweißnaht meist bereits beim Abkühlen des Werkstücks. Beim Diffusionschweißen ist es möglich, diese spröden Zwischenphasen sehr dünn zu halten

(wenige  $\mu\text{m}$ ) und dadurch haltbare Schweißverbindungen auch zwischen sonst schlecht verschweißbaren Materialpaarungen zu erhalten.

Als ein für den vorliegenden Anwendungsfall geeignetes und rationell anzuwendendes Verfahren hat sich das Sprengschweißen herausgestellt. Durch eine Anzahl von Vorversuchen wurden die Sprengschweißparameter festgelegt. Die endgültige Anordnung und Fertigungsmethode der gewünschten Sprengschweißverbindung ist in Abb. 4238-1 dargestellt. Die Inconel- und Zircaloyhüllen werden durch eine Sprengung auf einen Stahldorn aufgeschrumpft. Die Sprengladung wird durch Formgebung und Größe der PVC-Kapsel dosiert. Abb. 4238-1 zeigt die drei Fertigungsphasen vor der Zündung, nach erfolgter Zündung und das fertig bearbeitete Rohrstück mit Sprengschweißverbindung.

Die Prüfung dieser Verbindung erfolgte zunächst durch ein-, fünf- und zehnmaliges Thermozyklieren (auf  $600^{\circ}\text{C}$  aufheizen und in Wasser abschrecken), Anfertigung von Schliffbildern und Prüfung, ob die intermetallische Phase gewachsen ist und ob sich Risse gebildet haben. Die beiden Schliffbilder der Abbildung stammen von  $10\times$  thermozyklierten Proben und zeigen eine intakte Diffusionschweißverbindung.- Zu Kapseln ausgebildet, wurden einige Sprengschweißverbindungen außerdem unter He-Innendruck von 100 atü mehrmals auf  $500^{\circ}\text{C}$  aufgeheizt und mit kaltem Wasser abgeschreckt. Nach jeder Belastungsprobe wurde die Verbindung mittels He-Massenspektrometer auf Dichtigkeit geprüft. Erst nach der 3. bis 4. Belastungsprüfung wurden Undichtigkeiten größer als  $10^{-7}$  Torr Liter/sec festgestellt. Diese sind durch stark unterschiedliche Ausdehnungskoeffizienten von Zr-4 und Inconel sowie beginnendes Kriechen von Zr-4 bei Temperaturen oberhalb  $400^{\circ}\text{C}$  verursacht.

Die Entwicklung der Sprengschweißverbindung zwischen Zircaloy 4 und Inconel 600 konnte hiermit erfolgreich abgeschlossen werden. Mit der Herstellung der für die Brennstabsimulatoren benötigten Schweißverbinder nach dem Sprengschweißverfahren wurde begonnen.

Der erste Prototypheizstab für das Vorhaben PNS 4237.2 wurde fertiggestellt und an RBT ausgeliefert. Dazu mußten neue Wandverschwächungs- und Verlängerungsfaktoren ermittelt werden (rechnerisch und in Vorversuchen) und die Anbringung eines isolierten 4,5 m langen koaxialen kalten Kupferendes entworfen und gefertigt werden. (Näheres siehe Bericht PNS 4237.2).

## 2. Versuchsstand

Der Versuchsstand wurde in den letzten Halbjahresberichten ausführlich beschrieben. Im Berichtszeitraum wurden die Teststrecke sowie alle anderen Kreislaufkomponenten aufgestellt. Die Montage der Rohrleitungen wurde weitgehend abgeschlossen.

Die elektrische Beheizung des 25-er Stabbündels erfolgt mittels Leistungsthyristoren. Der Zentralstab wird von einem einzelnen Thyristor versorgt, die restlichen 24 Stäbe werden in Gruppen von 4 Stäben von je einem Thyristor, d.h. insgesamt 6 Thyristoren gespeist. Die Thyristoren wurden installiert, die Fertigung der Aufschalteinheit für die Kabel zur Teststrecke wurde begonnen. Die elektrischen Anschlüsse für den Dampfüberhitzer und den Wasservorwärmer wurden verlegt.

Für die Steuerung der elektrischen Leistung der 7 Thyristoren während des Versuchs wurde eine programmierbare Leistungssteuerung entwickelt und gebaut. Der Aufbau des Ansteuergerätes und seine Funktionsweise sind beim Vorhaben PNS 4239 näher beschrieben. Die Anforderung an die Leistungssteuerung bei dem hier beschriebenen Vorhaben ist in Abb. 4238-2 schematisch dargestellt.

### 3. Röntgenkinematographie

Zur Erfassung des Aufblähvorganges der Zircaloyhülle wird die Röntgendurchleuchtungstechnik eingesetzt. Die Röntgeneinrichtung mit Bildverstärker wurde in einem Vorraum zum eigentlichen Versuchsraum montiert und in technischer Hinsicht abgenommen. Die Einrichtung mit Abschirmung ist so ausgelegt, daß sie nach Fertigstellung der Kreislaufmontage um die Teststrecke aufgestellt werden kann.

Der Antrag auf Erteilung einer Genehmigung zum Betreiben der Röntgeneinrichtung ist beim Gewerbeaufsichtsamt gestellt. Die Überprüfung der Anlage durch den Gutachter ergab keine Beanstandungen.

Die Abb. 4238-3 zeigt schematisch den Aufbau:

Röntgen-Röhre, Lochblende (für bessere Bildschärfe), Objekt (Bündel in den Versuchsrohren), Röntgen-Bildverstärker und außerhalb der Bleiabschirmung die Filmkamera.

Probeaufnahmen an einem Drehmodell zeigten, daß das Nachleuchten des Bildverstärkers bis zu 500 Bildern/s nicht sichtbar ist. Die Bildhelligkeit (mit Originalobjekt) ist bei 100 B/s gerade

noch ausreichend, eine Verbesserung derselben und eine Kontrastoptimierung bei bewegten Objekten wird noch versucht.

#### 4. Berührungslose Temperaturmessung

Zur Beschreibung des Aufblähvorganges ist eine möglichst genaue Messung der Hüllrohrtemperatur an der blähenden Stelle erforderlich, wobei der Aufblähvorgang selbst durch die Art der Temperaturmessung nicht verändert werden darf. Außerdem soll der Einfluß des sich ändernden Emissionskoeffizienten der Zircaloyhülle sowie der Absorption von Wasser bzw. Wasserdampf auf die Messung weitgehend vermieden werden. Für diese speziellen Erfordernisse wurde ein neueres Quotientenpyrometer weiterentwickelt.

Der Temperaturbereich des besten zur Zeit auf dem Markt befindlichen Quotientenpyrometers beginnt erst bei  $900^{\circ}\text{C}$ . Eine für den Versuch erforderliche Temperatursenkung von  $900^{\circ}\text{C}$  auf  $600^{\circ}\text{C}$  konnte im wesentlichen durch folgende Änderungen erreicht werden (siehe Abb. 4238-4)

- Verschieben der beiden 50 nm breiten Wellenlängenbanden von 450 nm und 650 nm bei  $900^{\circ}\text{C}$  auf 650 nm und 820 nm bei  $600^{\circ}\text{C}$ , wobei die spektrale Strahldichte der maßgebenden niedrigen Wellenlänge konstant bleibt.
- Austausch der Fotomultiplier durch solche, deren Empfindlichkeit bei der niedrigen Wellenlänge, multipliziert mit der Verstärkung, annähernd gleich ist.
- Reduzierung des Dunkelstromes durch Kühlung der Fotokathoden auf  $+4^{\circ}\text{C}$  bei gleichzeitiger Verwendung eines Defokusiermagneten. Eine stärkere Kühlung auf etwa  $-30^{\circ}\text{C}$  reduziert den Dunkelstrom zwar weiter, bewirkt

aber gleichzeitig eine Verschlechterung der Empfindlichkeit der Fotokathode. Da der Defokusiermagnet nur die benötigte Kathodenfläche freigibt, wird eine zusätzliche Verringerung des Dunkelstromes erreicht, ohne die Empfindlichkeit zu beeinflussen.

Der Laboraufbau nach dem in der Abb. 4238-4 dargestellten Blockschalbild und erste Vorversuche bestätigen die Richtigkeit der vorgenommenen Entwicklungen. Der Zusammenbau des Gerätes wurde weitgehend abgeschlossen, ein Versuchsaufbau zu dessen Funktionsprüfung und zum Eichen wurde vorbereitet.

#### 5. Meßdatenerfassung und -verarbeitung

Die Meßdatenerfassungsanlage Digizet B wurde weitgehend fertiggestellt. Sie wurde in zwei Schränke eingebaut, um eine bessere Platzaufteilung in der vorhandenen Schaltwarte zu erzielen. Die Hineinnahme einer Anzeigeeinheit erbrachte die Möglichkeit einer Kontrolle und des Abgleiches der 128 Eingangsverstärker oder der Überwachung einer frei wählbaren Meßstelle vom Frontpanel aus. Die Änderung der Ausgangssignale in einen reinen Binärcode ergab eine bessere Auflösung des Meßsignals auf der Anzeigeeinheit. Nach erfolgter Prüfung und Fehlerbeseitigung befindet sich die Anlage im Prüffeld des Herstellers und kann nach Abschluß zusätzlicher Verkabelungsarbeiten etwa Ende Juli ausgeliefert werden.

Um den sehr schnell verlaufenden Aufblähvorgang der Zirca-loyhülle zu erfassen, ist es erforderlich, die Meßdaten von etwa 128 Meßstellen in möglichst schneller, zyklischer Folge zum Rechner zu übertragen, dort zu verarbeiten und die Werte ausgewählter Meßstellen in Form von Kurven auf Bildschirmen darzustellen.

Es wurde ein System zur Datenfernübertragung und Datenspeicherung unter Verwendung des vorhandenen Rechnersystems CALAS ausgelegt und installiert mit folgenden spezifischen Anforderungen:

- Übertragung von 128 Meßstellen an das CALAS-Rechnersystem mit einer Taktzeit von  $125 \mu\text{sec}$  ( $\hat{=} 8 \text{ KHz}$ ) und einer Zykluszeit von  $100 \text{ msec}$  ( $\hat{=} 10 \text{ Hz}$ )
- Rückübertragung diskreter Meßwerte von CALAS auf Bildschirmeinheiten in die Schaltwarte.

Die hohe Datentransportrate zum Rechner und die große Menge an Bilddaten bei der Rückübertragung auf die Bildschirmeinheiten erforderte die Entwicklung eines neuen Konzepts der Meßdatenübertragung. Es wurde dabei vorgesehen, daß diese Zwillingsanlage durch einfache Manipulationen auseinander geschaltet werden kann.

Das Meßdatenübertragungssystem (Steuerterminals, Bildschirme, Bildspeicherröhre und Kopiereinheit) wurde installiert und über einen Kabeldatenweg an das Rechnersystem CALAS angeschlossen. Erste Tests des Meßdatenübertragungssystems einschließlich Datenweg wurden durchgeführt.

Mit der Erstellung von Meßdatenauswerteprogrammen (Meßwertkorrektur, Filterung, - Tabellierung und graphische Darstellung) wurde begonnen.

## 6. Theoretische Arbeiten

Die Auslegungsrechnungen für die Brennstabsimulatoren konzentrierten sich auf den nicht blähenden Umgebungssimulator. Da dieser Stab im Gegensatz zum blähenden Zentralsimulator

gut instrumentiert werden soll und bei Verwendung von Zircaloy 4 als Hüllrohrmaterial Schwierigkeiten beim Einsatz von Thermoelementen auftreten, wird ein Inconel-Rohr mit nicht zu schwacher Wandstärke als Hülle gewählt.

Inconel besitzt eine sehr viel größere Wärmekapazität als Zr 4. Um ein ähnliches thermisches Verhalten von Umgebungssimulator und Zentralsimulator zu gewährleisten, muß die hohe Wärmekapazität des Inconel der Hülle durch einen Stoff mit niedriger Wärmekapazität im Innern des Stabes ausgeglichen werden. Hierfür bietet sich Zr 4 an, welches man zwischen dem Heizstab und der Inconel-Hülle anordnet.

Der Umgebungssimulator unterscheidet sich somit vom Zentralsimulator lediglich dadurch, daß die  $Al_2O_3$ -Ringpellets durch Zr 4 und die Zr 4-Hülle des Zentralsimulators durch eine Inconel-Hülle ersetzt wird. - Die durchgeführten Rechnungen zeigten, daß diese Version des Umgebungssimulators eine gute thermische Übereinstimmung mit dem Zentralsimulator aufweist.

Die Rechnungen zur Auslegung des Wandstärken-Profiles des Heizleiter-Rohres für das Vorhaben PNS 4237.2 wurden abgeschlossen.

Zur Berechnung der Temperaturfelder im Brennstabsimulator wurde ein zweidimensionales, instationäres Wärmeleitprogramm erstellt. Für die Simulation einer lokalen, zeitabhängigen Störung des Wärmetransports innerhalb des Brennstabsimulators z.B. infolge Auflähens der Hülle wurde ein Modell gewählt, bei dem die radiale Wärmeleitung durch Quellterme erfaßt wird. Für die Wärmeübergangskoeffizienten innerhalb des Simulators können konstante Schätzwerte angesetzt werden oder aber Wärmedurchgangsbeziehungen wie bei Wärmetauschern. Die abgeleitete Gleichung für die gesamte

Wärmebilanz wird diskretisiert im Sinne eines CRANK-NICOLSON-Verfahrens und im Sinne einer NEWTON-RAPHSON-Methode für nicht konstante  $\lambda$  linearisiert. Die Lösung des zugeordneten Differenzschemas erfolgt iterativ nach einem GAUSS-SEIDEL-Verfahren. - Testläufe zur Ermittlung der Temperaturfelder bei einem vorgegebenen Aufblähen der Hülle wurden durchgeführt.

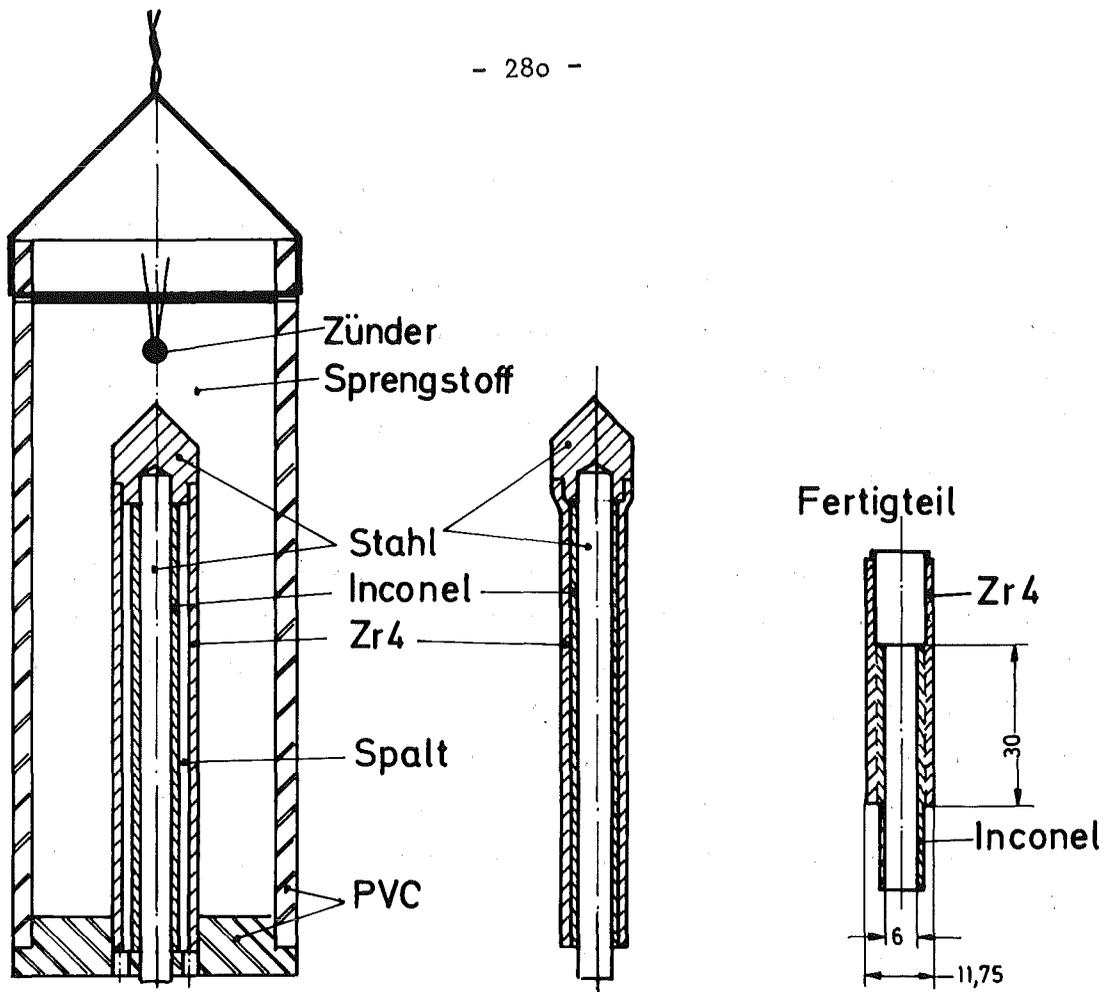
Zur Beschreibung der Gasströmung im Spalt zwischen Pellet und Hülle zur aufblähenden Stelle werden theoretische und experimentelle Untersuchungen durchgeführt, um die Annahmen im Modul DRUSPA des Brennstabverhaltens-Codes SSYST zu überprüfen bzw. zu verbessern. In einer theoretischen Untersuchung wurden physikalisch plausible Vereinfachungen des die Spaltströmung beschreibenden Gleichungssystems aufgezeigt.

Folgende Ergebnisse wurden erzielt:

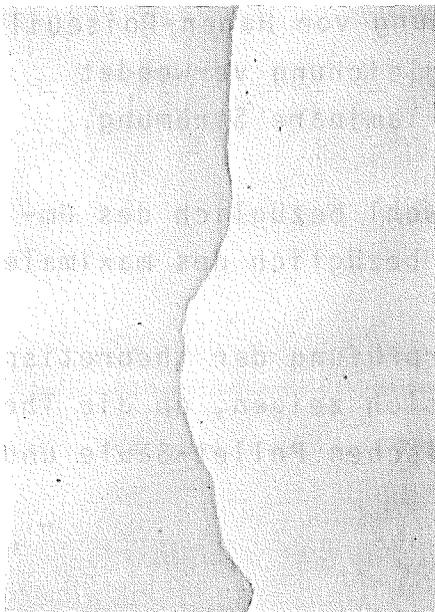
- Die Ringspaltströmung kann bei den vorliegenden Abmessungen als ebene Strömung aufgefaßt werden.
- Das strömende Gas verhält sich quasistationär und quasiinkompressibel. Die Beziehung von Hagen-Poiseuille kann in Verbindung mit der Gasgleichung verwendet werden - bei Beschränkung auf laminare Strömung.

Die kritischen Druckverhältnisse sowohl bezüglich des Umschlages laminar-turbulent als auch bezüglich des maximalen Massenstromes wurden berechnet.

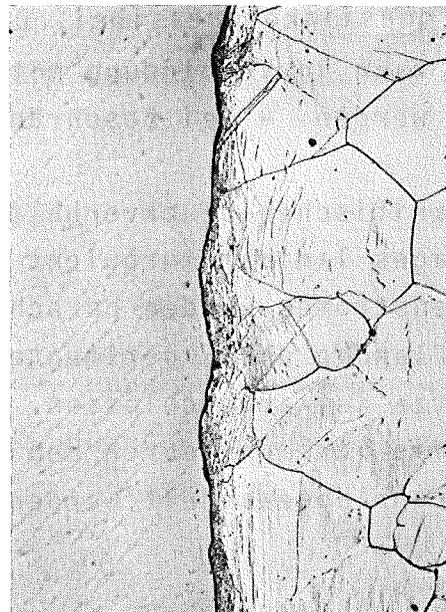
Die Planung der Experimente zur Überprüfung der theoretischen Ansätze ist abgeschlossen. Es wird sich zeigen, ob die Theorie für die Strömung durch den Spalt zwischen Pellet-Säule und Hüllrohr abgewandelt werden muß.



## Sprengschweißverbindung Zr4-Inconel



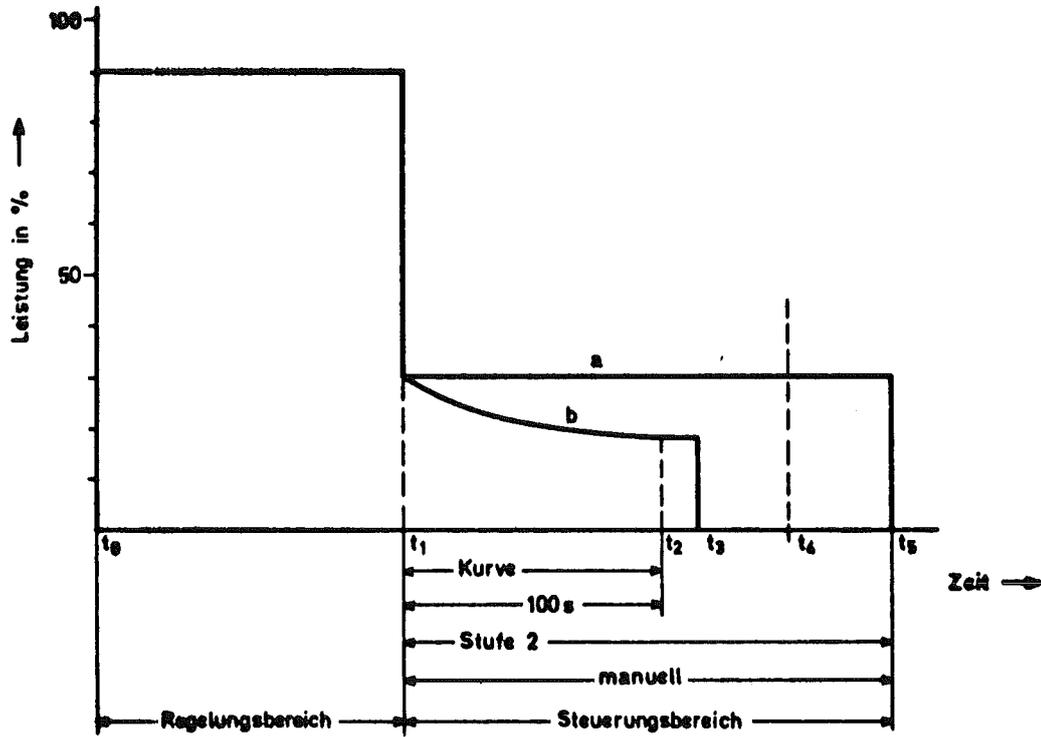
Zirkaloy-4 Inconel  
ungeätzt - Vergr. 500 x



Zirkaloy-4 Inconel  
geätzt m. Oxalsäure - Vergr. 500 x

## Schliffbilder der Sprengschweißverbindung Zr4-Inconel

Abb. 4238 - 1



- $t_0$  Zuschaltung der Leistung, Leistungsvoreinstellung variabel
- $t_1$  Umschaltung Regelung - Steuerung durch Temperatur - Grenzsinal auf Stufe 2. Danach 2 Möglichkeiten manuell (a) oder automatisch (b)
- $t_2$  b - Betrieb. Ende der Kurvensteuerung. Leistungsabfall 30% der Voreinstellung zur Zeit  $t_1$
- $t_3$  b - Betrieb. Abschaltung der Gesamtleistung durch Kurvensteuergerät.  $t_3$  ist zeitlich veränderbar zwischen  $t_2$  und  $t_4$ .
- $t_4$  b - Betrieb. Erreichen der Anfangsruhestellung des Kurvensteuergerätes, startbereit.
- $t_5$  a - Betrieb. Abschaltung der Gesamtleistung durch Hand zu einem frei wählbaren Zeitpunkt nach  $t_1$ .

Abb. 4238-2 Schematische Darstellung des Leistungsverlaufes beim Vorhaben 4238

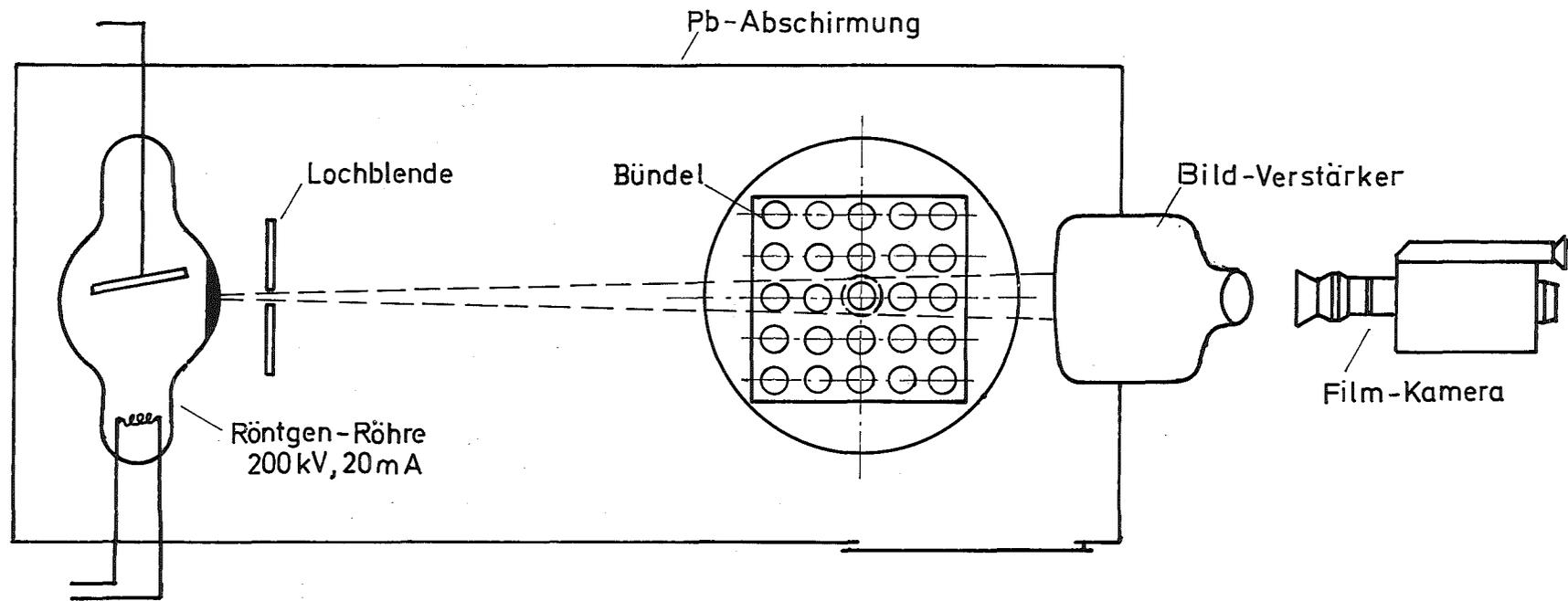
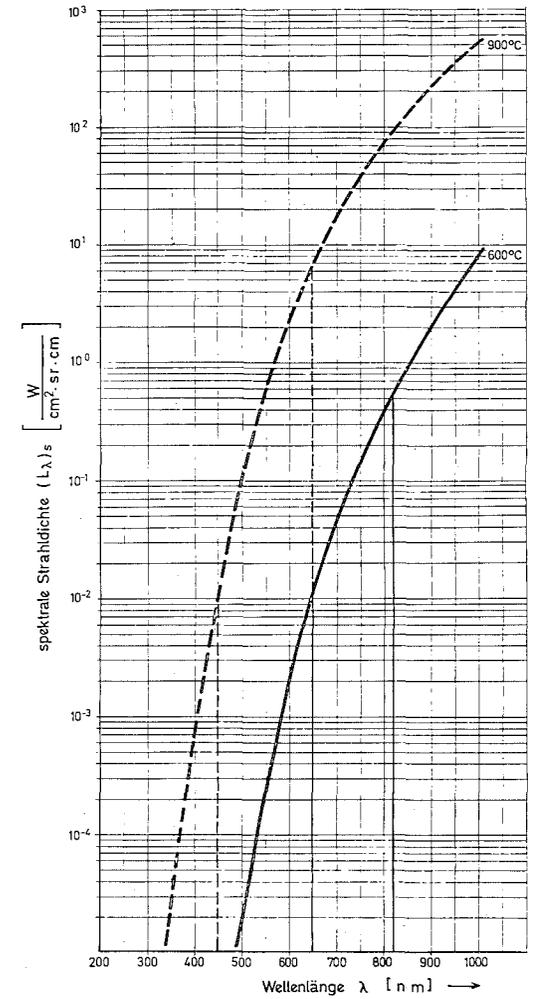
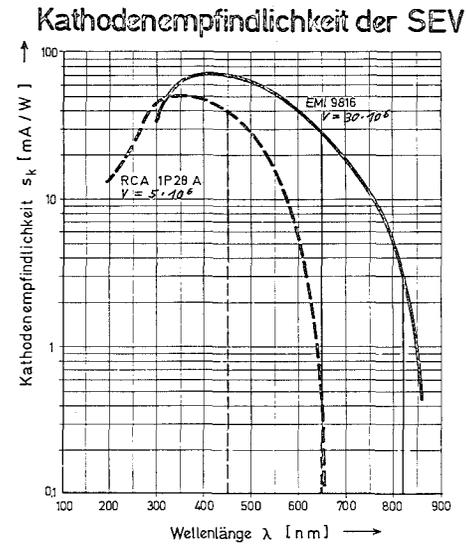
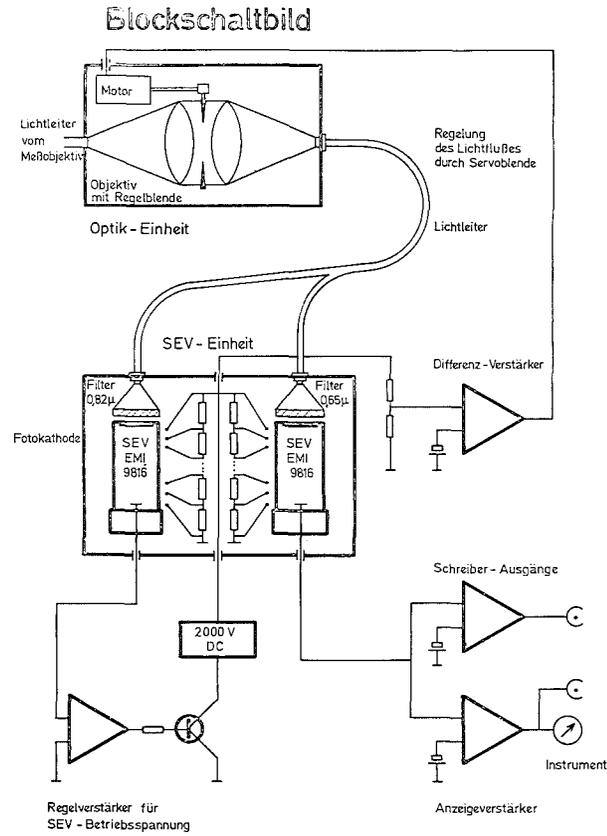


Abb.4238 - 3 Aufbau der Röntgenanlage

# BERÜHRUNGSLÖSE TEMPERATURMESSUNG

## Spektrale Strahldichte eines schwarzen Strahlers



### Brennelement-Versuchsaufbau

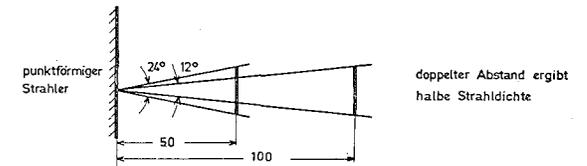
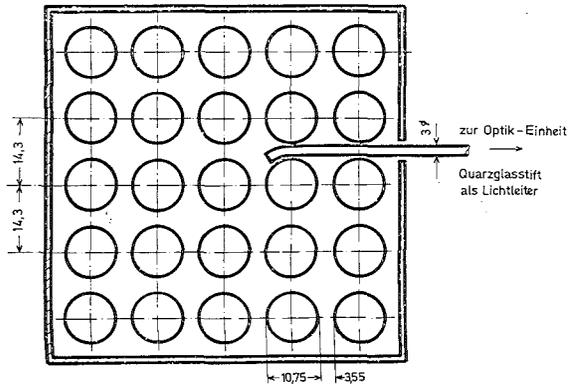


Abb. 4238-4

- 4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalls  
(G. Hofmann, P. Ihle, H. Kreuzinger, A. Megerle, H. Politzky, H. Schneider, B. Schöffler)

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.

Schwerpunkte der Arbeiten im Berichtszeitraum lagen auf:

- Aufbau des Versuchskreislaufs
- Detailkonstruktion der Teststrecke
- Leistungssteuerung für die Heizung
- Ausstattung des Kreislaufs mit Meß- und Registriergeräten
- Organisation der schnellen Datenerfassung
- Prüfung von Blockadekonstruktionen
- Rechnungen zum Einfluß künstlicher Blockaden auf das Wärmestromdichtefeld

Innerhalb der 5 Teilaufgaben, die der Vorbereitung der Experimente dienen, wurden die im folgenden beschriebenen Arbeiten durchgeführt.

## 1. Kreislauf

### 1.1 Montage der Komponenten und Rohrleitungen

Der wasserführende Teil des Kreislaufs mit Pumpe, Filter, Wärmetauscher und Vorratsbehälter ist fertiggestellt und starkstromseitig angeschlossen. Die Speisewasser- und die Dampfversorgung von Bau 272 nach Bau 413 sind verlegt und der Kreislauf ist über Verteiler angeschlossen. Der oben liegende Pufferbehälter mit den Überströmreglern zur Druckhaltung ist einschließlich aller Rohrleitungen und Armaturen montiert. Die noch fehlende Teststrecke wird vorerst durch ein Rohrstück ersetzt, so daß der Kreislauf geschlossen und nach Anbringen der Betriebsinstrumentierung im Juli eingefahren werden kann. Zur Vereinfachung der Bedienung vorgesehene Motorventile sind vorerst durch handbetätigte Ventile ersetzt, damit die Inbetriebnahme nicht verzögert wird. Nach der Dichtheitsprüfung wird die Isolierung der dampfführenden Rohre und Behälter montiert.

### 1.2 Stromversorgung für die Bündelheizung

Die Beheizung der 5-Stab-Anordnung erfordert bei einer Simulierung der Nachzerfallsleistung ab der 40. Sekunde eine elektrische Leistung von etwa 30 KW bei 190 V; dazu wird ein Leistungsthyristor benutzt. Bei der Beheizung der 25-Stab-Anordnung werden die innere Gruppe von 9 Stäben und zwei äußere Gruppen von je 8 Stäben durch je einen auf eine Netzphase geschalteten Thyristor versorgt.

Die Thyristoranlage besitzt eine Leistungsregelung, mit der die einem Verbraucher zugeführte elektrische Leistung bei Netzschwankungen oder anderen äußeren Störeinflüssen konstant gehalten wird. Die Einstellzeit dieses Regelkreises überschreitet jedoch z.B. die für die Leistungserhöhung bei Flutbeginn zulässige Zeitspanne erheblich, so daß eine automatische Sollwertverstellung am Regelkreis nicht in Betracht kommt. Daher

wurde ein programmierbares Ansteuergerät für Thyristoren entwickelt, das folgenden Anforderungen genügt:

- Umschaltzeit für vorprogrammierte Leistungswerte  $< 20$  ms
- Verringerung der Leistung um maximal 40% nach einem frei wählbaren Kurvenverlauf, vorzugsweise der Spaltprodukt-Nachwärme-Kurve nach ANS- Standard
- Parallelansteuerung von bis zu sieben Leistungsthyristoren

Das Ansteuergerät liefert anstelle des Reglers die Stellgröße für den Thyristor. Für spezielle Versuchsphasen besteht auch weiterhin die Möglichkeit, von Steuerung auf Regelung umzuschalten. Dies ist außer von Hand auch mit einer Zeitsteuerungseinheit möglich, die während des Versuchsablaufs in Abhängigkeit von der Zeit zusätzlich Steuerbefehle für Ventile, Motore oder Registriergeräte abgibt. Im Blockschaltbild der Abb. 4239-1 sind die Regelstrecke und die Leistungssteuerung dargestellt. Der zeitabhängige Leistungsverlauf ist in Abb. 4239-2 schematisch wiedergegeben; die erste Vorstufe dient der Aufheizung der Anordnung über längere Zeit auf eine Anfangstemperatur und mit der zweiten Stufe werden die Wärmeverluste während des Temperatúrausgleichs gedeckt. Im folgenden programmierbaren Steuerungsbereich kann mit Stufe 1 gezielt ein Temperaturunterschied zwischen Kastenwand und Stäben eingestellt werden, um auf diese Weise die Relation der in Stäben und Wand gespeicherten Wärmemenge zu beeinflussen; mit Stufe 2 wird die auf einem beliebigen Leistungsniveau angesiedelte Nachwärmefreisetzung gesteuert. Im Bereich des Übergangs von Stufe 1 auf Stufe 2 gibt das Steuergerät Befehle für den hydraulischen Ablauf des Flutvorganges und die Datenerfassung. Das Ansteuergerät wurde im Berichtszeitraum gebaut und in Verbindung mit einem Thyristor und einem Lastwiderstand erprobt.

### 1.3 Steuer-, Anzeige- und Registriergeräte

Sämtliche zur Bedienung und Beobachtung des Kreislaufs notwendigen Geräte sind in der Schaltwarte in Bau 413 untergebracht. Wesentliche Teile des Kreislaufs, insbesondere die ganze Teststrecke, können außerdem von der Schaltwarte aus eingesehen werden.

Im einzelnen werden angezeigt und registriert:

- Dampfmenge des zur Vorwärmung und Druckhaltung benötigten Fremddampfes. Der Dampfzustand wird angezeigt.
- Temperatur und Druck auf der Hochdruckseite des Flutwassers.
- Temperatur und Menge des über ein Drosselventil in den unter Druck stehenden Flutkreis einströmenden Flutwassers. Diese Werte werden vor Beginn des Flutens fest eingestellt, so daß bei Versuchsbeginn nicht mehr nachgeregelt werden muß und keine Druckstöße auftreten.
- Temperatur und Druck im Pufferbehälter, über den auch während des Versuchs Fremddampf strömt, damit die Überströmregler ständig geöffnet bleiben.
- Temperaturen an exponierten Stellen des Kreislaufs zur Steuerung und Kontrolle der Aufwärmung.
- Temperaturen an den Leitungen zum Kondensatfangbehälter in dem die Menge des beim Versuch ausgeworfenen Wassers zeitabhängig gemessen wird.
- Temperaturen an den Druckleitungen zum Meßfühler des Differenzdrucks an der Blockade.

Sämtliche Temperaturen werden auf Polycomp-Druckern registriert, Drücke, Durchsätze und elektrische Leistungen auf Linienschreibern.

Die Stromversorgungen für die Wasserspiegeldetektion und für die Scheibenheizung sind ebenfalls in der Schalttafel eingebaut, zusammen mit Strom- und Spannungsanzeigen. Sie werden von hier aus geschaltet und eingestellt. Die Anordnung der Steuer-, An-

zeige- und Registriergeräte in der Schalttafel und dem Schaltpult zeigt Abb. 4239-3. Sämtliche Geräte sind vorhanden und bis auf zwei Anzeigegeräte eingebaut. Die Verdrahtung und Verlegung der Leitungen zur Teststrecke sind im Gange. Im Unterschied zu den Kreislauf-Meßwerten, die zeitlich unveränderlich sind oder nur der Kreislaufüberwachung dienen, müssen alle Meßwerte, die die Randbedingungen und Ergebnisse des instationären Flutvorgangs erfassen, auf einem schnellen Datenspeicher festgehalten werden. Für diese zeitabhängige Datenaufnahme ist gemeinsam für die Vorhaben PNS 4238 und 4239 eine schnelle Datenerfassungsanlage bestellt und unmittelbar vor der Auslieferung.

Mit dieser Anlage werden bis zu 128 Meßsignale getrennt verstärkt, mit einer Zyklusfrequenz von 10 Hz abgefragt, digitalisiert und mit einer Datenadresse versehen. Die digitalisierten Daten werden von der Anlage CALAS der Abteilung ADI gespeichert und soweit aufbereitet, daß die mV-Signale der Meßwertgeber in den gewünschten physikalischen Einheiten abgelegt werden können. Eine begrenzte Anzahl von ausgewählten Daten kann während des Versuchs und unmittelbar nach dem Versuch auf zwei Bildschirmen zeitabhängig dargestellt werden, um den Ablauf des Versuchs und sein Ergebnis zu beurteilen und Konsequenzen für den folgenden Versuch zu ziehen.

In die schnelle Datenerfassung wurden folgende Meßgrößen einbezogen:

- Staboberflächentemperaturen
- Kastenwandtemperaturen
- Fluidtemperaturen
- Systemdruck und Differenzdrücke in der Stabanordnung
- Wasserdurchsatz an der Einspeisung
- ausgeworfene Wassermenge
- elektrische Heizleitung
- Signal des Wasserspiegeldetektors für den Flutbeginn

Zunächst wird jede Meßstelle 10 mal pro Sekunde abgefragt; die dabei entstehende sehr große Datenmenge kann nur zum Teil ausgewertet werden, eröffnet aber die Möglichkeit, stark instationären Vorgänge detailliert zu verfolgen.

Im Berichtszeitraum wurden das Terminal, die Bildschirme und die Hardcopy-Einheit für die Kommunikation mit dem System CALAS installiert und der Datenweg getestet. Für die einzelnen Meßwerte wurden Datenadressen festgelegt und die Aufbereitungsvorschriften sowie die Bildschirmdarstellung spezifiziert.

#### 1.4 Versuchsplanung

Die wesentlichen Steuergrößen und der Ablauf des Versuchs sind im Schema der Abb. 4239-4 zusammengefaßt dargestellt. In Tabelle 1 ist der vorläufige Versuchsplan wiedergegeben, der während der Versuchsdurchführung aufgrund der Ergebnisse vorangegangener Versuche variiert und um Wiederholungsversuche erweitert werden kann.

## 2. Teststrecke

### 2.1 Konstruktion

Die Konstruktion der Teststrecke wurde im Berichtszeitraum überarbeitet und in einigen Details geändert. Da das Mittelstück der Teststrecke wie die Brennstabsimulatoren selbst aufgeheizt und abgeschreckt wird, treten erhebliche Dehnungen und Dehnungsdifferenzen auf. In allen Betriebszuständen muß die Dichtheit und Formstabilität erhalten bleiben. Für die Längsdichtung z.B. wird in Abweichung zum ersten Konzept Graphitfolie verwendet, für die Flanschdichtung an den Stirnseiten Graphitweichdichtung der spez. Dichte von  $0,3 \text{ g/cm}^3$  und für die Abdichtung der Beobachtungsfenster ein aus Folien gewickelter

Graphitpaßring. Die Spannkkräfte zum Dichten des längsgeteilten Mittelstücks der Teststrecke werden nicht wie vorgesehen von Dehnschrauben, sondern von Tellerfedern aufgebracht.

Die Teststrecke wird z.Zt. gefertigt. Die zum Schließen des Kreislaufs notwendigen Kopf- und Fußstücke der Teststrecke werden im Monat Juli ausgeliefert. Einzelteile für die Anbringung und Kastendurchführung der Meßfühler und Druckentnahmestellen wurden konstruiert und zur Fertigung gegeben.

## 2.2 Meßstellenverteilung

Für die axiale Verteilung der Meß- und Beobachtungsstellen über die beheizte Stablänge von 2,9 m waren hauptsächlich zwei Gesichtspunkte maßgebend: die Lage der Wandtemperaturmeßstellen soll einen Vergleich mit Meßergebnissen in dem großen Bündel des Vorhabens RS 36 der KWU zulassen und zugleich im Bereich hinter der Blockade, die in Stabmitte angebracht wird, einen Vergleich mit den Ergebnissen entsprechender FLECHT-Experimente bei Westinghouse erlauben. Vor diesem Hintergrund wurden die Meßstellen auf 9 Ebenen verteilt (Abb. 4239-5). Alle Meßstellen eines Stabes sind übereinander auf der gleichen Mantellinie angeordnet; sie können durch Drehen des Stabes in beliebige azimutale Positionen gebracht werden.

Fluidtemperaturmeßstellen sind in der oberen Bündelhälfte auf drei Meßebenen den Stabthermoelementen zugeordnet. Die Meßstelle selbst besteht wahlweise aus einem durch die Wand in den Kühlkanal ragenden Thermoelement oder aus einem Thermoelement, das in einer Bohrung der Wand von einem Strahlungsschirm geschützt untergebracht und von einem geringen Dampffleckstrom bespült wird.

Kastentemperaturmeßstellen sind in den meisten Meßebenen den Stabthermoelementen zugeordnet, um insbesondere die Kastenbeheizung im Vergleich zur Stabbeheizung verfolgen zu können.

Die Abstandhalter können bei einem reaktortypischen axialen Abstand von 500 mm wahlweise in zwei um 200 mm verschobenen Positionen angebracht werden; in der unteren Position ergibt sich eine größere vom Abstandhalter ungestörte Anströmlänge für die Blockade in Stabmitte; in der oberen Position ist die Anströmlänge sehr kurz, dafür entfällt jedoch die Störung des Abstandhalters oberhalb der Blockade in dem für die Messung interessanten Bereich.

Es werden drei Beobachtungsfenster angebracht; ein Fenster befindet sich so dicht hinter der Blockade, wie es die längsten an der Wand anzubringenden Blockadekörper zulassen; das zweite Fenster hat weitere 260 mm Abstand und gestattet die Beobachtung wahlweise vor oder hinter dem auf die Blockade folgenden Abstandhalter; das letzte Fenster dient der Strömungsbeobachtung im oberen Bündelbereich. Alle Fenster sind auf Ebenen angebracht, in denen auch Stabtemperaturen gemessen werden, und die beiden oberen Fenster gestatten auch, die möglicherweise vorzeitig einsetzende Benetzung an den Abstandhaltern zu beobachten.

Die Druckentnahmestellen sind im Rahmen der Konstruktionsmöglichkeiten so angebracht, daß der Druckverlust im Bereich der Blockade ohne zusätzlichen Abstandhalter, der Druckverlust in der oberen Bündelhälfte und der Druckverlust über die gesamte Anordnung gemessen werden können.

### 3. Auswahl, Beschaffung und Instrumentierung geeigneter Heizstäbe und Blockadekonfigurationen

#### 3.1 Heizstäbe

Die für die ersten Versuche bestellten 20 Heizstäbe wurden vom Hersteller geliefert. Die bisher durchgeführten Abnahmeprüfungen ergaben, daß die Stäbe in ihren äußeren Abmessungen, ihrem

Gesamtwiderstand und zum größeren Teil auch in der Länge der inneren Heizzonen der Bestellspezifikation entsprechen. Eine Vermessung der relativen Leistungsdichteverteilung der einzelnen Heizzonen steht noch bevor und ist nicht zerstörungsfrei möglich, weil sich die Widerstände der einzelnen Wendelabschnitte bei der Verdichtung des Isolators während der Fertigung nicht gleichmäßig verändern.

Fünf der Heizstäbe wurden zur Instrumentierung mit Thermoelementen an die Hauptwerkstatt gegeben.

### 3.2 Blockadekörper am Stab

Das Ziel ist die Verwendung eines Blockadekörpers in Buchsenform, der sich auf den Stab leicht aufstecken und auswechseln läßt und trotzdem möglichst guten thermischen Kontakt zum Stab hat. Dazu muß zunächst eine Aufnahmebuchse auf dem Stab befestigt werden, deren Außendurchmesser etwas größer als der des Stabes ist, und die eine Sicherung des Blockadekörpers gegen axiale Verschiebung ermöglicht. Eine Hochtemperaturverlötung der Aufnahmebuchse unter Schutzgas war nicht erfolgreich, weil kein ausreichend gleichmäßiger Lotfluß erreicht wurde, der Voraussetzung für eine einwandfreie Bearbeitbarkeit der Buchsenränder gewesen wäre. Danach wurde eine Befestigung der Aufnahmebuchsen durch Sprengschweißen versucht; die unter der aufgesprengten Buchse hindurchlaufenden Thermoelemente blieben dabei unbeschädigt, aber durch die auf dem Umfang nicht gleichmäßige Zündung der Ladung entstanden leicht Verbiegungen mit kleinem Radius und einseitige Verformung am Stab. Parallel dazu wurde versucht, die Aufnahmebuchse durch Rundhämmern auf dem Stab zu befestigen; dabei schnürt sich der Stab unter der Buchse einige Zehntel Millimeter ein, so daß auch nach dem Eindrehen der Buchse auf 11 mm Außendurchmesser eine ausreichende Wandstärke erhalten bleibt.

Wie Vorversuche zeigten, verhindert diese Befestigung ebenso wie der geplante kegelige Sitz zwischen Aufnahmebuchse und Blockadekörper nicht, daß die Buchsen beim zyklischen Erwärmen und Abschrecken axial nach unten auf den größeren Durchmesser aufkriechen. Daher wurde die Aufnahmebuchse am unteren Rand zusätzlich verlötet und der kegelige Sitz durch einen sehr engen zylindrischen Paßsitz mit einem kleinen Bund am unteren Rand ersetzt.

Diese Verbindung stellt zusammen mit auf der Kopierdrehbank hergestellten Blockadekörpern eine fertigungstechnisch verhältnismäßig einfache Lösung dar und wird an einem vorbereiteten Muster im Juli unter Betriebsbedingungen geprüft.

### 3.3 Blockadekörper an der Kastenwand

Bei der ersten Versuchsanordnung mit 5 Stäben sind ausschließlich Wandkanäle vorhanden, die so dimensioniert sind, daß das Verhältnis des Kanalquerschnitts zum benetzten Umfang einschließlich der wärmeabgebenden Kanalwand gleich dem eines Normalkanals im Bündel ist; dabei ergibt sich der Wandkanal 5% kleiner als der Normalkanal. Die Blockadekörper, die auf die Kastenwand gesetzt werden, sind so dimensioniert, daß der verengte Wandkanal möglichst gut einem durch gleichmäßig aufgeblähte Stäbe im Bündelinnern gebildeten verengten Normalkanal entspricht. Bei dieser Dimensionierung wurde auf die Realisierung folgender in der Reihenfolge ihrer Wichtigkeit genannten Ähnlichkeiten mit dem Normalkanal geachtet:

- gleiche Querschnittsfläche an der engsten Stelle
- gleiche Form des Querschnitts an der engsten Stelle
- gleiche axiale Stabkontur im Bereich der engsten Stelle
- gleiche axiale Kontur im übrigen Bereich

Diese Forderungen lassen sich mit Segmenten von in der Mitte gerundeten Doppelkegeln recht gut und fertigungstechnisch einfach erfüllen.

#### 4. Vorprüfung von Meß- und Beobachtungsverfahren

##### 4.1 Beobachtungsfenster

Das Problem der Scheibenbenetzung zu Beginn der Flutphase kann nur durch Beheizen der Scheiben entschärft werden. Eine Verzögerung der Benetzung der Scheiben um wenige Sekunden, möglichst jedoch bis zum Übergang von Tropfenströmung in Filmsieden würde die Beurteilbarkeit der Strömung und ihrer Veränderung wesentlich verbessern. Mechanische Wasserfilmabscheider, rotierende Scheiben oder Einleitung von Fremdfluiden scheiden aus, da die zu beobachtende Strömung, die Tropfenform und -bewegung durch solche Hilfsmittel verändert werden würden.

Das Beobachtungsfenster einer vorhandenen Vorversuchs-Teststrecke wurde mit elektrischen Anschlüssen versehen, um teilweise lichtdurchlässig metallbeschichtete Quarzglasscheiben durch direkten Stromdurchgang auf der Fluidseite aufzuheizen. Die Metallbeschichtung wird durch Besputtern mit Chrom hergestellt; die ersten drei Scheiben mit unterschiedlicher Schichtstärke liegen vor. Die Versuche werden im Juli durchgeführt, wobei die Schnellfilmkamera mit verschiedenen Verschlüssen zur Verkürzung der Belichtungszeit bei gleicher Filmgeschwindigkeit (8000 Bilder pro Sekunde) zum Einsatz kommt.

##### 4.2 Geschwindigkeitsmessung

Es war geplant, im Rahmen des Vorhabens zu versuchen, örtliche Geschwindigkeiten im Unterkanal über die Kreuzkorrelation von

in der Strömung gemessenen Temperatursignalen zu ermitteln. Die dazu durchgeführten Vorversuche waren ermutigend; die zur Verfügung stehende Arbeitskraft reicht jedoch zur Zeit nicht aus, die Entwicklung dieses Meßverfahrens neben der Vorbereitung und Durchführung der Hauptversuche zu betreiben. Die Entwicklung des Geschwindigkeitsmeßverfahrens wurde deshalb zunächst zurückgestellt.

## 5. Rechnungen zur Vorbereitung, Auslegung und Auswertung des Experiments

### 5.1 Störung des Wärmestromdichtefeldes durch künstliche Blockaden

Als quantitatives Ergebnis der Versuche sollen Wärmeübergangszahlen von der Oberfläche der Heizstäbe zum Kühlmittelstrom während der Flutung berechnet werden. Als Voraussetzung dazu muß neben der Temperaturdifferenz die Wärmestromdichte an der betrachteten Stelle der Heizstaboberfläche bekannt sein. Während des instationären Vorgangs ergibt sich der Wärmestrom dort aus der im Stab freigesetzten elektrischen Leistung und einem Speicherglied, das während der Erwärmung negativ und während der Abkühlung des Stabes positiv ist. Bei glatten Stäben sind die axialen Temperaturgradienten so flach, daß der axiale Wärmestrom im Stab vernachlässigt werden kann und der radiale Wärmestrom damit berechenbar ist; das gilt insbesondere für die Bereiche in der Stufenmitte eines axial gestuften Leistungsprofils.

Durch das Aufbringen eines massiven Blockadekörpers auf den glatten Stab wird jedoch eine Verzerrung des Wärmestromdichteprofiles verursacht, weil durch diesen Körper die Masse und die

wärmeabgebende Staboberfläche örtlich vergrößert werden; hinzu kommt noch eine Veränderung der Wärmeübergangszahl entlang des Blockadekörpers, die jedoch nicht bekannt ist und hier außer Betracht bleibt. Dadurch ist der die Oberfläche verlassende Wärmestrom nicht berechenbar, solange die Temperatur entlang einer Mantellinie des Blockadekörpers nicht gemessen werden kann; bei großen Blockaden mit sich berührenden, abgeflachten Oberflächen wäre darüber hinaus eine Vermessung des Temperaturfeldes in azimuthaler Richtung erforderlich. Es wurde daher mit Hilfe des Rechenprogramms RELAX berechnet, in welchem axialen Abstand vom Rand des Blockadekörpers die Verzerrung der Wärmestromdichte an der Oberfläche kleiner als 2% bzw. 5% des radialen Wärmestroms im ungestörten Fall wird. Die Rechnung hat das Ziel, diesen Abstand als Mindestabstand bei der Anbringung von Meßstellen einzuhalten und damit den Fehler aus der Verzerrung in die Größenordnung anderer unvermeidlicher Fehler zu bringen. Das Ergebnis dieser Rechnung hängt sehr stark von den gewählten Randbedingungen ab, und zwar insbesondere davon, ob sich aus der Summe der Randbedingungen im beobachteten Zeitraum eine Erwärmung, eine Abkühlung oder eine aufeinanderfolgende Erwärmung und Abkühlung ergibt und welcher thermische Kontakt zwischen Stab und Blockadekörper angenommen wird.

Das Ergebnis der Rechnungen kann in folgenden Feststellungen zusammengefaßt werden:

- unter Vorgabe des realistischen Nachwärmeverlaufs, einer gleichmäßigen Anfangstemperatur von  $650^{\circ}$  C, einer realistischen Wärmeübergangszahl mit der Zeitabhängigkeit nach Versuch Nr. 75.2 der Bündelversuche RS 36 bei der KWU und einem Spaltwärmeübergang von  $0,15 \text{ W/cm}^2\text{K}$  unter dem Blockadekörper ergibt sich, daß im berechneten Zeitraum von 70 Sekunden außerhalb des Blockadekörpers keine um mehr als 2% verzerrten Wärmestromdichten auftreten.

- selbst unter den extremen und unrealistischen Randbedingungen zeitkonstant starker Abkühlung ( $\alpha = 250 \text{ W/m}^2\text{K}$ ) und idealen Kontaktes unter dem Blockadekörper im einen Fall und eines Gleichgewichtszustandes ( $\alpha = 159 \text{ W/m}^2\text{K}$ ) mit ebenfalls idealem Kontakt unter dem Blockadekörper im anderen Fall liegen schon 10 mm hinter dem Blockaderand weniger als 2% Wärmestromdichteverzerrung vor.
- man kann also bereits 10 mm hinter der Blockade messen und den von der Blockade ungestörten Wärmestrom ansetzen, ohne einen nennenswerten Fehler zu machen.

Vorläufiger Versuchsplan  
für die 5-Stab-Anordnung

Tabelle 1  
Blatt 1

Versuch	Blockade	Systemdruck	Anfangstemp.	Flutrate	Wassertemp.	Kastentemp.	Abstandsh.	Bemerkungen	
Gruppe	Form x) Faktor $\frac{F_B}{F_0}$	[bara]	[°C]	[cm/s]	[°C]	[°C]	Position		
0.	1	glatte Stäbe	4,5	650	4,5	20	≈ 650	A	Vergleichsfall
	2		<u>2,5</u>	"	"	"	"	"	
	3		<u>1,0</u>	"	"	"	"	"	
	4		4,5	650	<u>1,5</u>	20	"	"	
	5		"	"	<u>3,0</u>	"	"	"	
	6		"	"	<u>6,0</u>	"	"	"	
	7		"	"	<u>9,0</u>	"	"	"	
	8		"	"	<u>15,0</u>	"	"	"	
	9		"	<u>800</u>	4,5	20	≈ 800	"	
	10		"	"	9,0	"	"	"	
	11		"	650	4,5	<u>80</u>	≈ 650	"	
	12		"	"	1,5	"	"	"	
	13		"	"	9,0	"	"	"	
	14		1,0	"	4,5	"	"	"	
zusätzl. Versuche aufgrund der Ergebnisse und mit anderer Kastentemperatur									
	53		1,0	650	4,5	20	xx)	<u>B</u>	Demontage
	51		4,5	"	4,5	"	"	"	
	54		"	"	1,5	"	"	"	
	57		"	"	9,0	"	"	"	
evt. zusätzl. Versuche									
Demontage									
1.	3	m.Buchse A	1,0	650	4,5	20	xx)	A	
	1	aber ohne	4,5	"	"	"	"	"	
	4	Blockade	"	"	1,5	"	"	"	
	7		"	"	9,0	"	"	"	
evt. zusätzl. Versuche									
Demontage									

Vorläufiger Versuchsplan  
für die 5-Stab-Anordnung

Tabelle 1  
Blatt 2

Versuch Gruppe Numer	Blockade		Systemdruck [bara]	Anfangstemp. [°C]	Flutrate [cm/s]	Wassertemp. [°C]	Kastentemp. [°C]	Abstandsh. Position	Bemerkungen	
	Form x)	Faktor $\frac{F_B}{F_0}$								
2. 1	P	0,9	4,5	650	4,5	20	xx)	A	Vergleichsfall	
			weitere Parameterkombinationen und zusätzliche Versuche wie bei Versuchsgruppe 0							
3. 1	L	0,9	4,5	650	4,5	20	xx)	A	Demontage Vergleichsfall	
			weitere Parameterkombinationen und zusätzliche Versuche wie bei Versuchsgruppe 0							
4. 1	K	0,9	4,5	650	4,5	20	xx)	A	Demontage Vergleichsfall	
			weitere Parameterkombinationen und zusätzliche Versuche wie bei Versuchsgruppe 0							
									Demontage	
Weitere Blockaden aufgrund der Ergebnisse										

x) Blockade-Form: L = lange Beule, K = kurze Beule, P = Platte

xx) Kastentemperatur: durch Steuerung der Aufheizung entsprechend Ergebnissen in Versuchsgruppe 0

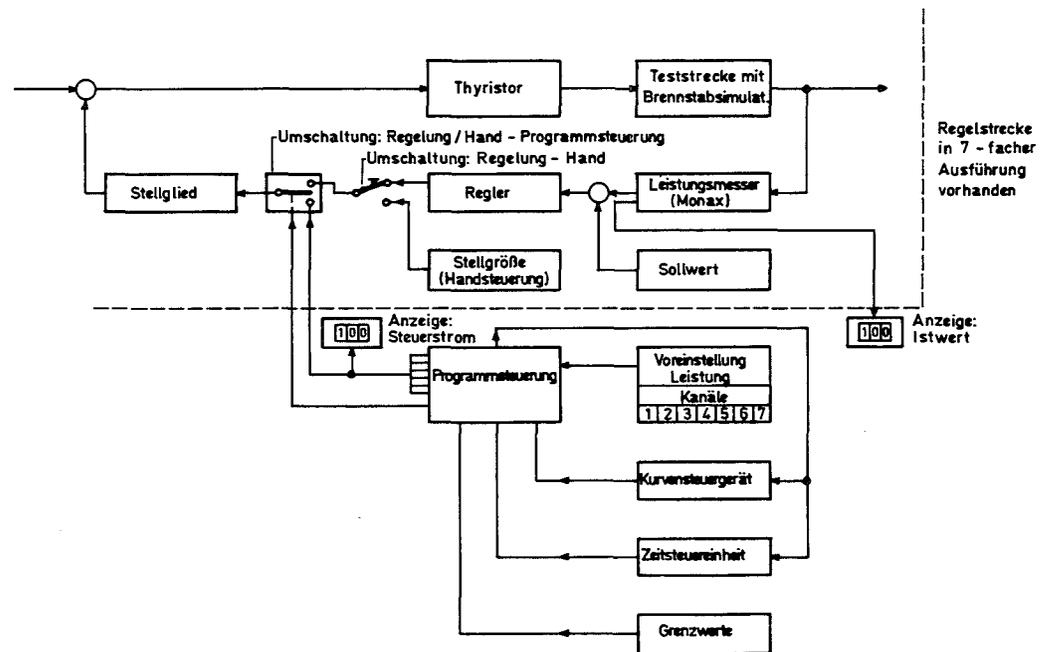
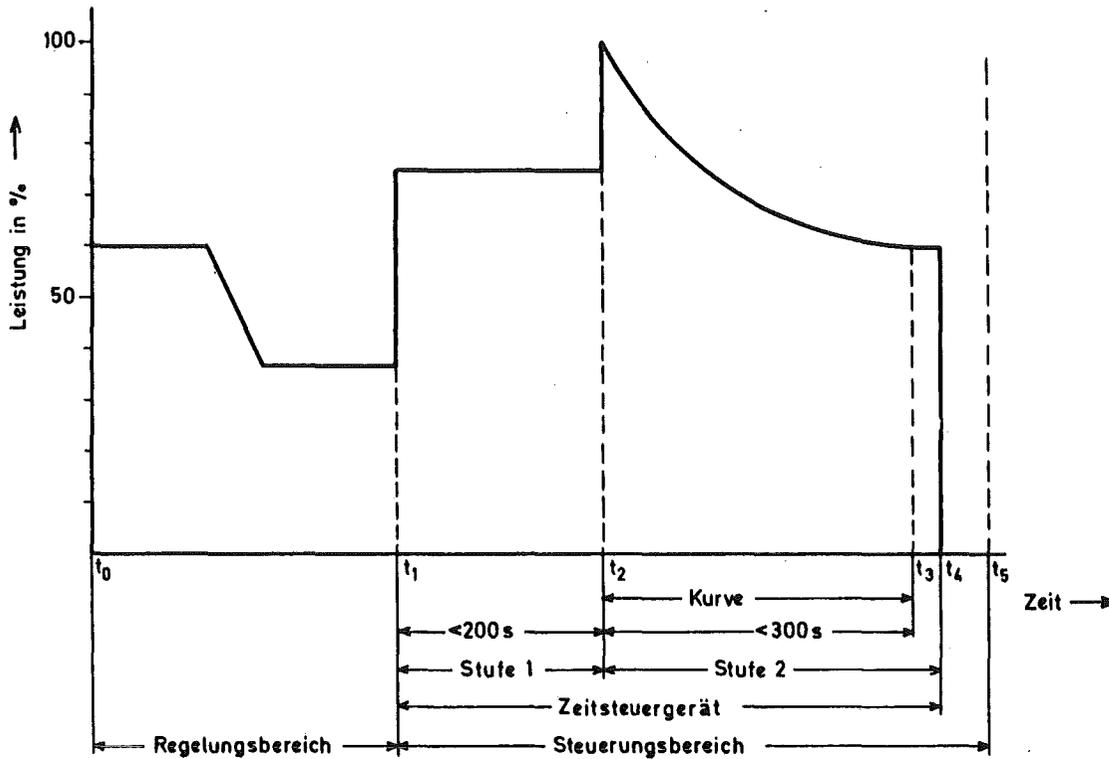


Abb. 4239-1 Blockschaubild der Regelstrecke und der programmierbaren Leistungssteuerung



- t<sub>0</sub> Zuschaltung der Leistung, Leistungseinstellung variabel
- t<sub>1</sub> Umschaltung Regelung - Steuerung von Hand, Leistungsvoreinstellung variabel. Start des Zeitsteuergerätes.
- t<sub>2</sub> Umschaltung auf Stufe 2 durch Zeitsteuergerät. Leistungsvoreinstellung variabel, Beginn der Kurvensteuerung.
- t<sub>3</sub> Ende der Kurvensteuerung Leistungsabfall 40 % der Voreinstellung.
- t<sub>4</sub> Abschaltung der Gesamtleistung durch Kurvensteuergerät. Ende des Zeitsteuerungsablaufes.
- t<sub>5</sub> Erreichen der Anfangsruhestellung des Kurvensteuergerätes, startbereit.

Abb. 4239-2

Schematische Darstellung des Leistungsverlaufes beim Vorhaben 4239

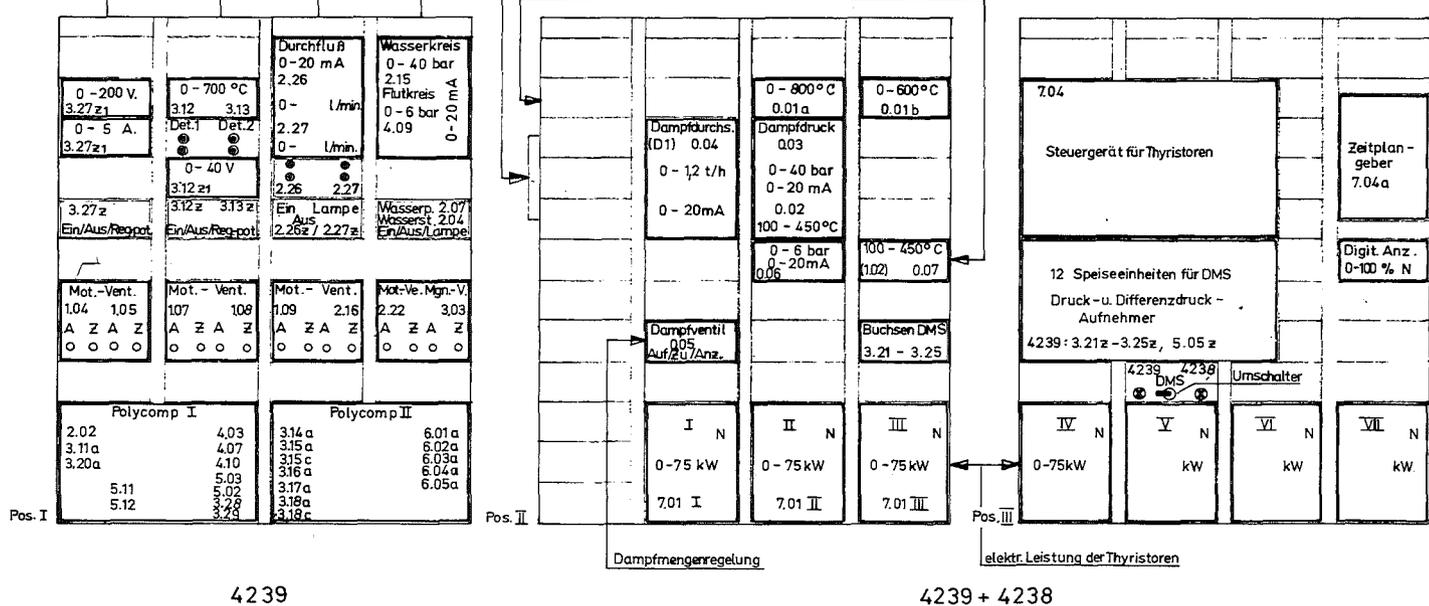
Druck im Wasser- und Flutkreis

Flutwasserdurchsatz (Turboflowmeter)

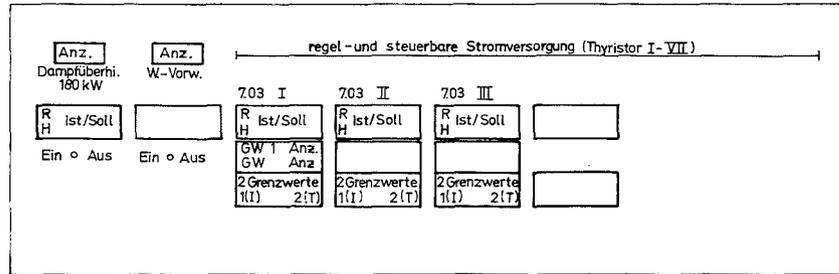
Wasserspiegeldetektoren

Scheibenheizung

### Schalttafel



### Schaltpult



2 Grenzwerte (I, T) für 4239  
 zunächst nur Thy. I (5 Stäbe) 1 Phase  
 später Thy. I II III (25 Stäbe) 3 Phasen

Abb. 4239 - 3

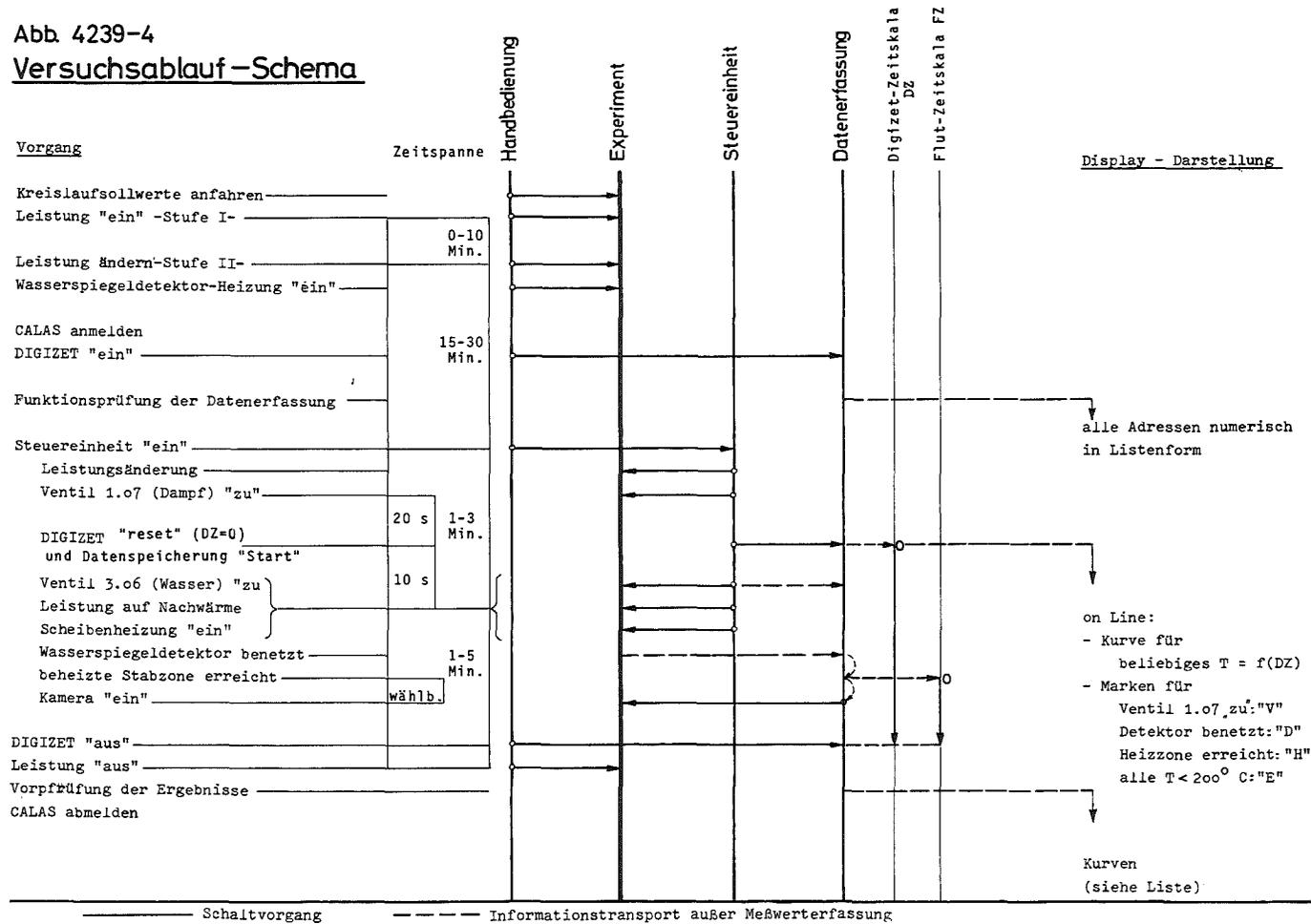
Tafel	Stück	Benennung	Werkstoff	Abmessung	Zeichng. Nr. Norm	Bemerkung
19/75	1	Kreuzinger				
PNS 4239			Geräte-einteilung in der Schaltwarte Bau 413		R2.32.00-2-36	

Die hier Zeichnung stichwortlich nur zur Verfügung gestellt wird, ist für den Bau der Anlage nicht geeignet. Die Zeichnung ist nur zur Information und zur Klärung von Unklarheiten zu verwenden. Die Zeichnung ist nicht für die Ausführung der Anlage geeignet. Die Zeichnung ist nicht für die Ausführung der Anlage geeignet.

Pos. I	Pos. II	Pos. III
--------	---------	----------

Änderung	Änderung	Änderung
----------	----------	----------

Abb. 4239-4  
Versuchsablauf - Schema



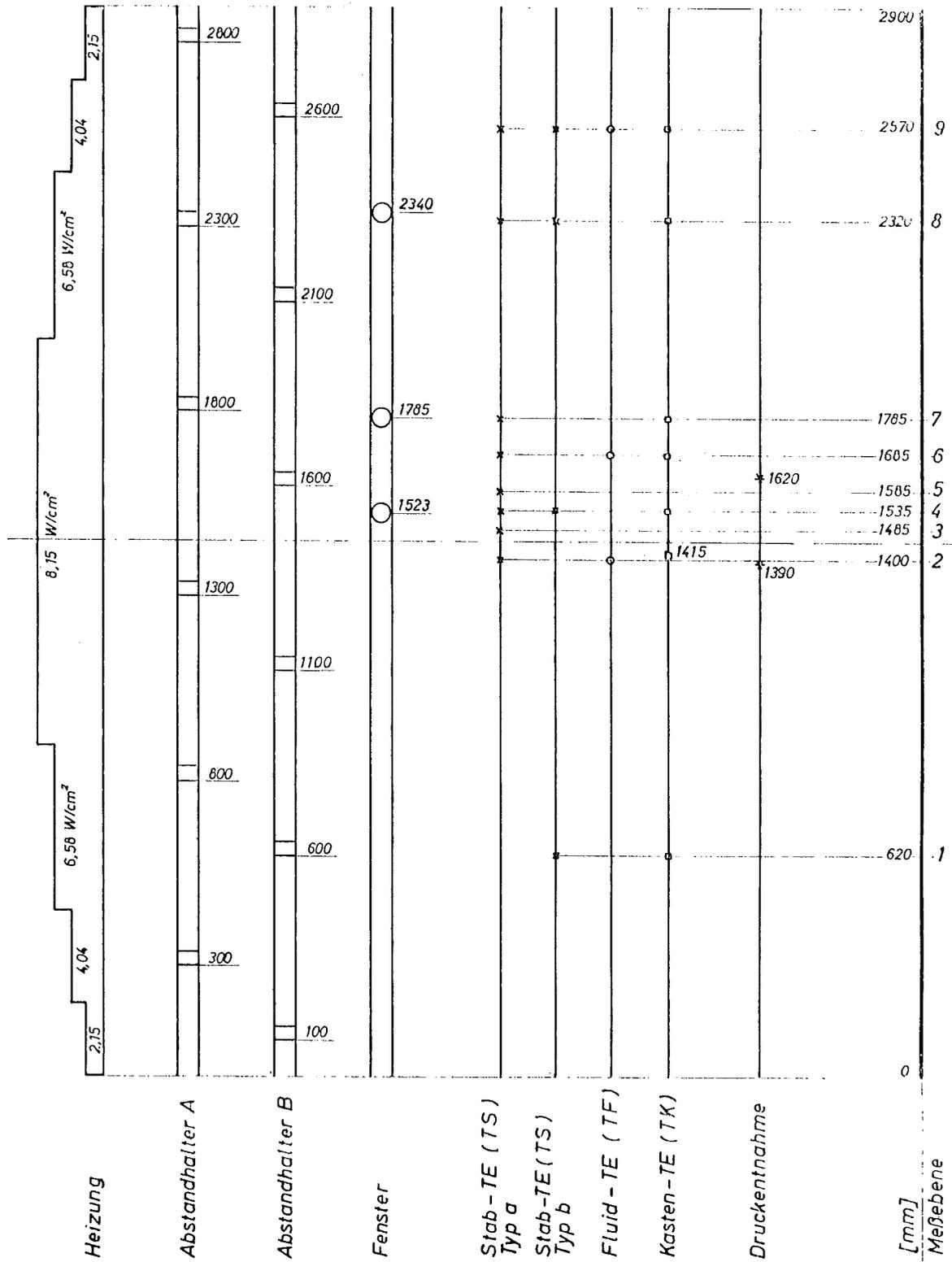


Abb.4239-5 Axiale Zuordnung in der Teststrecke

- 4240 Coreschmelzen von LWR
- 4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von  $UO_2$ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung  
(S. Hagen, A. Mack, H. Malauschek, K. Wallenfels, RBT)

### 1. Einleitung

Wie die ersten im vorigen Halbjahresbericht (1) beschriebenen Versuche gezeigt haben, wird das Abschmelzverhalten eines LWR-Brennstabes im wesentlichen durch den konkurrierenden Verlauf der Wechselwirkung zwischen  $UO_2$ -Pellets und Zircaloy-Hülle auf der einen Seite und der Hülle und dem Sauerstoffangebot der umgebenden Atmosphäre auf der anderen Seite bestimmt. Diese Wechselwirkung führt zur Legierungsbildung zwischen den Ausgangskomponenten. Für das Niederschmelzen des Stabes sind damit nicht mehr die Daten der reinen Komponenten verantwortlich, sondern die Werte für das jeweilige Mischungsverhältnis im System Uran-Zircaloy-Sauerstoff. Diese Mischungsverhältnisse werden sich durch die mit der Temperatur deutlich steigende Wechselwirkung zeitlich und örtlich stark ändern.

Aus Modellrechnungen (2) zum Coreschmelzen weiß man, daß das Dampfangebot im Unfallcore, je nach der Lage im Core, von fehlendem Dampf bis zum Dampf im Überschuß variieren kann. Durch das dadurch bedingte unterschiedliche Sauerstoffangebot wird sich ebenfalls die Legierungszusammensetzung und damit das Abschmelzverhalten ändern.

Wir haben bis jetzt die beiden Grenzfälle - fehlender Dampf und Dampf im Überschuß - durch Abschmelzversuche in Schutzgasatmosphäre und Luft simuliert. Die im vorigen Halbjahresbericht (1) beschriebenen Versuche zeigten, daß in Schutzgas gleichzeitig mit der Hülle auch die  $UO_2$ -Pellets bei einer Temperatur unter  $1900^\circ C$  abschmelzen, obwohl die Schmelztemperatur des reinen  $UO_2$  bei  $2850^\circ C$  liegt.

In Luft dagegen wird durch das starke Oxidationspotential der Umgebungsatmosphäre die äußere Schicht der Zircaloy-Hülle in Zirkonoxid umgewandelt, bevor die konkurrierende Wechselwirkung zwischen Hülle und

Pellet stärkeres Ausmaß annimmt. Diese äußere Hülle bleibt noch fest, während das Innere des Stabes -  $\text{UO}_2$  und Restzircaloy - schon zu schmelzen beginnt.

Das Ziel der hier beschriebenen Versuche ist, das Versagensverhalten für die oben angegebenen Grenzfälle näher zu betrachten. Insbesondere wird die Versagenstemperatur bestimmt und es wird die zeitliche Entwicklung der Wechselwirkung durch Serien systematisch abgebrochener Versuche untersucht.

## 2. Untersuchungen in Schutzgas

Für die Bestimmung der Versagenstemperatur bei fehlendem Wasserdampf wurden Brennstabsimulatoren mit unterschiedlichen Temperaturanstiegen im Bereich von  $0,3 - 1,5 \text{ }^\circ\text{C/s}$  in Helium aufgeheizt. Für die Temperaturanstiege von  $0,5 \text{ }^\circ\text{C/s}$  und  $1 \text{ }^\circ\text{C/s}$  wurden die Abschmelzversuche auch für verschiedene Endleistungen (über die volle Länge des Stabes freierwerdende elektrische Leistung) durchgeführt. Die abgeschmolzenen Stäbe sind in Abb. 4241-1 wiedergegeben. Die am oberen Ende der Stäbe angegebenen Endleistungswerte zeigen, daß bei schnellerem Temperaturanstieg eine kleinere Endleistung notwendig ist, um den Stab gleichweit abzuschmelzen.

Bei allen Stäben begann unabhängig von der Geschwindigkeit des Temperaturanstiegs das Hüllrohr bei einer Oberflächentemperatur von  $(1850 \pm 15) \text{ }^\circ\text{C}$  flüssig zu werden. Es schmolz zusammen mit den  $\text{UO}_2$ -Pellets ab. Eine steigende Leistung bewirkte nur ein weiteres Abschmelzen, aber keine Temperatursteigerung der Hüllrohroberfläche.

Um den Grad der Wechselwirkung mit steigender Temperatur zu untersuchen, wurde der Abschmelzversuch ( $0,3 \text{ }^\circ\text{C/s}$ ) jeweils bis  $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $1700 \text{ }^\circ\text{C}$  und  $1800 \text{ }^\circ\text{C}$  Hüllrohroberflächentemperatur wiederholt. Die bis zu diesen Temperaturen erhitzten Stäbe und den angeschmolzenen Stab zeigt die Abb. 4241-2. Das Abschmelzen des Stabes setzte bei einer Oberflächentemperatur von  $1850 \text{ }^\circ\text{C}$  ein. Der Grad der Wechselwirkung bei den einzelnen Temperaturen wird mit Hilfe der metallkundlichen Untersuchung der

Schliffbilder im Rahmen von PNS 4244 durchgeführt. Die Arbeiten hierzu wurden begonnen.

Da im Dreistoffdiagramm des Systems Uran-Zircaloy-Sauerstoff Bereiche mit einer Schmelztemperatur bis zu  $1350^{\circ}\text{C}$  hinab existieren, sollte untersucht werden, ob am Brennstab sich erste Schmelzerscheinungen an der Berührungsfläche Hülle-Pellet bemerkbar machen, wenn der Stab längere Zeit auf Temperaturen oberhalb dieser Grenztemperatur gehalten wird. Die Abb. 3 zeigt die Stäbe, die jeweils 4,5 Std. auf  $1450^{\circ}\text{C}$ , 1 Std. auf  $1670^{\circ}\text{C}$ , 1/2 und 1 Std. auf  $1840^{\circ}\text{C}$  gehalten oder bei  $1850^{\circ}\text{C}$  abgeschmolzen wurden.

Es zeigte sich, daß auch schon bei dem Stab mit  $1840^{\circ}\text{C}$  im mittleren Bereich leichte Abschmelzerscheinungen auftreten. Hierbei ist zu berücksichtigen, daß durch das Aufsteigen des sich am Stab erwärmenden Heliums die Temperatur in der oberen Hälfte etwas höher liegt als in der Mitte des Stabes. Ein deutliches Abschmelzen von Hülle und Pellet tritt erst bei einer Hülltemperatur von  $1850^{\circ}\text{C}$  über den ganzen mittleren Bereich auf.

Wie eine erste Auswertung der Schliffbilder andeutet, sind bei  $1450^{\circ}\text{C}$  und  $1670^{\circ}\text{C}$  noch keine Schmelzerscheinungen zu beobachten. Die genaue metallkundliche Auswertung wird auch hier erst noch durchgeführt.

### 3. Untersuchungen in Luft

Bei den Abschmelzversuchen in Luft, die der Simulation des Abschmelzens im Wasserdampf im Überschuß dienen, bildet sich ein äußerer Zirkonoxidmantel, bevor es zu einer heftigen Wechselwirkung zwischen dem Zircaloy der Hülle und den Pellets kommt. In Abb. 4241-4 sieht man die Entwicklung dieser Zirkonoxidhülle für eine Aufheizgeschwindigkeit von  $0,5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ . Die Aufheizversuche für die ersten drei Stäbe wurden bei  $1600^{\circ}\text{C}$ ,  $1700^{\circ}\text{C}$  und  $1800^{\circ}\text{C}$  abgebrochen. Beim 4. Stab wurde die Leistung weiter bis  $8,5\text{ kW}$  erhöht. Im Gegensatz zu den Stäben im He steigt die Temperatur der Hüllrohroberfläche auch über  $1850^{\circ}\text{C}$  weiter an. Bei  $1890^{\circ}\text{C}$  bildete sich ein Loch im oberen Bereich des Stabes und schmelzflüssige Masse schoß

eruptionsartig aus dem Stab heraus. Dies ist in dem 7. Bild der Abb. 4241-5 in dem hellen Fleck auf der linken Seite zu sehen.

Schon vorher sieht man durch die Hülle die Bewegung der schmelzflüssigen Masse im Innern des Stabes. Die weiteren Bilder dieses 16-mm-Filmes zeigen in der ersten Reihe, wie die schmelzförmige Masse im Innern ansteigt. Die 2. und 3. Bildreihe zeigt das wiederholte Austreten der schmelzförmigen Masse (helle Streifen) und das sofortige Erstarren der ausgetretenen Schmelze (Dunkelwerden der Schmelznasen). Die Temperatur an der Oberfläche stieg bei diesem Stab auf 2000 °C.

Um die Versagenstemperatur der Hülle zu bestimmen, wurde ein Stab in Luft bei dem gleichen Temperaturanstieg bis zu einer Leistung von 9,5 kW beaufschlagt. Die Temperatur an der Oberfläche stieg bis auf 2050 °C. (Der mittlere Stab in Abb. 4241-6).

Um die Temperatur der durchoxidierten Hülle noch weiter zu erhöhen, sollte ein Stab mit Strahlenschirm umhüllt werden. Da momentan lediglich W.-Strahlenschirme zur Verfügung stehen, die nur in sauerstofffreier Atmosphäre erhitzt werden dürfen, wurde folgendermaßen verfahren:

Ein Stab wurde auf 1800 °C in Luft erhitzt und auf dieser Temperatur 5 min. gehalten. Nach dem Abkühlen und Umhüllen dieses Stabes mit 4 Strahlenschirmen wurde der Stab im Vakuum wieder aufgeheizt. (Der rechte Stab in Abb. 4241-6).

Diesmal könnte eine Oberflächentemperatur von über 2200 °C erreicht werden. Die Versagenstemperatur dieser durchoxidierten Hülle wird also zwischen 2200 °C und der Schmelztemperatur des reinen Zirkonoxids (2650 °C) liegen. Die Versuche zur Bestimmung der Versagenstemperatur in Luft werden fortgesetzt.

#### Literatur:

- / 1 / Projekt Nukleare Sicherheit, 2. Halbjahresbericht 1974, KFK 2130, S. 240
- / 2 / IKE-Bericht 2-12, Jan. 75, H. Körber

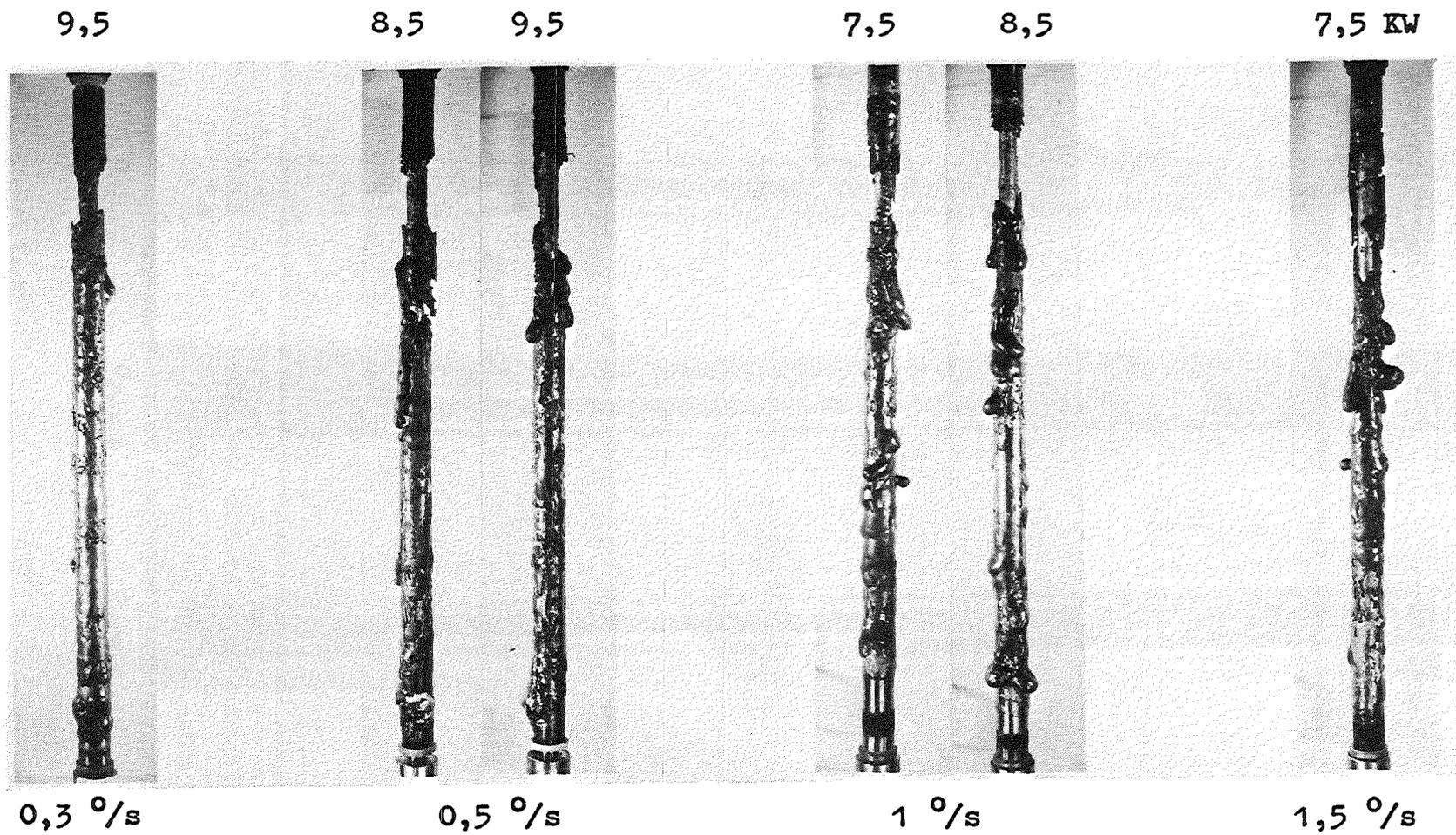


Abb. 4241-1. In Schutzgas mit verschiedenen Temperaturanstiegen und verschiedenen Endleistungen abgeschmolzene Stäbe.

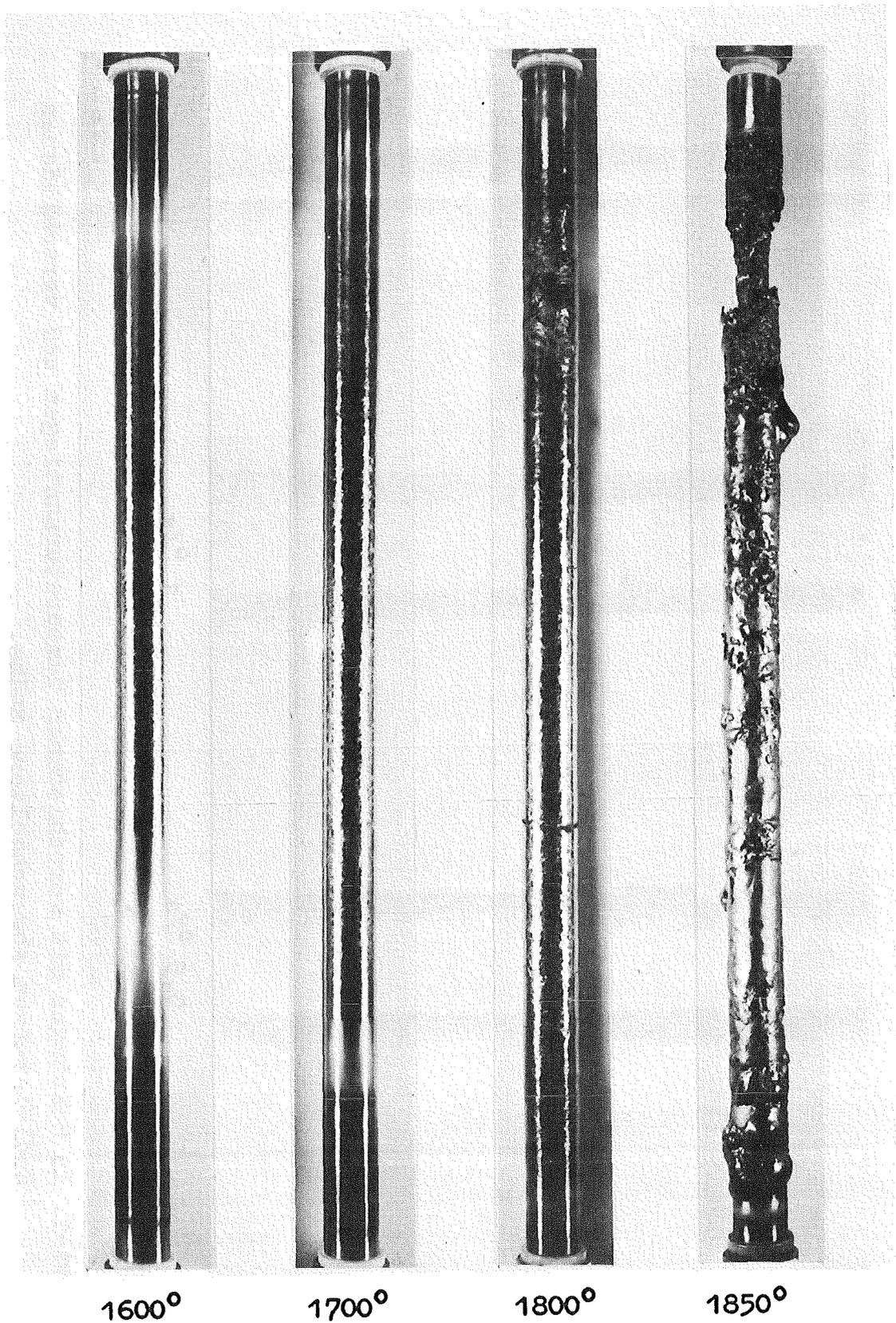


Abb. 4241-2

In Helium aufgeheizte Stäbe. Die Temperatursteigerung wurde bis zu den jeweils angegebenen Werten durchgeführt.

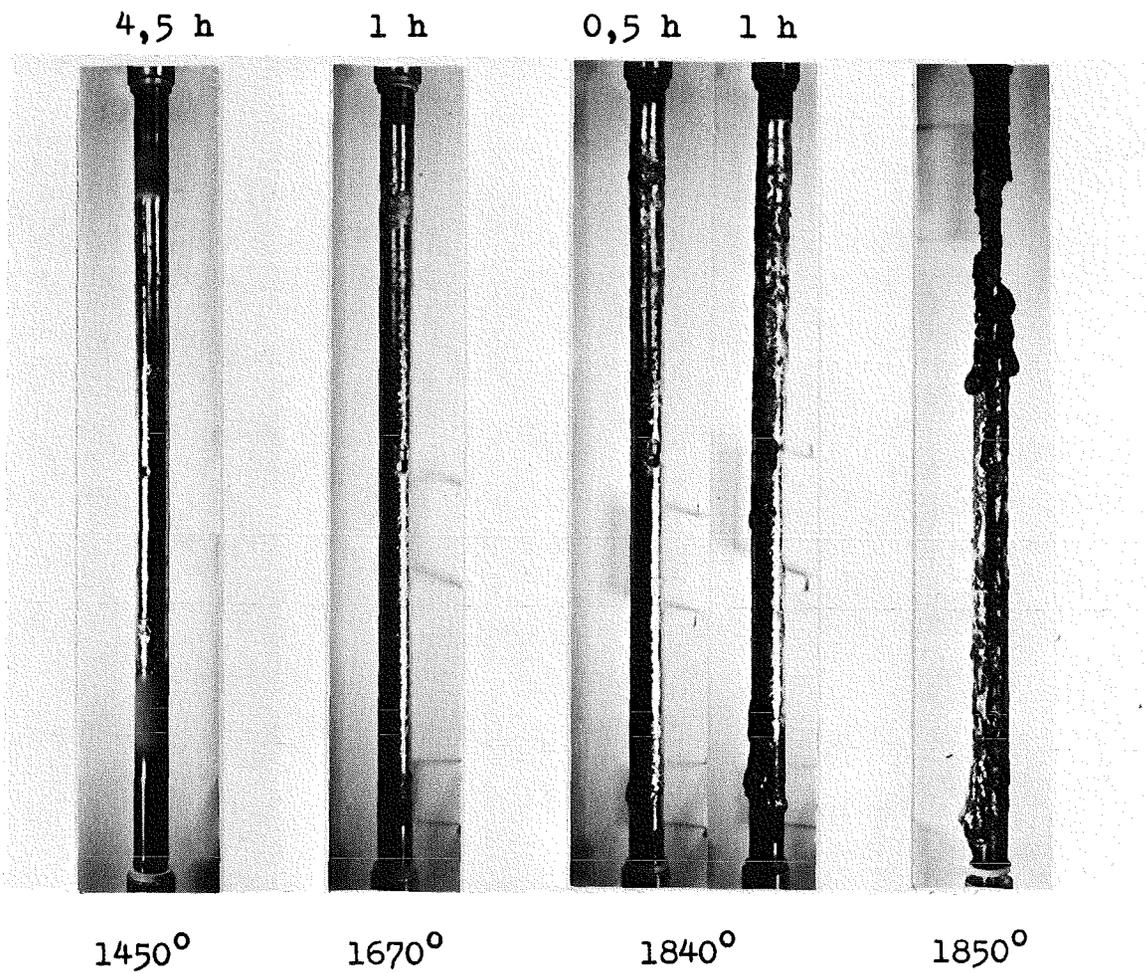


Abb. 4241-3. In Helium aufgeheizte Stäbe, wobei der Stab jeweils für die oberhalb des Bildes angegebene Zeit auf der unterhalb des Bildes angegebenen Temperatur gehalten wurde.

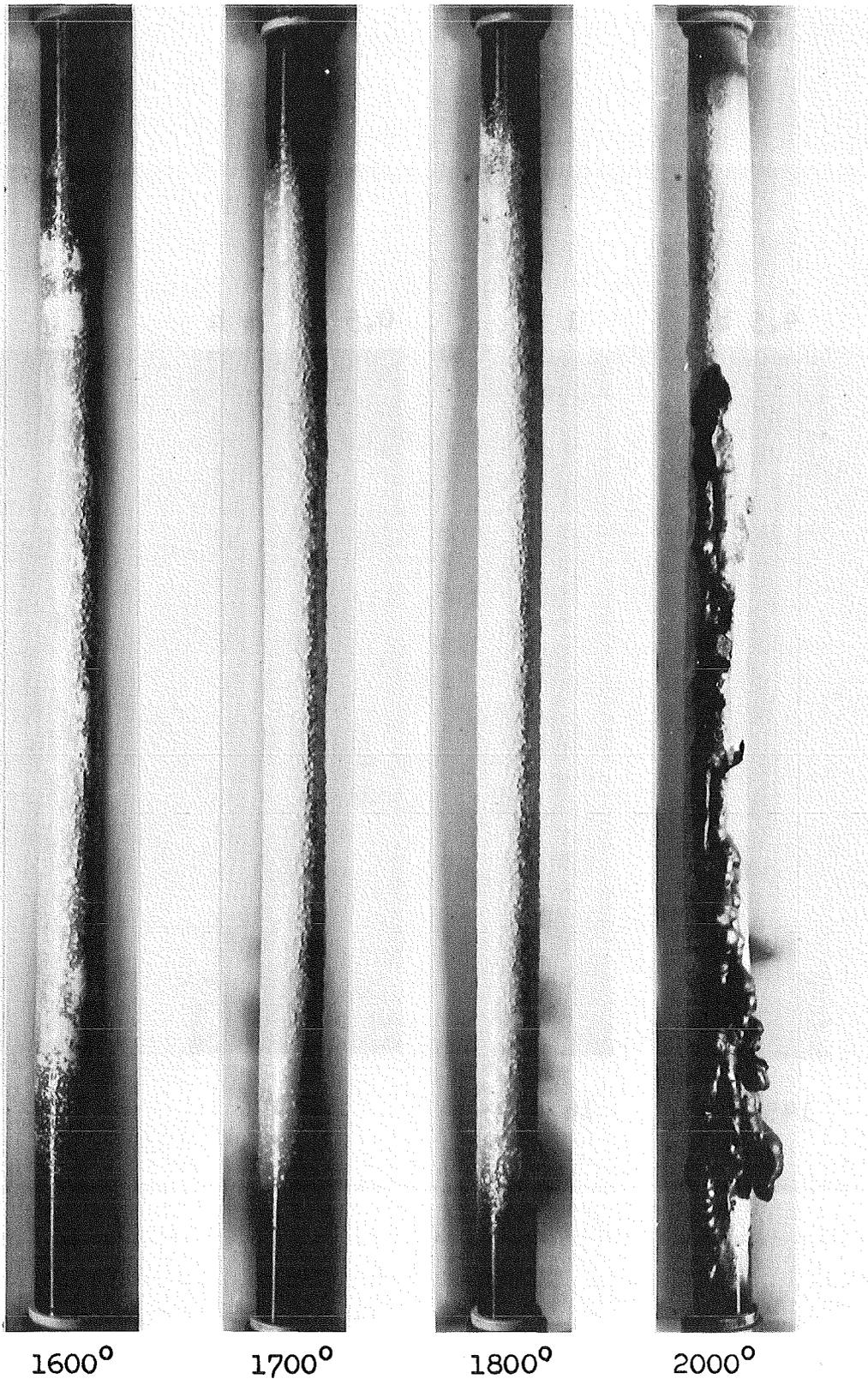


Abb. 4241-4.

In Luft aufgeheizte Stäbe. Die Erwärmung wurde bis zu den jeweils angegebenen Temperaturwerten durchgeführt.

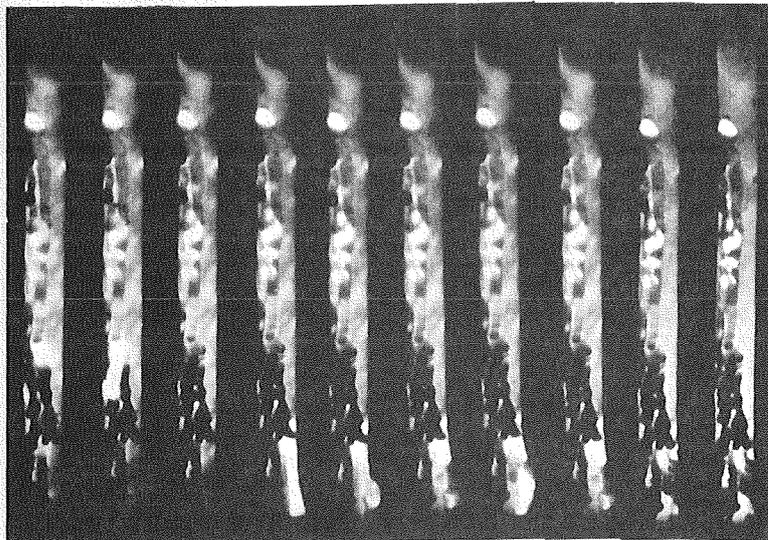
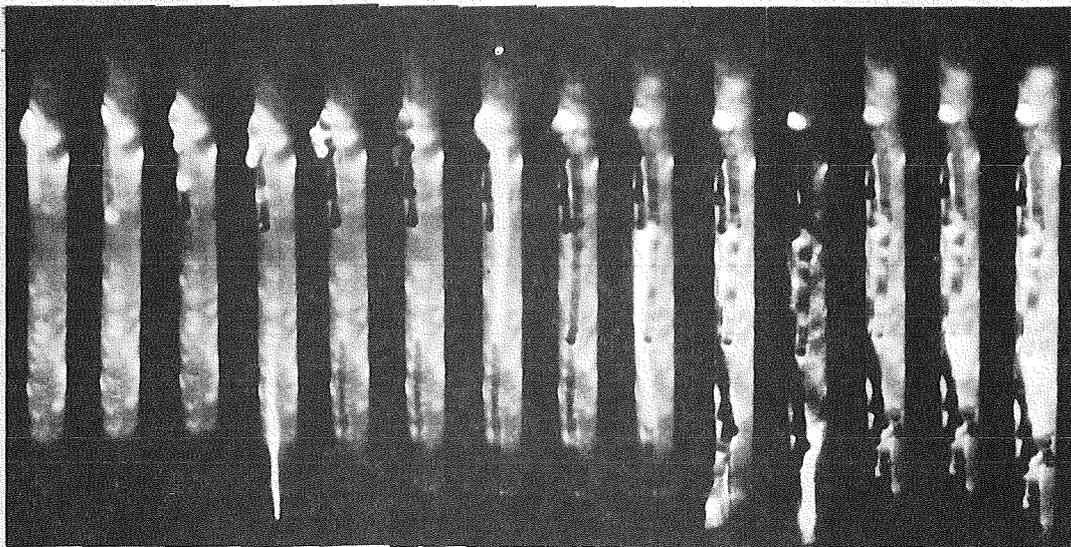
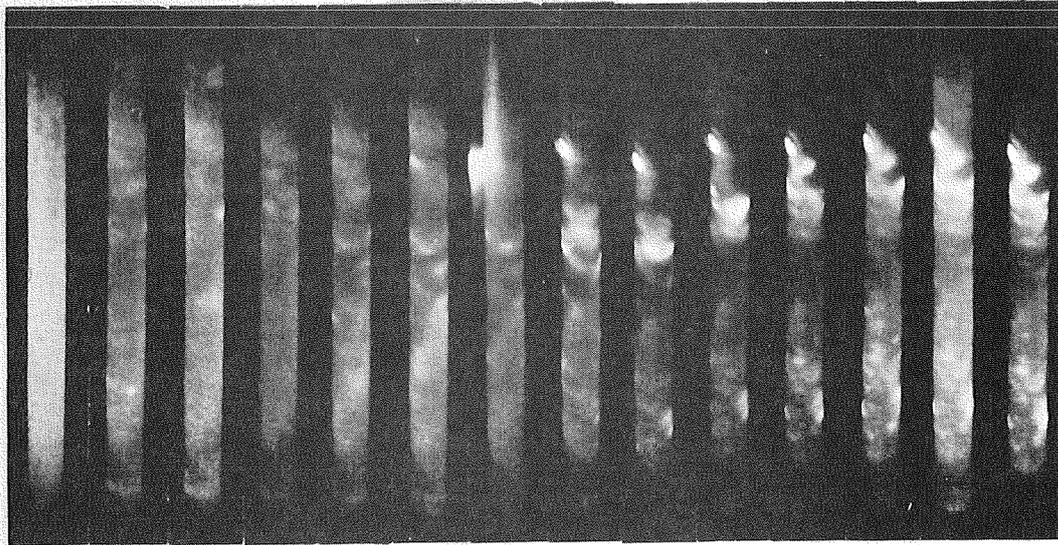


Abb. 4241-5. Verlauf des Abschmelzens in Luft.



Abb. 4241-6.

In Luft abgeschmolzene Stäbe. Die Temperatur der Oberfläche der Hülle erreichte die jeweils angegebenen Temperaturen.

4242 Verhinderung der Bildung eines Knallgasgemisches nach Versagen  
der Notkühlung  
(S.Dorner, INR)

Die Zielrichtung dieser Untersuchungen ist, die wasserstofferzeugenden Prozesse nach dem Coreschmelzen zu verfolgen und die Möglichkeiten zur Verhinderung von Knallgasbildung aufzuzeigen.

In einem früheren Bericht [1] wurde auf die wasserstofferzeugenden Vorgänge beim Coreschmelzen eingegangen. Daraufhin wurden Studien über die Möglichkeiten zur Verhinderung der Bildung von Explosivgemisches durchgeführt [2], insbesondere wurde die Rekombination des Wasserstoffs mittels sauerstoffabgebende Substanzen näher berücksichtigt [3].

In USA sind katalytische Rekombinatoren zur Wasserstoff-Verbrennung entwickelt, die das Gasgemisch aus der Containment-Atmosphäre ansaugen, den Wasserstoff rekombinieren und die von Wasserstoff gereinigte Atmosphäre wieder in das Containment zurückspeisen [4].

Da keine sichere Angaben über die Wirksamkeit der diskutierten Verfahren vorliegen bzw. Bedenken erhoben werden können, wurde die Diskussion über die Verhinderung der Knallgasbildung durch in Betracht ziehen der Absorptionsmethoden, wie sie in der Gasanalyse angewandt wird, erweitert. Dabei wurde sowohl die Absorption des nach einem Störfall freigesetzten Wasserstoffs wie des im Containment vorhandenen Sauerstoffs untersucht. Durch die zuverlässige Entfernung eines Reaktionspartners, d.h. des Wasserstoffs oder Sauerstoffs, wäre die Knallgasbildung verhindert.

Bei der Adsorption von Wasserstoff benötigt man einen Katalysator, so werden z.B. bei der Absorption mit Pikrinsäure- bzw. mit Natriumchlorat-Lösung Edelmetallkatalysatoren, wie Palladium bzw. Platin und Osmium, eingesetzt. Bei der Absorption mit Silberpermanganat benötigt man ein versilbertes Kieselgel. Die Absorption mit Dinitroresorzin wird in Gegenwart eines Nickelkatalysators durchgeführt.

Die zweite Phase als Katalysator entfällt bei der Absorption des Sauerstoffs. So läßt sich Sauerstoff in einer alkalischen Pyrogallol-, Oxyhy-

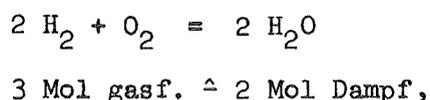
drochinon- oder Natriumdithionit-Lösung absorbieren. Weiterhin sind die schwefelsaure Chrom(II)-Sulfatlösung und die Kupfer(I)-Chloridlösung als Absorptionsmittel für Sauerstoff bekannt. Die Absorptionslösung mit Kupfer(I)-Chlorid kann ammoniakalisch, sauer oder neutral sein. Die schwefelsaure Chrom(II)-Lösung zeichnet sich durch ihre sehr hohe Absorptionsgeschwindigkeit aus. Als feste Absorptionsmittel für Sauerstoff dienen gelber Phosphor und aktives Kupfer.

Bei den festen Absorptionsmitteln ist ein Nachteil darin zu sehen, daß das Gasgemisch durch Zwangsumpumpen über diese Absorptionsmittel geleitet werden müssen, wie das auch bei den entwickelten Rekombinatoren [4] erfolgt. Dadurch könnte aber die Gefahr entstehen, daß in einem Teilbereich des Containments die Zündgrenze des Gasgemisches überschritten wird.

Der Einsatz der wässrigen Absorptionsmittel könnte mit einer Sprinkleranlage gekoppelt werden. Auf jeden Fall zeigen die ersten Untersuchungen des zeitlichen Verlaufs eines Störfalles mit Wasserstofffreisetzung, daß durch die zeitlich zuerst erzeugte Wasserdampfmenge und die danach gleichzeitige Wasserstoff- und Wasserdampfbildung es zu keiner gefährlichen Knallgas Mischung in der ersten Phase des Störfalles kommt [vgl.5]. Damit wird das ganze Problem sehr stark entschärft und man gewinnt Zeit um Gegenmaßnahmen einzuleiten.

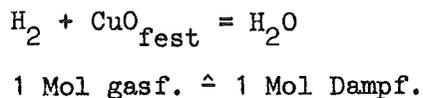
Die Absorption von Sauerstoff ist in wässriger Lösung leichter durchzuführen als von Wasserstoff. Das ist einerseits durch die größere Löslichkeit des Sauerstoffs bedingt und andererseits verlangt die Absorption von Wasserstoff einen geeigneten Katalysator.

Die katalytische Rekombination von  $H_2$  mit  $O_2$  hat den Vorteil, daß man einen Druckabbau im Containment erreicht:



vorausgesetzt, daß die Reaktionswärme zugleich abgeführt wird. Bei einer Rekombination des Wasserstoffs an einer sauerstoffabgebenden Substanz

(wie z.B. CuO) tritt ein Druckabbau nur dann auf, wenn das entstehende Wasser kondensiert, da



Bei Absorption in wässrigen Lösungen wird der Druck im Containment um den Partialdruck des absorbierten Gasanteils erniedrigt. Hier wird vorausgesetzt, daß durch das Einbringen der Absorptionslösung keine überschüssige Wasserverdampfung eintritt bzw. die Absorptionslösung nicht bis zur Zersetzung eingedampft wird.

Mit diesem Bericht sind weitere Möglichkeiten zur Verhinderung eines Knallgasgemisches nach einem LWR-Störfalles aufgezeigt. Weitere Untersuchungen werden zeigen müssen, ob und wie man durch einfache katalytische Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff oder ein Absorptionsverfahren eine Knallgasbildung im Containment sicher verhindern kann. Es könnte sich herausstellen, daß ein kombiniertes Verfahren am vorteilhaftesten ist.

---

Literatur:

1. S.Dorner: Theoretische Untersuchungen zur Wasserstoffbildung beim LWR-Coreschmelzen, KFK-1895 (1973) S.133
2. S.Dorner, G.Schumacher: Untersuchungen zur Wasserstoff-Bildung und Rekombination beim LWR-Coreschmelzen, KFK-1908 (1974) S.138
3. S.Dorner, K.Schretzmann: Untersuchungen zur Wasserstoffbildung und Rekombination beim LWR-Coreschmelzen, KFK-2050 (1974) S.210
4. J.Wilhelm: pers. Mitteilung über USA-Reise im Juli 1972 -ASS-Ber.Nr.10 (Aug.72)
5. H.Körber: Untersuchung des Einflusses einiger wichtiger Kenngrößen beim hypothetischen Kernschmelzunfall, IKE-Bericht Nr. 2-12, Stuttgart, 1975.

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

(H. Albrecht, C. Keller, W. Krause, H. Wild, IRCH;  
D. Perinič, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT/IT;  
P. Hofmann, IMF-I)

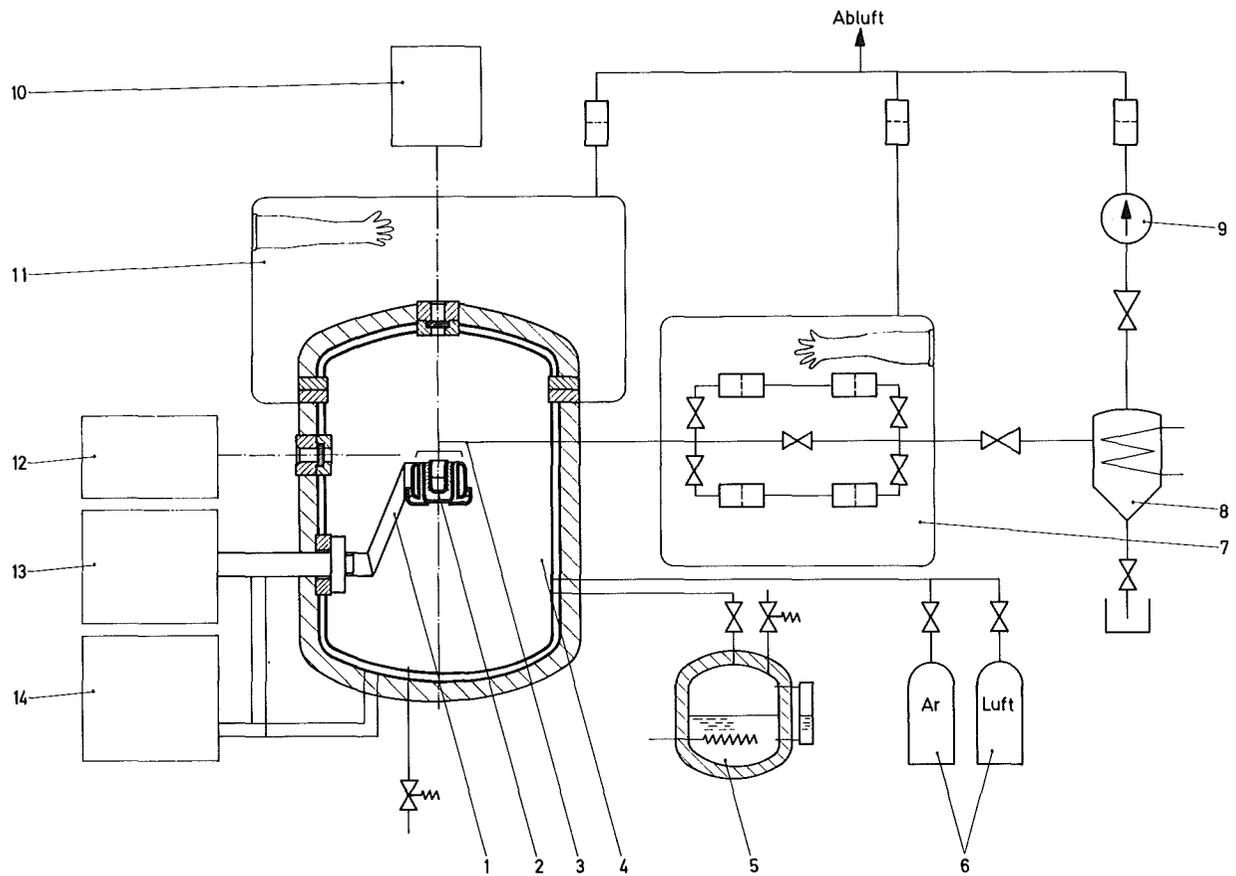
## 1. Einleitung

Nach der Installation der Schmelzanlage für schwach aktives Schmelzgut, SASCHA (1, 2, 3), wurde das mit der Lieferfirma vereinbarte Abnahme-Versuchsprogramm durchgeführt und erfolgreich abgeschlossen. Dabei konnte insbesondere der Nachweis erbracht werden,

- daß mit einer Wolfram-Probe (von ca. 170 g) und der bisherigen Tiegelanordnung eine Temperatur von 2800 °C erreichbar ist und diese mindestens 15 min gehalten werden kann
- daß die mit Thermalöl arbeitende Induktorkühlung den Wärmestrom abführen kann, der unter diesen Bedingungen von der Tiegelanordnung ausgeht.

Anschließend werden nun die übrigen Komponenten des Versuchsstandes, vor allem die Handschuhbox für den Deckelbereich des Ofens sowie die Transport- und Filterstrecke für die Freisetzungsprodukte montiert, so daß in Kürze die ersten Versuche mit der Gesamtanlage beginnen können.

Eine schematische Darstellung der Versuchsanlage ist in Abb. 4243 - 1 wiedergegeben.



**Abb. 4243-1:** Schematische Darstellung der Versuchsanlage;  
die einzelnen Komponenten sind folgendermaßen gekennzeichnet:

1. Induktor
2. Tiegelanordnung für kleine Schmelzgutchargen
3. Absaugrohr
4. doppelwandiger Ofenkessel
5. Wasserdampferzeuger
6. Gasdosierung
7. Handschuhbox mit Meßfilterstrecke
8. Kondensator
9. Membranpumpe
10. Pyrometrische Temperaturmessung
11. Handschuhbox zum Chargieren
12. Transmissionsgradmessung
13. Hochfrequenz-Schwingkreis
14. Öltemperiergerät

## 2. Schmelzversuche mit Corium unter Luft

Die in (3) beschriebenen Schmelzversuche mit einer einfacheren Experimentier-Einrichtung und einem 12 kW-Generator wurden fortgeführt und abgeschlossen. Sie sollten der Untersuchung folgender Fragen dienen:

- a) Ermittlung der Ursache für das Hochquellen und Verspritzen von Schmelzgut während der induktiven Aufheizung
- b) Entwicklung eines Systems zur Absaugung der freigesetzten Produkte aus dem Tiegelbereich
- c) Verträglichkeit von Coriumschmelzen mit keramischen Tiegelwerkstoffen
- d) Verhalten von Coriumschmelzen in Betontiegeln

zu a):

Bereits in (3) wurde geschildert, daß bei Temperaturen um 2200 °C vulkanartige Eruptionen und ein Hochquellen von Schmelzgut bis über den Tiegelrand zu beobachten waren. Dieses Verhalten läßt sich - zumindest teilweise - durch die in einem inhomogenen Magnetfeld auftretenden Kraftwirkungen erklären. Bei Verwendung von längeren Induktionsspulen, die im Bereich des Schmelzgutes ein homogeneres Magnetfeld aufweisen als kürzere Spulen, zeigte sich nämlich eine deutlich verringerte Eruptionstätigkeit.

Um die Kraftwirkungen auf die Schmelze noch weiter zu verringern, wurde bei einigen Versuchen ein konischer, um 12° nach unten erweiterter Induktor verwendet. Dadurch ließen sich die Eruptionen fast ganz unterdrücken, allerdings auf Kosten schlechterer Kopplungsverhältnisse im unteren Bereich der Spule.

Weiterhin wurde untersucht, ob sich das Aufquellen der Schmelze durch Verwendung von Graphittiegeln verringern läßt. Diese Tiegel koppeln selbst an das Induktionsfeld an, wodurch das Schmelzgut dann indirekt aufgeheizt wird - also anders als in den ThO<sub>2</sub>-Tiegeln. Diese Maßnahme erwies sich jedoch als wirkungslos, d.h. auch hier war ein Aufquellen zu beobachten. Es ist daher zu vermuten, daß das Quellen hauptsächlich durch Dampfdruckkräfte in der Schmelze verursacht wird.

zu b):

In der Schmelzanlage SASCHA ist als erster Teil der Spaltprodukt-Transportstrecke ein Absaugrohr vorgesehen, das horizontal über dem Schmelztiegel installiert wird und dort eine kreisförmige Öffnung für den Durchtritt der Freisetzungserzeugnisse aufweist. Um ein für diesen Zweck geeignetes Rohrmaterial zu ermitteln, wurden verschiedene entsprechend präparierte Fingerhutrohre mit 50 - 60 mm Durchmesser eingesetzt (vgl. Abb. 4243-2).

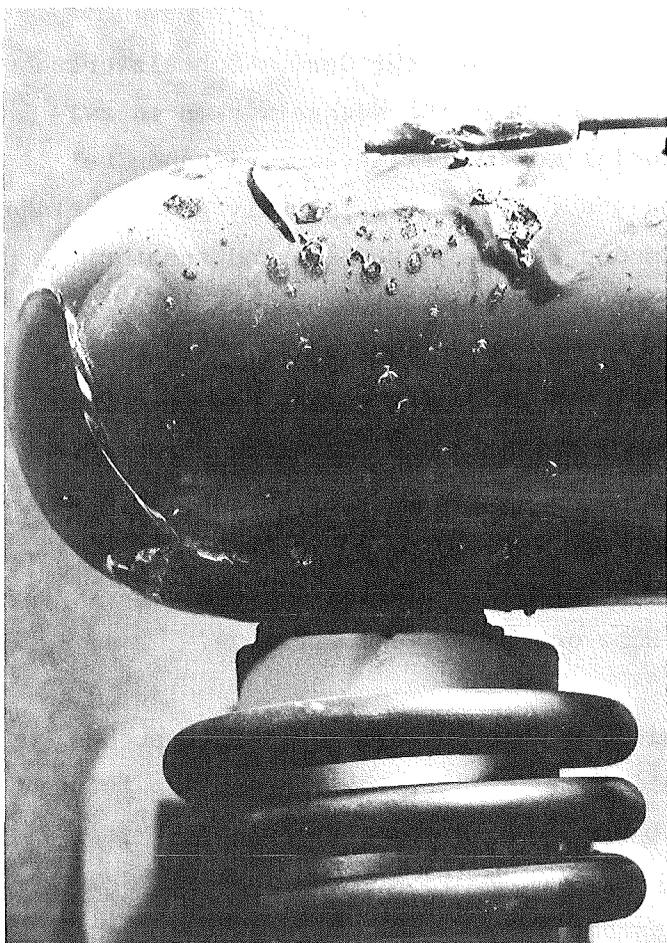


Abb. 4243-2:

Fingerhutrohr aus Duranglas zur Absaugung der freigesetzten Produkte

Bei einem Versuch mit einem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Rohr zeigte sich, daß die mittlere Rohrtemperatur über dem Schmelztiegel ca.  $230^\circ\text{C}$  beträgt. Punktuell wurde diese Temperatur aber durch hochgeschleuderte Schmelzenpartikeln wesentlich überschritten. Die dadurch hervorgerufenen Thermoschockspannungen führten zu so starken Rissen und Beschädigungen des Rohres, daß  $\text{Al}_2\text{O}_3$  für den vorgesehenen Zweck offenbar nicht in Frage kommt.

Ein Rohr aus Duranglas wurde durch die Schmelzenspritzer zwar auch an mehreren Stellen angeschmolzen, es blieb jedoch mechanisch unbeschädigt und formstabil. Die gesamte innere Rohroberfläche wies nach dem Schmelzversuch eine dichte, dunkle Schicht von Ablagerungsprodukten auf.

zu c):

Nach Durchführung und Auswertung von über 30 Tiegelversuchen lassen sich folgende Schlüsse ziehen, vgl. auch (2, 3):

- Schmelztiegel aus MgO und  $ZrO_2$  erweisen sich für Corium-Schmelzversuche als nicht geeignet, da es zu starken chemischen Wechselwirkungen zwischen dem  $UO_2$  und dem Tiegelmaterial kommt. Letzteres wird schon bei Temperaturen  $2200^\circ C$  vollständig aufgelöst. Die induktiv gut koppelnde metallische Phase dringt dann in das Isolierpulver ein und zerstört nach kurzer Zeit auch den äußeren Schutziegel.
- Wesentlich beständiger sind Tiegel aus  $ThO_2$ . Sie werden vom Schmelzgut in oxidierender Atmosphäre erst oberhalb von  $2200^\circ C$  merklich angegriffen. Wird jedoch die Temperatur von  $2400^\circ C$  überschritten, von der ab alle Corium-Bestandteile in flüssiger Form vorliegen, so versagen die Tiegel nach spätestens 10 - 15 min. Der Bereich der stärksten Tiegelauswaschung liegt in der Regel in Höhe der Schmelzenoberfläche.
- Der Reaktionsablauf beginnt - wie die phasenanalytischen Untersuchungen zeigen - mit der völligen Aufoxidation des Zircaloy während der Aufheizphase. Bei Temperaturen oberhalb von  $2000^\circ C$  kommt es dann zur Mischkristall-Bildung zwischen  $UO_2$  und  $ZrO_2$ . Weder das  $UO_2$  noch das  $ZrO_2$  reagieren nennenswert mit dem geschmolzenen Stahl. Es entstehen daher zwei Schmelzen, eine metallische und eine keramische, die nicht miteinander mischbar sind. Die Schliffbild-Aufnahmen des metallografisch präparierten Tiegels zeigen sehr deutlich den eingefrorenen Zustand der entmischten Schmelzen (Abb. 4243.3).

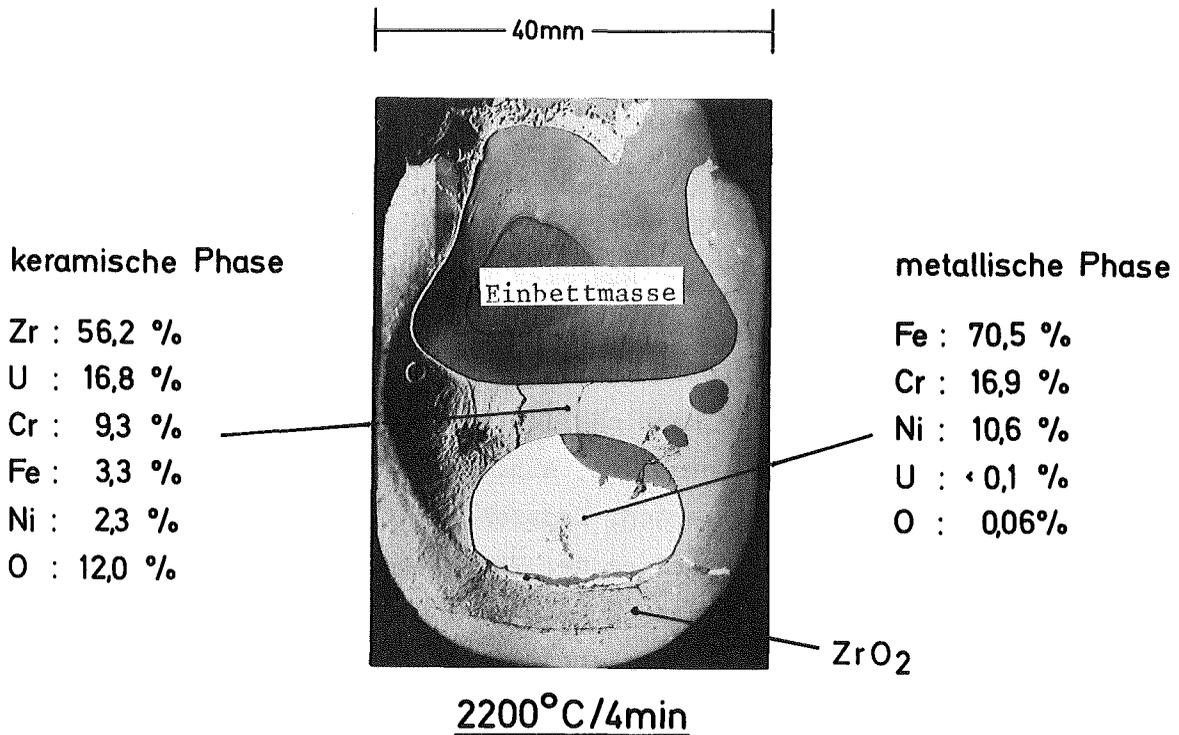


Abb. 4243-3: Schliffbild eines längsseitig aufgeschnittenen ZrO<sub>2</sub>-Tiegels mit der Zweiphasen Coreschmelze

Die chemischen Analysen ergeben, daß die metallische Phase nur die Komponenten des Stahls enthält, in Konzentrationen, die dem Ausgangszustand entsprechen. ( Daß der metallische Regulus frei von Uran ist, zeigte auch eine  $\alpha$ -autoradiographische Aufnahme des Tiegelschliffes. Das UO<sub>2</sub> war dabei nur in der schlackenartigen Mischoxidphase nachzuweisen.)

- Nach längeren Haltezeiten der beiden Schmelzen unter Luft oxidiert auch der Stahl, u.z. zunächst Cr dann Fe. Die entstehenden Oxide reagieren zum Teil mit der keramischen Schmelze.

Bei Versuchen mit vollständig oxidiertem Corium, bei denen bereits alle Komponenten als Oxide eingesetzt werden, bildet sich nur eine Schmelze. Diese zeigt keine Entmischungerscheinungen, denn die verschiedenen Phasen sind statistisch über den Probenquerschnitt verteilt.

Das bedeutet: bei entsprechend langen Haltezeiten der Schmelze (wahrscheinlich > 60 min) verschwindet die anfangs vorhandene Stahlschmelze infolge Oxidation und Reaktion mit der keramischen Schmelze. Damit wird die ursprüngliche Entmischung aufgehoben.

Eine Einschränkung der bisherigen Aussagen über das Verhalten der Schmelze muß aber gemacht werden: Sie sind vermutlich nicht quantitativ auf die in der Schmelzanlage SASCHA vorgesehenen Versuche übertragbar. Der zu dieser Anlage gehörende HF-Generator kann nämlich (im Gegensatz zu dem bisher verwendeten Generator) ohne Grundlast, d.h. von der Leistung Null an kontinuierlich hochgesteuert werden. Dadurch ist für die Aufheizphase ein wesentlich günstigeres Verhalten der  $\text{ThO}_2$ -Tiegel zu erwarten. Ferner erhält man mit den dort einsetzbaren einwindigen Induktoren eine bessere Feldhomogenität und damit eine stärkere Unterdrückung der Schmelzgut-Eruptionen.

Wegen dieses in mancher Hinsicht anlagenspezifischen Verhaltens der Coriumschmelzen müssen die bisherigen Versuche in der neuen Schmelzanlage mit kleineren (ca. 50 g) und größeren (ca. 500 g) Coriummassen fortgesetzt werden.

zu d):

Ein Teil der Aufgabenstellung des Gesamtvorhabens besteht darin, den Einfluß von Beton auf das Freisetzungsverhalten von Corium-Schmelzen zu untersuchen. Da bisher weder über die Herstellung noch über die Eigenschaften von Corium/Beton-Schmelzen praktische Erfahrungen vorliegen, wurden einige der ersten Orientierung dienende Vorversuche durchgeführt. Das Corium wurde dabei in dickwandigen Tiegeln aus Leicht- und Abschirmbeton induktiv aufgeheizt.

Es zeigte sich, daß das Schmelzen von Corium in Beton ganz anders abläuft als in den hoch feuerfesten Tiegeln aus  $\text{ThO}_2$ . Die Schmelze überzieht sich rasch mit einer Glashaut, die sich dann seifenblasenähnlich aufbläht (vgl. Abb. 4243-4). In der Tiegelöffnung bildet sich eine domartige Kruste. Die Oxidation der Metallanteile des Coriums wird durch die Sperrwirkung der Glasschmelze unterdrückt; deswegen finden auch die sonst beobachteten heftigen Verbrennungsvorgänge nicht statt.

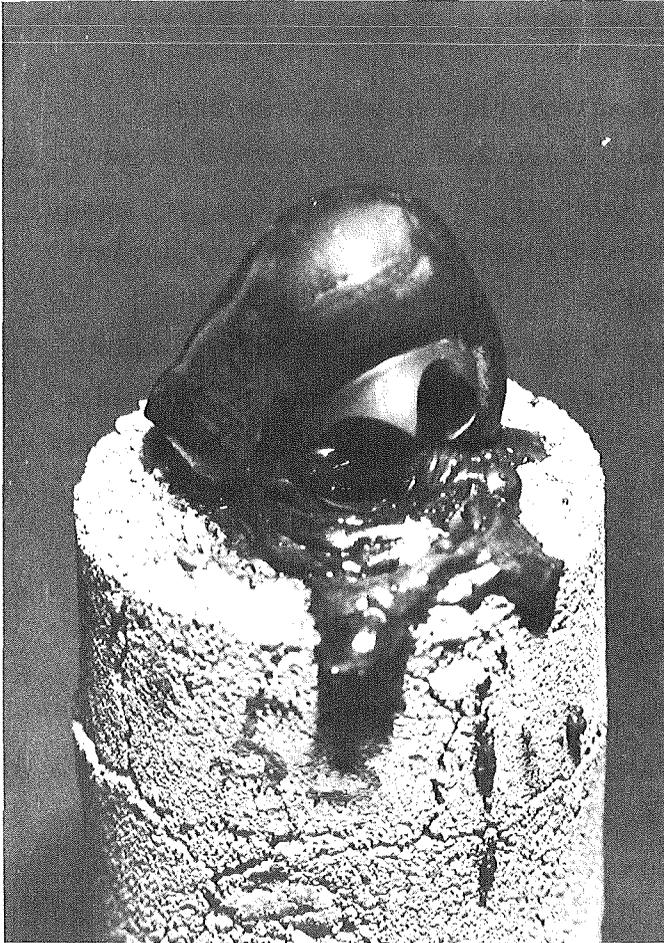


Abb. 4243-4:

Glasartige, aus einem Betontiegel aufgestiegene Blase aus Corium + Betonbestandteilen

Die Schmelze dringt relativ schnell in den Boden des Betontiegels ein. Dadurch ist die Verweilzeit der kopplungsfähigen Schmelze innerhalb des homogenen, ausreichend starken Induktionsfeldes begrenzt. Als Sinkgeschwindigkeit wurden Werte bis zu 5 mm/min ermittelt. Ein seitliches Auswandern der Schmelzfront wurde nur bei den Tiegeln aus Abschirmbeton (mit Eisenerzanteil) beobachtet. Da diese Tiegel selbst an das Induktionsfeld ankoppeln, werden sie in stärkerem Maße erhitzt und der Beton entsprechend schneller aufgeschmolzen.

Insgesamt läßt sich sagen, daß sich die induktive Aufheizung von Corium in Betontiegeln bis mindestens 2000 °C als durchführbar erweist, obwohl der Beton selbst eine Schmelztemperatur unterhalb von 1500 °C aufweist.

### 3. Untersuchungen zur Temperaturmessung

Die Temperaturmessung nach dem Quotientenverfahren wird erheblich verfälscht, wenn das Emissionsverhalten des Prüflings bei den Referenzwellenlängen starke Selektivitäten aufweist. Weicht z.B. einer der beiden Emissionsfaktoren um  $\pm 1\%$  von dem entsprechenden Wert des Eichstandards ab, so ergibt sich ein Temperaturmeßfehler von  $\pm 16$  K. Ein zusätzlicher Fehler kann durch selektive Absorption bzw. Emission der Metaldämpfe entstehen. Um zunächst die Beeinflussung der Pyrometeranzeige durch die selektiven Eigenschaften der Dämpfe zu ermitteln, wurden in einem Widerstandsofen unter Argon-Atmosphäre die folgenden Coriumkomponenten geschmolzen

Fe, Ni, Mn, Si, Cd, Sn, In und Edelstahl W.Nr. 1.4550.

Durch eine Messung des Transmissionsgrades der Metaldämpfe mit Hilfe einer geeichten W-Bandlampe und eines Spektralphotometers ließ sich eine Aussage über die Summe aller Absorptions- und Emissionseffekte gewinnen.

Dabei stellte sich heraus, daß die untersuchten Dämpfe im Temperaturbereich bis  $2000\text{ }^{\circ}\text{C}$  keine selektiven (d.h. wellenlängenabhängigen) Eigenschaften aufweisen; zwischen  $1600$  und  $1700\text{ }^{\circ}\text{C}$  traten jedoch bei Mn, Ni, Fe, Si und Edelstahl Oszillationen um den Mittelwert der Spektralphotometer- und Pyrometeranzeige auf. Diese Störungen entstehen durch Aerosole über der Schmelze.

Cd und Sn dampften bei  $1150\text{ }^{\circ}\text{C}$  bzw.  $1900\text{ }^{\circ}\text{C}$  so stark aus, daß der Transmissionsgrad beider Wellenlängen auf Null sank und eine pyrometrische Temperaturmessung nicht mehr möglich war.

Das Emissionsverhalten der verschiedenen Komponenten wurde vor allem beim Haltepunkt der Schmelzen untersucht. Da die entsprechenden Temperaturen aus der Literatur gut bekannt sind, war eine sehr zuverlässige Aussage möglich, ob die Pyrometeranzeige verfälscht wurde oder nicht.

Ergebnis: Bei einigen Schmelzen wurde am Haltepunkt eine zu hohe Temperatur registriert (Si + 53 K, Fe + 56 K, Mn + 4 K, Ni + 53 K); das heißt, daß die Emission dieser Stoffe bei den Referenzwellenlängen des Pyrometers charakteristische Besonderheiten aufweist, die eine Korrektur der Temperaturanzeige notwendig machen.

Da Edelstahl keinen ausgeprägten Haltepunkt aufweist, ist dort keine vergleichbare Aussage möglich; ähnliches gilt für die übrigen der oben genannten Metalle, weil bei ihnen die Haltepunkte der Schmelze unterhalb der Ansprechgrenze des Pyrometers (ca. 1150 °C) liegen.

Ferner wurde das Ansprechen des Pyrometers auf Intensitätsschwankungen verschiedener Frequenz untersucht. Die Schwankungen ließen sich dadurch simulieren, daß der Meßstrahl der Wolfram-Bandlampe durch eine rotierende Segmentscheibe periodisch unterbrochen wurde. Je nach der Umdrehungsgeschwindigkeit verursachten die vier 90°-Segmente der Scheibe einen Hell/Dunkel-Wechsel mit einer Frequenz zwischen 5 und 50 Hz.

Die Pyrometeranzeige lieferte dabei kurzzeitige Temperaturwerte, die bis maximal 1000 K über (!) der wahren Temperatur lagen. Bei Frequenzen um 10 Hz war dieser Effekt am stärksten ausgeprägt.

Bei Versuchen mit Corium-Schmelzen traten ebenfalls Schwingungen am Pyrometerausgang auf, die bei etwa 1800 °C einsetzten. Die Ausschläge betragen jedoch maximal 200 - 300 K, und in der Regel war der Verlauf des Temperaturmittelwertes noch hinreichend gut zu verfolgen.

Um eine möglichst zuverlässige Temperaturmessung zu erhalten, werden diese Versuche in der jetzt zur Verfügung stehenden Schmelzanlage SASCHA fortgesetzt.

#### 4. Meßfilterstrecke

Die Bedingungen, die an die Meßfilterstrecke gestellt werden, ergeben sich aus der Forderung nach einer möglichst guten Simulation der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments. Als Simulationsbedingungen sind zunächst vorgesehen:

- Betrieb bei Luft bzw. Wasserdampf
- Temperatur  $\leq 150$  °C
- Druck  $\leq 2$  at

Die Einzelkomponenten (Transportrohre, Dichtungen, Ventile, Manometer, Filtrationsgeräte) der Meßfilterstrecke sind diesen Bedingungen entsprechend ausgelegt. Die gesamte Anlage ist bis auf  $10^{-2}$  Torr evakuierbar, druckbeständig und mittels einer Begleitheizung thermostatisierbar. Die Transportstrecke wird außerhalb des Schmelzofens in 3 parallele Stränge aufgeteilt (vgl. Abb. 4243-1). Eine Leerleitung dient dabei zur Einstellung der Strömungsverhältnisse und als Bypass zu den beiden anderen Strängen, in denen sich je zwei Filterkammern mit Membranfiltern und je 1 Jodabscheider ( $\text{AgNO}_3$ -imprägnierte Katalysatorträger vom Typ AC-6120) befinden. Um Kontaminationen bei der Demontage der Filter und bei eventuellen Lecks des Rohrsystems zu vermeiden, wurde die Filterstrecke mit allen Zusatzeinrichtungen in eine Handschuhbox eingebaut.

#### 5. Untersuchungen zur Auswahl der Meßfilter

Die Auswahl der Meßfilter richtet sich v.a. nach den folgenden Aspekten

- Eignung für die vorgesehenen Betriebsbedingungen  
(bes. Temperatur- und Wasserdampfverträglichkeit)
- Abscheidegrad
- Analysenmethode der abgeschiedenen Stoffe

Während die wichtigsten Angaben über die zulässigen Betriebsbedingungen der Filter in der Regel vom Hersteller zu erfahren sind, hängt der Abscheidegrad z.B. wesentlich von der Partikelgröße und den physikalischen Eigenschaften der abzuscheidenden Stoffe ab.

Als Analyseverfahren kommen besonders die Aktivierungsanalyse und die Röntgenfluoreszenz in Betracht, wenn es sich um inaktive Niederschläge handelt. Werden bei den Schmelzversuchen jedoch schwach vorbestrahlte Coriumproben oder radioaktives Fissium (s.u.) eingesetzt, so erhält man aktive Niederschläge auf den Filtern, für deren Analyse ausschließlich die  $\gamma$ -Spektrometrie vorgesehen ist.

In den folgenden Abschnitten wird auf die bisher durchgeführten Versuche zur Ermittlung des Abscheidegrades eingegangen sowie auf die Frage, welche Filter sich für die Anwendung einer speziellen Methode bei der Aktivierungsanalyse der Niederschläge eignen.

a) Ermittlung des Abscheidegrades

Die Bestimmung des Abscheidegrades verschiedener Membranfilter erfolgte mit Hilfe von Testaerosolen, die mit dem bereits in (3) beschriebenen Heizstrecken-Aerosolgenerator hergestellt wurden. Sie bestanden aus den Oxiden der Metalle Lanthan, Zirkon und Mangan. Diese Metalle wurden ausgewählt, weil es sich bei ihnen um typische Spalt- und Aktivierungsprodukte handelt und weil sie sich aktivierungsanalytisch gut quantitativ bestimmen lassen.

Bei den Versuchen wurden jeweils zwei Filter gleichen Typs hintereinander geschaltet, um so den Abscheidegrad des vorderen Filters bestimmen zu können. Die Massenkonzentration der Aerosole wurde zwischen 0,1 und 30 mg/m<sup>3</sup> variiert.

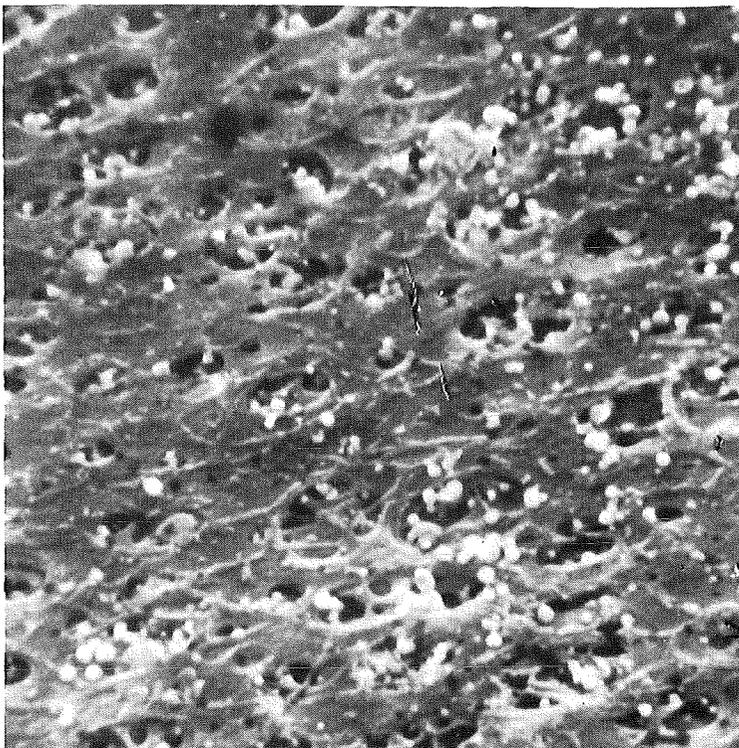
In Tab.1 sind die Mittelwerte der gefundenen Abscheidegrade angegeben.

Filtermaterial	Oxid-Aerosol von	Abscheidegrad (%)
Zellulose-Acetat	Mn	99,99
	Zr	99,89
	Mn + Zr + La	99,76
Regenerierte Zellulose	La	99,87

Tab. 1: Abscheidegrade von verschiedenen Sartorius-Membranfiltern mit der nominellen Porenweite von 0,45  $\mu$ m

Es zeigte sich, daß die Abscheidegrade bei den zugrunde liegenden Bedingungen sehr hoch sind und die Anforderungen an Filter der Sonderklasse S nahezu erfüllt werden.

Um zu prüfen, ob die mit den Testaerosolen gewonnenen Ergebnisse auf reale Spaltprodukt-Aerosole übertragbar sind, wurden einige Filter mit den abgetrennten Aerosol-Partikeln mit Hilfe eines Raster-Elektronenmikroskops untersucht. Die dabei hergestellten Aufnahmen (vgl. Abb. 4243-5) ergaben, daß die Partikel einen Durchmesser von etwa  $0,1 \mu\text{m}$  aufweisen. Dieser Wert stimmt gut mit den Ergebnissen amerikanischer Messungen (4) über die mittlere Größe von Spaltprodukt-Aerosolen beim Coreschmelzen überein.



R 11497 5000 : 1)

Abb. 4243-5:

Zellulose-Acetatfilter mit  
abgeschiedenem  $\text{ZrO}_2$ -Aerosol;  
Aufnahme mit einem Raster-  
Elektronenmikroskop

Mit der so ermittelten Teilchengröße, der theoretischen Dichte der Metalloxide und der Masse des auf den Filtern gefundenen Niederschlages lassen sich auch die Partikelzahlkonzentrationen der Aerosole berechnen. Für die Versuche mit  $\text{ZrO}_2$ -Aerosolen erhält man z.B.  $5,2 \cdot 10^4$  Partikel/cm<sup>3</sup>, ein Wert, der i.a. für die Bestimmung des Abscheidegrades als gut geeignet anzusehen ist.

#### b) Aktivierungsanalytische Bestimmung der Filterniederschläge

Im folgenden wird die Entwicklung einer speziellen Anwendungsmethode der Aktivierungsanalyse beschrieben, die hauptsächlich für den Nachweis von freigesetzten inaktiven Coriumkomponenten (Fe, Cr, Mn, Ni, Zr, Sn, U) zum Einsatz kommen soll. Entsprechende Versuche werden den Freisetzungsexperimenten mit schwach aktivem Fissium vorausgehen, weil dieses voraussichtlich erst ab Frühjahr 1976 zur Verfügung steht.

Die Methode beruht auf dem Gedanken, daß es wesentliche praktische Vorteile mit sich bringt, wenn man die Filterniederschläge zum Zweck der aktivierungsanalytischen Bestimmung gemeinsam mit den Filtern im Reaktor bestrahlt. Dadurch entfällt z.B. das Problem, wie sich die oft sehr verschiedenartigen Niederschläge quantitativ vom Filter ablösen lassen und in welcher chemischen Form man sie dann bestrahlen kann, ohne daß neue, die  $\gamma$ -Analyse störende Nuklide hinzukommen.

Damit bei der Aktivierung der beaufschlagten Filter die Untergrundaktivität möglichst gering bleibt, müssen für das Material der Leerfilter folgende Bedingungen erfüllt sein:

- es enthält die als Niederschlag nachzuweisenden Elemente nicht selbst in störender Konzentration,
- es enthält auch keine anderen in stärkerem Maße aktivierbaren Komponenten.

Da die Filter mit den Niederschlägen nicht ohne eine schützende Umhüllung (Polyäthylenfolie oder dergl.) gehandhabt und im Reaktor bestrahlt werden können, sind an das Umhüllungsmaterial die gleichen Forderungen zu stellen wie an die Leerfilter.

Ferner haben die durchgeführten Versuche gezeigt, daß die meisten Filter bei der Neutronenbestrahlung spröde werden; ihre Struktur wird dabei weitgehend zerstört und sie zerbrechen in Teile bis hinab zur Staubkorngröße. (Eine Ausnahme bildeten lediglich Membranfilter aus Polyamid und Glasfaserfilter). Um nun trotzdem eine definierte Probengeometrie bei den  $\gamma$ -Messungen einhalten zu können, erweist es sich als zweckmäßig, die Filter vor der Bestrahlung mit einem Klebstoff an der umhüllenden Folie festzukleben. Weil damit aber ein zusätzlicher Beitrag zu der Untergrundaktivität verbunden ist, muß man auch den Klebstoff entsprechend den oben genannten Bedingungen auswählen. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß man zur Entwicklung dieser Analysenmethode verschiedene Filtermaterialien, Umhüllungsfolien und Klebstoffe auf ihre Aktivierbarkeit im Vergleich zu den Filterniederschlägen untersuchen muß.

Für die folgenden Materialien wurden entsprechende Versuche durchgeführt (vgl. Tab. 2):

	Material	Hersteller
Membranfilter	Zellulose-Acetat	Sartorius, Schleicher und Schüll
	Zellulose-Nitrat	
	regenerierte Zellulose	Sartorius
	Polyamid	Millipore
	Zellulose-Ester	
sonst.Filter	Glasfaser	Sartorius
Folie	Polyäthylenfolie	Ebert/München
Klebstoffe	Handelsname:	
	Uhu-Alleskleber	Uhu-Werke /Bühl
	Pelikanol-Weißleim	G.Wagner /Hannover
	Snap-Fix	A.Faber /Neu Isenburg
	Pattex	Henkel /Düsseldorf
Pritt-Stifte	G. Wagner /Hannover	

Tab. 2: Aktivierungsanalytisch untersuchte Materialien;

(es sind nur die Hersteller angegeben, deren Erzeugnisse untersucht wurden)

Die Bestrahlungsbedingungen waren bei allen Versuchen gleich: 1 Stunde bei einem thermischen Neutronenfluß  $\phi = 8 \cdot 10^{13}$  n/s.cm<sup>2</sup>.

**Ergebnisse:**

Bei allen Filtern bestehen die Hauptkomponenten aus Na, K, Fe und Zn.

Glasfaserfilter weisen einen etwa 1000-fach höheren Na-Gehalt und außerdem einen erheblichen Ba-Gehalt auf. Sie sind für die Anwendung der Aktivierungsanalyse ungeeignet, wenn die Niederschläge Aktivierungsprodukte mit relativ kurzen Halbwertszeiten (< ca. 40 h) bilden.

Bei der Polyäthylenfolie ist bemerkenswert, daß 70 cm<sup>2</sup> Folie im wesentlichen die gleichen Hauptkomponenten mit etwa den gleichen absoluten Gewichtsanteilen (zwischen 0.5 und 50 µg) aufweisen wie 20 cm<sup>2</sup> der Membranfilter. Die detaillierte Auswertung, in der die Konzentrationen von jeweils über 20 Elementen bis hinab zu 0.1 ng bestimmt werden konnten, ist noch nicht abgeschlossen.

Wesentlich ist in diesem Zusammenhang, daß auch ein simulierter Stahl/Zircaloy-Niederschlag (10 mg Stahl W.Nr. 1.4550 und 1 mg Zry-4) auf einem Zellulose-Acetatfilter entsprechend den o.g. Bedingungen aktivierungsanalytisch bestimmt wurde.

Trotz des vom Filter und von der Polyäthylenfolie herrührenden  $\gamma$ -Untergrundes ließen sich die Hauptkomponenten Fe, Cr, Mn und Zr sowie auch die Spurenelemente Co, Mo, As, Sb, Ta und W gut quantitativ bestimmen. (Ein Klebstoff zum Ankleben des Filters an der Polyäthylenfolie wurde bei diesem Versuch nicht benutzt, weil noch keine Erfahrungen über die Eignung der verschiedenen Klebstoffe vorlagen.)

In ähnlicher Weise wurde ein simulierter Niederschlag aus den Spaltprodukt-elementen Sr, Mo, Sb, Te, Cs, Ba und La analysiert. Die Konzentrationen auf dem Filter entsprachen dabei dem Spaltproduktgehalt von 1 g bzw. 0,1 g U nach einem Abbrand von 44000 MWd/t. Auch hierbei war eine gute quantitative Bestimmung möglich. Die ermittelten Nachweisgrenzen dieser Elemente sowie auch der Stahl/Zircaloy-Komponenten sind in Tabelle 3 angegeben.

Der Vorteil des hier beschriebenen Analysenverfahrens besteht also darin, daß zahlreiche Spaltprodukte und Bestandteile des Coriums quantitativ bis in den ng-Bereich hinein bestimmt werden können. Das Meßverfahren und die Verwendung eines kürzlich installierten PDP-11-Rechners an dem  $\gamma$ -Meßplatz ermöglichen einen relativ geringen Arbeitsaufwand. Die mittlere Standard-Abweichung eines Meßwertes liegt bei ca. 3 %.

Der Nachteil ist durch die Eigenschaft einiger Elemente gegeben, entweder keine gammastrahlenden oder keine genügend langlebigen Nuklide zu besitzen. So können z.B. die Spaltprodukte Se, Y, Nb, Tc, Rh, Pd, Sn, J, Pr und Pm aktivierungsanalytisch nicht erfaßt werden.

Tabelle 3 : Nachweisgrenzen der Komponenten der aktivierungsanalytisch untersuchten Stahl/Zircaloy-Mischung und des Spaltprodukt-Gemisches; in der 3. Spalte sind die zum Nachweis benutzten Nuklide aufgeführt

Probe	Element	Nuklid	Nachweisgrenze	
			Aktivität (nCi)	Elementmenge (ng)
Stahl/ Zircaloy- Mischung 10 : 1	Cr	Cr-51	0,6	30
	Mn	Mn-56	1500	20
	Fe	Fe-59	0,05	1000
	Zr	Zr-95	0,06	1000
	Co	Co-60	0,01	2
	Mo	Tc-99m	0,7	150
	As	As-76	20	10
	Sb	Sb-122	0,8	2
		Sb-124	0,04	4
		Ta	Ta-182	0,4
	W	W -187	40	20
Spalt- produkt- Mischung	Sr	Sr-87m	130	500
	Mo	Tc-99m	1	200
		Mo-99	6	1500
	Sb	Sb-122	1,5	4
		Sb-124	1,5	150
	Te	Te-121	0,03	1000
		Te-131	0,5	150
	Cs	Cs-134	0,06	5
	Ba	Ba-131	17	500
		Ba-139	1400	1500
La	La-140	15	10	

## 6. Herstellung von schwach aktiven Fissium-Proben

---

Um Aussagen über die maximal zu erwartende Spaltprodukt-Freisetzung beim Coreschmelzen zu erhalten, soll bei den Schmelzversuchen Brennstoff mit einer möglichst hohen Konzentration an Spaltprodukten verwendet werden. Um aber gleichzeitig die Aktivität der Schmelzproben so niedrig wie möglich zu halten und dadurch ohne umfangreichere Strahlenschutzmaßnahmen auszukommen, besteht die Absicht, anstelle von hoch-abgebranntem Brennstoff sog. Fissiumproben mit simulierten Spaltprodukten einzusetzen.

Dieses Fissium enthält neben  $UO_2$  (Natururan oder abgereichertes Uran) eine Mischung aus inaktiven und schwachaktiven Spaltproduktzusätzen. Durch die inaktiven Bestandteile soll eine Simulation der chemischen Vorgänge im Brennstoff bzw. in der Corium-Schmelze erreicht werden, die radioaktiven Tracer dienen zur meßtechnischen Erfassung der Spaltprodukte bei Freisetzung, Transport und Ablagerung. Sie verhalten sich chemisch und physikalisch genauso wie die stabilen Isotope der einzelnen Elemente.

Die Herstellung des Fissiums erfolgt zunächst nach 2 verschiedenen Spezifikationen mit jeweils 6 - 8 Komponenten (vgl. Tab. 4):

Die als Fissium I bezeichnete Mischung enthält die wichtigsten leichter flüchtigen und zugleich reaktiveren Spaltprodukte, das Fissium II dagegen einige typische Vertreter der schwerer flüchtigen Elemente.

Fissium I				Fissium II			
Element	Verbindung	Nuklid	T <sub>1/2</sub>	Element	Verbindung	Nuklid	T <sub>1/2</sub>
J	CsJ	J -131	8.05 d	Ru	Ru	Ru-106	1 a
Cs	CsJ, Cs <sub>2</sub> MoO <sub>2</sub>	Cs-134	2.1 a	Ag	Ag	Ag-110 <sup>m</sup>	250 d
Mo	MoO <sub>3</sub> , Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub>	Mo-99	66 h	Mo	Mo	Mo-99	66 h
Se	Se	Se-75	120 d	Zr	ZrO <sub>2</sub>	Zr-95	65 d
Sb	Sb, Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Sb-125	2.7 a	Nb	Nb	Nb-95	33 d
Cd	Cd	Cd-115 <sup>m</sup>	45 d	Ba	BaO	Ba-133	10,7a
Sn	Sn	Sn-113	115 d	Ce	CeO <sub>2</sub>	Ce-144	284 d
				Nd	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Nd-147	11.1d

Tabelle 4: Zusammensetzung der beiden Fissium-Mischungen

Bemerkungen zu Tabelle 4:

- a) Mo ist als MoO<sub>3</sub> bzw. Molybdat relativ leicht flüchtig, in metallischer Form dagegen sehr schwer flüchtig; deshalb tritt es in beiden Fissium-Mischungen auf.
- b) Se steht stellvertretend für Te, für das ein Tracernuklid schwer herzustellen bzw. zu beschaffen ist.
- c) Ba repräsentiert auch Sr; Ce und Nd repräsentieren die Seltenen Erden La, Pr, Pm, Sm, Eu, Gd und auch Y.
- d) Die Aktivität der Tracer wird so gewählt, daß sie zum Zeitpunkt des Schmelzens der Fissiumproben 50 - 100 µCi pro Nuklid beträgt.
- e) Auf die Einstellung eines bestimmten O/M-Verhältnisses wird verzichtet, da die Freisetzungsversuche hauptsächlich unter oxidierender Atmosphäre stattfinden.

Der Arbeitsablauf bei der Fissium-Herstellung erfolgt in Anlehnung an die von Parsley (5) und Hofmann (6, 7) beschriebenen Verfahren:

Zunächst werden einzelne Mischungen von 10 g  $UO_2$ -Pulver und jeweils einem Tracermaterial mit einer Aktivität von ca. 10 mCi hergestellt. Von diesen Mischungen wird so viel Material abgewogen, daß für eine Fissium-Charge von 100 g die pro Nuklid benötigte Aktivität zur Verfügung steht. Eine nächste Serie von Wägungen wird mit den inaktiven Spaltproduktverbindungen durchgeführt. Diese sind, entsprechend dem simulierten Abbrand und unter Berücksichtigung der bereits über das Tracermaterial eingebrachten Trägermengen, einzuwiegen. Dann wird noch soviel  $UO_2$ -Pulver zugegeben, wie an der Gesamtmasse von 100 g für eine Charge fehlen.

Dieses vorläufig noch inhomogene Fissium wird zur gründlichen Durchmischung und zum Mahlen der gröberen Bestandteile in eine sog. Spexmühle überführt. Wenn eine mittlere Korngröße  $\approx 10 \mu$  erreicht ist, wird das Pulver mit einem Druck von ca.  $5 \text{ t/cm}^2$  kalt verpreßt. Die dabei erhaltenen Pellets haben einen Durchmesser von ca. 10 mm und eine Höhe von ca. 12 mm.

Soweit die Pellets die Zusammensetzung von Fissium II aufweisen, werden sie anschließend 20 - 30 h unter Argon bei  $1600^\circ\text{C}$  geglüht. Damit sollen die Fissiumbestandteile ähnlichen thermodynamisch-chemischen Bedingungen ausgesetzt werden wie die Spaltprodukte beim Abbrand im Reaktor.

Für Fissium I kommt dieser Sintervorgang nicht in Frage, denn die leicht flüchtigen Bestandteile würden dabei weitgehend ausgasen.

Die für die Fissiumproduktion benötigten Einrichtungen sind zum größten Teil beschafft und befinden sich zur Zeit in Montage.

#### Literatur:

- (1) 2. Halbjahresbericht 1973 des PNS, KFK-1908, S. 141 - 147
- (2) 1. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK-2050, S. 216 - 227
- (3) 2. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK-2130, S. 251 - 260
- (4) W.E. Browning et al, ORNL-3843 (1965), 3
- (5) L.F. Parsly, T.H.Row, ORNL-TM-1698 (1967), 45
- (6) P. Hofmann, O.Götzmann, KFK-1272/2 (1972), 112 - 24
- (7) P. Hofmann, KFK-1831 (1974), 22

4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien  
beim Coreschmelzen

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

Im Berichtszeitraum wurden die Arbeiten an den 3 Teilaufgaben

- Konstitutionsuntersuchungen in definierten Systemen
- Reaktionsuntersuchungen an LWR-Corekomponenten
- Metallkundliche Untersuchungen an niedergeschmolzenen  
simulierten LWR-Brennstäben

fortgeführt.

## 1. Konstitutionsuntersuchungen

### 1.1 Untersuchungsergebnisse

Die in weiten Bereichen teilweise noch abgeschätzten Phasendiagramme der ternären Systeme U-Zr-O, U-Fe-O und Zr-Fe-O [KFK 2130] wurden experimentell bei 1000, 1500 und 2000°C weiter abgesichert. Dabei wurden die abgeschätzten Phasenverhältnisse bestätigt.

Im System Zr-Fe-O wurden mit Hilfe der Schmelzpunktbestimmungsapparatur [KFK 2050] einige Schmelztemperaturen (Liquidustemperaturen) im Vakuum gemessen (vgl. Abb. 4244-1). Wie die Meßergebnisse zeigen, steigen die Schmelztemperaturen vom metallischen System Fe-Zr mit steigendem Sauerstoffgehalt rasch an. Von den Proben, die auf der Linie Fe-ZrO<sub>2</sub> liegen, konnten auf diesem Wege noch keine Daten gewonnen werden, da Fe im Vakuum bereits unterhalb der Liquidustemperatur sehr stark abdampft. Die Schmelztemperaturen dieser Proben können nur im abgeschlossenen System ermittelt werden. Hierzu bieten sich stationäre Versuche in verschweißten Kapseln aus hochschmelzenden Metallen an. Wegen des hohen Aufwandes sind derartige Versuche jedoch nicht in ternären Systemen, sondern im 4-Stoffsystem U-Zr-Fe-O und im System UO<sub>2</sub>-Zry-Stahl geplant.

Nachdem über die 3 ternären Systeme U-Zr-O, U-Fe-O und Zr-Fe-O nunmehr einige Daten zur Verfügung stehen, konnte mit den experimentellen Untersuchungen im 4-Stoffsystem U-Zr-Fe-O begonnen werden. Es wurden Versuche an Proben aus

dem Schnitt  $\text{UO}_2\text{-Zr-Fe}$  durchgeführt. Über die Konstitution dieses Schnittes wird später im Zusammenhang berichtet werden. Hier soll zunächst nur über erste Schmelzversuche an 2 Proben aus diesem Schnitt berichtet werden. Ihre Zusammensetzungen (in Gew. %)

	$\text{UO}_2$	Zr	Fe
Probe C1	65	18	17
Probe C2	35	10	55

würden den chemischen Zusammensetzungen von "Corium A" (Probe C1) bzw. "Corium E" (Probe C2) entsprechen, wenn man für Zr Zircaloy und für Fe Stahl (1.4550) substituiert. Die Pulverpresslinge wurden in Mo-Kapseln, die mit  $\text{ZrO}_2$ -Tiegeln ausgekleidet waren, eingeschweißt und im Induktionsofen aufgeheizt. Probe C1 wurde 5 Minuten bei  $\sim 2300^\circ\text{C}$ , Probe C2 1 Minute bei  $\sim 2500^\circ\text{C}$  gehalten. Beide Proben sind nur angeschmolzen. Die zylindrische Form der Presslinge ist im Ganzen erhalten geblieben, die Kanten sind stark abgerundet. Im Anschliff ist zu erkennen, daß die Oxidpartikel durch die metallische Schmelze angefressen, aber nicht voll aufgeschmolzen wurden (vgl. Abb. 4244-2 und 4244-3). Wahrscheinlich hatte sich der Gleichgewichtszustand nicht eingestellt. Durch Röntgenpulveraufnahmen und Mikrosondenuntersuchungen (Abb. 4244-4 und 4244-5) ließen sich folgende Phasen erkennen:

Probe C1:  $\text{UO}_2$ ,  $(\text{U}_{1-x}\text{Zr}_x)\text{O}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{Zr}$ ,  
dazu einzelne Partikel an  $\text{Zr(O)}$  und  $\text{U(Fe)}$ .

Probe C2: Fe und  $\text{Fe}_2(\text{Zr}_{1-x}\text{U}_x)$  als Matrix,  
keramische Partikel  $\text{UO}_2$  und  $(\text{U}_{1-x}\text{Zr}_x)\text{O}_2$ .

Die Röntgenaufnahmen der beiden Proben zeigen verbreiterte und z.T. aufgespaltene Reflexe und weisen damit auf ein Phasenungleichgewicht hin. Den hohen Versuchstemperaturen gemäß wird eine gegenseitige Austauschbarkeit von U und Zr in den Phasen  $\text{UO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{Zr}$  beobachtet. Die dadurch entstandenen Mischkristalle sind beim Abkühlen nur unvollständig entmischt worden.

Die Röntgenaufnahme der Probe C1 stimmt in allen Reflexen mit der Aufnahme einer im Lichtbogen unter Schutzgas (Ar) geschmolzenen "Corium A"-Probe überein (vgl. Abschn. 2.2), die demgemäß als Hauptphasen  $\text{UO}_2$ ,  $(\text{U}_{1-x}\text{Zr}_x)\text{O}_2$

und  $(\text{Fe, Ni, Cr})_2\text{Zr}$  enthält. Dieser Befund der Übereinstimmung lässt vermuten, dass das 4-Stoffsystem U-Zr-Fe-O bei hohen Temperaturen hinsichtlich des Phasenbestandes für das komplexe System  $\text{UO}_2$ -Zircaloy-Stahl (1.4550) repräsentativ sein kann.

## 1.2 Hochtemperatur-Röntgendiffraktometrie

Bei Corekomponenten und ihren Reaktionsprodukten kann mit normalen Abschreckmethoden der Hochtemperaturzustand nicht vollständig eingefroren werden (z.B.  $\beta$  - Zr(O), tetr.  $\text{ZrO}_2$ , kub.  $\text{ZrO}_2$ ). Deshalb sollen Hochtemperatur-Untersuchungen mit einer Röntgen-Diffraktometerkammer wahlweise unter Hochvakuum oder Schutzgas durchgeführt werden. Die Hochtemperatur-Diffraktometerkammer (Abb. 4244-6) setzt sich aus einem zylindrischen, doppelwandigen, wassergekühlten Topf mit einem Be-Blech als Strahlungsfenster sowie einem Deckel zusammen, welcher vier ebenfalls wassergekühlte Elektroden trägt. Der Deckel wird durch zwei Führungsstifte auf dem Topf fixiert, so dass eine unbeabsichtigte Verschiebung entfällt. An zwei drehbaren Elektroden ist ein Heizleiter aus hochschmelzendem Metall, wie Pt, Mo, Ta, Re oder W, welcher auch als Chargenträger dient, aufgespannt. Die thermische Ausdehnung des Chargenträgers wird durch Federspannung oder manuell über die drehbaren Elektroden ausgeglichen, so dass die röntgenographische Justierung über den gesamten Temperaturbereich erhalten bleibt. An zwei nicht drehbaren Elektroden unterschiedlicher Länge ist ein zusätzliches schalenförmiges Heizelement aus Wolfram bzw. Platin um die Probe aufgespannt, ohne den Strahlendurchgang zu stören. Dadurch wird ringsherum um den Probenträger ein homogenes Temperaturfeld erreicht. Die Temperatur wird mit einem Zweifarben-Mikropyrometer gemessen. Bei 1500 K beträgt die Temperaturkonstanz am Präparat  $<5$  K, der Messfehler der Temperaturmessung beläuft sich auf  $\pm 10$  K. Der relativ grosse Temperaturfehler ist bedingt durch das unterschiedliche Emissionsverhältnis der einzelnen Phasen.

## 2. Reaktionsuntersuchungen

### 2.1 Änderung der Corium-E-Zusammensetzung beim Schmelzen unter Schutzgas

Bei den Schmelzexperimenten mit Cor-E unter Argon waren Gewichtsverluste bis zu 30% zu beobachten [KFK 2130]. Durch die Abdampfung einzelner Elemente aus der Schmelze ändert sich die chemische Zusammensetzung von

Cor-E und damit u.U. die Phasenzusammensetzung. Es ist deshalb wichtig zu wissen, welche Elemente abdampfen und in welchem Ausmaß.

Es wurden deshalb Schmelzexperimente mit Cor -E im Induktionsofen und Lichtbogenofen unter Argon durchgeführt, um die integralen Gewichtsverluste und die partiellen Abdampfraten der einzelnen Elemente quantitativ zu bestimmen. Die Versuche im Induktionsofen erfolgten in hochdichten ThO<sub>2</sub>-Tiegeln, die ein Eindringen der Schmelze in das Tiegelmateriale praktisch verhinderten. Die Komponenten des Cor -E (Stahl, UO<sub>2</sub>, Zry-4) kamen in massiver Form bzw. in Pulverform zum Einsatz. Die chemische Zusammensetzung der Cor -E-Komponenten und deren Gewichtsanteile wurden vor jedem Versuch bestimmt. Der integrale Gewichtsverlust der Cor -E-Probe beim Schmelzen infolge Abdampfung wurde durch Wägung ermittelt. Nach dem Schmelzen wurde die chemische Zusammensetzung der Cor -E-Proben mittels Röntgenfluoreszenz-Analyse bestimmt. Insgesamt wurden jeweils etwa 10 Schmelzproben quantitativ analysiert. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Abb. 4244-7 dargestellt. Die Konzentrationsbereiche, in denen die Analysenwerte der einzelnen Elemente variierten, sind durch einen waagrechten Strich in den Konzentrationsbalken angegeben. Der Vergleich der Gewichtsanteile der einzelnen Elemente nach dem Schmelzen mit der Ausgangskonzentration zeigt deutlich, daß die U-, Zr- und besonders die Sauerstoff-Konzentration in den Schmelzproben abgenommen haben, d.h. diese Elemente sind bevorzugt abgedampft. Die Konzentration der Stahlkomponenten Fe, Cr und Ni nimmt dagegen zu.

Die Proben, die im Lichtbogenofen geschmolzen werden, zeigen das gleiche Reaktions- und Abdampfverhalten wie die Induktionsofen-Proben, obwohl die Temperaturen in der Schmelze und die Haltezeiten im flüssigen Zustand sich bei beiden Schmelzverfahren erheblich unterscheiden. Der Abb. 4244-8 kann man entnehmen, daß sich die endgültige Element -Zusammensetzung der Schmelze relativ rasch einstellt. Die Konzentrationsänderungen mit der Zeit sind, abgesehen vom Fe, gering. Das ist wahrscheinlich auch der Grund dafür, daß die Änderung der Cor -E-Zusammensetzung relativ unabhängig vom Schmelzprozess ist. Auch der Ausgangszustand der Corium-Komponenten (massiv-pulverförmig) hat keinen Einfluß auf das Reaktions- und Abdampfverhalten.

Die Versuchsergebnisse zeigen, daß nicht die Elemente abdampfen die im reinen Zustand den größten Dampfdruck besitzen (Cr, Ni, Fe), sondern diejenigen mit dem kleinsten (Abb. 4244-8). Das ist ein Hinweis dafür, daß

die partiellen Abdampfraten aus komplexen Vielstoffsystemen, wie es das Cor.-E darstellt, nicht anhand der Dampfdrucke der reinen Elemente abgeschätzt werden kann.

Der starke Sauerstoffverlust beim Schmelzen ist überraschend. Wahrscheinlich entweicht ein Teil des Sauerstoffs elementar. Aussagen über den chemischen Zustand der abgedampften Bestandteile sind nicht möglich. Dazu wären massenspektrometrische Untersuchungen erforderlich.

## 2.2 Reaktionsverhalten von Cor.-A unter Schutzgas.

Cor.-A besitzt im Vergleich zu Cor.-E einen wesentlich kleineren Stahlanteil (Tabelle 1), was zur Folge hat, daß sich das chemische und physikalische Verhalten der Schmelzen stark unterscheidet. Während man beim Schmelzen von Cor.-E eine metallische Schmelze erhält, in der die Phasen im abgekühlten Zustand statistisch über den Probenquerschnitt verteilt sind (Abb. 4244-9), kommt es beim Schmelzen von Cor.-A zu einer Entmischung im flüssigen Zustand. Es bilden sich eine metallische und eine oxidische Schmelze (Abb. 4244-10). Die Beschreibung der entstehenden Phasen erfolgte bereits bei den Konstitutionsuntersuchungen. Verändert man die Stahlkonzentration zu höheren Werten, so kommt es bei einem Mischungsverhältnis von 50 Gew. % Cor.-A plus 50 Gew. % Cor.-E (36 Gew. % Stahl, 50 Gew. %  $UO_2$ , 14 Gew. % Zry-4) zum Verschwinden der Entmischung, und es bildet sich eine metallische Schmelze (Tabelle 1). Die Anzahl der Phasen und deren qualitative Zusammensetzung in der erstarrten 50/50 Schmelze entspricht den Ergebnissen mit Cor.-E (Abb. 4244-9).

Tabelle 1: Schematische Darstellung des Einflusses der Konzentration von Stahl,  $UO_2$  und Zry auf das physikalische Verhalten der Schmelzen.

	Corium - A	0,5 Cor.-A +0,5 Cor.-E	Corium - E
Stahl [Gew. %]	17	36	55
$UO_2$ "	65	50	35
Zry-4 "	18	14	10
	Entmischung im flüssigen Zustand	keine Entmischung im flüssigen Zustand	

### 3. Metallkundliche Untersuchungen an niedergeschmolzenen simulierten LWR-Brennstäben

#### 3.1 Simulationsstäbe aufgeheizt in Helium

Die Abb. 4244 - 11 und 4244 - 12 zeigen Übersichtsaufnahmen von zwei radialen Schnitten eines Simulationsstabes, der in Schutzgas (He) innerhalb 15 min auf eine mittlere Temperatur von  $1670^{\circ}C$  aufgeheizt und 1 h bei dieser Temperatur gehalten wurde. Die örtliche Temperatur am oberen Teil des Stabes (Abb. 4244 - 11) betrug ca.  $1720^{\circ}C$ , am unteren Teil (Abb. 4244 - 12) ca.  $1670^{\circ}C$ . Die Temperaturinhomogenität wird möglicherweise durch aufsteigendes He mit verursacht. Die Abb. 4244 - 11 und 4244 - 12 zeigen deutlich, dass die Reaktion unter Schutzgas erwartungsgemäss an der Innenwand der Hülle am Kontakt mit  $UO_2$ -Brennstoff beginnt. Dies wird sichtbar durch die deutliche Schmelzfront, welche sich vom Kontakt Hülle-Brennstoff aus radial nach innen ausbreitet. Abb. 4244 - 13 zeigt die Übersichtsaufnahme eines radialen Schnittes (7 cm oberhalb der Messbohrung) nach 4,5 h bei  $1350^{\circ}C$ . Abb. 4244 - 14 zeigt bei dem selben Simulationsstab die Übersichtsaufnahme einer Stelle 1 cm oberhalb der Messbohrung, dort hatte die Oberfläche der Zry-Hülle eine Temperatur von  $1450^{\circ}C$ .

### 3.2 Simulationsstab aufgeheizt in Luft

Abb. 4244 - 15 zeigt die Übersichtsaufnahme eines Simulationsstabes, welcher nicht unter Schutzgas, sondern unter oxidierenden Bedingungen (Luft) aufgeheizt wurde. Durch den vorhandenen Luftsauerstoff wird  $UO_2$  zu  $UO_{2+x}$  bzw.  $U_3O_8$  und W je nach Temperatur zu  $WO_2$  oder  $WO_3$  oxidiert, verbunden mit einer beachtlichen Volumenvergrößerung nicht nur in der Hülle, sondern auch im Kontaktbereich Brennstoff/Heizstab. Durch die Volumenvergrößerung kommt es bei Reaktionsbeginn zu einem besseren thermischen Kontakt zwischen  $UO_2$ -Pellet und anoxidiertem Wolframstab. Dabei reagieren  $WO_3$ ,  $WO_2$  und W mit  $UO_2$  und es entstehen niedrigschmelzende ternäre Verbindungen, wie  $U_xWO_3$  und  $UO_2WO_4$ . Quasibinäre Eutektika, wie  $UO_2-U_xWO_3$ , oder auch ternäre eutektische Zusammensetzungen, wie  $UO_2-W-U_xWO_3$ , dominieren derart (Abb.4244 - 16), dass es zu vielseitigen chemischen Wechselwirkungen zwischen  $UO_2$ -Pellet, Zry-Hülle und W aus dem Heizstab kommt.

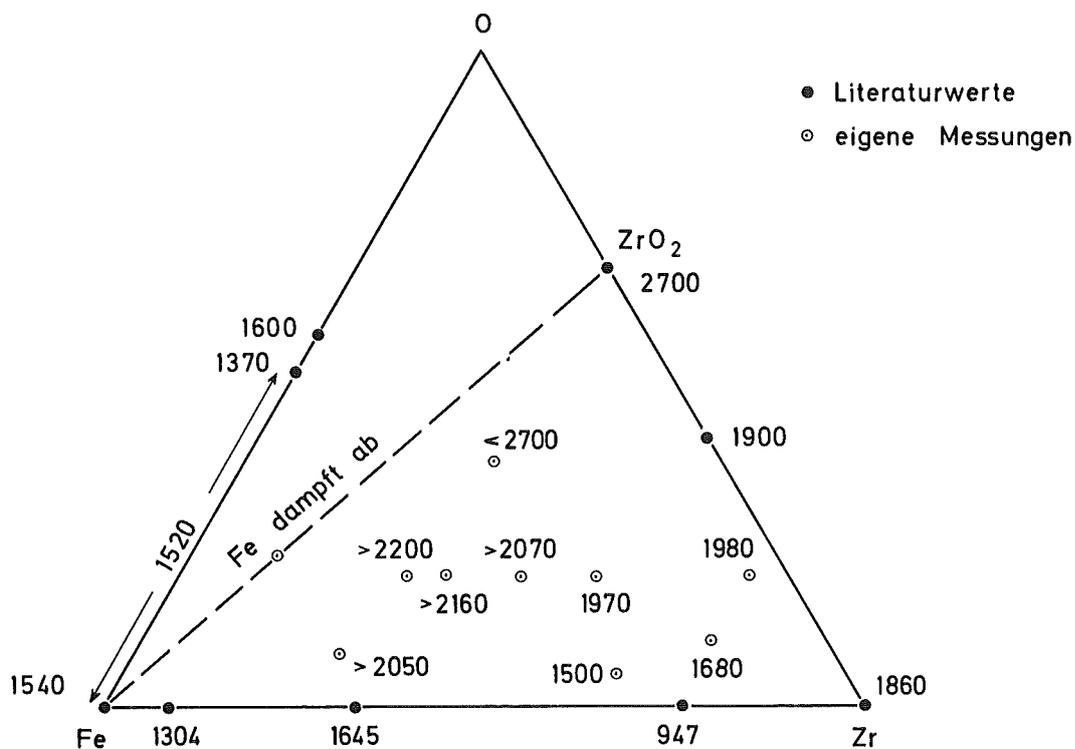


Abb. 4244-1 Schmelztemperaturen (Liquidus) im System Fe - Zr - O

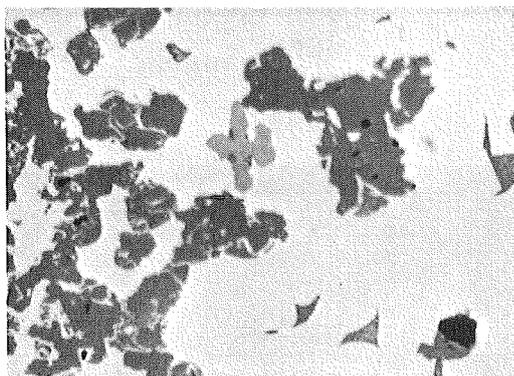


Abb. 4244-2

Schliffbild der Schmelzprobe C1

x 500

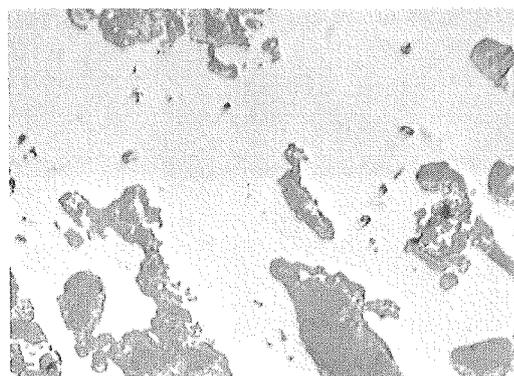
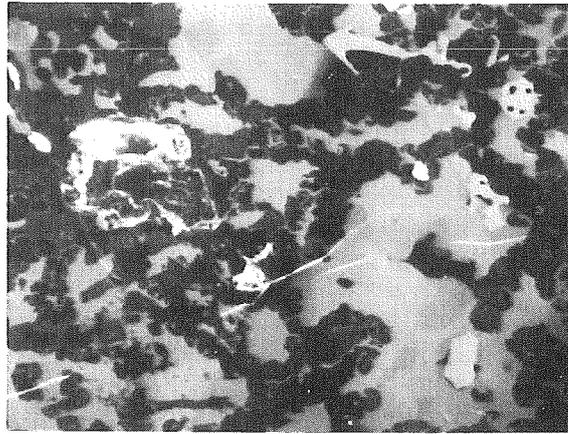


Abb. 4244-3

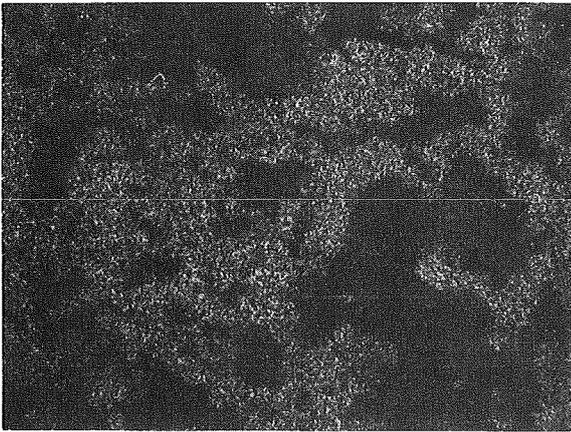
Schliffbild der Schmelzprobe C2

x 500

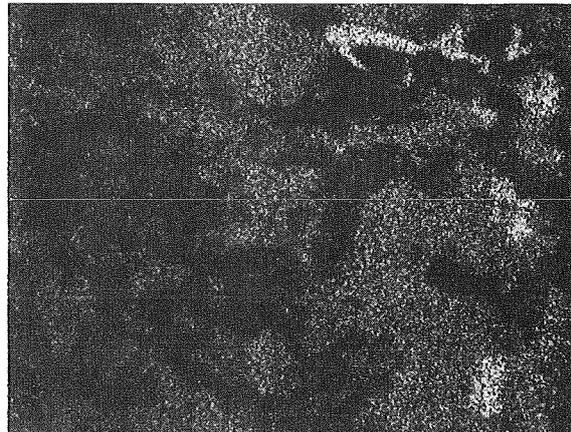


50  $\mu\text{m}$

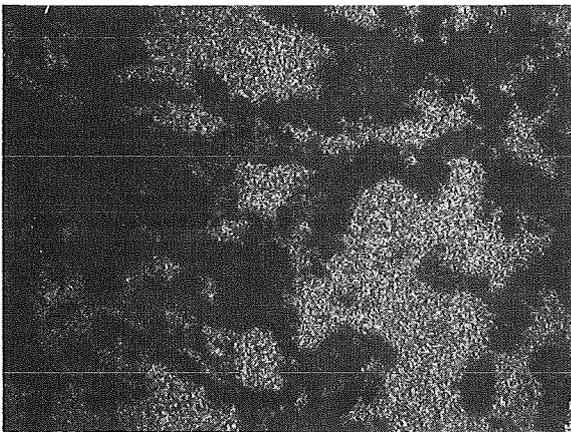
Mikrographie



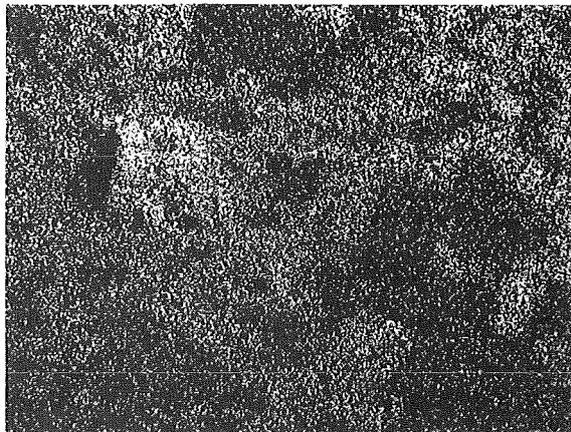
U



Zr

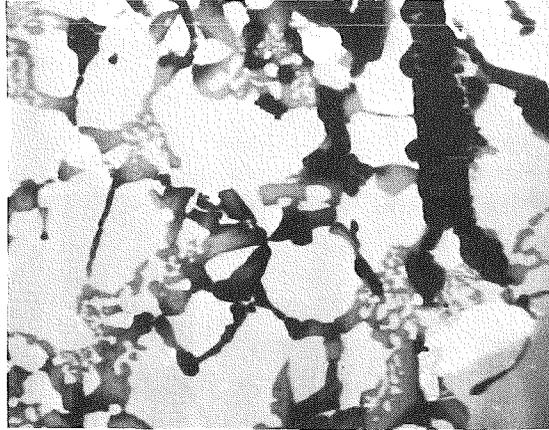


Fe



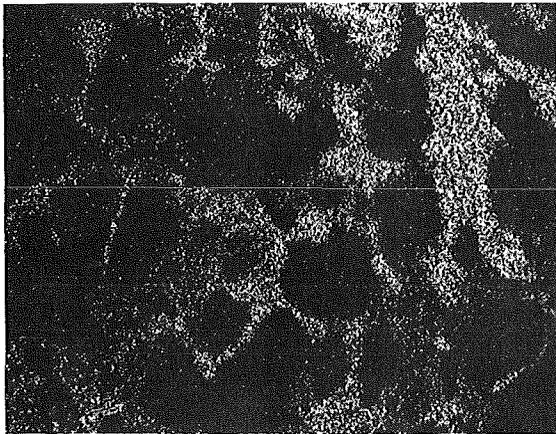
O

Abb. 4244-4 Mikrosondenaufnahmen der Schmelzprobe C1

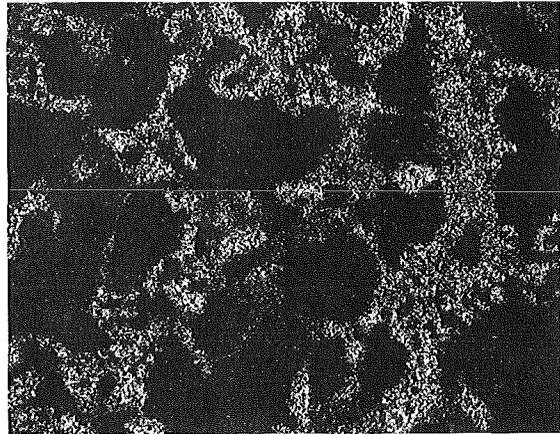


50  $\mu\text{m}$

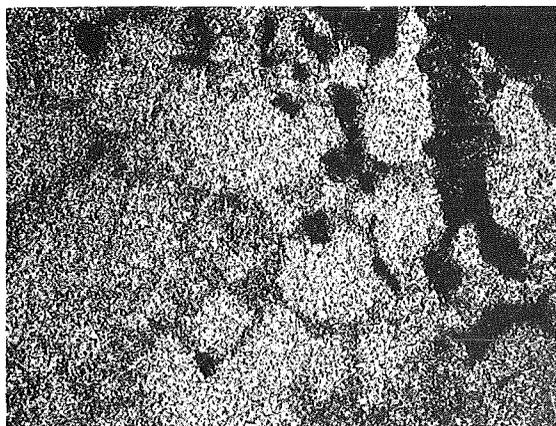
Mikrographie



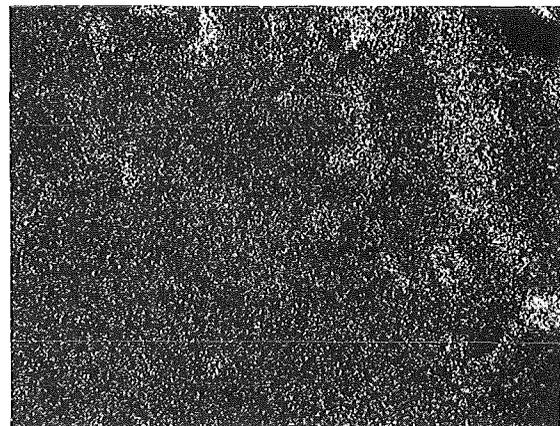
U



Zr



Fe



O

Abb. 4244-5 Mikrosondenaufnahmen der Schmelzprobe C2

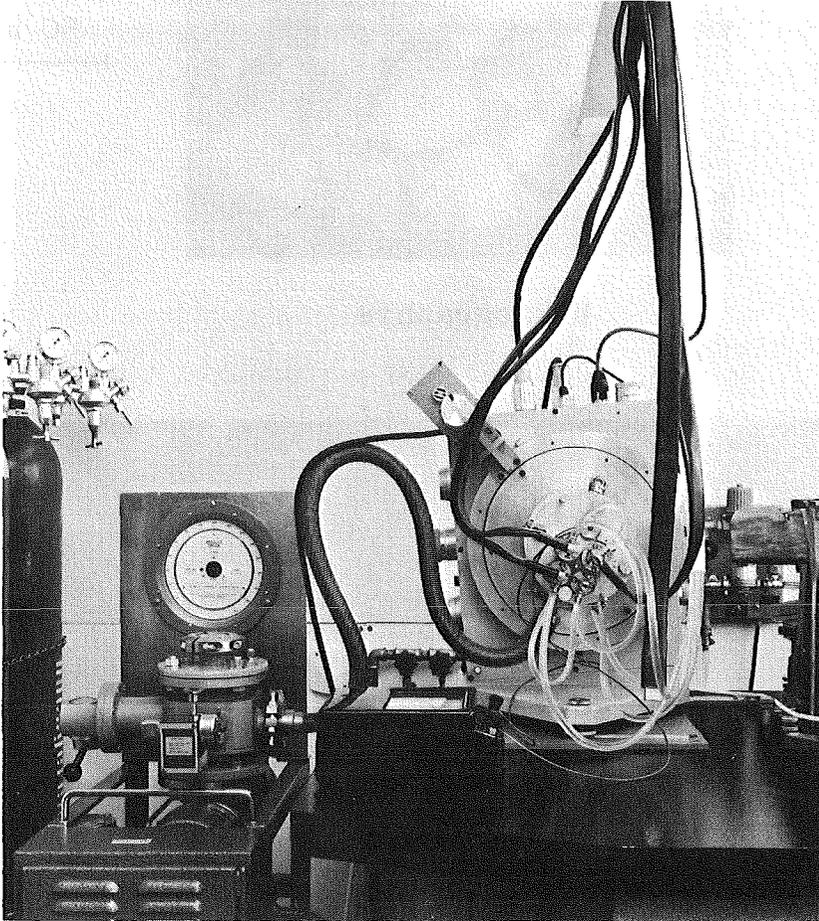
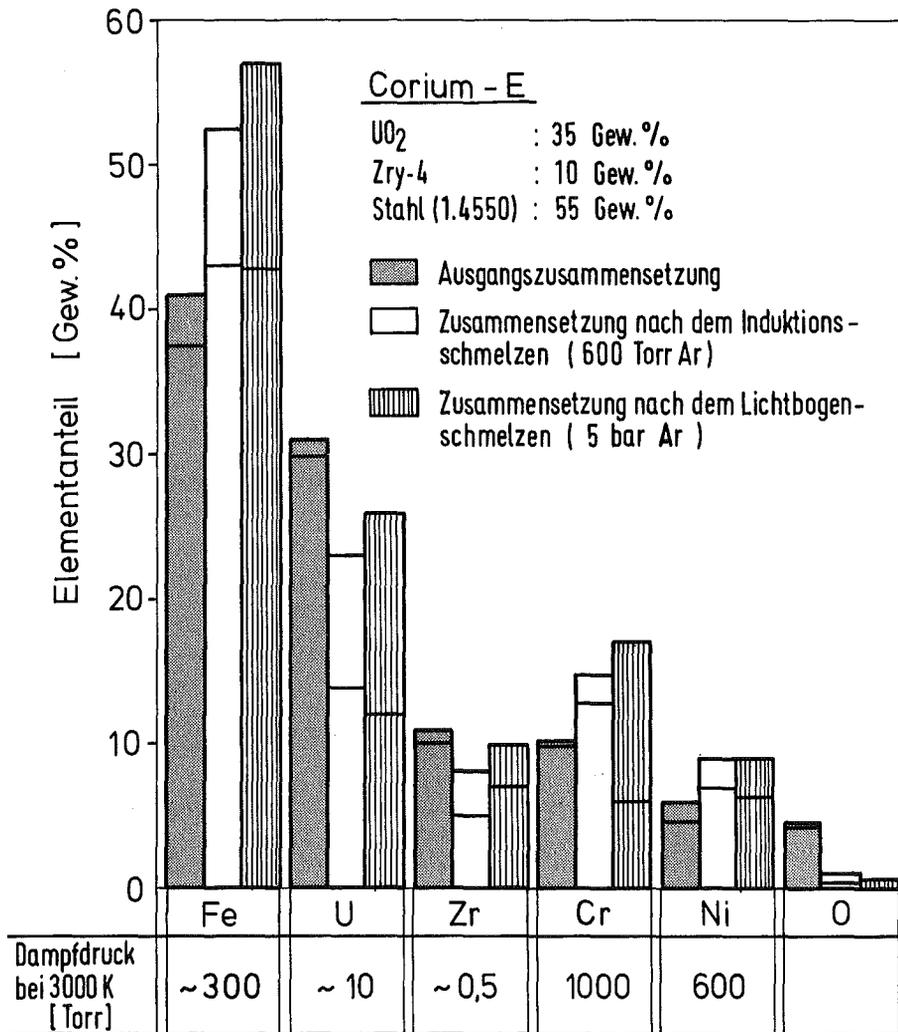
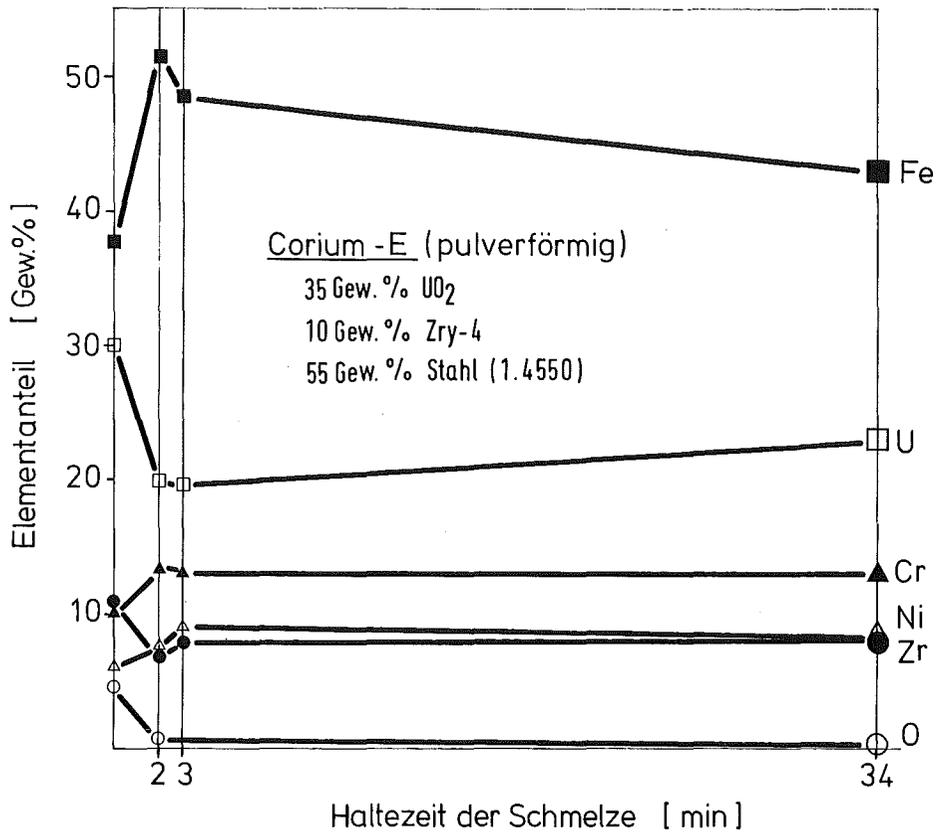


Abb. 4244-6 Hochtemperatur-Röntgendiffraktometer  
mit Pumpstand



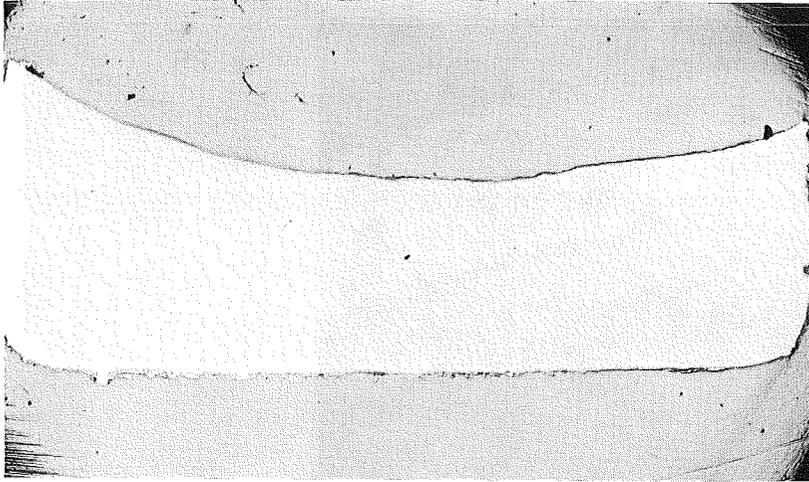
Änderung der Corium-E-Zusammensetzung durch Schmelzen im Induktions- bzw. Lichtbogenofen unter Argon

Abb. 4244-7



Änderung der Cor.-E-Zusammensetzung bei ca. 2400°C in  
Abhängigkeit der Zeit ( 600 Torr Ar )

Abb. 4244-8



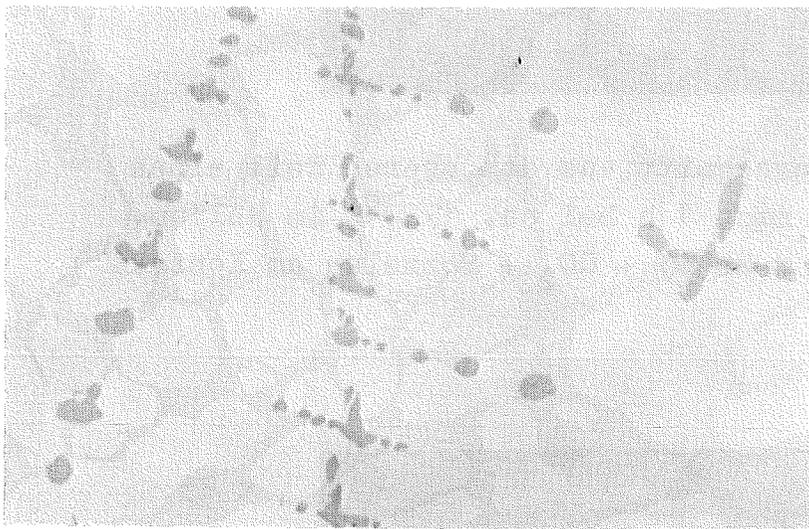
x 5

Abb. 4244-9

Reaktionsverhalten  
von Cor.-E unter  
Schutzgas. Bildung  
einer homogenen  
Schmelze.

Temperatur: 2350°C

Haltezeit: 2 min



x 500

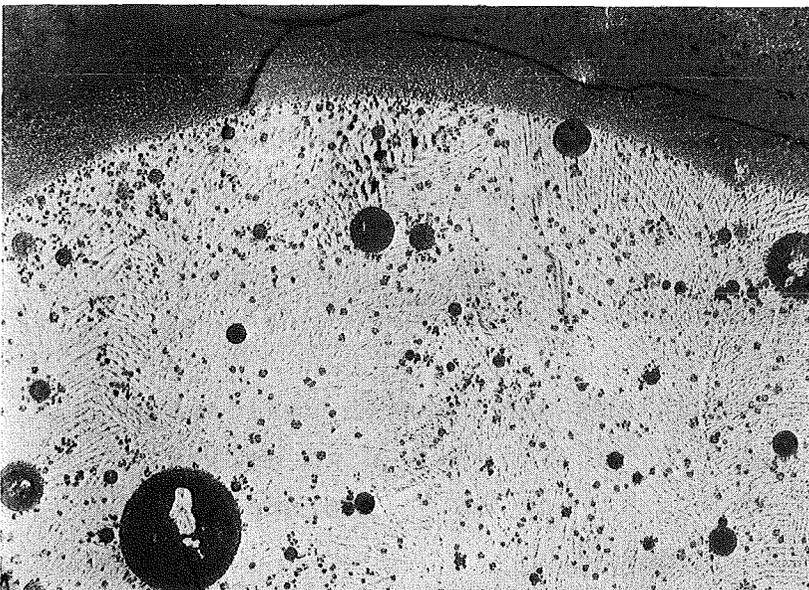
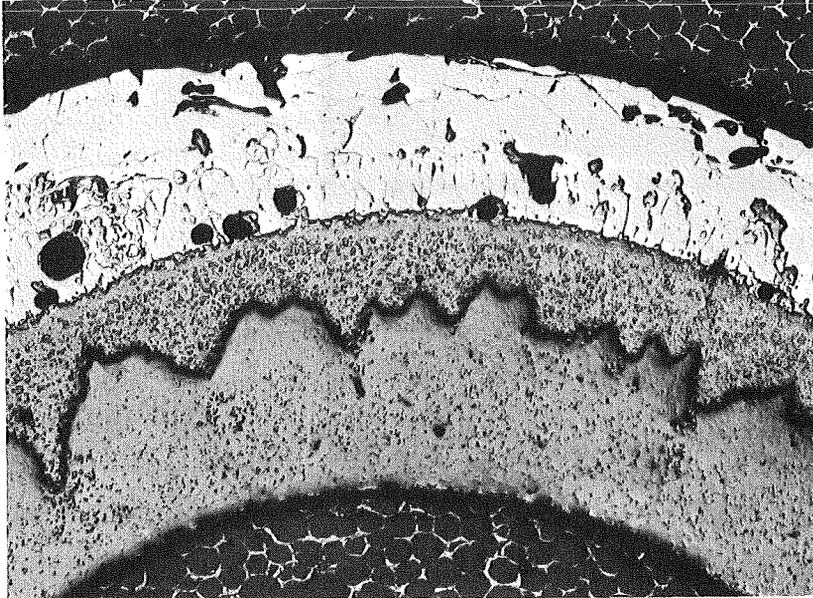


Abb. 4244-10

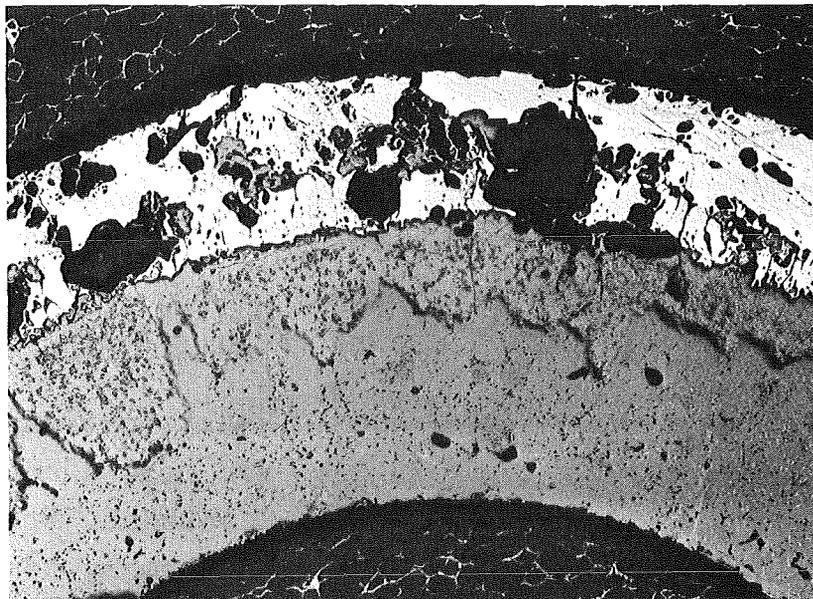
Reaktionsverhalten  
von Cor.-A unter  
Schutzgas. Probe im  
Lichtbogenofen ge-  
schmolzen. Entmischung  
in eine keramische und  
eine metallische  
Schmelze.

x 50



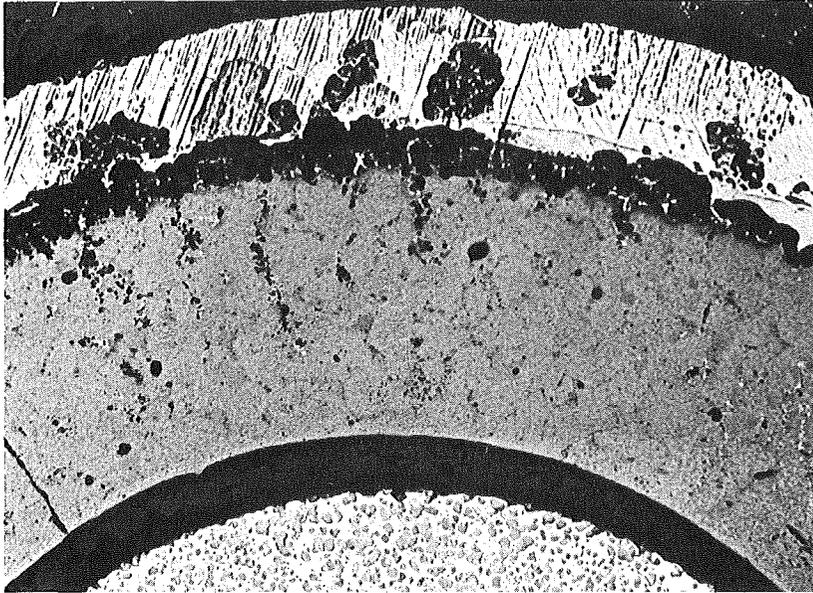
x 25

Abb. 4244-11 Querschnitt aus dem oberen Teil eines Simulationsstabes nach 1 h bei ca. 1720°C in Helium. Reaktionszone aus  $\alpha$ -Zr(O) +  $UO_2$  + Schmelze am Kontakt Zry-Hülle/ $UO_2$ .



x 25

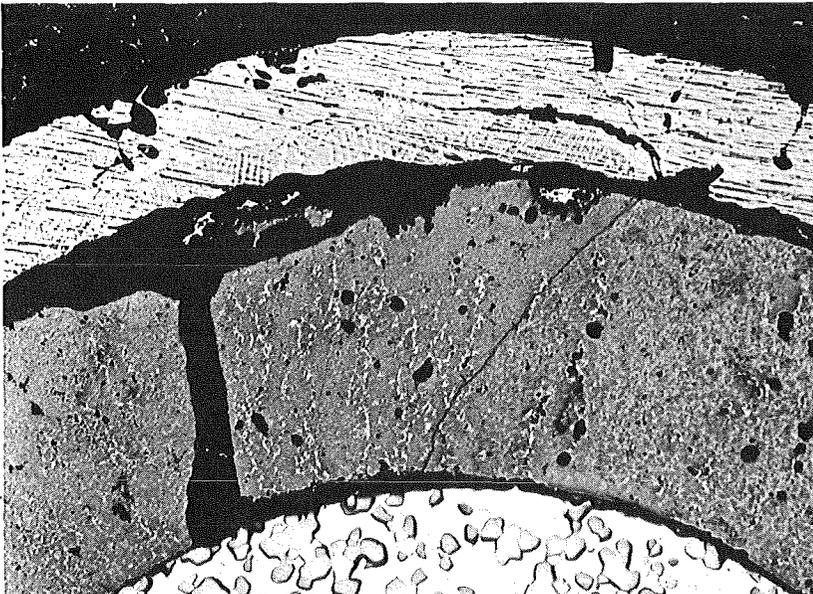
Abb. 4244-12 Querschnitt aus dem unteren Teil eines Simulationsstabes nach 1 h bei ca. 1670°C in Helium. Verminderter Schmelzanteil in der Reaktionszone.



x 25

Abb. 4244-13

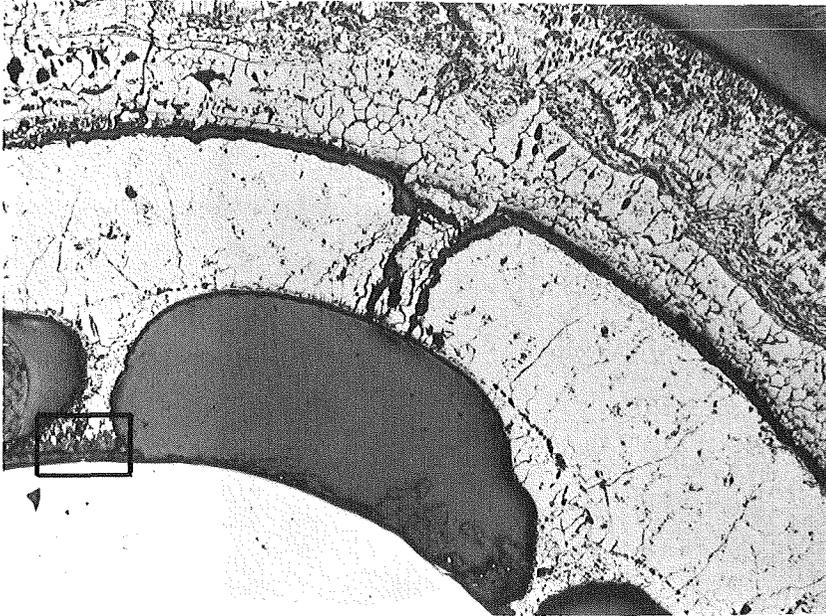
Teilansicht eines Simulationsstabes, 4,5 h bei  $1350^{\circ}\text{C}$  in Helium; Probeentnahmestelle 7cm oberhalb der Meßbohrung.



x 25

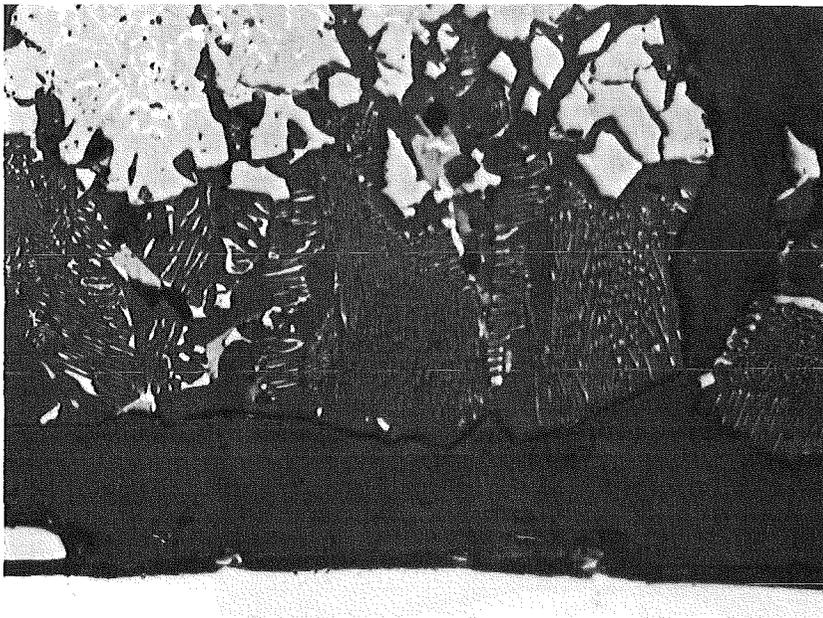
Abb. 4244-14

Teilansicht des selben Stabes wie Abb.4244-13, 4,5 h bei ca.  $1450^{\circ}\text{C}$ . Probeentnahmestelle 1cm oberhalb der Meßbohrung.



x 25

Abb. 4244-15 Teilansicht eines Simulationsstabes, aufgeheizt unter oxidierenden Bedingungen (Luft); Bildung relativ großer Hohlräume durch den Transport leichtflüchtiger ternärer Reaktionsprodukte an kalte Stellen (Kesselwand).



x 500

Abb. 4244-16 Detail aus demselben Schliff wie Abb.4244-15; eutektisches Gefüge  $UO_2 + W + U_xWO_3$  in der inneren Zone.

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN!

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

4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments.

Entwurf des NAUA-Codes zur Berechnung des Aerosolverhaltens im Containment  
Parameteruntersuchungen

(G. Haury H. Jordan, C. Sack, W. Schöck, IASR)

Im Mittelpunkt der Arbeiten im Berichtszeitraum standen Fragen der numerischen Konzipierung des ersten Modells (Mod 1) der Nach-Unfall-Atmosphäre (NAUA) in einem LWR-Containment.

Wie bereits früher festgestellt wurde [1], bildet sich in der wasserdampfhaltigen Containment-Atmosphäre nach dem Blowdown und dem Coreschmelzen durch heterogene Wasserdampfkondensation ein dreiphasiges Aerosol, bestehend aus Trägergas, festen trockenen Partikeln und aus Wassertröpfchen mit festen Partikeln als Kern. Der zu erstellende NAUA-Code soll den Abbau dieses Aerosols als Zeitfunktion beschreiben. Die dabei auftretenden Schwierigkeiten sind grundsätzlicher physikalischer Natur, da einerseits sehr schnelle molekulare Prozesse (z.B. Kondensation) und andererseits relativ langsame aerosolphysikalische Prozesse (z.B. Sedimentation) gleichzeitig berücksichtigt werden müssen. Da der Aerosolabbau über Zeiträume von mehreren Tagen berechnet werden soll, muß im Interesse eines vernünftigen Verhältnisses zwischen Genauigkeit und Rechenzeit (Richtwert für Berechnung der Kondensation: Rechenzeit = 10-fache Echtzeit) ein Kompromiß gefunden werden. Die zunächst getrennt erstellten Teileinheiten des NAUA-Mod1

- NAUCON zur Berechnung der Wasserdampfkondensation
- NAUPAR zur Berechnung des Aerosolabbaus durch Koagulation,  
Diffusion und Sedimentation

wurden überarbeitet, um eine Kopplung zu ermöglichen.

## 1. Wasserdampfkondensation

Der grundsätzliche Aufbau des NAUCON-Teilprogramms, so wie in [1] beschrieben, wurde beibehalten. Im einzelnen wurden jedoch zwei Änderungen notwendig.

Erstens ergaben Vergleichsrechnungen, daß innerhalb der kurzen Kondensationszeiten die Diffusion und Sedimentation keine meßbaren Auswirkungen verursachen, sie werden deshalb nur noch im NAUPAR-Teilprogramm berücksichtigt.

Zweitens wurde das NAUCON-Teilprogramm dahingehend geändert, daß eine beliebige Wasserdampfquelle berücksichtigt werden kann. Die in [1] vorläufig benutzte Hilfsvorstellung einer definierten Anfangsübersättigung ist für Anwendung auf reale Containmentverhältnisse zu eng gefaßt, da sich der Übersättigungsgrad in dem System der konkurrierenden Prozesse Wasserdampfproduktion und Kondensation nur schwer definieren läßt. Es wurde daher die Übersättigung als Eingabegröße ersetzt durch die Eingabe einer zeitabhängigen Wasserdampfquelle. (Das schließt natürlich den Fall definierte Anfangs-"Übersättigung" mit ein). Die tatsächlich auftretende Übersättigung wird jetzt als abgeleitete Größe aus dem Wasserdampfgehalt berechnet.

Es wurden Parameterrechnungen durchgeführt, die die Untersuchung der Auswirkungen dieser Änderungen bezweckten und andererseits Aufschlüsse geben sollten über die Koppelmöglichkeiten mit dem NAUPAR-Teilprogramm. Die Rechnungen dienen auch als Hilfe bei der Konstruktion der geplanten Versuchsanlage.

Zum Vergleich der alten mit der neuen Version von NAUCON sind in Abb. 4311-1 und 4311-2 die Übersättigung  $S$ , d.h. kondensierbarer Wasserdampf, die Tröpfchenmasse  $M$ , d.h. kondensierter Wasserdampf und die Gesamtmasse  $W=S+M$  über der Zeit aufgetragen, und zwar in Abb. 4311-1 mit Anfangsübersättigung von 1,5 % und in Abb. 4311-2 mit einer konstanten Wasserdampfquelle von 2 sec Dauer. In beiden Fällen ist die Gesamtmasse  $W$  gleich. In diesen und allen folgenden Beispielen wurde als Anfangsverteilung für die trockenen Partikeln, an denen der Wasserdampf heterogen kondensiert, eine log-Normalverteilung mit Medianwert  $r_g = 0,02 \mu\text{m}$ , Breite  $\sigma = 0,4$  (Gl 5 in [1]) und Partikelkonzentration  $C_0 = 5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$  gewählt. Diese Verteilung stammt aus einem TUNA-Experiment [2]; der Einfluß der Verteilungsparameter wurde bereits in [1] untersucht; wir beschränken uns hier auf die

### Untersuchung der Wasserdampfquellparameter.

In Abb. 4311-1 kondensiert infolge der angenommenen Anfangsübersättigung der Dampf sofort an allen Partikeln, deren Radius  $r$  größer ist als der kritische Radius  $r_i$ . Die Folge ist eine sehr rasche Abnahme des Wasserdampfgehaltes.

In Abb. 4311-2 liegt  $r_i$  zunächst bei zu großen Werten, so daß die Kondensation mit einer gewissen Verzögerung beginnt, dann aber ebenso rasch abläuft wie in Abb. 4311-1. Die luftgetragenen Tröpfchen sind größer, ihre Konzentration entsprechend geringer als im Fall mit Anfangsübersättigung. Das erklärt sich dadurch, daß mit Wasserdampfquelle die Übersättigung nicht sehr hohe Werte erreicht, sondern bereits an den großen Partikeln der Anfangsverteilung abgebaut wird.

In beiden Fällen bleibt die Schnittstelle der bimodalen Verteilung zwischen Tröpfchen und verbliebenen trockenen Partikeln über relativ lange Zeit erhalten. Die Tröpfchen sind bei den angenommenen Wasserdampfmengen groß genug und hinreichend monodispers, so daß Veränderungen in der Tröpfchenfraktion des Aerosols nur sehr langsam erfolgen. Daraus folgt, daß die Konzentration einer einmal entstandenen Tröpfchenfraktion durch Kondensation und Wiederverdampfung nur äußerst langsam verändert wird, d.h. auch die zurückgebliebene trockene Partikelfraktion ändert sich nicht durch Kondensationsprozesse.

Die Wechselwirkung zwischen Tröpfchen und trockenen Partikeln wird dann durch die aerosolphysikalischen Prozesse verursacht, wobei besonders die Koagulation sehr wirksam ist.

Aus diesen Ergebnissen kann man für den Aufbau des NAUA-Mod1 eine wichtige Konsequenz ziehen:

Es ist nur solange notwendig, die Kondensationsberechnung mit hoher Zeitauflösung zu betreiben, wie die Übersättigung einen gewissen Schwellwert überschreitet. Diese Schwelle liegt bei den bisherigen Rechnungen bei 0,05 % und hängt hauptsächlich von der Größenverteilung der trockenen Partikeln ab.

T °C	mit Quelle		mit Anfangs- übersättigung	
	$t_h$	$r_{c,min}$	$t_h$	$r_{c,min}$
	sec	µm	sec	µm
80	1.5	0,058	1.0	0.05
100	1.4	0.056	0.7	0.046
120	1.3	0.052	0.45	0.040
140	1.2	0.050	0.33	0.035

Tabelle 4311-1: Halbwertszeit  $t_h$  des Wasserdampfes und minimaler kritischer Radius  $r_{c,min}$  bei verschiedenen Temperaturen T.

$Q_w$ g/m <sup>3</sup> sec	mit Quelle		mit Anfangs- übersättigung	
	$t_h$	$r_{c,min}$	$t_h$	$r_{c,min}$
	sec	µm	sec	µm
25.0	0.16	0.040	0.04	0.009
15.0	0.36	0.043		
8.0	0.64	0.050		
4.5	1.4	0.056	0.7	0.046
3.0	2.9	0.064		
1.5			-	0.137

Tabelle 4311-2: Halbwertszeit  $t_h$  des Wasserdampfes und minimaler kritischer Radius  $r_{c,min}$  bei verschiedener Wasserdampftrate  $Q_w$

Das Gesamtmodell kann also die zeitraubenden Kondensationsberechnungen einen großen Teil der Zeit aussetzen und erst dann wiederaufnehmen, wenn sich am Wasserdampfsättigungsgrad etwas ändert. Dies hat einen weiteren Vorteil: das Kondensationsteilprogramm NAUCON ist rechentechnisch anders organisiert als das Hauptprogramm NAUA. Eine organisatorische Anpassung würde zu Lasten der Genauigkeit oder der Rechenzeit gehen. Da aber offensichtlich eine verminderte Anzahl von Aufrufen für NAUCON ausreicht, kann dieses in seiner jetzigen Form belassen und die Anpassung durch Interpolation durchgeführt werden.

Um diese Ergebnisse in einem größeren Bereich abzusichern, wurden Parameterechnungen mit verschiedenen Temperaturen und Wasserdampfquellraten durchgeführt.

Die wichtigsten Ergebnisse sind in den Tabellen 4311-1 und 4311-2 zusammengestellt. Dabei ist  $t_h$  die Zeit, in der 50 % des kondensierbaren Wasserdampfangebotes verbraucht sind (vergl. Abb. 4311-1 und 4311-2).

$r_{c,min}$  ist der minimale kritische Radius, der bei der Rechnung vorkommt, er bestimmt die Schnittstelle zwischen trockenen Partikeln und Tröpfchen.

Das Wasserdampfangebot in Tabelle 4311-1 entsprach bei jeder Temperatur 1,5 % der Sättigungsmenge. Dieser Dampf wurde einerseits durch eine 2 sec dauernde Quelle zugeführt (2. und 3. Spalte), zum anderen instantan zugegeben, um eine Anfangsübersättigung zu simulieren (4. und 5. Spalte). In den Fällen mit Quelle liegen die Werte von  $t_h$  und  $r_{c,min}$  dicht beieinander, mit Anfangsübersättigung streuen sie bei verschiedener Temperatur viel stärker.

Dieses Verhalten wird noch deutlicher, wenn man bei festgehaltener Temperatur die Quellstärke  $Q_w$  variiert. In der Tabelle 4311-2 sind die Ergebnisse aufgeführt. Zwar sind die Unterschiede in  $t_h$  jetzt deutlich,  $r_{c,min}$  ändert sich jedoch wieder nur wenig. Das liegt daran, daß die Kondensation immer erst dann merklich einsetzt, wenn die Anzahl der Partikeln mit Radien oberhalb des kritischen Radius groß genug ist. Insofern ist der ausschlaggebende Parameter für das Einsetzen der Kondensation die Partikelgrößenverteilung des festen Aerosols und nicht so sehr die Zustandsparameter der Gasphase.

Die Werte mit Anfangsübersättigung in Tabelle 4311-2 sind nur zum Vergleich berechnet, um die Unterschiede aufzuzeigen. Z.B. entsprechen die Werte in der ersten Zeile einer Anfangsübersättigung von 8 %, die in diesem Aerosolsystem nicht erreicht werden kann. Die maximale Übersättigung, die bei der Rechnung mit Quelle für die erste Zeile vorkommt, beträgt 1,7 %.

Wesentlich ist auch, daß  $t_h$  nur sehr wenig von der Temperatur T abhängt (Tabelle 4311-1). Damit ist seitens der Kondensation kein Argument gegeben, das der Durchführung der geplanten Experimente bei niedrigeren Temperaturen ( $< 100^\circ \text{C}$ ), d.h. unter leichter handhabbaren Versuchsbedingungen, entgegen stünde.

Zusammenfassend können folgende Punkte festgehalten werden:

- Durch die Einführung einer Wasserdampfquellfunktion anstatt der Übersättigungsfunktion wurde im Teilprogramm NAUCON dem zeitlichen Ablauf und den kausalen Zusammenhängen der Vorgänge im Containment nach einem Störfall besser Rechnung getragen.
- Die Kondensationsgeschwindigkeiten sind unter den betrachteten Bedingungen so hoch, daß das Aerosolsystem alle Änderungen des Wasserdampfgehaltes in weniger als zwei Sekunden ausgleicht.
- Eine organisatorische Angleichung von NAUCON an den NAUA-Code erscheint nicht notwendig, wodurch die hohe Genauigkeit der Kondensationsberechnung erhalten bleibt.

## 2. Koagulation, Sedimentation, Diffusion

Für den eigentlichen Abbau der partikelgebundenen Aktivität im Containment sind im wesentlichen die Prozesse Koagulation, Sedimentation und Diffusion verantwortlich [1]. Aufgrund der im Abschnitt 1 aufgeführten Rechnungen können diese Vorgänge als zeitlich getrennt von der Kondensation betrachtet werden, was zu dem schon geschilderten Vorgehen führte, zwei getrennte Rechenprogramme zu entwickeln. Aufbauend auf unseren Erfahrungen mit der Behandlung von Aerosolsystemen in geschlossenen Behältern /1/, /3/, /4/ wurde ein mathematisches Modell formuliert, das als Basis des Rechenprogramms NAUPAR dient.

Die benutzte Modellgleichung zur Beschreibung des zeitlichen Verhaltens einer gegebenen Partikelgrößenverteilung  $n(r)$  ist folgende Differentialgleichung:

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(r_e, t)}{\partial t} = & S(r_e, t) - (\alpha_D(r_e) + \alpha_S(r_e)) \cdot n(r_e, t) \\ & + \int_0^{r_e/\sqrt[3]{2}} K(\sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3}, r_e') \cdot n(\sqrt[3]{r_e^3 - r_e'^3}, t) \\ & \cdot n(r_e', t) \cdot \frac{r_e^2}{(r_e^3 - r_e'^3)^2/3} dr_e' \\ & - n(r_e, t) \int_0^\infty K(r_e, r_e') \cdot n(r_e', t) dr_e' \end{aligned} \quad (1)$$

mit

$r_e$  = massenäquivalenter Radius

$t$  = Zeit

$S(r_e, t)$  = Quellfunktion für Partikeln

$\alpha_D(r_e), \alpha_S(r_e)$  = Abscheidekoeffizienten für die Diffusion bzw. Sedimentation

$K(r_e, r_e')$  = Koagulationsfunktion für Teilchen der Größe  $r_e$  und  $r_e'$

Die numerische Lösung dieser Gleichung gestaltet sich für beliebige Partikelverteilungen wegen der großen Anzahl der zu lösenden Integrale recht schwierig. Eine der möglichen Lösungen ist im Rahmen des Projektes Schneller Brüter als Code PARADISEKO-III formuliert /4/. Gegenüber dieser und anderen Lösungen kann im LWR-Containment wegen der Kondensation keine vereinfachende Annahme bezüglich der Größenverteilung des Partikel-Tröpfchen-Gemisches gemacht werden. Vielmehr muß bei der Lösung der Gleichung (1) von folgenden Randbedingungen ausgegangen werden:

- $n(r, t)$  muß jede beliebige Form annehmen dürfen, ohne daß das numerische Verfahren an seine Grenzen stößt.
- Den extrem steilen Flanken der bimodalen Anfangsverteilung muß Rechnung getragen werden, was insbesondere bei der Interpolation

der verschiedenen Größen von Bedeutung ist.

- Die Partikeln haben nicht alle die gleiche Dichte, da sie entweder feste Teilchen sind oder Tröpfchen mit einem unterschiedlichen Gehalt an festen Partikeln.

Mit dem Rechenprogramm NAUPAR liegt eine Lösung der Gleichung (1) unter diesen Randbedingungen im Entwurf vor. Die prinzipiellen numerischen Probleme sind gelöst, wenn es auch noch eine Reihe von Schwierigkeiten gibt. So ist besonders die dritte der genannten Randbedingungen sehr schwierig zu berücksichtigen. Zur Zeit wird aufgrund des Größenunterschiedes zwischen den beiden in NAUCON gefundenen Fraktionen die Annahme gemacht, daß die festen Partikeln eine Dichte  $\rho_1$  haben und die Tröpfchen unabhängig von ihrem Partikelgehalt alle die Dichte  $\rho_2 = 1 \text{ g/cm}^3$ . Darüberhinaus werden Anstrengungen unternommen, einen sinnvollen Kompromiß zwischen gewünschter Rechengenauigkeit und der dazu erforderlichen Rechenzeit zu finden.

### 3. Bemerkungen zum CORRAL-Code

In der "Rasmussen-Studie" wird der Aktivitätsabbau in der Nach-Unfall-Atmosphäre des LWR-Containments mit dem Computercode CORRAL berechnet [57]. Dieser Code behandelt die gasförmigen Aktivitätsträger gemeinsam mit den partikelförmigen. Der zugrunde liegende Ansatz lautet

$$dC/dt = H \cdot C, \quad (2)$$

wobei sowohl C als auch H mehrfach indizierte Größen sind, entsprechend den verschiedenen Isotopen, den verschiedenen Arten der Freisetzung und den verschiedenen Abbaumechanismen. Ungeachtet dieser Vielfalt der Koeffizienten hat der Ansatz (2) drei entscheidende Schwachstellen.

- Zeitlich veränderliche Prozesse und Quellterme können nur durch separate Eingabe von Zeittabellen der Koeffizienten H berücksichtigt werden.
- Wirkungen einzelner Abbauprozesse aufeinander werden durch diesen Ansatz vollkommen unterdrückt.
- Einige Abbaumechanismen (z.B. Koagulation, Kondensation) sind mit diesem Ansatz nicht darstellbar.

Diese Vernachlässigungen sind vertretbar, solange es sich bei den abgebauten Aktivitätsträgern um Gase handelt (Edelgase, Jod usw.), die unter sich und miteinander nicht wechselwirken. Für die partikelförmige Komponente der Nach-Unfall-Atmosphäre ist ein so extrem vereinfachter Ansatz jedoch unzureichend. Daran wird auch nichts dadurch geändert, daß für die Abbaukoeffizienten in CORRAL Daten aus Simulationsexperimenten verwendet werden. Aus unseren Erfahrungen mit dem PARDISEKO-Code folgt, daß experimentell ermittelte Parameter nur dann auf anders geartete Fälle übertragen werden können, wenn das Rechenmodell wesentlich stärker aus den physikalischen Einzelprozessen abgeleitet ist als der CORRAL-Code.

Ohne auf die Einzelheiten gesondert einzugehen [6], sei hier das Ergebnis einer Vergleichsrechnung mitgeteilt. Ausgehend von der in Abschnitt 1. beschriebenen Anfangspartikelgrößenverteilung wurde eine vorläufige Berechnung des Abbaus der Massenkonzentration des Aerosols im Containment mit Hilfe der bereits vorhandenen Rechenmodelle NAUCON und PARDISEKO durchgeführt (Kurve I in Abb. 4311-3). Das gleiche System wurde mit einem CORRAL-ähnlichen Ansatz berechnet; das Ergebnis zeigt Kurve II.

Wesentlich bei diesem Vergleich ist nicht die absolute Massenskala, die von Fall zu Fall sehr differiert, sondern nur der Unterschied zwischen beiden Ergebnissen. Mangels genügend genauer Daten kann auch für die Rechnungen zu Kurve I nur der schraffierte Bereich angegeben werden; eine Einengung wird erst mit dem vollständigen NAUA-Code möglich sein. Folgende Punkte lassen sich jedoch bereits jetzt festhalten:

- Die Berechnung des Aktivitätsabbaus mit dem CORRAL-Code ist sicher konservativ. Der benutzte Ansatz zusammen mit der Übertragung von Ergebnissen aus Simulationsexperimenten auf das Containmentmodell führt zu Unterschätzungen des Abbaus der partikelförmigen Komponente der luftgetragenen Aktivität.
- Bezüglich des Partikelabbaus ist vom NAUA-Code eine zuverlässigere Berechnung zu erwarten, da er die relevanten Aerosolprozesse mit dem physikalisch richtigen Ansatz beschreibt.

Literatur

[1] Projekt Nukleare Sicherheit, 2. Halbjahresbericht 1974, KFK 2130

[2] H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild  
Nukleare Schadstoffe im geschlossenen System  
KFK 1989, Oktober 1974

[3] J. P. Hosemann, H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild  
Nukleare Schadstoffe in der Nachunfallatmosphäre eines Leicht-  
wasser-Reaktor (LWR)-Containments (Übersicht und Stand der  
Kenntnis)  
KFK 1800, Juni 1973

[4] H. Jordan, Chr. Sack  
PARADISEKO III A Computer Code for Determining the Behaviour of  
Contained Nuclear Aerosols.  
KFK 2151, Mai 1975

[5] U.S.A.E.C. Reactor Safety Study  
WASH - 1400, Appendix VII, August 1974

[6] G. Haury, H. Jordan, W. Schikarski, W. Schöck  
Bemerkungen zur Behandlung des Aktivitätsabbaus in der LWR-Nach-  
unfallatmosphäre durch Rasumssen  
Interne Notiz RPU-110, April 1975

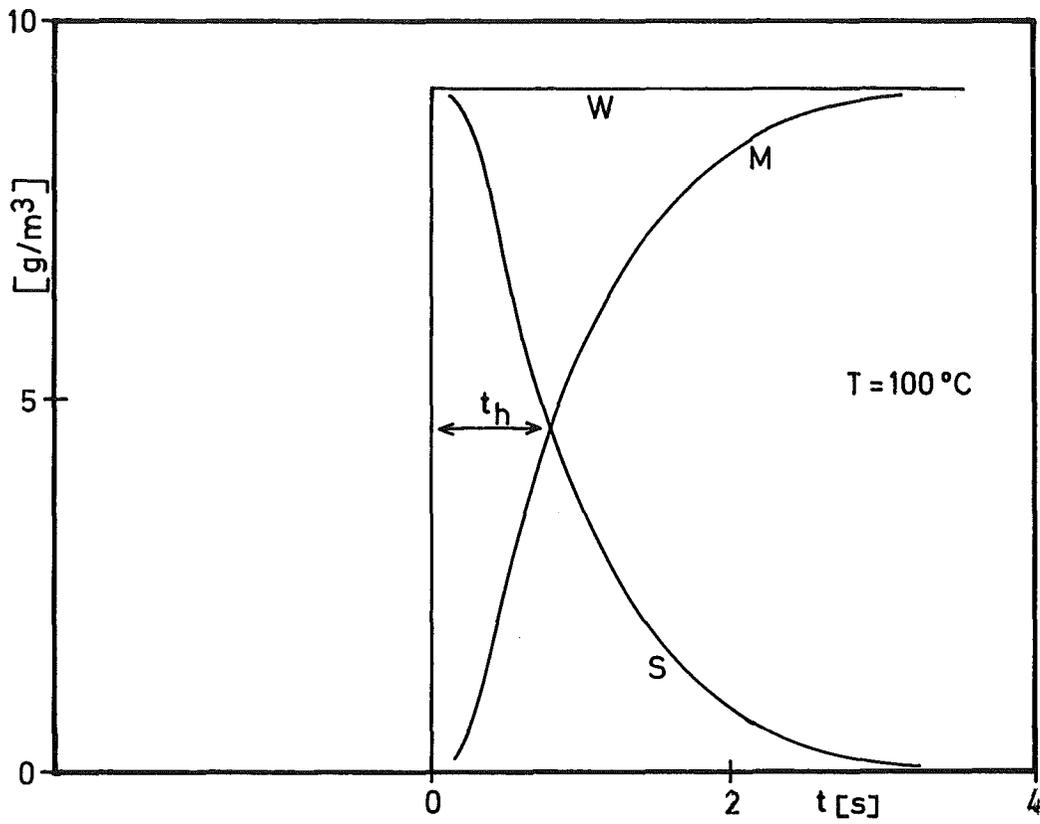


Abb. 4311-1 Wasserdampfbilanz mit Anfangsübersättigung

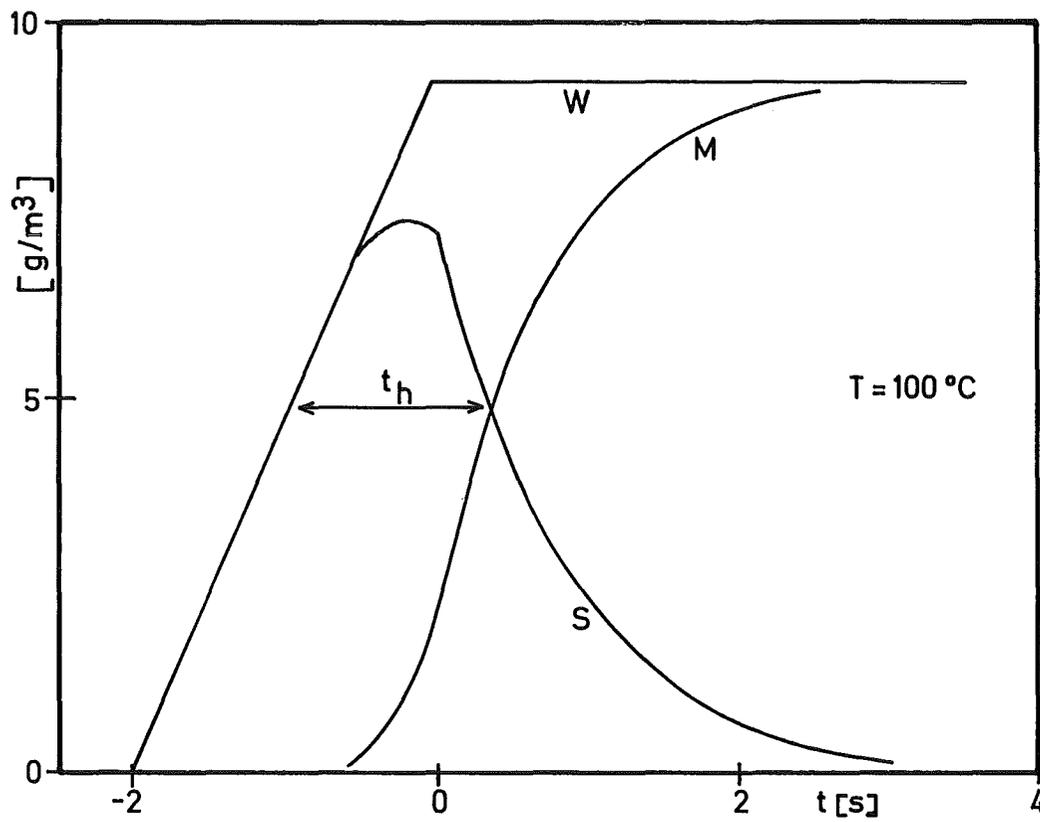


Abb. 4311-2 Wasserdampfbilanz mit Quelle

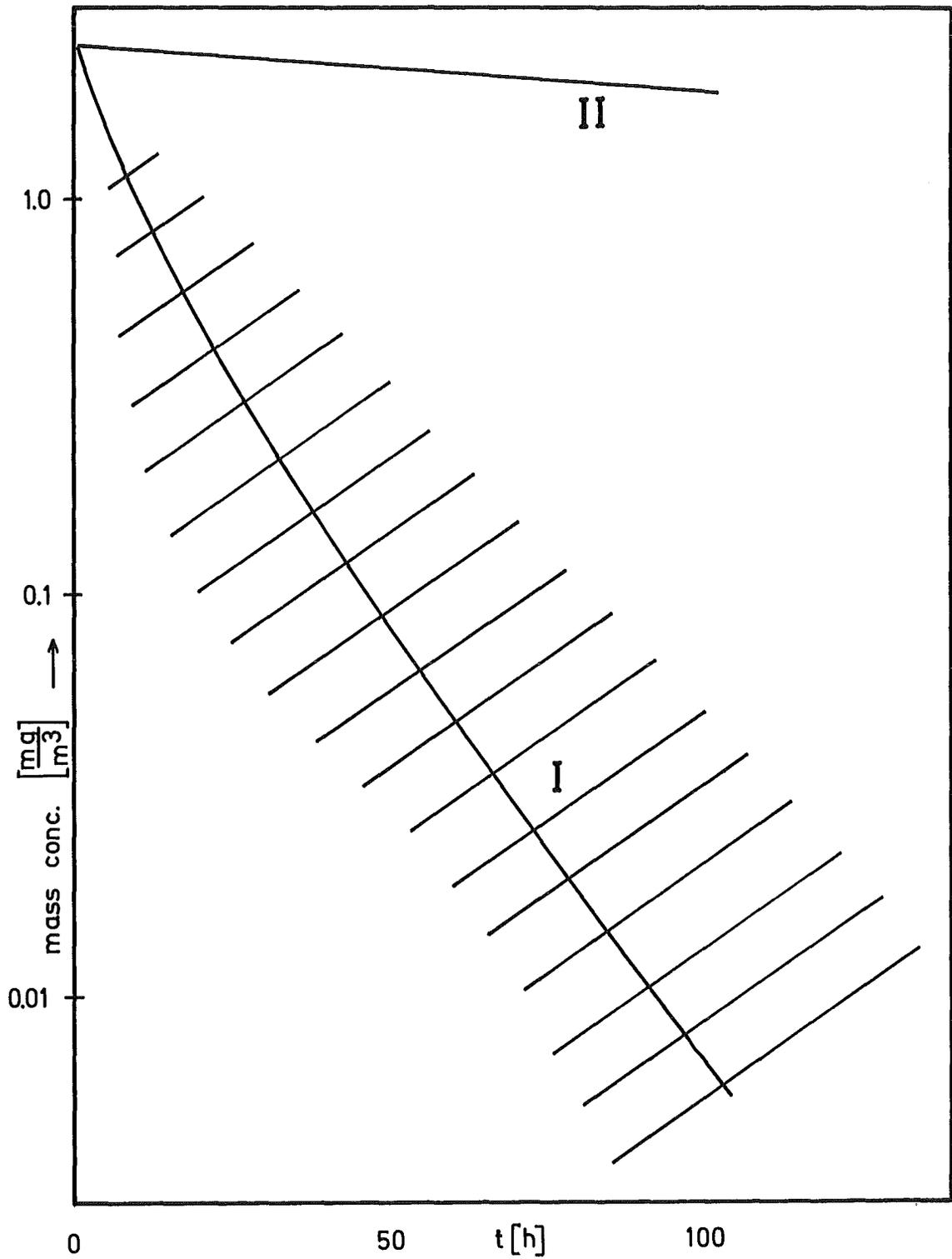


Abb. 4311-3: Beispiel für die Abnahme der Massenkonzentration eines Aerosols im Containment mit einem Ansatz nach  
I. NAUA  
II. CORRAL  
(ohne Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls)

4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur  
Ausbreitung radioaktiver Gase

(H. Dilger, W. Hübschmann, K. Nester, D. Papadopoulos,  
H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

Die im folgenden beschriebenen Einzeluntersuchungen dienen im Rahmen des übergeordneten Zieles der Entwicklung von Modellen und Anlagen zur Berechnung der Kurzzeitdosen nach einem angenommenen Störfall, der Überprüfung der modellmäßig errechneten Dosierwerte mit Feldmessungen (Abschnitt 1, 2 und 3), der Entwicklung von Kriterien für die Erfassung der herrschenden Ausbreitungsparameter und -kategorien (Abschn. 5 und 6), der statistischen Analyse gemessener meteorologischer Daten im Hinblick auf die Vorhersage der atmosphärischen Ausbreitung bei nuklearen Störfällen (Abschn. 3) und dem Entwurf eines Meßstellennetzes rund um ein Kernkraftwerk zur Messung der Gammadosis bei Störfällen (Abschn. 7).

1. Ausbreitungsversuche

(H. Schüttelkopf, P. Thomas)

Im Berichtszeitraum wurden 3 Ausbreitungsversuche mit einer Emissionshöhe von 60 m durchgeführt. Tracer waren  $\text{CF}_2\text{Br}_2$  und  $\text{CFC1}_3$ . Bei den zwei letzten Versuchen wurden beide Tracer simultan eingesetzt. Die für beide Tracer gemessenen Konzentrationen stimmen gut überein. Es können damit in Zukunft zwei Tracer simultan in verschiedenen Höhen emittiert werden.

Um den großen Personalbedarf für die Versuchsdurchführung durch eine automatische Probenahmetechnik zu reduzieren, wurden Prototypen neuer Proberohre, magnetischer Ventile und elektronischer Leitgeräte entwickelt und geprüft. Die Leitgeräte, elektronische Uhren, öffnen nach einer vorgewählten Zeit die Proberohre nacheinander jeweils 30 min lang. Alle Komponenten sind bestellt und sollen bis Ende 1975 eingesetzt werden. Dann können bis zu 80 Sammelstationen mit jeweils 4 Proberohren aufgebaut werden.

Zur Rationalisierung der meßtechnischen Auswertung der vielen pro Versuch anfallenden Proben wurde der Gaschromatograph mit einem automatischen Probeinjektor und einem Peak-Integrator ausgerüstet. Diese gekoppelten Geräte sind bereits erfolgreich im Einsatz. Der zur Aufbereitung der Rohdaten dienende Tischrechner arbeitet noch im off-line Betrieb. Ein Interface zur Kopplung des Tischrechners an den Peak-Integrator ist bestellt.

Bei der Ermittlung der Ausbreitungsparameter aus den Experimenten wurden Modelle miteinander verglichen, die Reflexion und Totalabsorption am Boden berücksichtigen. Eine Totalabsorption kann allerdings für tritiierten Wasserdampf ausgeschlossen werden.

## 2. Messung der Gammadosisleistung der FR-2-Abluftfahne (D. Papadopoulos)

Wie geplant wurden die Messungen der Ar-41-Abluftfahne aus dem FR-2-Kamin in der Umgebung des KFZK bei stabiler Wetterlage fortgesetzt. Als Meßgerät diente das Szintillations-Dosimeter H-7201 der Fa. Ing. Eberhard Halle, VDI. Die Windmeßwerte wurden aus der meteorologischen Meßwarte des KFZK per Funk übertragen, um möglichst in der Nähe der Abluftfahne messen zu können. Die alle 4 sec gemessenen Momentanwerte der Vektorfahnen in 40 und 100 m Höhe wurden während der Meßfahrt auf Lochstreifen für eine genauere Auswertung der Meßergebnisse gespeichert.

Gemessen wurde am 13.11.1974 von 17<sup>00</sup> - 23<sup>00</sup> Uhr. Während der Messungen herrschte die Stabilitätskategorie F (nach Pasquill), die mittlere Windgeschwindigkeit betrug 4 m/s bzw. 8 m/s in der Höhe 40 m bzw. 100 m. Die Abluftfahne strömte zunächst über 25-30 m hohen Wald (Meßzone I, Entfernung vom Kamin  $x \sim 1,1$  km) dann über freies Feld (Zone II,  $x$  ab ca. 1,7 bis 3 km).

Für den Vergleich der Messungen mit den Berechnungen wurden die gemessenen Dosisleistungen als Funktion von  $Y$  aufgetragen (Abbn. 4312-1 und 4312-2).  $Y_i$  ist die Entfernung der Meßstelle  $i$  von der Projektion der Achse der Abluftfahne auf den Boden. Die bei Annahme einer Linienquelle in verschiedenen Höhen berechneten Dosisleistungen sind als ausgezogene Linien in dieselben Abbildungen eingetragen. Für die Berechnung wurde eine Emissionsstärke von 16 Ci/h Ar-41 und eine mittlere Windgeschwindigkeit von 6 m/s angenommen.

Der Vergleich der Messungen mit den Berechnungen zeigt folgendes. Bei der stabilen Wetterlage F läßt sich die Gammadosisleistung aus der Abluftfahne des FR-2 genauer und in größeren Entfernungen als bei Wetterlagen D-C, C und B bestimmen (s.a. /1/). Die Bodenrauigkeit beeinflußt die auf dem Boden gemessene Dosisleistung. So wurden an den weiter entfernten Meßstellen (Zone II) höhere Dosisleistungswerte als in der Zone I gemessen. Bei einem seitlichen Abstand  $Y \approx 100$  m ist die über dem Nullpegel gemessene Dosisleistung nur um den Faktor 2 kleiner als unter der Ausbreitungsachse. Das rechtfertigt die Annahme einer Linienquelle. Eine gute Übereinstimmung ergab sich für die Zone I bzw. II bei Annahme einer Linienquelle in 100 bzw. 70 m Höhe. Der Höhenunterschied der Linienquellen für die Zonen I und II entspricht etwa der Höhe der Bäume des Waldes, der nur in Zone I vorhanden war.

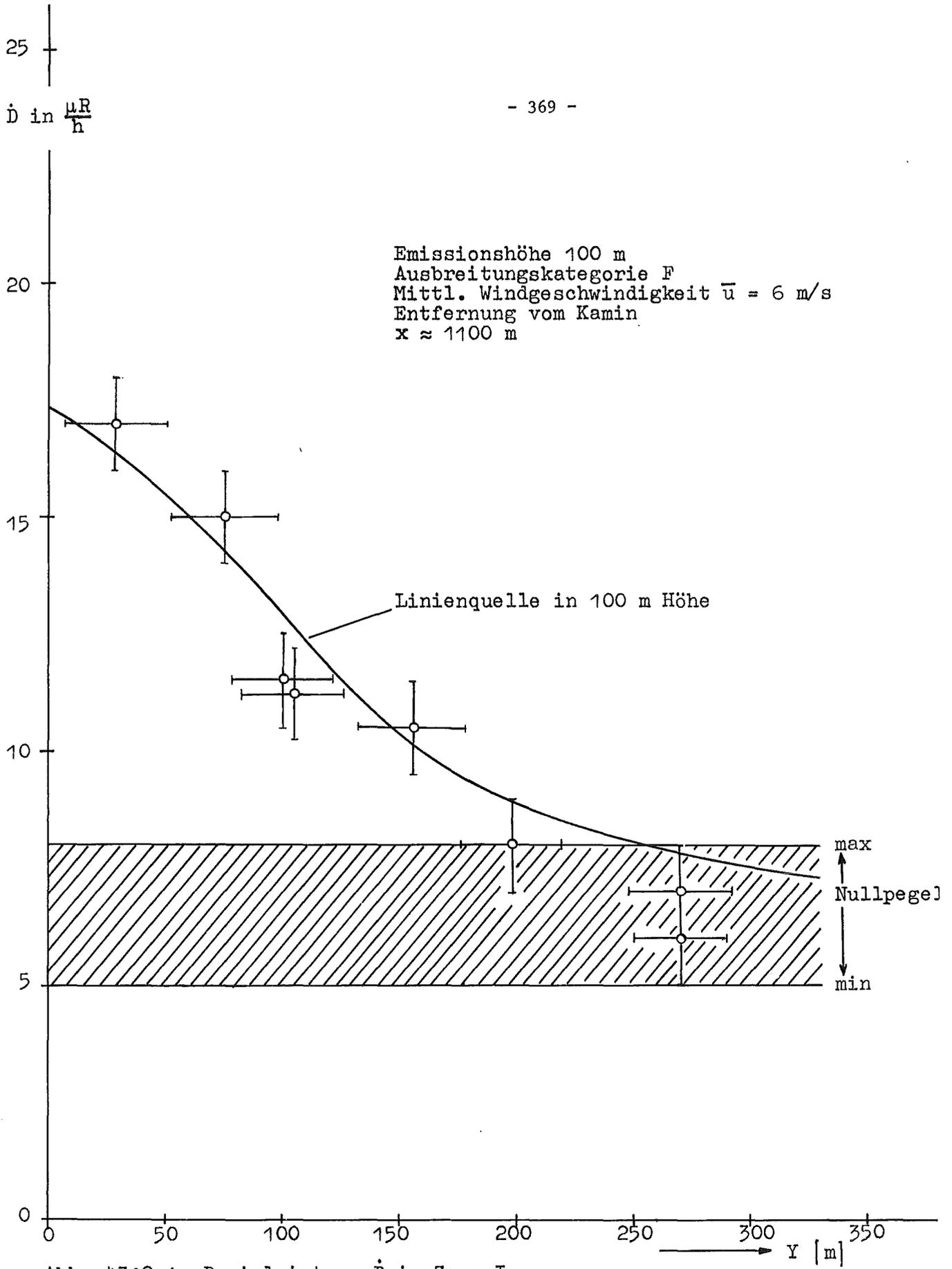


Abb. 4312-1 Dosisleistung  $\dot{D}$  in Zone I

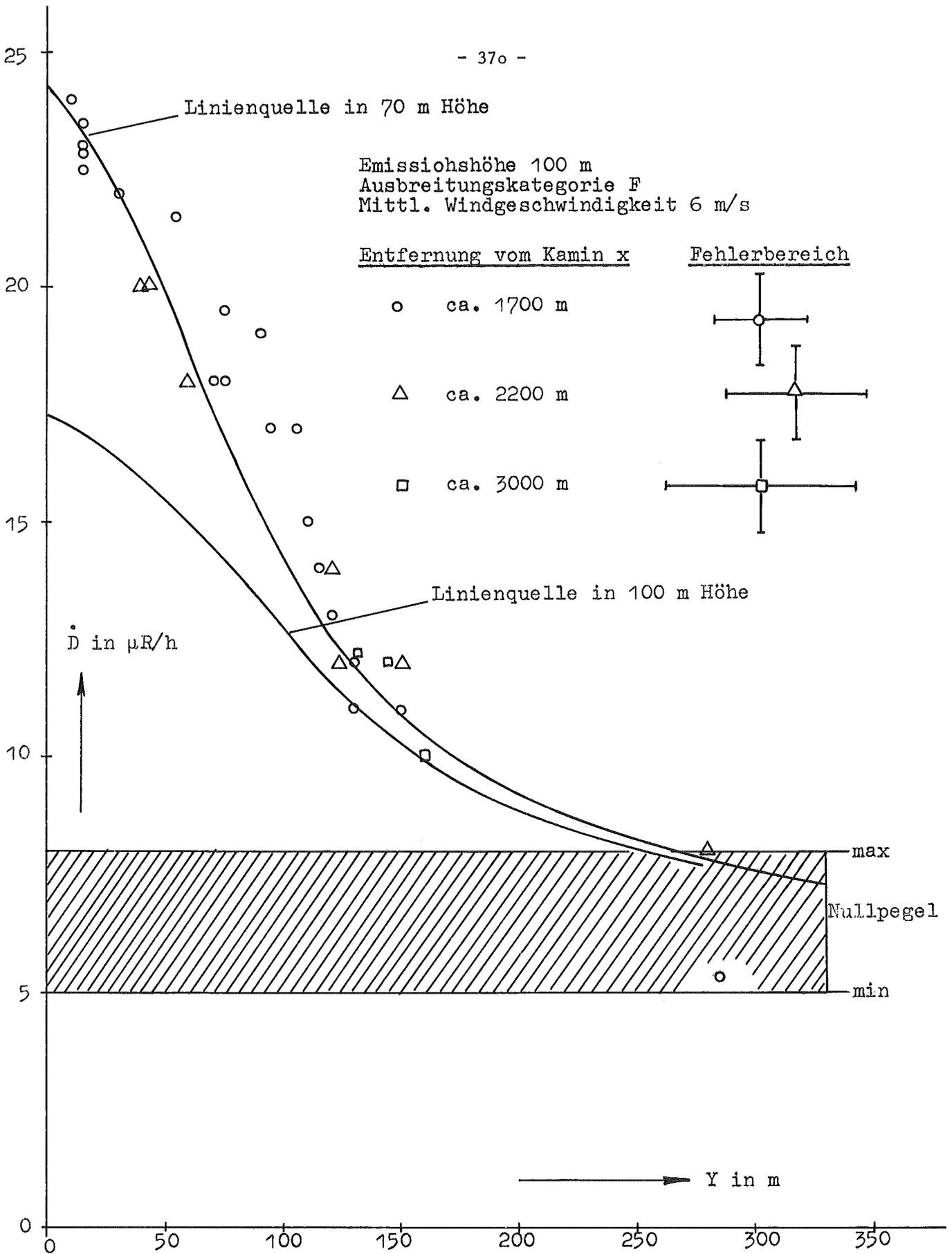


Abb. 4312-2 Dosisleistung  $\dot{D}$  in Zone II

### 3. Vorarbeiten für evtl. Untersuchungen zur Ausbreitung von Schadstoffen im Mesoscale-Bereich (10 - 100 km)

(S. Vogt)

Die bisher von ASS durchgeführten experimentellen Untersuchungen zur Ausbreitung von Schadstoffen erstrecken sich auf den Nahbereich, d.h. die Quelldistanz betrug maximal 4 km. Mit den seitherigen Methoden - automatische Sammelstellen eingeschlossen - ist es nicht möglich, den Bereich der Ausbreitungsexperimente über Entfernungen größer als 10 km auszudehnen. Im Mesoscale-Bereich besteht jedoch die Möglichkeit, die Ausbreitungsverhältnisse mit Hilfe von freifliegenden Ballonen zu untersuchen.

Folgende Informationen bezüglich der Ausbreitung von Schadstoffen erhält man aus den Bahndaten der Ballonflüge:

- 1) Den Strömungsverlauf bei ausgeprägter Orographie, z. B. in einem Tal;
- 2) Trajektorienkarten, die unter Umständen aus einer Anzahl von Ballonflügen bei ähnlicher Wetterlage gezeichnet werden können;
- 3) Quantitative Informationen bezüglich des horizontalen Ausbreitungsparameters.

Das Konzept sieht wie folgt aus: Heliumgefüllte Ballone fliegen in einer wählbaren Höhe über Grund mit dem Wind.

Die Ballone besitzen eine tetraederförmige Gestalt, man nennt sie deshalb Tetroons. Das Volumen der Ballone beträgt  $1 \text{ m}^3$  und ist dank des Materials, auch bei veränderlichem Außendruck, nahezu konstant. Daher fliegt ein Ballon auf einer Fläche gleicher Dichte.

Der fliegende Ballon wird mit einem 3-cm-Radar verfolgt. Die Bahndaten werden in digitaler Form on-line auf Magnetbandkassette oder Lochstreifen gespeichert. Wenn der Ballon sich weit vom Radargerät entfernt befindet, wird der Höhenwinkel sehr klein und beim Verfolgen treten durch am Boden reflektierte Radarechos Schwierigkeiten auf. Ein am Ballon befestigtes Empfänger- bzw. Sendergerät (transponder) umgeht diese Schwierigkeiten.

Möglichkeiten und Kosten dieses in den USA bereits häufig angewendeten Verfahrens wurden zusammengestellt und diskutiert. Das Verfahren erscheint geeignet, im Oberrheintal wesentliche Erkenntnisse über die Ausbreitung radioaktiver Stoffe im Meso-Scale zu gewinnen.

#### 4. Zeitliche Ausbreitungsentwicklung

(S. Vogt)

Bei störfallbedingten Emissionen über mehrere Stunden ist die Kenntnis der Lage und der Höhe des Konzentrationsmaximums von großer Wichtigkeit für eventuelle Maßnahmen zum Schutze der Bevölkerung.

Üblicherweise wird zur Vorhersage dieser Größen angenommen, daß die zu Emissionsbeginn herrschende Wetterbedingung über den gesamten Emissionszeitraum andauert. Damit ist die zu erwartende höchste Konzentration und die Quelldistanz des Maximums durch die zu Emissionsbeginn herrschende Ausbreitungskategorie und die Windgeschwindigkeit festgelegt. Der Betrag der Konzentration ergibt sich als das zeitliche Konzentrationsintegral über den gesamten Emissionszeitraum.

Da sich aber die Wetterbedingungen innerhalb mehrerer Stunden gewöhnlich ändern, ist es nicht möglich, mit diesem stationären Modell den Ort und den Betrag der sich tatsächlich ergebenden höchsten Belastung ausreichend genau zu bestimmen.

Deshalb wird bei ASS/TM ein Modell entwickelt, das es gestattet, die mit dem stationären Modell errechneten Größen, wie Konzentrationsintegral und Quelldistanz des Maximums, mithilfe von Korrekturfaktoren zu verbessern. Diese Faktoren besitzen probabilistischen Charakter; sie beruhen auf einer mehrjährigen Wetterstatistik.

Ziel dieser Untersuchung ist es, Aussagen zu machen über wahrscheinliche Lage, Entfernung und Höhe der nach einer störfallbedingten Emission zu erwartenden Belastung. Bekannt sein müssen hierzu nur die zu Emissionsbeginn herrschende Windrichtung, Windgeschwindigkeit und Ausbreitungskategorie sowie die voraussichtliche Emissionsdauer und Quellstärke. Als Beispiel für einen solchen Korrekturfaktor wird das Verhältnis  $X_t/X_0$  dargestellt.

$X_0$ : Quelldistanz des Konzentrationsmaximums in Bodennähe bei den zu Emissionsbeginn herrschenden Wetterbedingungen.

$X_t$ : Quelldistanz des Konzentrationsmaximums, das sich durch den Wetterablauf tatsächlich während des Emissionszeitraumes ergibt.

Ist  $X_t/X_0 = 1$ , dann ändert sich die Quelldistanz nicht;

ist  $X_t/X_0 > 1$ , dann vergrößert sich die Quelldistanz;

ist  $X_t/X_0 < 1$ , dann verkleinert sich die Quelldistanz.

In Abb. 4312-3 ist der tägliche Gang des Verhältnisses  $X_t/X_0$  dargestellt. Hierbei wurde angenommen, daß während einer sechsstündigen Emission die Quellstärke konstant bleibt. Scharparameter ist die zu Emissionsbeginn herrschende Ausbreitungskategorie.

Herrschte z.B. zu Emissionsbeginn am späten Nachmittag eine labile Kategorie (A-C), so vergrößert sich die Quelldistanz etwa um das Doppelte, für die Kategorie A sogar etwa um das Dreifache. Da die labilen Kategorien nur am Tage auftreten, beginnen die Kurven für die Kategorien A-C morgens um 9<sup>00</sup> Uhr und enden um 15<sup>00</sup> Uhr. Die stabilen Kategorien E und F treten am Tage selten auf, deshalb sind die Kurven hierfür in dieser Zeit gestrichelt eingezeichnet.

Für einen festen Emissionsbeginn (z.B. 5h) können diese mittleren Aussagen über  $X_t/X_0$  weiter qualifiziert werden. Da die Lage der Konzentrationsmaxima durch die Ausbreitungskategorien bestimmt werden, sind in Tab. 4312-1 nur die Kategorien aufgetragen.

Herrscht morgens um 5<sup>00</sup> Uhr die Kategorie D (linke Spalte oben) so tritt in 85,5 % der Fälle das tatsächliche Konzentrationsmaximum wieder bei Kategorie D auf, d.h. die Quelldistanz bleibt erhalten.

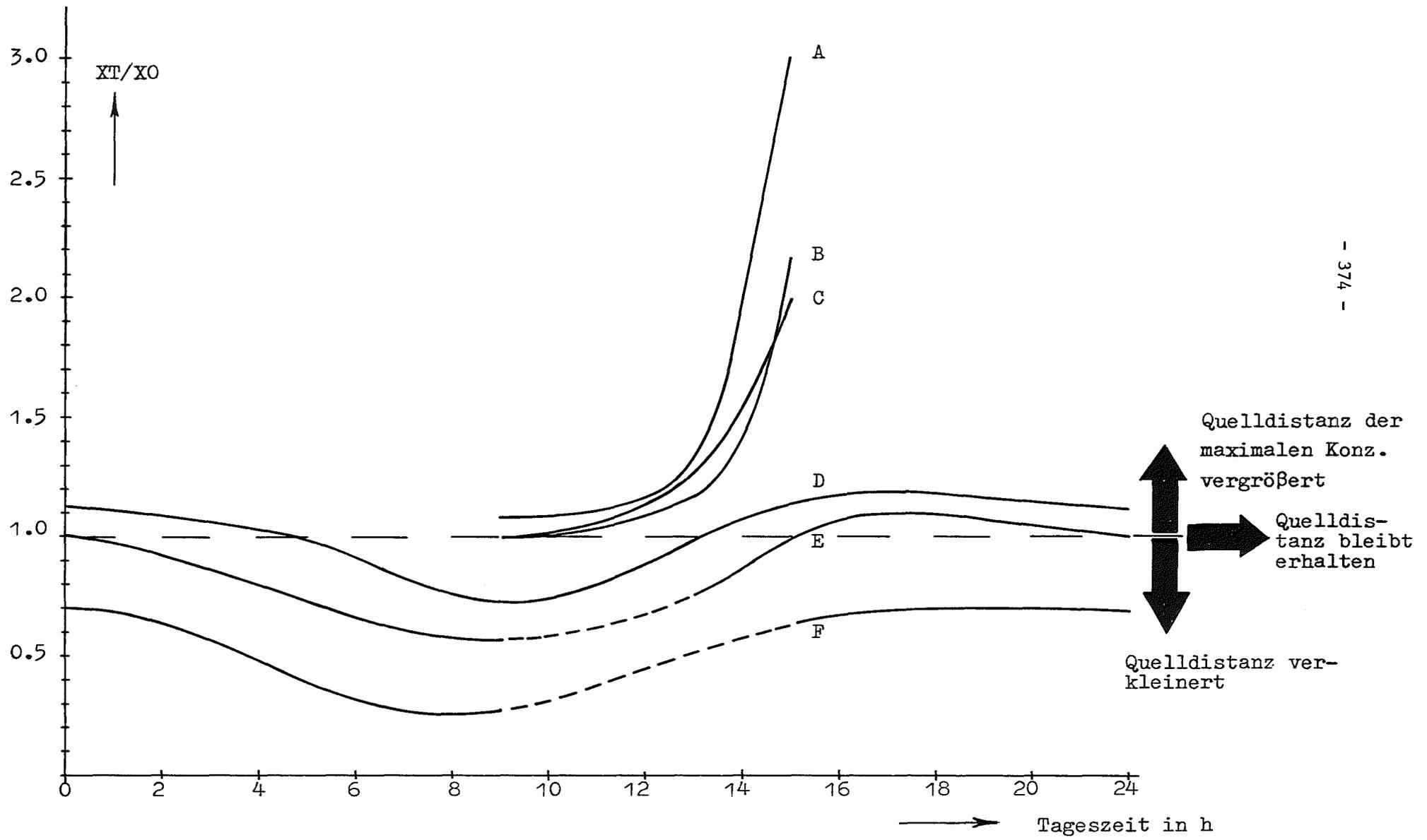


Abb. 4312-3 Täglicher Gang  $X_t/X_0$  bei einer 6-Std.-Emission und konstanter Quellstärke (Kaminhöhe 60 m)

Kategorie zu Emissionsbeginn	Stabilitätskategorie, welche das Konzentrationsmaximum bestimmt						Mittel von $X_t/X_0$
	A	B	C	D	E	F	
A	-	-	-	-	-	-	
B	-	-	-	-	-	-	
C	-	-	-	-	-	-	
D	2.1	2.8	3.6	85.5	5.6	0.4	1,00
E	3.0	4.2	9.0	52.7	26.9	4.2	0,72
F	5.2	9.0	14.8	37.0	14.5	19.5	0,39

$X_t > X_0$   
↑

Emissionsbeginn 5<sup>00</sup> Uhr

$X_t < X_0$  ←

$X_t = X_0$

Kategorie zu Emissionsbeginn	Stabilitätskategorie, welche das Konzentrationsmaximum bestimmt						Mittel von $X_t/X_0$
	A	B	C	D	E	F	
A	64.5	29.1	3.2	3.2			1,33
B	6.6	59.1	29.6	4.8			1,19
C	0.4	5.4	68.7	25.5			1,27
D	-	1.0	4.2	91.3	3.5		0,99
E				59.0	41.0		0,77
F	-	-	-	-	-	-	

$X_t > X_0$   
↑

Emissionsbeginn 13<sup>00</sup> Uhr

$X_t < X_0$  ←

$X_t = X_0$

Tab. 4312-1 Häufigkeit (in %) der das Konzentrationsmaximum bestimmenden Kategorien, abhängig von der zu Emissionsbeginn herrschenden Kategorie

Emissionsdauer 6 h  
 Quellstärke konstant  
 Kaminhöhe 60 m

In 5,6 % der Fälle tritt das Maximum bei Kategorie E auf. Die Quelldistanz des Konzentrationsmaximums vergrößert sich in diesen Fällen auf das 1,6-fache der zu Emissionsbeginn herrschenden Entfernung.

Im unteren Teil der Tab.4312-1 können die entsprechenden Häufigkeiten für einen Emissionsbeginn um 13<sup>00</sup> Uhr entnommen werden.

## 5. Abschätzung des Einflusses der Rauigkeit auf die Sigma- parameter

(K. Nester)

Bei Ausbreitungsrechnungen verwendet man allgemein die Gaußverteilung zur Beschreibung der Konzentration in der Atmosphäre. Diese Verteilung wird durch die Sigmaparameter  $\sigma_y$  und  $\sigma_z$  bestimmt, die von dem Turbulenzzustand der Atmosphäre abhängen. Es ist üblich, diesen Zustand durch Kategorien zu beschreiben, die aufgrund meteorologischer Größen festgelegt werden. Diese Definitionen sind meist so gewählt, daß die Rauigkeit des Untergrundes darin kaum eingeht. Da jedoch die Rauigkeit die Turbulenz in der Atmosphäre wesentlich beeinflusst, muß die Rauigkeit zusätzlich berücksichtigt werden.

Aufgrund theoretischer Überlegungen, die auf der Annahme basieren, daß der Turbulenzzustand der Atmosphäre für Ausbreitungsbetrachtungen durch die vertikale Windrichtungsstreuung  $\sigma_\varphi$  beschrieben werden kann, wurde der Einfluß der Rauigkeit abgeschätzt und ein Verfahren zu dessen Berücksichtigung entwickelt. Dieses Verfahren geht von den Pasquill-Gifford'schen Kurven der  $\sigma$ -Parameter für die Kategorien A bis F aus. Diese Kurven gelten für eine geringe Rauigkeit. Größere Rauigkeiten lassen sich durch eine Zuordnungsänderung zwischen den meteorologisch bestimmten Kategorien und den  $\sigma$ -Kurven in erster Näherung berücksichtigen. Zur Festlegung der Rauigkeit wird die in der Meteorologie übliche Rauigkeitslänge  $z_0$  verwendet, deren Abhängigkeit von der Art der Topographie z.B. aus /2/ entnommen werden kann.

In der nachfolgenden Tabelle sind die Zuordnungsänderungen für vier verschiedene Rauigkeitsstufen angegeben. Sie sollten nur bis maximal 100 m Quellhöhe angewendet werden.

Tab.4312-2 Zuordnung der  $\sigma$ -Kurven nach Pasquill/Gifford zur Diffusionskategorie

rauhigkeitsunabhängig bestimmte Diffusionskategorie nach Pasquill	zu verwendende $\sigma$ -Kurven nach Pasquill/Gifford			
	Rauhigkeitsstufe			
	I	II	III	IV
A	A	A	A*	A*
B	B	A/B	A	A*/A
C	C	B	A/B	A
$D_T$ (am Tage)	D	C	B	A/B
$D_N$ (nachts)	D/E	D	C	B
E	E	E	D/E	D
F	F	F	F	E/F

- I  $z_0 < 0,03$  m (niedriges Gras)
- II  $0,03 \leq z_0 < 0,3$  m (Büsche, bestellte Felder)
- III  $0,3 \leq z_0 < 1,5$  m (niedriger Wald)
- IV  $z_0 > 1,5$  m (hoher Wald, Stadt)

Die A\*-Kurve wurde aufgrund der  $\sigma_p$ -Werte extrapoliert.

A/B bedeutet z.B., daß die Kurve zwischen A und B zu verwenden ist.

Die Tabelle ist folgendermaßen zu interpretieren:

Hat man z.B. aufgrund weitgehend rauhigkeitsunabhängiger Größen die Kategorie C bestimmt und der Untergrund entspricht einer Rauhigkeit der Stufe II, geht man von C in der linken Spalte der Tabelle nach rechts bis zur Stufe II und liest die Kategorie B ab. Dies bedeutet, daß für Ausbreitungsrechnungen in diesem Fall nicht die  $\sigma$ -Kurve der Kategorie C, sondern diejenige der Kategorie B aus der  $\sigma$ -Kurvenschar nach Pasquill-Gifford zu verwenden ist.

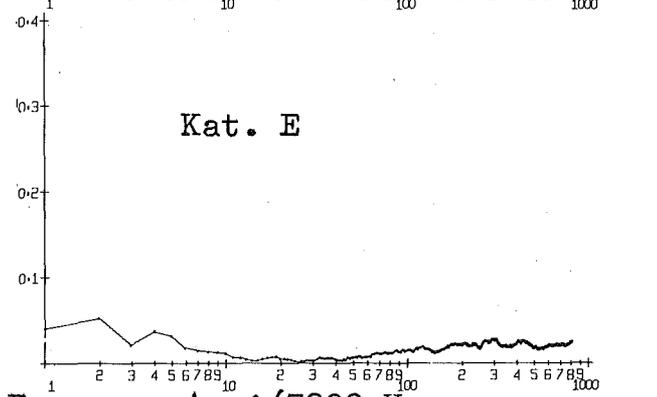
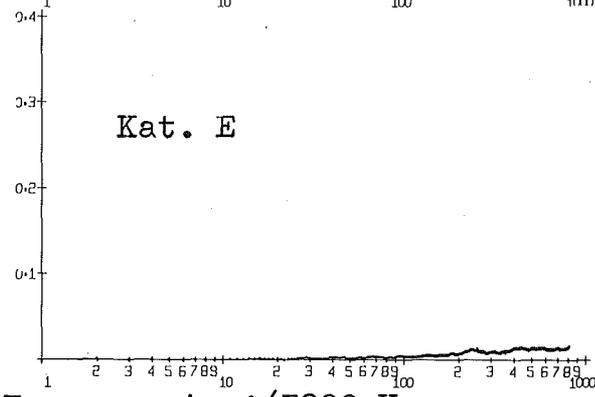
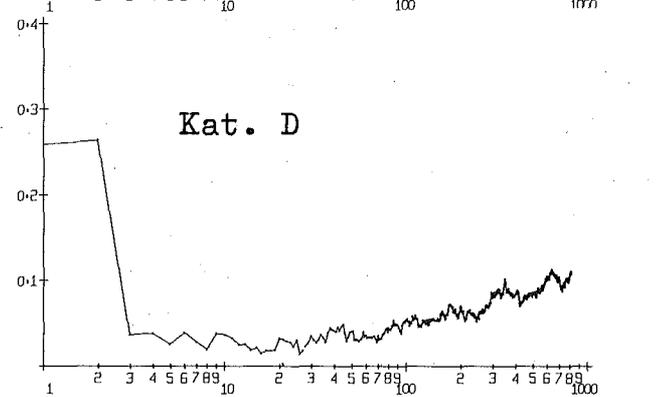
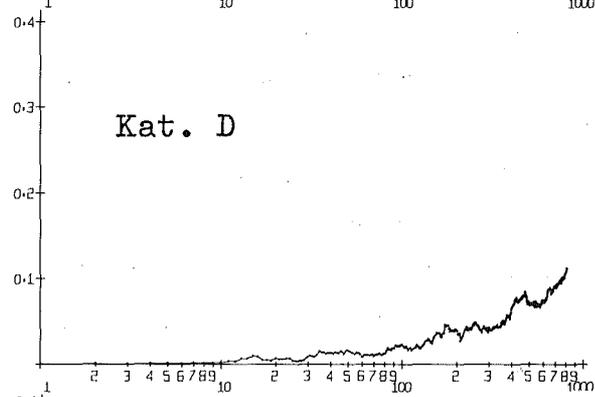
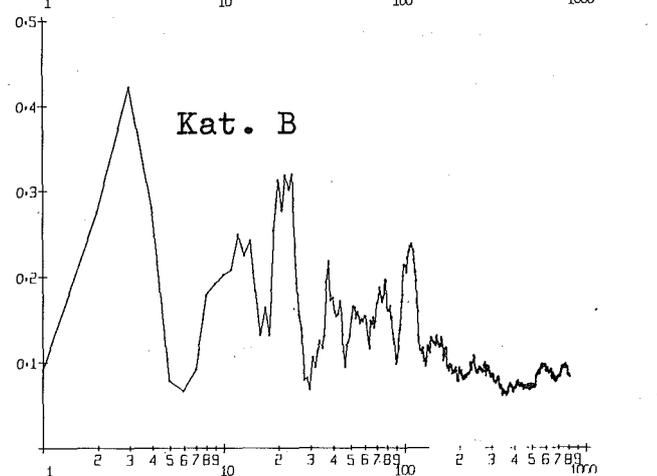
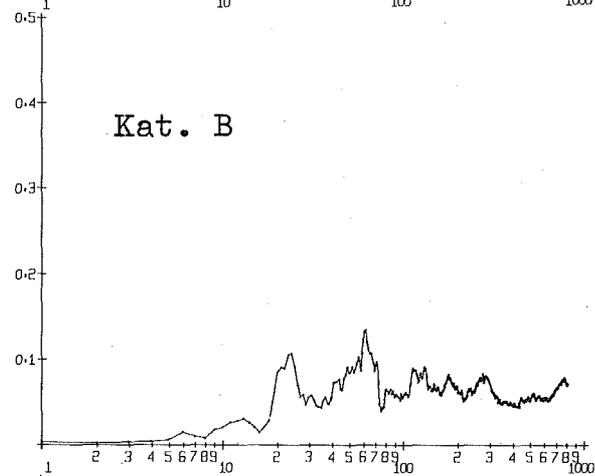
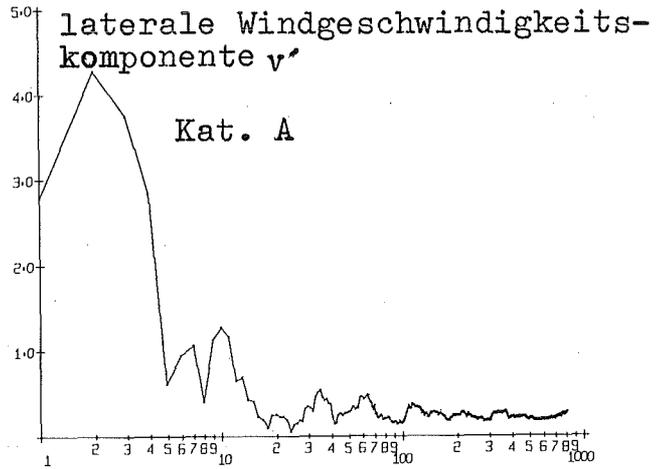
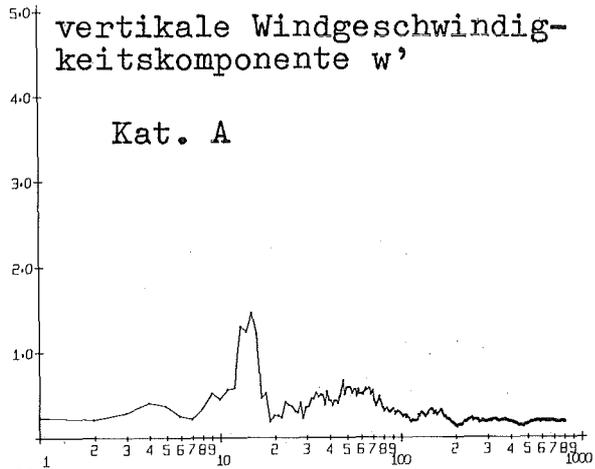
## 6. Berechnung von Windspektren

(H. Dilger)

Der Berechnung von Windspektren liegen die Messungen des Windvektors mit Hilfe der Vektorfahnen in 40 und 100 m Höhe am meteorologischen Meßmast zugrunde. Es wurden insgesamt 18 2-Stundenperioden bei verschiedenen Ausbreitungskategorien ausgewertet. Alle 4 s wurden der Betrag des Windvektors, der Azimuth- und der Inklinationwinkel registriert. Aus diesen Meßgrößen wurden die turbulenten Zusatzbewegungen in longitudinaler ( $u'$ ), lateraler ( $v'$ ) und vertikaler Richtung ( $w'$ ) gewonnen. Durch Fouriertransformation wurde die Energiedichtefunktion der atmosphärischen Turbulenz in Abhängigkeit von der Frequenz berechnet.

Die Abb. 4312-4 zeigt auf der linken Seite das Spektrum von  $w'$  beispielhaft für 4 Versuche mit verschiedenen Ausbreitungskategorien. Die Abszisse ist logarithmisch geteilt; als Ordinate ist das Produkt der spektralen Energiedichte und der Frequenz, normiert mit dem Quadrat der mittleren Windgeschwindigkeit  $\bar{u}^2$ , aufgetragen. Bei Kategorie E und D steigen die Kurven kontinuierlich an und erreichen bei der oberen Grenzfrequenz  $\nu \sim 1/9$  Hz ihren höchsten Wert. Bei diesen Kategorien ist die Turbulenz allein reibungsbedingt. Bei Kategorie B taucht bei einer Periodendauer von etwa 2 min ein Maximum auf. Dieses Maximum ist durch Konvektion verursacht. Bei dem Versuch mit Kategorie A verschiebt sich dieses Maximum zu einer Periodendauer von 8 min und nimmt stark an Intensität zu. Der Anteil der mechanischen Turbulenz geht bei den labilen Kategorien A und B im Verhältnis zur thermisch bedingten Turbulenz stark zurück.

Für die Interpretation der Ausbreitungsversuche ist die Identifikation von horizontalen Windrichtungsdrehungen wichtig. Hierzu diente die Untersuchung der Lateralkomponente  $v'$ , vgl. die Abb. 4312-4, rechte Seite. Es zeigt sich, daß bei allen Kategorien das Maximum bei niedrigen Frequenzen liegt. Dieses Maximum ist den horizontalen Windrichtungsdrehungen zuzuordnen. Bei den Versuchen mit Kategorie A bzw. B ist außerdem das von der  $w'$ -



Frequenz in  $1/7200$  Hz  $\longrightarrow$   
 120      12      1,2      0,12  
 $\longleftarrow$  Periodendauer in min

Frequenz in  $1/7200$  Hz  $\longrightarrow$   
 120      12      1,2      0,12  
 $\longleftarrow$  Periodendauer in min

Abb.:4312-4 Energiedichtespektrum der Windgeschwindigkeitskomponenten

Komponente bekannte durch Konvektion verursachte Maximum mit einer Periodendauer  $T$  von etwa 10 bzw. 6 min vorhanden. Für ein instationäres Ausbreitungsmodell ist die Abgrenzung der horizontalen Windrichtungsänderungen von den turbulenzbedingten Fluktuationen notwendig. Eine solche Abgrenzung läßt sich mit Hilfe der vorliegenden Auswertung vornehmen. Nach den seither ausgewerteten 2h - Perioden ergibt sich im Mittel die Grenze zwischen horizontalen Windrichtungsänderungen und turbulenzbedingten Fluktuationen bei einer Periodendauer von  $T = 15$  min.

## 7. Meßstellennetz in der Umgebung kerntechnischer Anlagen zur Bestimmung der Gamma-Dosisleistung bei Störfällen

(W. Hübschmann, D. Papadopoulos, P. Thomas)

Ein Meßstellennetz in unmittelbarer Umgebung einer kerntechnischen Anlage soll es bei einer störfallbedingten Emission radioaktiver Stoffe in die Atmosphäre ermöglichen zusammen mit ebenfalls gemessenen meteorologischen Daten Rückschlüsse auf die Quellstärke der Gamma-Aktivität, ggf. auch auf die Höhe der radioaktiven Abluftfahne über dem Boden zu ziehen. Die Dichte eines solchen Meßstellennetzes soll aus wirtschaftlichen Erwägungen klein, aber doch genügend groß sein, um aus dem Verhältnis der gemessenen Gammadosisleistungen benachbarter Dosimeter die Emission gammaaktiver Stoffe zuverlässig erkennen und einschätzen zu können. Es wird vorgeschlagen, die Meßstellen auf einem Kreis mit dem Emittenten als Mittelpunkt gleichmäßig zu verteilen. Das Maximum der Dosisleistung liegt bei Emissionshöhen zwischen 20 m und 150 m und bei verschiedenen Ausbreitungskategorien in Entfernungen zwischen 200 m und 1000 m. Um dieses Maximum zu nutzen und außerdem eine Beeinflussung der Meßgeräte durch Direktstrahlung aus dem möglicherweise beschädigten Sicherheitsbehälter zu vermeiden, soll der Radius des Meßstellenringes zwischen 500 und 1000 m betragen.

Es wird vorgeschlagen, daß die  $\gamma$ -Dosisleistungsinstrumente einen Meßbereich zwischen 10 mR/h und 1000 R/h abdecken. Der Meßbereich umfaßt also fünf Zehnerpotenzen. Jede Meßstelle wird daher mit zwei Dosimetern besetzt. Um die störfallbedingte Emission abschätzen zu können, sind drei Meßwerte innerhalb dieses Bereichs nötig.

Zwei Grenzfälle der Anordnung der Instrumente relativ zur Ausbreitungsrichtung werden betrachtet.

Fall 1: Ein Instrument liegt genau unter der Ausbreitungsachse. Dann dürfen die benachbarten Instrumente nur so weit entfernt stehen, daß sie noch mindestens 1 % des Wertes unter der Ausbreitungsachse empfangen.

Fall 2: Zwei benachbarte Instrumente liegen symmetrisch zur Ausbreitungsachse. Dann sollen diese Instrumente 10 % und die sich weiter außen anschließenden Instrumente 0,1 % der Dosisleistung unter der Ausbreitungsachse empfangen.

Aus diesen beiden Bedingungen folgt der Abstand zweier benachbarter Instrumente und damit die Anzahl der Meßstellen, s. Tab. 4312-3.

Die ungünstigsten, d.h. kleinsten Abstände ergeben sich bei einer schmalen Abluftfahne. Deshalb ist zunächst in Tabelle 4312-3 eine Linienquelle der Gamma-Energie 1,5 MeV angenommen. In der Tabelle sind weiter die azimuthalen Verteilungsfunktionen nach /3/ zugrunde gelegt. Es wird unterschieden zwischen der häufigsten Ausbreitungskategorie D und der ungünstigsten F. Da in /3/ die azimuthalen Entfernungen nur für einen Dosisleistungsbereich von  $10^2$  angegeben sind, ist in der Tabelle nur das Kriterium des Falles 1 berücksichtigt. Die angegebenen Zahlen sind stets aufgerundet.

Gemäß der Tabelle wächst die Zahl der Instrumente mit dem Kreisradius und mit abnehmender Emissionshöhe. Effektive Emissionshöhen von weniger als 50 m erscheinen für große Störfälle unrealistisch, Ein großer Störfall wird meist mit großer thermischer Emission und entsprechend großem Auftrieb der freigesetzten Spaltprodukte verbunden sein. Ohne genauere Berechnung der optimalen Meßstellenanordnung wird hier entsprechend der Tabelle ein Radius des Meßstellenrings von 800 m und eine Anzahl von mindestens 9 Meßstellen vorgeschlagen. Diese Anzahl kann sich gegebenenfalls erhöhen, wenn die Meßstellen wegen örtlicher Gegebenheiten nicht genau positioniert werden können, oder wenn die örtliche Windstatistik berücksichtigt wird.

Tab. 4312-3 Zahl der Meßstellen in Abhängigkeit des Radius R [ m ] und der Emissionshöhe H [ m ]  
für die beiden Ausbreitungskategorien D und F /3/ und für eine Linienquelle

		Fall 1				Fall 2				Fall 1					
		Linienquelle								D			F		
R \ H	H	20	50	100	200	20	50	100	200	20	50	100	20	50	100
500		9								6			8		
600		11	7			7				8	7		10	6	
700		13	9	7		9				9	8	6	12	8	
800		15	9	8	6	11				10	9	7	13	9	6
900		17	12	9	7	13	8			11	10	8	14	10	8
1000		19	13	9	8	15	9	8		12	11	9	16	11	9

Literatur

- /1/ W. Hübschmann, D. Papadopoulos; Messungen der Gammadosisleistung in der Umgebung des KFZK  
KFK 2050 (1974) 241-242
  
- /2/ O.G. Sutton; Atmospheric Turbulence,  
Methuens Monographs on Physical Subjects, 1948
  
- /3/ K.J. Vogt; Umweltkontamination und Strahlenbelastung durch radioaktive Abluft aus kerntechnischen Anlagen,  
Jül-637-ST (1970)

4312-TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen  
C.D. Wüneke, H. Schultz, Arbeitsgr. f. techn. Strahlenschutz der  
TU Hannover

## 1. Einleitung

Zur rechnerischen Abschätzung möglicher oder zu erwartender Schadstoffbelastungen durch atmosphärische Ausbreitung von konventionellen und radioaktiven Schadstoffen benötigt man Rechenmodelle, die den Transport und die turbulente Verdünnung dieser Schadstoffe in der Atmosphäre angemessen beschreiben.

Im allgemeinen wird man eine Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre zunächst mit dem Gaußschen Rauchfahnenmodell zu beschreiben versuchen (slide [1]). Denn dieses Gaußsche Rauchfahnenmodell ist einerseits dank seiner vielen Parameter gut an verschiedene meteorologische Verhältnisse anpaßbar, andererseits aber dennoch durch seine geschlossene mathematische Form kompakt genug, um mit verhältnismäßig geringem Rechenaufwand zu den gewünschten Ergebnissen zu gelangen. Für die Handlichkeit des Gaußschen Rauchfahnenmodells spricht außerdem, daß man bei dieser Methode von den Verhältnissen am Emissionsort ausgeht, für die die Daten meistens leicht beschaffbar sind.

Diese Vorteile begrenzen aber auch gleichzeitig die Anwendbarkeit der Gauß-Methode, wenn nämlich die örtlichen Ausbreitungsverhältnisse mit dem Abstand von dem Emissionsort variieren, z.B. infolge komplexer Topographie oder wenn sich die meteorologischen Verhältnisse während der Emissions- bzw. Ausbreitungszeit schnell ändern.

Falls man nicht zu besonderen Tricks greifen will, z.B. Unterteilung in viele einzelne Gaußsche Rauchfahnen (Gutsche [2]), wodurch die Rechenzeit aber beträchtlich erhöht wird, läßt sich das Gaußsche Rauchfahnen-Modell nur unter folgenden Bedingungen anwenden :

Das aktive Windfeld muß als einheitlich in Raum und Zeit behandelt werden können und das Turbulenzfeld muß in jeder der drei Raumrichtungen x,y und z durch eine Gaußverteilung beschrieben werden können, wobei deren Standardabweichungen jedoch verschieden sein dürfen.

Da sich die Aussagen der Gauß-Methode nur auf lange Diffusions- bzw. Mittelungszeiten unter stationären Bedingungen beziehen, gilt einerseits diese Gaußverteilung nur für ausreichend lange Beobachtungszeiten  $t > 0,5 \text{ h}$ , andererseits dürfen sich aber die Quellen und meteorologischen Ausbreitungsverhältnisse während des Vorüberziehens der Wolke am Detektor nicht ändern, was wiederum den Gültigkeitsbereich der Gauß-Methode auf etwa 10 bis 15 km vom Emissionsort beschränkt. Schließlich gilt diese Lösung nicht für Windgeschwindigkeiten  $u < 1 \text{ [m/s]}$  und bei Windstille, da molekulare und turbulente Diffusion in Transportrichtung beim Rauchfahnenmodell vernachlässigt wird.

## 2. Numerische Methode

Die aufgezeigten Schwierigkeiten lassen sich aber mit numerischen Methoden nach endlichen Differenzenverfahren überwinden, wobei der interessierende Raum in ein Zellensystem eingeteilt wird und die Ausbreitungsparameter mit einem Windfeld-Programm aus den meteorologischen Daten berechnet werden. Jedoch war mit den bisherigen numerischen Verfahren immer eine zusätzliche sogenannte Diffusion inhärent verbunden, wenn es nicht gelang, bestimmte Bedingungen für die Größen der Zellen und Zeitschritte einzuhalten, was bei einem inhomogenen Windfeld sowie aus Gründen des Rechenzeitaufwandes und der gewünschten Flexibilität der Zellabmessungen nicht immer möglich war. Durch ein hybrides Euler-Lagrange-Verfahren nach der particle-in-cell-Methode kann diese künstliche Diffusion weitgehend vermieden werden. Wie schon im 2. Halbjahresbericht 1973 [3] erwähnt wurde, sind in den USA auf dieser Basis die Rechenprogramme NEXUS [4] und ADPIC [5] entwickelt und inzwischen erfolgreich angewendet worden. Der Trick zur Verringerung der künstlichen Diffusion bei diesen Rechenprogrammen nach der particle-in-cell-Methode besteht darin, daß durch Einführung einer Pseudogeschwindigkeit, in der die Transportgeschwindigkeit und eine aus dem Konzentrationsgefälle berechnete Diffusionsgeschwindigkeit zusammengefaßt sind,

eine Anzahl für die Schadstoffmenge repräsentativer Teilchen ähnlich wie bei der Monte-Carlo-Methode schrittweise mit dieser Pseudogeswindigkeit weitergeführt wird, wobei deren Anzahldichte in den einzelnen Zellen ein Maß für die Konzentration der Schadstoffe darstellt. Dabei wird nur die im Verhältnis zur Transportgeschwindigkeit zumeist kleine Diffusionsgeschwindigkeit mit Hilfe eines endlichen Differenzenverfahrens bestimmt, so daß die künstliche Diffusion nur bei nahezu Windstille merklich werden könnte und falls außerdem aus praktischen Gründen die oben erwähnten Bedingungen für die Zellabmessungen und Zeitschritte nicht überall eingehalten werden können.

Außerdem erlaubt diese Methode auch eine Berücksichtigung von Schadstoffveränderungen durch chemische, photochemische Reaktionen oder radioaktiven Zerfall, indem jedem verfolgten Teilchen ein durch die Reaktion veränderliches Gewicht zugeordnet wird. Nachdem intensive Bemühungen um die Beschaffung dieser Programme aus den USA bisher zu keinem Erfolg führten, haben wir die Programmierung eines Rechenprogrammes nach der particle-in-cell-Methode selbst in Angriff genommen.

### 3. Die particle-in-cell-Methode

Geht man von der allgemeinen nichtlinearen Transport-Diffusionsdifferentialgleichung aus

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{u} \nabla C = \nabla (K \nabla C)$$

mit

C ein raum- und zeitabhängiges Skalarfeld der Schadstoffkonzentration

$\vec{u}$  ein raum- und zeitabhängiges Vektorfeld der Transportgeschwindigkeit (Advektionsgeschwindigkeit) und

K der Diffusionskoeffizient, der auch als raum- und zeitabhängiger Tensor vorliegen kann,

so erhält man unter der Annahme der Inkompressibilität der Luft

$$\nabla \vec{u} = 0$$

und durch Einführung einer Pseudogeswindigkeit

$$\vec{v} = \vec{u} - \frac{K}{C} \nabla C$$

schließlich die Differentialgleichung:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla(C \cdot \vec{v}) = 0$$

Diese Differentialgleichung entspricht formal der Kontinuumsgleichung einer kompressiblen Flüssigkeit, deren Dichte der Konzentration  $C$  und deren lokale Transportgeschwindigkeit der Pseudogeswindigkeit  $v$  entspricht. Obwohl nach Voraussetzung  $\nabla \vec{u} = \text{div } \vec{u} = 0$  ist, braucht dann nämlich für die Pseudogeswindigkeit  $\vec{v}$   $\nabla \vec{v} = \text{div } \vec{v}$  nicht gleich Null zu sein.

#### 4. Struktur des Programms XPIC nach der Particle-in-cell-Methode

Ehe auf Einzelheiten der inzwischen schon durchgeführten Programmierungen im Abschnitt 5 eingegangen wird, soll hier anhand des Flußdiagramms für das Programm XPIC (Abb. 1) der Rechenablauf bei Anwendung der particle-in-cell-Methode in groben Zügen aufgezeigt werden.

Um zu den für die Rechnung benötigten Startpositionen der Quellteilchen zu gelangen, ist es notwendig, die in Raum und Zeit vorgegebene Schadstoffverteilung durch eine diskrete Verteilung einer endlichen Anzahl von Schadstoffteilchen zu repräsentieren, wobei jedem Teilchen eine bestimmte Schadstoff-

menge zugeordnet wird. Kann man annehmen, daß die Verteilung der Quellteilchen zu Beginn der Rechnung einer bekannten Konzentrationsverteilung z. B. einem Gaußschen Rauchfahnenmodell folgt, so können die Quellteilchenpositionen zunächst mit Hilfe eines Zufallszahlengenerators bestimmt werden. In jedem Falle liegt zu Beginn der Rechnung zur Zeit  $t_0$  eine Quellteilchenverteilung im Zellsystem vor. Aus dieser Teilchenverteilung wird mit Hilfe einer Volumenwichtung (VOWIK) eine Konzentrationsverteilung für die Zentren der Zellen berechnet, die jeweils die mittlere Konzentration für eine Zelle angibt. Falls keine chemischen Reaktionen vorliegen, werden entsprechend dieser Konzentrationsverteilung nach einem endlichen Differenzenverfahren (EDVF) die Diffusionsgeschwindigkeiten für die Ecken der Zellen berechnet. Zusammen mit den dortigen Advektionsgeschwindigkeiten des Windfeldes ergeben diese das Vektorfeld der Pseudogeschwindigkeiten an den Zellenecken. Um die Lagrange-Verrückung (TRANS) im Zeitschnitt  $\Delta t$  durchführen zu können, benötigt man das Vektorfeld der Pseudogeschwindigkeit an den Orten der betrachteten Teilchen, wozu wiederum eine Volumenwichtung (VOWIV) vorgenommen wird. Mit der Erstellung der neuen Teilchenpositionen ist der Kreislauf geschlossen.

Dieser eigentliche Programmkreislauf, der iterativ durchlaufen wird, ist inzwischen programmiert und wird im folgenden Abschnitt ausführlicher behandelt.

Zur Bestimmung der geeignetsten Zellabmessungen  $\Delta x, \Delta y, \Delta z$  und des Zeitschrittes  $\Delta t$  sowie der Einheitsschadstoffmenge EC, die einem einzigen Teilchen zugeordnet werden soll, müssen noch das Teilprogramm VORBTG und zur Berücksichtigung vorgegebener Randbedingungen das Teilprogramm RANDB erstellt werden. Außerdem soll dieses Programm in seiner späteren endgültigen Fassung auch die Berücksichtigung chemischer und photochemischer Reaktionen und des radioaktiven Zerfalls ermöglichen. Wie aus dem Teil des Flußschemas im Inneren des Hauptringes ersichtlich, wird dann das Teilprogramm CHEMR eine veränderte Konzentrationsverteilung infolge von chemischen Reaktionen liefern. Einerseits geht man nun mit der veränderten Konzentrationsverteilung in das endliche Diffe-

renzenverfahren EDVF zur Bestimmung der Diffusionsgeschwindigkeit, andererseits werden über eine Volumenwichtung VOWIR entsprechend der durch die Reaktion veränderten Konzentrationsverteilung den Teilchenpositionen neue gewichtete Massen zugeordnet.

### 5. Programmierung des particle-in-cell-Programms XPIC

Für die Umwandlung der Teilchenverteilung in eine Konzentrationsverteilung gibt es zwei Möglichkeiten: in einem Fall ergibt jeweils die Summe aller Teilchen in einer Zelle die mittlere Konzentration in dieser Zelle, zum anderen kann man sich die Masse des Teilchens gleichmäßig auf einem Quader mit denselben Abmessungen wie die der umgebenden Zellen verteilt denken, wobei das Teilchen sich im Schwerpunkt dieses Quaders befinden soll. Dadurch daß jetzt die Schadstoffmenge eines Teilchens entsprechend den in die umgebenden Zellen ragenden Volumenanteile des Quaders auf die umgebenden Zellen aufgeteilt wird, erreicht man eine gewisse Glättung der berechneten Konzentrationsverteilung. Diese Volumenwichtung wurde programmiert und ist in Abb. 2 für den zweidimensionalen Fall schematisch dargestellt.

Bei der Berechnung der Diffusionsgeschwindigkeiten  $\vec{w}$  aus der Konzentrationsverteilung mit Hilfe eines Differenzenverfahrens ergibt sich aus der differentiellen Darstellung z. B. für die x-Komponente der Diffusionsgeschwindigkeit

$$w_x = -\frac{K_x}{C} \cdot \frac{\partial C}{\partial x}$$

(mit  $K_x$  als dem Diffusionskoeffizienten in der x-Richtung)  
die Differenzenform:

$$w_{x, i, j, k} = -2 \frac{K_x}{\Delta x} \cdot \frac{1}{\sum_{i, j, k} C_{i, j, k}} (C_{i, j, k} + C_{i, j, k+1} + C_{i, j+1, k} + C_{i, j+1, k+1} - C_{i+1, j, k} - C_{i+1, j, k+1} - C_{i+1, j+1, k} - C_{i+1, j+1, k+1})$$

wobei acht umliegende Zellen zur Rechnung herangezogen werden. Die Indizes  $i, j, k$  bezeichnen die Zellennumerierung in der  $x, y, z$ -Richtung. Entsprechendes gilt für die übrigen Komponenten. Man erhält so aus den mittleren Konzentrationen der acht Zellen die Diffusionsgeschwindigkeitskomponente an der Zellenecke, wo die acht Quader zusammenstoßen, siehe zweidimensionale Darstellung in Abb. 3.

Durch diese Mittelung zwischen acht benachbarten Zellen werden unnatürlich große Diffusionsgeschwindigkeiten vermieden, wie sie beim einfachen Differenzenverfahren, bei dem nacheinander jeweils nur drei Zellen zur numerischen Rechnung herangezogen werden, dadurch entstehen können, daß in der zentralen Zelle die Konzentration zufällig Null ist. Falls bei dem hier angewendeten Differenzenverfahren die räumliche Konzentration in allen an die Ecke angrenzenden acht Zellen  $i+1, j+1, k+1$   $\sum_{i,j,k} C_{i,j,k}$  gleich Null sein sollten, so wird die Diffusionsgeschwindigkeit gleich Null gesetzt. Indem diese Methode auf das gesamte Zellensystem angewendet wird, erhält man schließlich ein Vektorfeld der Diffusionsgeschwindigkeit für alle Zellenecken. Durch Addition dieser Diffusionsgeschwindigkeiten zu den vom Windfeldprogramm METODAT gelieferten Komponenten der Advektionsgeschwindigkeiten erhält man dann das Vektorfeld der Pseudogeschwindigkeit für die Zellenecken.

Zur Berechnung der Lagrangeschen Verrückung der Teilchen im Zeitschritt  $\Delta t$  werden die Pseudogeschwindigkeiten für die einzelnen Teilchenorte  $A(x, y, z)$  benötigt, wozu eine auf die Orte bezogene lineare Interpolation in allen drei Raumrichtungen wie folgt vorgenommen wird:

1. Durch Interpolation in der  $x$ -Richtung erhält man aus den acht Werten  $v_i$  vier Werte  $v_i'$ :

$$v_i' = \frac{1}{\Delta x} [v_{i,j,k}(x_{i+1}-x) + v_{i+1,j,k}(x-x_i)]$$

$$v_2' = \frac{1}{\Delta x} [v_{i,j+1,k}(x_{i+1}-x) + v_{i+1,j+1,k}(x-x_i)]$$

$v_3'$  und  $v_4'$  entsprechend mit  $k = k+1$ .

2. Durch Interpolation in der  $y$ -Richtung erhält man aus den vier Werten  $v_i'$  zwei Werte  $v_i''$ :

$$v_1' = \frac{1}{\Delta y} [v_1'(y_{j+1}-y) + v_2'(y-y_j)]$$

$$v_2'' = \frac{1}{\Delta y} [v_3'(y_{j+1}-y) + v_4'(y-y_j)]$$

3. Durch Interpolation in der  $z$ -Richtung erhält man schließlich den gesuchten Wert  $v$  am Teilchenort  $A(x,y,z)$ :

$$v = \frac{1}{\Delta z} [v_1''(z_{k+1}-z) + v_2''(z-z_k)]$$

Durch sukzessives Einsetzen der Pseudogeswindigkeiten an den acht Ecken des Quaders  $v_{ijk}$  in obiges Formelsystem und entsprechendes Umordnen erhält man eine Gleichung, aus der hervorgeht, daß die acht Geschwindigkeiten an den Zellenecken jeweils mit den ihnen diagonal gegenüberliegenden Volumenanteilen gewichtet werden, die entstehen, wenn die Zelle am Teilchenort durch ebene Flächen parallel zu den Zellenwänden zerlegt wird (Abb. 4). Auch diese Volumenwichtung wurde entsprechend programmiert.

Anschließend wird jedes Teilchen in dem vorgegebenen Zeitschritt  $\Delta t$  mit den errechneten interpolierten Pseudogeswindigkeiten am Teilchenort zu neuen Teilchenorten transportiert. Damit schließt sich der Programmablauf, indem dann wieder für die neuen Teilchenpositionen mit Hilfe einer Volumenwichtung mittlere Konzentrationsverteilungen in den Zellen errechnet werden.

Dieser Programmkreislauf des Rechenprogramms XPIC ist inzwischen programmiert. Im Flußschema Abb. 1 sind die Teilprogramme dieses Kreislaufs ringförmig angeordnet und mit stärkeren Strichen gezeichnet. Inzwischen wurden Testläufe mit fiktiven Quellteilchen-Verteilungen zur Prüfung der Funktion dieses Programmteiles auf der Großrechenanlage (CYBER 73/76) des Regionalen Rechenzentrums für Niedersachsen in Hannover erfolgreich durchgeführt.

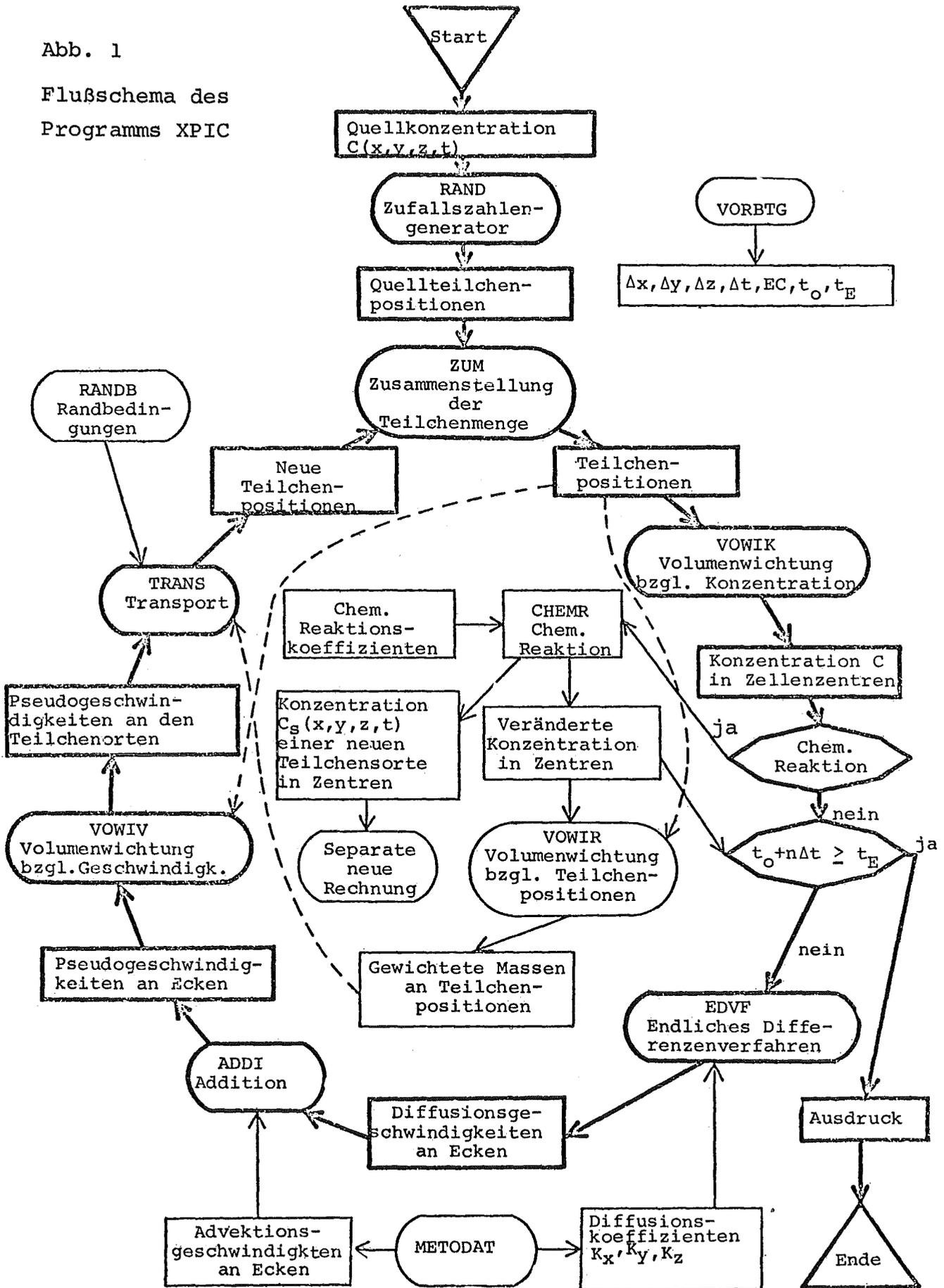
## 6. Ausblick

Als nächster Schritt soll die Berücksichtigung von vorgegebenen Randbedingungen wie z. B. Bodenprofile, Inversionsschichten miteinprogrammiert werden. Außerdem muß eine Möglichkeit für eine allgemeine Eingabe vorgegebener Quellteilchenverteilungen geschaffen werden, indem z. B. mathematisch vorgegebene Quellverteilungen mit Hilfe eines Zufallszahlengenerators in eine diskrete Teilchenverteilung umgesetzt werden.

Anschließend soll das Programm anhand von modellmäßig erfaßbaren Quellverteilungen und meteorologischen Datensätzen getestet und an die Kapazität der Rechenanlage optimal angepaßt werden, wobei die Ergebnisse dieser Testläufe mit den errechneten Konzentrationsverteilungen nach der Gaußschen Rauchfahnenmethode verglichen werden. Damit werden im nächsten Jahr voraussichtlich Rechnungen für realistische Konzentrationsverteilungen und Windfelder möglich werden.

Als Fernziel ist eine Erweiterung dieses Programms zur Berücksichtigung von chemischen Reaktionen und eventuellen Kombinationseffekten zwischen konventionellen und nuklearen Emissionen vorgesehen. Unabhängig davon bleibt jedoch die Aufgabe bestehen, ein leistungsfähiges Windfeldprogramm (METODAT) zu erstellen, mit dem die für die Berechnung notwendigen meteorologischen Daten bereitgestellt und evtl. sogar für einen Zeitraum von mehreren Stunden vorausberechnet werden können.

Abb. 1  
Flußschema des  
Programms XPIC



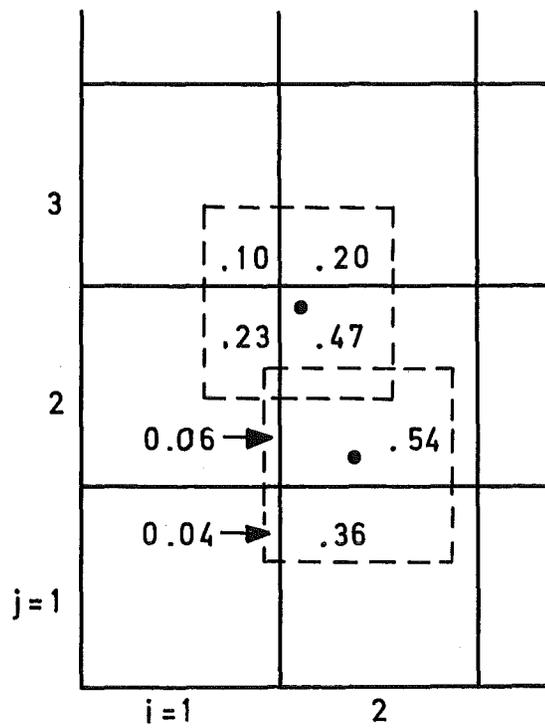


Abb. 2

Bestimmung der Zellenkonzentration mit Hilfe einer Volumenwichtung der Teilchenpositionen. (hier zweidimensionaler Fall)

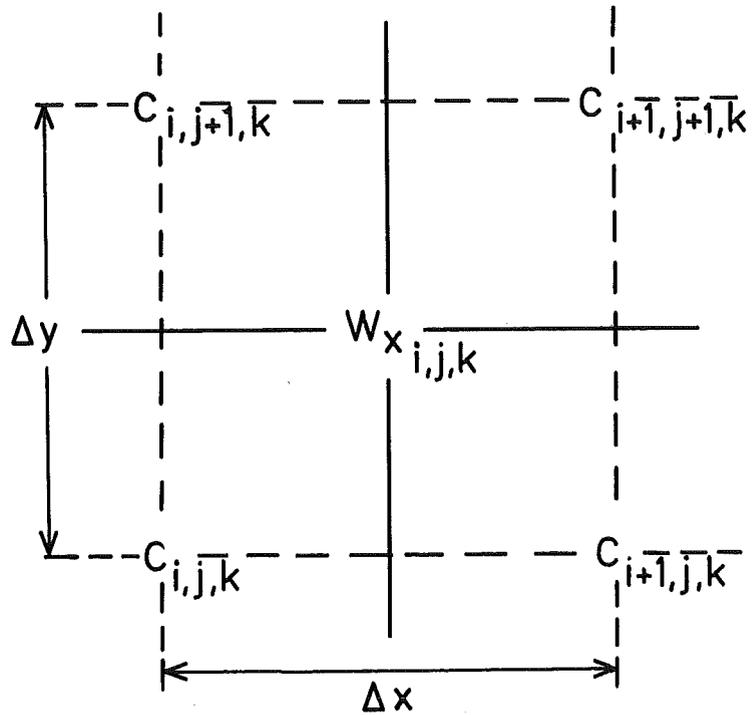


Abb. 3

Berechnung der Diffusionsgeschwindigkeit  $\vec{w}$   
 aus der Konzentrationsverteilung  $C_{i,j,k}$   
 mit Hilfe eines Differenzenverfahrens:

$$w_{x_{i,j,k}} = 2 \frac{K_x (C_{i,j,k} + C_{i,j+1,k} - C_{i+1,j,k} - C_{i+1,j+1,k})}{\Delta x (C_{i,j,k} + C_{i+1,j,k} + C_{i,j+1,k} + C_{i+1,j+1,k})}$$

(hier zweidimensionaler Fall)

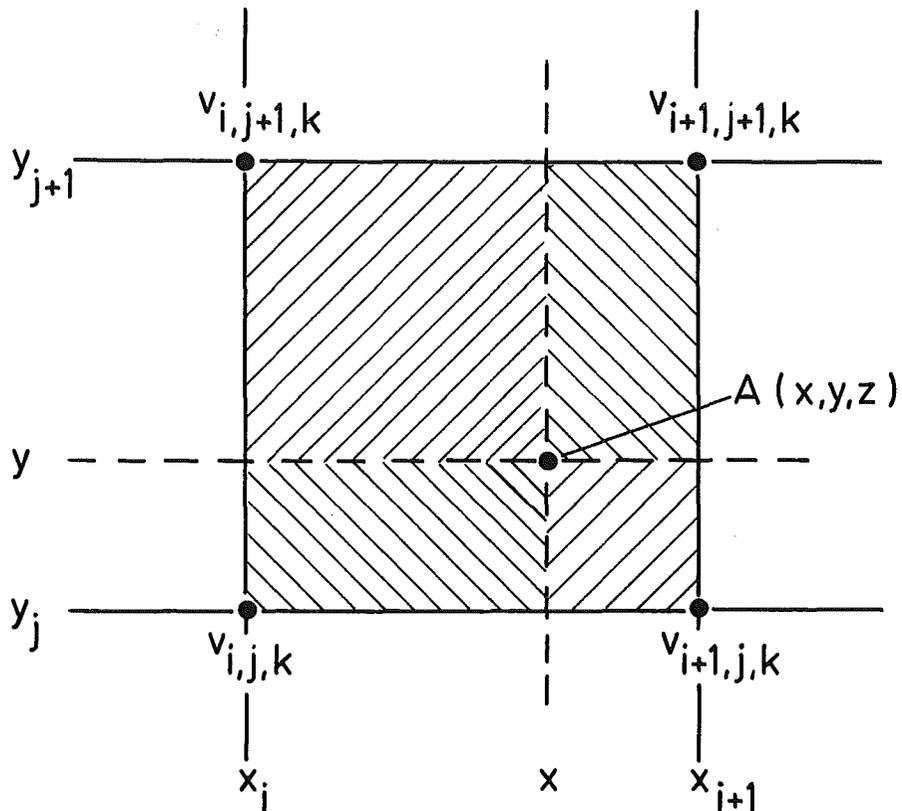


Abb. 4

Bestimmung der Pseudogeschwindigkeit  $\vec{v}$  am Teilchenort  $A(x,y,z)$  mit Hilfe einer Volumenwichtung der Pseudogeschwindigkeitswerte  $v_{i,j,k}$  an den Zellen-ecken. (hier zweidimensionaler Fall)

Literaturverzeichnis

- [1] Slade, David, H.  
Meteorology and Atomic Energy, 1972
- [2] Gutsche, B.  
Ein Verfahren zur Untersuchung des Einflusses der  
Physik der Planetarischen Grenzschicht auf die Aus-  
breitung von Luftbeimengungen. Inst. f. Theor. Mete-  
orologie der Freien Universität Berlin (1973)
- [3] Wüneke, C.-D., H. Schultz  
Analyse der Berechnungen und Messungen zur Ausbreitung  
radioaktiver Stoffe beim amerikanischen Plowshare-  
Programm zwecks Prüfung der Übertragbarkeit auf Re-  
aktorstörfälle.  
PNS, 2. Halbjahresbericht 1973, KFK 1908
- [4] Sklarew, R.C., Fabrick, A.J., Prager, J.E.,  
A Particle-in-Cell-Method for numerical Solution of the  
Atmospheric Diffusion Equation, and Applications to  
Air Pollution Problems  
3 SR-844 1971  
Systems, Science and Software, La Jolla, California
- [5] Lange, R.,  
ADPIC - A Three-Dimensional Computer Code for the Study  
of Pollutant Dispersal and Deposition under Complex  
Conditions  
Lawrence Livermore Laboratory  
UCRL-51462 1973

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG VON STÖRFALLFOLGEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren

I. Dekontaminationsverfahren zum großtechnischen Einsatz in Kernkraft-  
werken nach Störfällen und bei der Stilllegung

(Th. Dippel, D. Hentschel, ABRA)

Aufgabenbereich der Dekontamination

Im Zuge des Austausches von großen Komponenten, der Störfallfolgenbeseitigung und der Stilllegung von Kernkraftwerken werden Dekontaminationsaufgaben auftreten, bei denen aktivierte Korrosionsprodukte und gegebenenfalls Spaltprodukte und Kernbrennstoff von den Oberflächen ausgebauter Anlagenteile zu entfernen sind. Diese Anlagenteile sind in der Regel nur kontaminiert und nicht aktiviert, wiewohl im Einzelfall auch die Entfernung lose sitzender Aktivität von aktivierten Teilen erforderlich werden kann.

Bei den zu dekontaminierenden Werkstoffen handelt es sich um rostfreie Stähle und Nickelbasislegierungen. Da im Zuge der eingangs aufgezeigten Maßnahmen auf Spätschäden an den Anlagenteilen, ausgelöst durch Dekontaminationsmaßnahmen, nicht Rücksicht genommen werden muß, können auch sehr aggressive Dekontaminationsmittel benutzt werden; es sind dann jedoch Korrosionsprobleme an den Dekontaminationsanlagen zu berücksichtigen. Welches Dekontaminationsverfahren im Einzelfall anzuwenden ist, beziehungsweise ob im Zuge der Konditionierung überhaupt dekontaminiert werden soll, ist nur vom anstehenden Gesamtproblem her zu entscheiden. Einzelmaßnahmen wie die experimentelle Bestimmung der Dekontaminationswirkung der ausgewählten Dekontaminationsverfahren liefern nur begrenzt Entscheidungshilfen. Vielmehr muß vom Gesamtproblem her das Dekontaminationsziel definiert werden.

Es kann auf folgende Aspekte abgestellt sein:

- Vereinfachung des anstehenden Konditionierungsproblems (Einsparung von Abschirmung, direkt bediente Zerteilungsgeräte, einfachere Verpackungsverfahren, reduziertes Risiko von Sekundärkontaminationen);
- Erzeugung von Materialien, die wie gewöhnliche Abfälle behandelt und gelagert werden können;

- Konzentrierung des radioaktiven Materials im Hinblick auf eine kostengünstige Abfallklasse bei der Endlagerung.

Darüber hinaus können Dekontaminationsmaßnahmen wesentlich dazu beitragen, die zulässigen Personendosen einzuhalten.

Von den in diesem Problembereich auftretenden Dekontaminationsaufgaben ist die Entfernung fest haftender Korrosionsschichten mit den eingebauten radioaktiven Materialien die schwierigste. Daran gemessen, existieren einige Dekontaminationsverfahren mit unterschiedlichem Stand der Entwicklung und Erprobung. Allen Verfahren ist gemeinsam, daß sie noch nicht zur Dekontamination im Rahmen von Konditionierungsmaßnahmen an großen Komponenten eingesetzt wurden. Es liegen jedoch bei der Abteilung Dekontaminationsbetriebe der GfK teilweise langjährige Erfahrungen mit einzelnen Dekontaminationsverfahren vor, die bei Routinearbeiten im Rahmen der Aufgaben dieser Abteilung gesammelt wurden.

In Berichten über umfangreiche Dekontaminationsmaßnahmen in kerntechnischen Anlagen wird nur selten ausführlich auf die Auswahl der Dekontaminationsmittel eingegangen. Nur einige wenige Arbeiten enthalten dazu ausführlichere Beschreibungen [ 1, 2, 3 ].

#### Dekontaminationsverfahren

Nachstehend sind Dekontaminationsverfahren tabellarisch zusammengestellt. Der einheitliche Kriteriensatz dient dazu, eine möglichst einfache, aber übersichtliche Darstellung der einzelnen Verfahren zu erhalten. Zu diesem Kriteriensatz gehören, mit nötigenfalls weiterer Untergliederung, die folgenden Punkte:

- Dekontaminationsmittel
- Handhabung
- Dauer eines Dekontaminationszyklus
- Arbeitstemperatur
- Einsatzmöglichkeit, bezogen auf Form und Maße der Komponente
- Dekontaminationsabfall
- Werkstoffproblem, bezogen auf die Dekontaminationsanlagen
- Stand der Entwicklung und Erprobung
- Verfügbarkeit

- Entwicklungsmöglichkeiten
- Optimierungsmöglichkeiten

Auf die Angabe im Labor erzielbarer Dekontaminationsfaktoren - ein Maß für die Wirksamkeit des Dekontaminationsmittels - wurde verzichtet. Hierzu sind bei Vorliegen konkreter Konditionierungsaufgaben spezielle Prüfungen unumgänglich, deren Ergebnisse in bezug auf das vorgegebene Dekontaminationsziel zu interpretieren sind.

Erläuterungen zu den Tabellen

### Zusammensetzung der Dekontaminationsmittel

Salpetersäure: Es kommt Salpetersäure in verschiedenen Konzentrationen zum Einsatz

Salpetersäure-Flußsäure-Mischung : Die Mischung enthält 2 % Salpetersäure mit 3 % Flußsäure. Experimentelle Ergebnisse weisen darauf hin, daß sie nicht direkt lösend auf Korrosionsschichten wirkt, sondern durch Angriff auf das Grundmaterial die Korrosionsschichten abhebt.

Alkalische Kaliumpermanganat-lösung : Die alkalische Kaliumpermanganatlösung enthält 18 % NaOH und 3 %  $\text{KMnO}_4$

Citrat-Oxalat-Lösung : Die Citrat-Oxalat-Lösung enthält  
50 g di-Ammoniumhydrogencitrat  
40 g Oxalsäure  
4 g Äthylendiamintetraessigsäure  
5 g Fe-III-formiat

je 1 l Lösung, die mit Ammoniak auf  $p_{\text{H}}$  3,5 eingestellt ist.

Diese Angaben stehen als Beispiele für ähnliche Chemikalienkombination, denen jedoch stets eine oxidierend-alkalische und eine reduzierend-komplexierende-saure Lösung zugrunde liegt.

Dekontaminationspaste : In der einfachsten Form ist Salzsäure in verschiedener Konzentration der Wirkstoff. Wesentlich bessere Dekontaminationsergebnisse liefern  $\text{HNO}_3$ -HF-HCl-Kombinationen auf ausgewählten Trägerstoffen.

Salzschmelzen: Die Salze der Wahl sind Dihydrogenphosphate. Die Verwendung weiterer an sich gut dekontaminierender Schmelzen wird von der Abfallbehandlung und -verfestigung her stark eingeschränkt. Außerdem haben z.B. alkalische Schmelzen eine erhebliche Korrosionswirkung auf Dekontaminationsgeräte.

Säuredämpfe (Gase) : Die Mehrzahl der Experimente wurde mit Salpetersäure in Dampfform oder als Kondensat durchgeführt.

### Abfallmengen

Die bei der Dekontamination entstehende Abfallmenge ist nur bei Vorliegen einer bestimmten Dekontaminationsaufgabe hinreichend genau anzugeben. Von den verwendeten Dekontaminationsmitteln her können nur bezogene Größen berechnet werden. Ihre Aussage ist jedoch begrenzt; Vergleich sind wegen der unterschiedlichen Bezugsgrößen nur bedingt möglich (Tabelle 9). Für die Dekontamination in der Dampfphase und das Sandstrahlen können keine brauchbaren Angaben gemacht werden.

### Gegenüberstellung der Verfahren

Von der bisherigen Anwendungspraxis her und wegen des unterschiedlichen Entwicklungsstandes ist es nicht möglich, einem der angegebenen Dekontaminationsverfahren bei der Anwendung in Kernkraftwerken den Vorzug zu geben. Unterstellt man hilfsweise allen Verfahren einen sehr ähnlichen Grad der Entwicklung und Erprobung, so läßt sich unter dem Aspekt der Durchführung und der Mobilität (Tab. 10), sowie eines sich durch die Anwendungspraxis möglicherweise ergebenden Potentials hinsichtlich weiterer Reduzierung der entstehenden Abfallmengen (Tab. 11) eine Einteilung treffen.

### Literatur

- /1/ Die Dekontamination des Primärkreislaufes im Kernkraftwerk Rheinsberg  
R. Winkler, D. Legler, K.W. Schulte, K. Langecker, Kernenergie 12,  
S. 341-347, 11/1969
- /2/ Decontamination of Highly Active Process Equipment of the Eurochimique  
Reprocessing Plant  
J. van Geel et.al., ETR - 269, 4/1971
- /3/ Dekontamination der Zelle VI in der WAK während der Interventionsphase  
I/1973  
H. Wiese, D. Duck, Technischer Bericht Nr. 156/1974  
Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH, Leopoldshafen

Tabelle 1

Dekontaminationsmittel	Salpetersäure
Handhabung - Auftrag - Abtrag - Ausführung	- Tauchen, Spülen, Aufsprühen - Tauchen, Spülen - Fernbediente Ausführung aller Arbeitsvorgänge möglich mit üblichen Apparaturen
Dauer eines Dekontaminationscyclus	abhängig von der Konzentration (10 bis 48 h)
Arbeitstemperatur	ca. 100° C
Einsatzmöglichkeit	Beim Tauchverfahren begrenzt durch die Größe der Komponente
Dekontaminationsabfall - Volumen - Materialfracht - Verarbeitbarkeit	- groß, Abhängigkeit von Komponentengröße - hoch, wegen Neutralisation (NaNO <sub>3</sub> ) - routinemäßig möglich
Korrosionsprobleme	keine
Stand der Entwicklung und Erprobung	Routinemäßige Anwendung in Tauchbad- und Spültechnik
Erforderliche Weiterentwicklung	keine
Verfügbarkeit - Bevorratung und - Vorbereitung der Chemikalien	- problemlos - problemlos
Optimierungsmöglichkeiten	Ausbau der Spül- und Sprühtechnik (Gegenstromprinzip), Getrennte Führung des Dekontaminationsmittel zur Zersetzung der Salpetersäure mit Ameisensäure

Tabelle 2

Dekontaminationsmittel	Salpetersäure-Flußsäure-Mischung
Handhabung - Auftrag - Abtrag - Ausführung	- Tauchen, Spülen, Sprühen - Tauchen, Spülen - Fernbediente Ausführung aller Arbeitsvorgänge möglich mit üblichen Apparaturen
Dauer eines Dekontaminationscyclus	15 min
Arbeitstemperatur	20° C
Einsatzmöglichkeit	Beim Tauchverfahren begrenzt durch die Größe der Komponente
Dekontaminationsabfall - Volumen - Materialfracht - Verarbeitbarkeit	- groß, Abhängigkeit von der Komponentengröße - hoch wegen Neutralisation jedoch günstiger gegenüber $\text{HNO}_3$ - routinemäßig möglich
Korrosionsprobleme	keine
Stand der Entwicklung und Erprobung	routinemäßige Anwendung
Erforderliche Weiterentwicklung	keine
Verfügbarkeit - Bevorratung und - Vorbereitung der Chemikalien	- problemlos - problemlos
Optimierungsmöglichkeiten	Ausbau der Spül- und Sprühtechnik Getrennte Führung der Dekontaminationsmittel zur Zersetzung der Salpetersäure mit Ameisensäure

Tabelle 3

Dekontaminations-	Alkalische Kaliumpermanganat- <sup>*</sup> lösung Citrat-Oxalat-Lösung
Handhabung - Auftrag - Abtrag - Ausführung	- Tauchen, Spülen, Sprühen - Tauchen, Spülen - Fernbediente Ausführung aller Arbeitsgänge möglich mit üb- lichen Apparaturen
Dauer eines Dekonta- minationscyclus	1 h max. 25 h
Arbeitstemperatur	Siedetemperatur der Lösungen
Einsatzmöglichkeit	Beim Tauchverfahren begrenzt durch die Größe der Komponente
Dekontaminationsabfall - Volumen - Materialfracht - Verarbeitbarkeit	- groß, Abhängigkeit von der Komponentengröße - mäßig groß - Bituminierung problematisch, evtl. Sonderbehandlung
Korrosionsprobleme	keine
Stand der Entwick- lung und Erprobung	Routinemäßige Anwendung in Tauch- bad- und Spültechnik
Erforderliche Weiterentwicklung	Ersatz aller Ammoniumsalze bzw. des Ammoniak
Verfügbarkeit - Bevorratung und - Vorbereitung der Chemikalien	- problemlos - problemlos, Herstellung der Lö- sungen im Bedarfsfall
Optimierungsmöglich- keiten	Verzicht auf Inhibitoren, Verkür- zung der Einwirkzeiten durch Än- derung der Chemikalienkombination und -konzentration

\*) siehe Abschnitt 3

Tabelle 4

Dekontaminationsmittel	Dekontaminationspasten (Wirkstoff = $\text{HNO}_3$ , HF, HCl)
Handhabung - Auftrag - Abtrag - Ausführung	- mechanisch - spülen - bisher von Hand
Dauer eines Dekontaminationscyclus	max. 2 h, Auftrag und Abtragezeit abhängig von der Komponentengröße
Arbeitstemperatur	Raumtemperatur
Einsatzmöglichkeit	Keine Begrenzung durch Abmessung und Form der Komponente (Ausnahme: kleine Innendurchmesser)
Dekontaminationsabfall - Volumen - Materialfracht - Verarbeitbarkeit	- klein - groß, wegen Füllstoff- und Trägeranteilen - problemlos
Korrosionsprobleme	Vorratsbehälter, Auftragapparate, Korrosionsproblem bei der Herstellung
Stand der Entwicklung und Erprobung	Laborentwicklung abgeschlossen, im Technikum erfolgreich erprobt
Erforderliche Weiterentwicklung	Auftragapparatur, fernbedient betreibbar, evtl. programmgesteuert
Verfügbarkeit - Bevorratung und - Vorbereitung d. Chemikalien	- problemlos bei den einzelnen Komponenten begrenzt bei fertigen Mischungen - problemlos, Herstellung im Bedarfsfall, teilweise chemisch reine Materialien erforderlich
Optimierungsmöglichkeiten	Verkürzung der Einwirkzeit durch Veränderung der Chemikalienkombination Umsetzung der Salpetersäure mit Ameisensäure als Zwischenschritt bei der Abfallaufbereitung zur Minimierung der Abfallmenge

Tabelle 5

Dekontaminationsmittel	Salzschmelzen (Phosphate, alkalische Salzkombinationen)
Handhabung - Auftrag - Abtrag - Ausführung	- Sprühen der Schmelze - Ablösen durch Spülen - bisher alle Arbeitsschritte handbedient
Dauer eines Dekontaminationscyclus	Einwirkzeit 15-20 min, Auftrag und Abtragzeit abhängig von der Komponentengröße
Arbeitstemperaturen	max. 300° C
Einsatzmöglichkeit	Keine Begrenzung durch Abmessung und Form der Komponente (Ausnahme: kleine Innendurchmesser)
Dekontaminationsabfall - Volumen - Materialfracht - Verarbeitbarkeit	- klein - hoch - problemlos
Korrosionsprobleme	keine bei materialgerechter Auswahl der Salze
Stand der Entwicklung und Erprobung	Dekontaminationsversuch in Tauchtechnik an Modellmaterial im Labor abgeschlossen, Salz-Auftrag mittels Sprühtechnik demonstriert, Dekontaminationsexperimente mit Sprühtechnik unterwegs
Erforderliche Weiterentwicklung	Anpassung der Sprühtechnik an die fernbediente Ausführung, Bewältigung der Brenn- und Fördergasführung; Demonstration des Verfahrens an kontaminierten Reaktormaterialien
Verfügbarkeit - Bevorratung und - Vorbereitung d. Chemikalien	- problemlos - mechanische Aufbereitung der Salze erst bei Bedarf zweckmäßig - fernbediente Systeme sind u.U. in einem Gerätepool vorzuhalten
Optimierungsmöglichkeiten	Beim Stand der Entwicklung keine Angaben möglich

Tabelle 6

Dekontaminationsmittel	Säure - Dämpfe (Gase)
Handhabung - Auftrag - Abtrag - Ausführung	- Dampf- oder Gasstrom, kondensierender Dampf - Spülen -
Dauer eines Dekontaminationscyclus	-
Arbeitstemperaturen	Siedetemperatur der verwendeten Säuren bzw. Säuregemischen (max. 150°C)
Einsatzmöglichkeit	- Voraussetzung: Spezielle Be-dampfanlage; - begrenzt durch Größe und Gewicht der Komponente
Dekontaminationsabfall - Volumen - Materialfracht - Verarbeitbarkeit	- klein, da Reduzierung direkt in der Anlage möglich - hoch, da Aufkonzentrierung direkt in der Anlage möglich - wahrscheinlich problemlos
Korrosionsprobleme	Erhebliches Korrosionsproblem
Stand der Entwicklung und Erprobung	Es liegen die Ergebnisse von Übersichtsexperimenten vor
Erforderliche Weiterentwicklung	Gezielte Laborexperimente zur Gewinnung weiterer Daten als Entwicklungsgrundlage
Verfügbarkeit - Bevorratung und - Vorbereitung der Chemikalien	- problemlos - wahrscheinlich problemlos
Optimierungsmöglichkeiten	-

Tabelle 7

	Sandstrahlen
<p>Handhabung</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Auftrag</li> <li>- Abtrag</li> <li>- Ausführung</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Preßluftstrahl</li> <li>- Absaugung des Strahlmittels, Staubsaugen</li> <li>- in speziellen Arbeitszellen</li> </ul>
Dauer eines Dekontaminationscyclus	Abhängig von der Oberflächenbeschaffenheit
Arbeitstemperatur	Raumtemperatur
Einsatzmöglichkeit	Keine Begrenzung durch Abmessung der Komponente, evtl. durch die Form; (Ausnahme: Innendurchmesser)
<p>Dekontaminationsabfall</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Volumen</li> <li>- Materialfracht</li> <li>- Verarbeitbarkeit</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Volumen der erzeugten Aerosole klein jedoch auf Feinfilter verteilt</li> <li>- Feinfilter sind als Ganzes zu beseitigen</li> <li>- Verfestigung des Strahlsandes problemlos</li> </ul>
Korrosionsprobleme	keine, jedoch abrasive Belastung von Teilen der Apparatur
Stand der Entwicklung und Erprobung	Routinemäßiger Einsatz zur Dekontamination von größeren Komponenten
Erforderliche Weiterentwicklung	Übertragungsmöglichkeit auf fernbediente Arbeitsweise ist zu untersuchen
<p>Verfügbarkeit</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Bevorratung und</li> <li>- Vorbereitung d. Chemikalien</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- problemlos</li> <li>- fernbediente Systeme u.U. in einem Gerätepool vorzuhalten</li> </ul>
Optimierungsmöglichkeiten	andere Wahl des Strahlenmediums

Tabelle 8

	Materialabtrag durch Schleifen
Handhabung - Auftrag - Abtrag - Ausführung	- - Abführen des Schleifstaubes durch Saugen - maschinell, Zustellung von Hand, ferngesteuerte Ausführung möglich
Dauer eines Dekontaminationscyclus	-
Einsatzmöglichkeit	begrenzt; bei kleinen Rohrdurchmessern (innen), sehr großen Flächen, irreguläre Geometrien
Dekontaminationsabfall - Volumen - Materialfracht - Verarbeitbarkeit	- mäßig - hoch (nur Feststoffe) - problemlos
Korrosionsprobleme	-
Stand der Entwicklung und Erprobung	Verfahren im Versuchsstadium
Erforderliche Weiterentwicklung	- Bestimmung des erzielbaren Dekontaminationsgrades - Optimierung des Schleifmittels (Steine, Bänder) - Erprobung ferngesteuerter Systeme
Verfügbarkeit	problemlos bei den Schleifmitteln, fernbediente Systeme u.U. in einem Gerätepool vorzuhalten
Optimierungsmöglichkeiten	-

Tabelle 9

## Abfallmengen

=====

Dekontaminationsmittel	$\text{HNO}_3$ max. 60 o/o		$\text{HNO}_3$ / HF 20 o/o / 3 o/o		$\text{KMnO}_4$ a) alkalisch b) Citrat-Oxalatlösung	Dekontaminationspaste	Salzschmelze ***)
Konzentration	670 kg/m <sup>3</sup>		254 kg/m <sup>3</sup>		a) 30 kg $\text{KMnO}_4$ /m <sup>3</sup> 180 kg NaOH/m <sup>3</sup> b) ca. 100 kg gelöste Stoffe/m <sup>3</sup>	3,6 kg/m <sup>2</sup>	0,7 kg/m <sup>2</sup>
zu verarbeitende Lösungsmenge*)	1 m <sup>3</sup> Säure + 0,5 m <sup>3</sup> Wasser 1,5 m <sup>3</sup> r.a. Lösungen	1 m <sup>3</sup> Säure + 0,5 m <sup>3</sup> Wasser 1,5 m <sup>3</sup> r.a. Lösungen	1 m <sup>3</sup> a) 0,5 m <sup>3</sup> Wasser + 1 m <sup>3</sup> b) 0,5 m <sup>3</sup> Wasser 3 m <sup>3</sup> r.a. Lösungen	3 l Paste/m <sup>2</sup> + 50 l Wasser/m <sup>2</sup> — 53 l Lösung mit Feststoff/m <sup>2</sup>	10-50 l/m <sup>2</sup> Salzlösung		
Feststoffmenge zur Endlagerung	Behandlung mit Ameisensäure **)	Neutralisation	Behandlung mit Ameisensäure	Neutralisation	ca. 300 kg Salze ca. 3 Fässer Bitumenprodukt	3 kg/m <sup>2</sup> ca. 35 m <sup>2</sup> ergeben 1 Faß Bitumenprodukt	0,7 kg/m <sup>2</sup> ca. 150 m <sup>2</sup> ergeben 1 Faß Bitumenprodukt
	vernachlässigbar	900 kg $\text{NaNO}_3$ ca. 9 Fässer Bitumenprodukt	ca. 100 kg NaF ca. 1 Faß Bitumenprodukt	ca. 330 kg NaF/ $\text{NaNO}_3$ ca. 3 Fässer Bitumenprodukt			

\*) Summe aus Dekontaminationslösung und Spülwasser

\*\*) Verfahren in der technischen Entwicklung

\*\*\*) Abschätzungen an Laborversuchen

Tabelle 10

Gegenüberstellung der Dekontaminationsverfahren

Verfahren/Dekontaminationsmittel	Ausführung, Mobilität
Salpetersäure Salpetersäure-Flußsäure-Gemisch Alkal. Kaliumpermanganat-Lösung Zitronensäure-Oxalatsäure-Lösung	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ausführung des Verfahrens auch unter erschwerenden Bedingungen (Abschirmung) einfach realisierbar</li> <li>- ortsunabhängig</li> </ul>
Dekontaminationspasten Sandstrahlen	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ausführung des Verfahrens auch unter erschwerenden Bedingungen (Abschirmung) realisierbar, jedoch apparativ aufwendiger und anspruchsvoller</li> <li>- ortsunabhängig</li> </ul>
Salzschmelzen Schleifen	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ausführung wie oben, jedoch angepaßte Spezialapparaturen erforderlich, deren Bauelemente marktgängig sind</li> <li>- ortsunabhängig</li> </ul>
Dämpfe (Gase)	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ausführung wie oben, jedoch sind mit besonderen Installationen ausgestattete Arbeitszellen unumgänglich</li> <li>- ortsgebunden</li> </ul>

Tabelle 11

Gegenüberstellung der Dekontaminationsverfahren

Verfahren/Dekontaminationsmittel	Abfallmengen, Potential zur Reduzierung
Salpetersäure Salpetersäure-Flußsäure-Gemisch Alkalische Kaliumpermanganat-Lösung Zitronensäure-Oxalatsäure-Lösung	<ul style="list-style-type: none"><li>- Abfallmenge groß</li><li>- Potential, die Abfallmenge zu reduzieren vorhanden durch Spül- und Sprühtechnik</li><li>- Führung der Lösungen im Kreislauf</li><li>- Verringerung der Chemiekalienkonzentrationen</li><li>- Vorbehandlung der Abfalllösungen</li></ul>
Dekontaminationspasten Sandstrahlen	<ul style="list-style-type: none"><li>- Abfallmenge mäßig groß</li><li>- sehr geringes Potential hinsichtlich der Reduzierung der Abfallmenge</li></ul>
Salzschmelzen Schleifen	<ul style="list-style-type: none"><li>- Abfallmenge mäßig groß</li><li>- sehr geringes Potential hinsichtlich der Reduzierung der Abfallmenge</li></ul>
Dämpfe (Gase)	<ul style="list-style-type: none"><li>- Abfallmenge klein</li><li>- z.Z. keine Aussage zum Potential hinsichtlich Reduzierung der Abfallmenge möglich</li></ul>

## II. Dekontaminierbarkeit von Polyvinylchlorid- und Gummibodenbelägen (S. Kunze, ABRA)

### Problemstellung

Wegen der Gefahr der Kontamination durch radioaktive Substanzen müssen an Fußbodenbeläge in bezug auf Chemikalienbeständigkeit höhere Anforderungen gestellt werden als an jene in nichtnuklearen Bereichen, weil auftretende Kontaminationen unverzüglich mit Hilfe von Reinigungsmitteln mit oder ohne mechanische Unterstützung wie z.B. Scheuern entfernt werden müssen. Daher sollten in kontaminationsgefährdeten Bereichen nur solche Bodenbeläge eingesetzt werden, die auf Dekontaminierbarkeit hin geprüft sind oder die sich in der Praxis bewährt haben.

Weiterhin dürfen aufgrund der zu erwartenden Beanspruchung nur Bodenbeläge verwendet werden, die außerordentlich verschleißfest, maßstabil und unempfindlich gegenüber Druck- und Scherbeanspruchung sind. Es ist einleuchtend, daß die Dekontaminierbarkeit der Belagstoffe allein für die Praxis nicht ausreichend ist, sondern daß den Möglichkeiten der Naht- und Anschlußdichtung eine ganz besondere Bedeutung beigemessen werden muß.

Die Dekontaminationsprüfungen wurden an dem im Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelten Verfahren und einer zur Normung vorgesehenen Methode (E DIN 25 415) durchgeführt.

### Polyvinylchlorid (PVC)-Beläge

Aus den Dekontaminationsergebnissen von ca. 80 geprüften Kunststoff-Bodenbelägen hat sich ergeben, daß PVC-Beläge als Nutzbeläge in kontaminationsgefährdeten Räumen am besten geeignet sind und daher am häufigsten eingesetzt werden. Aufgrund dessen wurden nachfolgende Untersuchungen vorgenommen. Bei den Vorversuchen (Tabelle 4411-1), die an elf

Belagstoffen durchgeführt wurden, haben sich zwischen den Ergebnissen und den Belägen - untergliedert nach Herstellungsverfahren, Aufbau und Rezeptur - kaum Zusammenhänge erkennen lassen. Offenbar überdeckten von der Fertigung her auf den Oberflächen verbleibende Reste von Einzelkomponenten die Dekontaminationseigenschaften der Beläge.

Belag	Dekontaminationsergebnisse	
	Karlsruher Verfahren	Entwurf Deutsche Norm
1	sehr gut	sehr gut
2	gut	mittelmäßig
3	mittelmäßig-schlecht	gut
4	sehr gut	sehr gut
5	gut	mittelmäßig
6	gut-sehr gut	gut
7	gut	gut
8	gut	mittelmäßig
9	schlecht	schlecht
10	sehr gut-mittelmäßig	sehr gut
11	gut	gut

Tab.: 4411-1 Dekontaminationsergebnisse von PVC-Belägen

Deshalb wurden die Proben der gleichen Belagstoffe über die in den Prüfmethode festgelegten Vorbehandlungen hinaus zusätzlich mit Leichtbenzin gereinigt. Bei den Belägen 2, 9 und 12 (Tabelle 4411-2) wurden jeweils vier farblich verschiedene Fertigungen geprüft.

#### Auswertung der Dekontaminationsergebnisse

Die in Tabelle 4411-2 zusammengefaßten Dekontaminationsergebnisse nach dem Karlsruher Verfahren und dem Deutschen Normverfahren weisen eine recht gute Übereinstimmung auf. Selbst bei den weniger gut dekontaminierbaren Belägen sind die Vergleiche zufriedenstellend.

Die Dekontaminierbarkeit der Belagstoffe nach diesen Prüfverfahren kann weder von Herstellungsverfahren noch von der Zusammensetzung her allein klassifiziert werden.

Wie die Beläge 4 (ungefüllt) und 10 (>50% gefüllt) zeigen, besteht zwischen Füllstoffanteilen und Dekontamination in bestimmten Bereichen kein Zusammenhang, wenn man die Art des Füllstoffs unberücksichtigt läßt. Bei hochgefüllten Vinyl-Asbest-Belägen (Belag 12), deren Zuschlagstoffe teilweise hydrophil und deren Oberflächen nicht völlig geschlossen sind, ändern sich allerdings die Verhältnisse grundlegend. Solche Belagstypen sind für kontaminationsgefährdete Böden wegen der schlechten Dekontaminierbarkeit nicht geeignet.

Die nach dem kontinuierlichen Kalanderverfahren hergestellten Beläge 1, 2 und 3 enthalten alle gleiche Anteile amorpher Kreide, sind richtungsgemustert und hoch verdichtet. Alle geprüften Muster - hellgrau, rot, grün, blau- sind nach beiden Prüfverfahren gleichermaßen sehr gut dekontaminierbar.

Homogene Auma-Beläge 4 und 5 (leicht richtungsgemustert, füllstofffrei bzw. mit 23% amorpher Kreide gefüllt) sind auch sehr gut dekontaminierbar. Enthalten diese Beläge 6 jedoch mehr als 1/3 amorphe Kreide, so kann die Dekontaminierbarkeit schon gemindert werden.

Die zur Erzielung eines Oberflächenbildes mit überwiegend richtungsloser aber klar abgegrenzter Musterung nach einer verhältnismäßig "kalten" Fertigung hergestellten homogenen Press- oder Auma-Beläge 7,8 und 9 sind meistens gut dekontaminierbar. Die bei einigen Belägen ermittelten mäßigen bis schlechten Deko-Ergebnisse sind wahrscheinlich weder auf unterschiedliche Grundfarben noch auf den relativ gering abgestuften Füllstoffgehalt, sondern darauf zurückzuführen, daß im Bereich des Farbüberganges kein dichter und inniger Verbund gesichert ist. Beim niedrig gefüllten, aber mit unregelmäßigen Oberflächenvertiefungen versehenen Streichbelag 11 sind die Dekontaminationsergebnisse des Normverfahrens nur als gut zu klassifizieren. Das liegt daran, daß man im Gegensatz zum Karlsruher Verfahren auf die schwer reproduzierbare mechanische Einwirkung während der Dekontamination verzichtet hat.

Umfangreiche Untersuchungen bestätigen, daß hohe Wasseraufnahme und geringe Säurbeständigkeit der Beläge die Dekontaminierbarkeit mindern.

#### Chemische Beständigkeit

Die ermittelten Ergebnisse zeigen, daß die Wasseraufnahme sowie Säurebeständigkeit von der Menge und Art des Füllstoffs bzw. Homogenität und den Poren der Oberfläche abhängig sind. Es wäre aber falsch, aus diesen wenig differenzierenden und schwierig interpretierbaren Ergebnissen Bewertungsstufen zu schaffen, mit denen man direkt auf die Dekontaminierbarkeit der Beläge schließen kann.

#### Gummi-Beläge

Ergebnisse der angefertigten Prüfberichte

Die Ergebnisse der nach dem Karlsruher Verfahren angefertigten Gutachten über die Dekontaminierbarkeit von Gummibelägen sind in Tabelle 4411-3 zusammengefaßt.

Tab. 4411-3: Dekontaminationsergebnisse von Gummibelägen

Probentyp	Bewertung der Dekontaminierbarkeit					Gesamtzahl
	sehr gut	gut	mittel- mäßig	schlecht	sehr schlecht	
Gummibeläge aus natürl. u. synth. Kautschuk	2	3	7	5	8	25
Gummibeläge aus natürl. u. synth. Kautschuk zusätzlich stark ge- füllt	-	-	-	-	6	6

Nimmt man für alle aus natürlichem oder synthetisiertem Kautschuk angefertigten Belägen eine zeitliche Aufgliederung der durchgeführten Prüfungen vor, so sind die in den 60er Jahren untersuchten Beläge für kontaminationsgefährdete Räume nicht zu empfehlen. Hingegen haben unter denen ab 1970 begutachteten Proben einige die Beurteilung sehr gut dekontaminierbar erhalten. Alle geprüften stark gefüllten Beläge sind für die Kerntechnik ungeeignet.

Aufgrund der in den letzten Jahren verbesserten Dekontaminierbarkeit, die wahrscheinlich auf eine Änderung der Zusammensetzung der Beläge zurückzuführen ist, erschien es sinnvoll gezielte Dekontaminationsprüfungen in Abhängigkeit von Aufbau der Gummibeläge vorzunehmen.

#### Klassifizierung neuerer Gummibeläge

Gummibeläge werden durch chemische Reaktionen ("Härten") aus Polymeren, Vulkanisationsmittel und Füllstoffen hergestellt. Da die Dekontaminierbarkeit der Gummibeläge überwiegend von der Art der bei der Herstellung verwendeten Füllstoffe (siehe Tabelle 4411-4) und weniger von den hier verwendeten Polymeren anhängig ist, soll kurz auf die Klassifizierung der Füllstoffe eingegangen werden.

- 1, aktive Füllstoffe (Korngröße 0,01-0,03µm) z.B. synthetische Ruße, Graphit synthetische Kieselsäuren. Diese Substanzen tragen in erster Linie zu einer guten "chemischen Bindung" mit den Polymeren bei.
- 2, halbaktive Füllstoffe (Korngröße 0,03-0,5 µm) z.B. Kalziumsilikate, wie Hartkaolin, Tone
- 3, inaktive Füllstoffe (Korngröße 0,5-5 µm) z.B. Jurakreide Schwerspat, Titandioxid, Magnesiumoxid

#### Dekontaminationsergebnisse

Die in Tabelle 4411-4 zusammengefaßten Ergebnisse der beiden Prüfverfahren zeigen - obwohl die Belagsoberflächen vor der im Prüfverfahren festgelegten Vorbehandlung hinaus mit Leichtbenzin oder Aceton gereinigt wurden- gute Übereinstimmung.

#### Abhängigkeit der Ergebnisse von den Füllstoffen

Wurden die Beläge mit Ruß oder/und Graphit, Hartkaolin, Bariumsulfat Titandioxid gefüllt, so ist die Dekontaminierbarkeit selbst bis 66% Füllstoffgehalt (Beläge 2,8 und 9) besser als gut zu beurteilen.

Wurden zu diesen Füllstoffen nur sehr geringe Mengen an aktiver hygroskopischer Kieselsäure (z.B. Ultrasil mit bis zu 7% Wasser) zugesetzt, so ist die Dekontaminierbarkeit bei dem Belag 3 noch sehr gut, bei Belag 5 gut und bei Belag 4 mittelmäßig zu beurteilen.

Wurden 20% und mehr Ultrasil zugegeben, so ist die Dekontaminierbarkeit sehr schlecht (Beläge 1 und 6). Dies gilt ebenso für den Belag 12, der auf Chloropren-Butadien-Kautschukbasis aufgebaut ist. Diese Beläge sind daher für die kerntechnische Praxis ungeeignet.

Wurden neben Hartkaolin (halbaktiver Füllstoff) nur hygroskopische Füllstoffe wie Ultrasil oder Magnesiumoxid verwendet, so sind die Beläge 7, 10 und 11 für kontaminationsgefährdete Räume ebenfalls nicht brauchbar.

#### Abhängigkeit der Ergebnisse von den Polymeren

Obwohl hypalonhaltige, bis zu 66% mit nichthygroskopischen Füllstoffen gefüllte Beläge die besten Dekontaminationswerte ergaben, kann aus den untersuchten Gummimischungen -außer denen die Altgummi enthalten - gefolgert werden, daß alle mit derselben Füllstoffmischung versehenen Polymeren bzw. deren Mischungen ähnliche Ergebnisse liefern. Eine Abhängigkeit der Dekontaminierbarkeit von den hier verwendeten sechs Polymeren ist unwahrscheinlich.

#### Chemikalienbeständigkeit

Für die Chemikalienbeständigkeit gelten überwiegend die gleichen Aspekte wie für die PVC-Beläge. Die Abhängigkeit von Dekontaminierbarkeit und Chemikalienbeständigkeit ist jedoch deutlicher ausgeprägt. Aus der Tabelle 4411-5 ist, zusammen mit Tabelle 4411-4 zu entnehmen:

- Wasser- und säurebeständige Beläge, die keine oder nur minimale Mengen an aktiven hygroskopischen Füllstoff enthalten, sind gut dekontaminierbar.
- Wasserbeständig aber wenig säurebeständige Beläge können wie Beispiel 7 ergab, gut dekontaminierbar sein.
- Eine Abhängigkeit der Dekontaminierbarkeit vom spezifischen Gewicht und der Härte der Beläge konnte nicht festgestellt werden.

Tabelle 4411-5: Zusammenhänge zwischen Dekontaminierbarkeit und physikalischen Daten der Gummibeläge  
- Gewichtszunahme durch Wasser, spez. Gewicht, Höhe -

Belag	Dekontaminierbarkeit	Gew.-Zunahme durch Wasser (48h bei 90°C) in %	spez. Gewicht	Härte in ° Shore A
1	5	7,0	1,16	78
2	1	1,8	1,18	78
3	1	1,6	1,32	82
4	3	1,1	1,50	97
5	2	3,0	1,19	92
6	5	4,0	1,33	85
7	5	1,2	1,71	95
8	1-2	3,0	1,72	90
9	1	5,5	1,93	92
10	5	2,7	1,45	81
11	5	2,5	1,43	82
12	3-4	6,5	1,33	75

Zusammenfassung der Ergebnisse

PVC-Beläge sind die seit Jahren in kontaminationsgefährdeten Räumen am häufigsten eingesetzten Beläge. Sie lassen sich durch Verschweißung und ohne Zusatzstoffe flüssigkeitsdicht verbinden. Es hat sich gezeigt, daß zwischen Füllstoffanteilen und Dekontaminierbarkeit in bestimmten Bereichen kein Zusammenhang besteht. Bei hochgefüllten Belägen, deren Zuschlagstoffe auch hydrophile Anteile enthalten, ist die Dekontaminierbarkeit teilweise erheblich gemindert. Eine Abhängigkeit vom Grundfarbton konnte nicht festgestellt werden. Beläge mit überwiegend klar abgegrenzter, richtungsloser Musterung, die wegen der Oberflächenoptik "kalt" hergestellt wurden, sind für Kontaminationsbereiche nur mit Vorbehalt zu empfehlen.

Die Dekontaminationsergebnisse von Gummibodenbelägen hingegen sind erst in letzter Zeit mehr zufallsbedingt verbessert wurden. Ihr Einsatz in radiochemischen Laboratorien und Anlagen ist noch minimal, obwohl sie gegenüber PVC-Belägen neben Nachteilen (z.B. flüssigkeitsdichte Verbindung mittels Fugenmasse) auch einige Vorteile (besseres Brandverhalten, da keine Abgabe von Salzsäuregasen; höhere Chemikalienbeständigkeit, Rutsch- und Verschleißfestigkeit) haben.

Viel wichtiger als bei den PVC-Belägen ist hier die richtige Auswahl der Füllstoffe bzw. deren Mischungen, die mit dem Polymeren eine gute "chemische Bindung" eingehen. Die Untersuchungen ergaben, daß gut dekontaminierbare dunkle Gummibodenbeläge durch Härten mit Ruß oder/und Graphit, helle Beläge durch Zusätze von Hartkaolin, Bariumsulfat, Titandioxid und nur sehr geringen Mengen an aktiver hygroskopischer Kieselsäure hergestellt werden können. Steigende Mengen an hygroskopischen Füllstoffen mindern im Gummibelag immer die Dekontaminierbarkeit.

Tabelle 4411-2: Dekontaminationsergebnisse von PVC-Belägen, die vor dem Prüfverfahren mit Leichtbenzin behandelt wurden

Belag	Herstellungsverfahren	Aufbau	Füllstoffe	Dekontaminationsergebnisse	
				Karlsruher Verfahren	Entwurf Deutsche Norm
1	Kalanderbelag	heterogen	24% amorphe Kreide	sehr gut	sehr gut
2	Kalanderbelag I II III IV	homogenes Oberteil auf PVC-Schaum	24% amorphe Kreide	sehr gut gut-sehr gut sehr gut sehr gut	sehr gut sehr gut sehr gut sehr gut
3	Kalanderbelag -antistatisch-	heterogen	24% amorphe Kreide	sehr gut	sehr gut
4	Auma-Belag	homogen	kein Füllstoff nur Farbpigmente	sehr gut	sehr gut
5	Auma-Belag	homogen	23% amorphe Kreide	sehr gut	sehr gut
6	Auma-Belag	homogen	34% amorphe Kreide	gut-sehr gut	gut-sehr gut
7	Press-Belag aus Granulat	homogen	20% amorphe Kreide	gut	gut
8	Press-Belag-leitfähig aus Granulat	homogen	20% amorphe Kreide-Ruß	gut-sehr gut	gut-sehr gut

Fortsetzung Tabelle 4411-2 Dekontaminationsergebnisse von PVC-Belägen, die vor dem Prüfverfahren mit Leichtbenzin behandelt wurden

Belag	Herstellungsverfahren	Aufbau	Füllstoffe	Dekontaminationsergebnisse	
				Karlsruher Verfahren	Entwurf Deutsche Norm
9	Auma-Belag I aus Granulat II III IV	homogen	24,5% amorphe Kreide	gut gut-mittelmäßig gut-schlecht mittelmäßig	gut gut gut mittelmäßig
10	Einschichtenbelag	homogen (echt!)	53% davon 2/3 krist.Kreide	sehr gut	sehr gut
11	Streichbelag	heterogen	7% krist.Dolomit	sehr gut	gut
12	Walzwerke I Vinyl-Asbest II III IV	homogen	Asbest+mineralische Zuschlagstoffe 75%	mittelmäßig mittelmäßig gut-schlecht mittelmäßig	mittelmäßig mittelmäßig gut mittelmäßig

Tabelle 4411-4: Dekontaminationsergebnisse von Gummi-Belägen, die vor dem Prüfverfahren mit Leichtbenzin oder Aceton behandelt wurden

Belag	Polymeres	Füllstoffgehalt		Pigment	Dekontaminationsergebnisse	
		Menge	Art		Karlsruher Verfahren	E DIN 2545
1 beige	SBR	31%	hygroskop. aktiver <u>Ultrasil</u> +)	keine	5	5
2 schwarz	SBR	43%	aktiver <u>Ruß</u>	Ruß	1	1
3 anthrazit	SBR	44%	aktiver+inaktiver <u>Graphit</u> Ruß,Ultrasil, TiO <sub>2</sub>	Graphit	1	1
4 grün	SBR	52%	hygroskop.aktiver+halb- aktiver <u>Ultrasil,Härtkaolin</u>	organisch < 1%	3	3
5 schwarz	SBR+PE	34%	aktiver+halbaktiver Ultra- sil,Ruß+ <u>Härtkaolin</u>	Ruß	2	2
6 rot	SBR+PE	40%	hygroskop.aktiver bis in- aktiver 20% <u>Ultrasil</u> , 20% Härtkaolin + Kreide	organisch < 1%	5	5
7 grau	SBR+NR+ 10% Gummi- abfälle	61%	aktiver bis inaktiver Ultra- sil, <u>Härtkaolin</u> , <u>Kreide</u> , MgO	Metalloxide 3-4%	5	5
8 grau	NR+SBR+ CSM	30%	halb- +inaktiver <u>Härt-</u> <u>kaolin</u> +TiO <sub>2</sub> ,BaSO <sub>4</sub>	Metalloxide 3-4%	1 - 2	1 - 2
9 hell- grau	CSM+NR	67%	halb- +inaktiver Hart- kaolin + <u>BaSO<sub>4</sub></u> , TiO <sub>2</sub>	keine	1	1

Fortsetzung

Tabelle 4411-4: Dekontaminationsergebnisse von Gummi-Belägen, die vor dem Prüfverfahren mit Leichtbenzin oder Aceton behandelt wurden.

Belag	Polymeres	Füllstoffgehalt		Pigment	Dekontaminationsverfahren	
		Menge	Art		Karlsruher Verfahren	E DIN 2545
10 11 oliv+ grün	EPDM EPDM+PE	52%	hygroskop.aktiver+halb- aktiver Ultrasil <u>Hartkaolin</u>	Metalloxide 3-4%	5	5
12 rubin- rot	CR+SBR	32%	hygroskop.aktiver <u>Ultrasil</u>	organisch < 1%	3 - 4	3 - 4

Erläuterungen zu Tabelle 4411-4:

SBR = Styrol - Butadien - Kautschuk

PE = Polyäthylen

NR = Naturkautschuk

CSM = Hypalon

EPDM = Äthylen-Proylen-Kautschuk

CR = Chloropren

+) der Strich bedeutet: einzige oder überwiegende Komponente

### III. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschnmelzen

(D. Hentschel, ABRA)

In den vorausgegangenen Berichten wurden Dekontaminationsversuche mit Salzschnmelzen in Tauchbädern an Edelstahlproben (Werkstoff-Nr. 1.4541), die im Autoklaven 500 Stunden lang bei 300°C und 88 atü mit einer Nuklidlösung behandelt wurden, beschrieben. Im 2. Halbjahresbericht 1974 ist eine Zusammenstellung der Schnmelzen gegeben worden, die für Dekontaminationszwecke geeignet sind. (1,2)

Zur Absicherung dieser Werte wurden weitere Versuche mit diesen Schnmelzen in Tauchbädern an Proben, die mit einer Schweißnaht versehen waren und wie oben beschrieben kontaminiert wurden, durchgeführt. In der Tabelle 4411-6 sind die erzielten Ergebnisse zusammengefaßt und mit denen, die an ungeschweißten Proben erhalten wurden, verglichen. Daraus ist ersichtlich, daß sich die Dekontaminationsergebnisse weitgehend decken. Die Schweißnaht, in der sich - wie die Autoradiographie zeigt - der größte Teil der Aktivität festsetzt, wird also ebenso dekontaminiert wie das ungeschweißte Material. Tabelle 4411-6 demonstriert weiterhin, daß Salpetersäure nach der Behandlung mit den Schnmelzen weitere noch verbleibende Aktivität von den Proben entfernt. Bei Phosphaten ist diese Behandlung nicht erforderlich.

In der Tabelle ist zusätzlich das Aussehen der Proben nach der Behandlung und die Wirkung der Salpetersäure auf Proben, die mit den Schnmelzen behandelt wurden, angegeben. (Salpetersäure wurde fünf Minuten auf die Probe bei 60° gelassen). Es ergeben sich folgende Zusammenhänge:

- Proben, die nach der Salzbehandlung blank und unbeschädigt sind, wurden gut dekontaminiert.
- Nach der Salzbehandlung angelaufene Proben wurden relativ schlechter dekontaminiert.
- Sehen angelaufene Proben nach der Salpetersäure-Behandlung blank aus, so wurde weitere Aktivität entfernt.

Mit den erzielten Ergebnissen und der Auswahl der Salzschnmelzen können die Tauchversuche prinzipiell als abgeschlossen gelten. Der Vollständigkeit halber sollen noch Versuche mit anderen Werkstoffen und erweiterten Nuklidgemischen mit den ausgewählten Schmelzen durchgeführt werden sobald entsprechendes Probenmaterial vorliegt. Außerdem sind noch Korrosionsuntersuchungen erforderlich.

Das Hauptziel der Arbeiten mit den Salzschnmelzen ist es, zur Reduzierung der Abfallmengen, eine geeignete Apparatur zu installieren, die es gestattet die Salze in dünnen Schichten auf die Werkstücke zu bringen, von denen sie nach einer bestimmten Einwirkzeit wieder entfernt werden.

Als dazu geeignet erwies sich eine Flammsspritzanlage. Abb. 1 zeigt schematisch den Aufbau der Anlage. Sie besteht aus zwei Einheiten.

1. Der Dosiervorrichtung, in die das vorbehandelte (auf 80 $\mu$  vermahlene und getrocknete) Pulver aus einem Vorratsgefäß mit Hilfe eines Stickstoffstroms gedrückt wird. Die Dosierung erfolgt mit Hilfe eines rotierenden, im Mantel mit Kerben versehenen Zylinders. Die Kerben werden gleichmäßig durch einen Vibrator beladen. Das dosierte Pulver gelangt mit Hilfe des Stickstoffstromes zur Flamme.

2. Die Spritzvorrichtung besteht aus der Brenndüse, der Materialzuführung und einem Düsenkranz, durch den Preßluft zur Kühlung der Flamme geleitet wird. Brenngase sind Acetylen und Sauerstoff.

In der Flamme werden die zudosierten Salze aufgeschmolzen und treffen auf das vorgewärmte Werkstück, auf dem sie haften bleiben und nach der vorgegebenen Einwirkzeit wieder abgelöst werden.

Diese beschriebene Anordnung schränkt die Einsetzbarkeit der für Dekontaminationszwecke geeigneten Salzschnmelzen weiter ein, da folgende Bedingungen für das Spritzen mit dieser Apparatur erfüllt sein müssen.

- Die Salze müssen sich auf eine Korngröße von 80 $\mu$  mahlen lassen, damit sie zudosiert werden können.
- Aggressive Salze sind nicht einsetzbar, da sie an dem Spritzgerät Schäden verursachen.

- Der Transport hygroskopischer Salze zur Flamme bereitet Schwierigkeiten.
- Die Einwirkzeit des Salzes auf das Material soll kurz sein, damit der Zeit- und Energieaufwand bei der Dekontamination möglichst gering ist.

Unter diesen Gesichtspunkten ist nur der Einsatz von Phosphaten mit dem installierten Flamm-spritzgerät möglich. Alle anderen Salze erfüllen die genannten Bedingungen nur teilweise. Da jedoch bei ammoniumhaltigen Salzen Schwierigkeiten bei der Aufarbeitung des radioaktiven Abfalls auftreten, ist Kaliumdihydrogenphosphat bis jetzt das einzige, vorbehaltlos einsetzbare Salz. Es hat allerdings den Nachteil, daß es leicht zum Metaphosphat kondensiert, so daß auf exakte Einhaltung der Arbeitstemperatur zu achten ist. Die Flamm-spritzanlage wurde vor der Beschaffung mit diesem Salz erfolgreich erprobt.

Zur Erarbeitung der günstigsten Arbeitsbedingungen wurden mit Kaliumdihydrogenphosphat zwei weitere Vorversuchsreihen in Tauchbädern durchgeführt.

- Um die günstigste Einwirkzeit des Salzes auf die Werkstücke zu ermitteln wurde die Abhängigkeit zwischen Zeit und Dekontaminationserfolg untersucht. Es ergab sich, daß eine zehnminütige Behandlung ausreichend ist.
- Zur Ermittlung der für die Dekontamination mit dem Flamm-spritzgerät günstigsten Schichtdicke wurde die Salzhaftung auf den Proben bestimmt. Es zeigte sich, daß Schichtdicken bis zu 0,3mm haften. Beim Flamm-spritzen konnten Dicken um 0,03 mm erzielt werden.

Um den Vorteil des Flamm-spritzens gegenüber dem Tauchverfahren zu demonstrieren, wurde in Tabelle 4411-7 eine Abfallkalkulation durchgeführt. Sie zeigt, daß man für  $1 \text{ m}^2$  zu dekontaminierende Fläche in Tauchbädern 10-30 kg Salz benötigt. Der Wert wurde experimentell gefunden. Die Spannbreite kommt daher, daß die Menge von der Geometrie des Dekontaminationsobjektes abhängig ist. Die gesamte Salzmenge gelangt hierbei in den radioaktiven Abfall.

Reihe 2 gibt eine theoretische Betrachtung des Flammgespritzens. Mit der oben genannten Schichtdicke von 0,3 mm benötigt man pro m<sup>2</sup> 0,7 kg Salz. Löst man dieses in Wasser und kalkuliert 30% der Sättigung des Salzes so fallen ca. 10 l Abfalllösung an.

Reihe 3 gibt experimentelle Daten an. Hier ist aufgrund ungünstiger Abspülung der Wasseranfall trotz geringerer Salzmenge höher.

Die Klärung der optimalen Salzsichtdicke zur Dekontamination, der Reduzierung der Spülwassermenge, der geeigneten Arbeitstemperaturen und der geeigneten Anordnung ist die Aufgabe der weiteren Versuche mit Salzschnmelzen.

#### Literatur

- {1} 1. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK 2050
- {2} 2. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK 2130

Tabelle 4411-6: Dekontaminationsergebnisse mit Salzschnmelzen an geschweißten und ungeschweißten  
Edelstahlproben (1.4541)

Schmelze	Restaktivität D, %									Aussehen	
	$^{60}\text{Co}$		$^{106}\text{Ru/Rh}$		$^{144}\text{Ce}$		geschw. nach $\text{HNO}_3$ -Behandl			nach Salz- beh.	nach $\text{HNO}_8^-$ Beh.
geschw.	ungeschw.	geschw.	ungeschw.	geschw.	ungeschw.	$^{60}\text{Co}$	$^{106}\text{Ru}$	$^{144}\text{Ce}$			
$\text{KH}_2\text{PO}_4$	0,2	1,3	0,4	0,4	0,5	2,3	-	-	-	blank	-
$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$	1,1	1,6	1,5	8,6 <sup>+</sup>	0,8	1,9	-	-	-	blank	-
$\text{KH}_2\text{PO}_4/\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$	1,7	0,7	1,7	0,4	0,8	0,1	-	-	-	grau	-
$\text{NaOH/KOH/Na}_2\text{CO}_3/\text{Na}_2\text{O}_2$	1,3	2,4	13,2 <sup>+</sup>	7,5 <sup>+</sup>	0,3	3,0	0,5	1,0	0,3	braun	blank
$\text{NaOH/KOH/Na}_2\text{O}_2$	3,2	4,9	5,7	2,3	1,2	0,3	2,0	1,5	0,3	braun	blank
$\text{NaOH/KOH}$	1,2	2,4	16,5 <sup>+</sup>	25,2 <sup>+</sup>	0,5	8,6	0,3	0,4	0,3	braun	blank
$\text{NaCl/KCl/AlCl}_3$	1,0	4,0	3,7	3,5	0,6	0,6	0,5	0,3	0,3	fleckig	graufleckig
$\text{KCl/AlCl}_3$	7,4	3,9	4,4	8,9	5,0	4,3	5,5	1,4	3,0	fleckig	graufleckig
$\text{NaHSO}_4/\text{KHSO}_4/\text{Al}_2\text{O}_3$	7,8	11,6	14,5	36,5	3,9	14,5	1,4	3,0	1,4	dunkelgr.	hellgrau

+ ) Bei der Kontamination angegriffenes Probenmaterial

Tabelle 4411-7: Salzbedarf und Abfallkalkulation ermittelt aus Laborversuchen

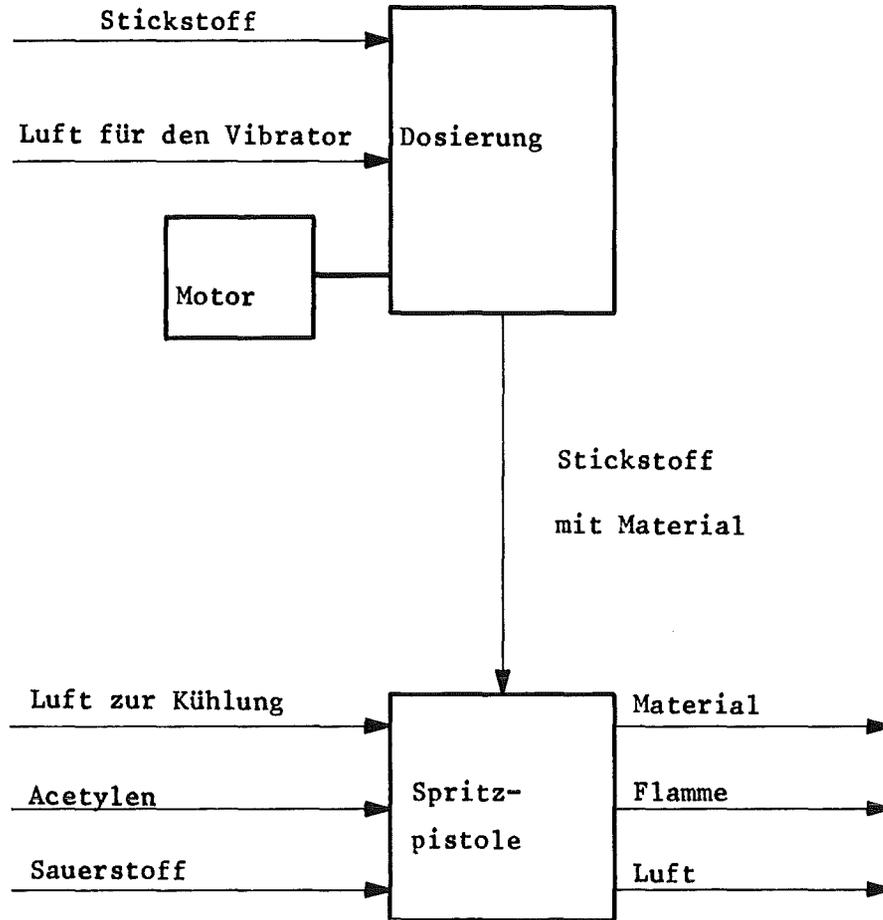
	Bedarf pro m <sup>2</sup>	Schichtdicke mm	Wasserverbrauch zur Spül/m <sup>2</sup>
Salz im Tauchbad <sup>1)</sup>	10-30 kg	-	keine Auflösg. erforderlich
Flammspritzen th <sup>2)</sup>	0,7 kg	0,3	ca. 10 l
Schichtdicke exp <sup>3)</sup>	0,07 kg	0,03	ca. 50 l

1) bei dreimaliger Benutzung des Bades, dies ist möglich wie Experimente zeigten. Die Spannweite kommt zustande, weil die Menge von der Geometrie des Dekontaminationsobjekts abhängig ist.

2) Theoretisch aus Haftversuchen und Löslichkeitsangaben

3) Praktisch an Proben ermittelte Werte

Abb. 4411-1: Schematischer Aufbau der Flamm-spritzanlage



4412 Wanderung langlebiger Transurane im Boden und in geologischen Formationen

Wahrscheinlichkeitsansatz zur Behandlung der Aktinidenfreisetzung aus einem Endlager

(A. Jakubick)

Wegen der extrem langen Halbwertszeit einiger Aktiniden im radioaktiven Abfall und der zeitlich begrenzten Lebensdauer des Containments ist eine Kontamination der im direkten Kontakt mit dem radioaktiven Abfall stehenden geologischen Formation z.B. Steinsalz auf lange Sicht unvermeidbar.

Dies bedeutet jedoch noch keine Aktivitätsfreisetzung aus dem Endlager, da die tiefliegende Kontamination von der Biosphäre gut isoliert ist. Sofern nicht gleichzeitig auch eine Beschädigung der isolierenden Schichten erfolgt, kann die Kontaminationsausbreitung nur durch Diffusion in der festen Phase ablaufen. Die Diffusionskonstante liegt in der Größenordnung von  $10^{-12}$  cm<sup>2</sup>/sec. Die Ausbreitung kommt damit erst nach  $10^4$  Jahren in den cm-Bereich.

Lediglich ein Wassereintrich in das Endlager mit gleichzeitiger Beschädigung der isolierenden Grenzsicht kann potentiell zu einer Kontaminationsfreisetzung führen. Zur Abschätzung der Möglichkeiten einer Störung der existierenden geologischen Lagerungsverhältnisse durch seltene Naturereignisse (z.B. durch Erdbeben in einem aseismischen Gebiet) kann ein Wahrscheinlichkeitsansatz benutzt werden, wenn man davon ausgeht, daß das Ereignis von zufälliger Natur ist.

Es sei  $p_0$  die Erwartungswahrscheinlichkeit eines solchen Ereignisses innerhalb eines Jahres und  $p_{n,1}$  die Erwartungswahrscheinlichkeit innerhalb von n Jahren. Die Wahrscheinlichkeit des Nichteintretens innerhalb eines Jahres ist dann:

$$p_{1,0} = 1 - p_0 \quad (\text{Gl. 1})$$

und des Nichteintretens innerhalb von n Jahren:

$$p_{n,0} = (1 - p_0)^n \quad (\text{Gl. 2})$$

Der Wahrscheinlichkeit des Eintretens innerhalb von n Jahren entspricht also:

$$p_{n,1} = 1 - (1 - p_0)^n \quad (Gl. 3)$$

Da es sich um ein seltenes Ereignis handelt, ist  $p_0$  grundsätzlich klein. Die Gleichung 3 in eine binomische Reihe entwickelt ergibt:

$$p_{n,1} = 1 - \{1 - \binom{n}{1}p_0 + \binom{n}{2}p_0^2 - \binom{n}{3}p_0^3 \dots\} \quad (Gl. 4)$$

n in der Gleichung 4 ist groß, da es sich bereits um eine geologisch meßbare Zeitdauer handeln soll. Man darf daher aus der Gleichung 4 ableiten:

$$p_{n,1} = np_0 - \frac{1}{2}(np_0)^2 + \frac{1}{6}(np_0)^3 - \frac{1}{24}(np_0)^4 \dots \quad (Gl. 5)$$

was wiederum

$$p_{n,1} = 1 - e^{-np_0} \quad (Gl. 6)$$

gleichkommt.

Die abgeleitete Beziehung ist nichts anderes als der bekannte Poisson-Grenzwert für den speziellen Fall der Binominalverteilung, wenn man nach der Wahrscheinlichkeit eines einzigen Ereignisses fragt. Aus Gleichung (6) kann man herlesen, daß bei Annahme einer jährlichen Erwartungswahrscheinlichkeit von  $p_0 = 10^{-4}$  eine 95% Eintrittswahrscheinlichkeit nach 30000 Jahren folgt.

Faßt man jedoch  $p_0$  nicht räumlich konstant auf, sondern als zeitlich variabel:  $p_0 = f(x, y, t)$ , so könnte man der Ansicht sein, daß man über die Häufigkeit von Naturkatastrophen in einem Gebiet nur anhand der menschlichen Erfahrungen aussagen kann. Das würde bedeuten, daß als "selten" nur solche Ereignisse zu bezeichnen sind, die während der letzten 1000 bis 5000 Jahre in einem Gebiet nicht aufgetreten sind und gegen die keine schlüssigen geologischen Beweise erbracht werden können. In diesem Fall müßte man konservativ  $p_0 = 10^{-3}$  annehmen. Die Erwartungswahrscheinlichkeit einer Naturkatastrophe würde bei dieser Betrachtungsweise 3000 Jahre betragen.

Abschließend muß betont werden, daß die hier dargelegten Ableitungen keinen konkreten Fall der Endlagerung betrafen, lediglich der Demonstration eines möglicherweise nützlichen Ansatzes bei Sicherheitsbetrachtungen zur Endlagerung zum Ziele hatten.

4420 Technik der Räum- und Demontgearbeiten

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

Der Dringlichkeit wegen wurde mit Untersuchungen für die Projektierung einer Anlage zur Dekontamination und endlagerfähigen Aufbereitung aktiver, schwerer Reaktor-Komponenten (Konditionierungsanlage) begonnen und die Arbeiten im Hinblick auf das Ausräumen eines durch einen schweren Störfall beschädigten Reaktor-Cores unterbrochen. Die Frage, ob eine zentrale Anlage, mehrere über das Gebiet der BRD verteilte kleinere Anlagen oder eine Behandlung in unmittelbarer Nähe des jeweiligen Kernkraftwerkes teilweise oder ganz mit mobilen Einrichtungen zweckmäßiger sind, wurde zunächst ausgeklammert und müßte gesondert untersucht werden. Studien, die u.a. hierfür die Grundlagen liefern sollen, sind z.Z. bei NUKEM/ TN und NIS in Arbeit<sup>+</sup>.)

Vorerst wurde die Variante "zentrale Anlage" untersucht. Die Ergebnisse sind zum großen Teil auch für mehrere kleine Anlagen oder die kombinierte Verfahrensweise (Arbeiten teilweise am Standort des Kernkraftwerkes und in einer gesonderten Anlage) gültig.

Soweit sich die Probleme z.Z. übersehen lassen bzw. nach dem gegenwärtigen Stand der Diskussion sind vier Aufgaben für die zu planende Anlage zu unterscheiden:

1. Verschrottung mittelaktiver Komponenten
2. Verschrottung schwachaktiver Komponenten
3. Reparatur mittelaktiver Komponenten
4. Reparatur schwachaktiver Komponenten.

Berücksichtigt man, daß vor der Verschrottung noch eine Dekontamination zweckmäßig sein kann, so sind sechs verschiedene Behandlungsarten zu unterscheiden.

---

<sup>+</sup>) 1) Dekontamination und Transportprobleme bei der Beseitigung von Kernkraftwerken (NUKEM/ TN)  
2) Quantitative Mengenstromanalyse für radioaktive Abfälle bei der Stilllegung von Kernkraftwerken (NIS)

Zunächst wurden die drei Teilgebiete bearbeitet:

- Betriebserfahrungen in großen Heißen Zellen-Anlagen bei Demontage-Arbeiten und der Behandlung aktiver Abfälle
- Auslegungs-Gesichtspunkte bezüglich einer Konditionierungs-Anlage und Funktions-Abläufe
- Zerlegemethoden.

#### 1. Betriebserfahrungen in großen Heißen-Zellen-Anlagen

Es ist bis jetzt noch keine Heiße Zellen-Anlage bekannt geworden, die speziell zur Konditionierung von aktiven, schweren Reaktorkomponenten konzipiert wurde. Bei der bisherigen Behandlung radioaktiver Abfälle, Demontage aktiver Komponenten, Betrieb Heißer Zellen sowie der übrigen Strahlenschutztechnik und der fernbedienten Handhabung wurden jedoch bereits eine Fülle von Erfahrungen gewonnen und zahlreiche Methoden entwickelt, auf die bei der Projektierung einer Konditionierungsanlage zurückgegriffen werden kann.

In den Zellen der Anlage FERAB (GfK) für mittelaktive feste Abfälle werden im Prinzip die gleichen Hauptarbeiten ausgeführt, wie sie voraussichtlich bei der Großkomponenten-Konditionierung zu bewältigen wären, nämlich Zerkleinerung, Verpackung, Fixierung und Zwischenlagerung. Daher sind die Bauweise der FERAB und die mit ihr gemachten Betriebserfahrungen von besonderem Interesse.

Als Beispiel für eine Reprocessing-Anlage wurden die wichtigsten relevanten bei der WAK (Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe) gesammelten Erfahrungen ermittelt; als Beispiel für Anlagen zur Durchführung diverser mechanischer Arbeiten wurden die Heißen Zellen im Gebäude 701 (GfK) herangezogen.

Darüber hinaus wurden mehrere in den USA gebaute Anlagen mit Großzellen in Betracht gezogen.

Zusammenfassend ist festzustellen:

Das Konzept der untersuchten Anlagen und ihre Ausrüstung haben sich im wesentlichen bewährt. Da die Anforderungen die Tendenz hatten, im Laufe der Zeit zu wachsen und auch z.T. neuartige hinzukamen, kann einer Reihe von heutigen Erfordernissen nicht entsprochen werden. Hieraus ergibt sich im Hinblick auf die Konditionierungsanlage, daß bei der Auslegung besonders auf Flexibilität, Erweiterungsmöglichkeiten und kapazitive Reserven zu achten ist. Besondere Sorgfalt ist auf die Ausbildung der Ein- und Ausschleus-Systeme sowie die funktionellen Abläufe aufzuwenden, da hierdurch die Leistungsfähigkeit bzw. und Sicherheit einer derartigen Anlage entscheidend mitbestimmt wird.

## 2. Auslegungs-Gesichtspunkte bezüglich einer Konditionierungs-Anlage und Funktions-Abläufe

Die bisherigen Untersuchungen ergaben folgende Auslegungs-Gesichtspunkte für den Teil der Anlage zur Behandlung mittelaktiver Komponenten:

Nach den bisherigen Erfahrungen, insbesondere bei der FERAB, erscheint es sinnvoll, das übliche Heiße Zellen-Konzept zu wählen, d.h. Strahlenschutzfenster in Beton-Abschirmwänden, Manipulatoren und fernbedienbare Geräte für die Zerlegung usw. vorsehen. Die Abmessungen der Anlage werden im Bereich des Einschleusens und der Zerlege-Zelle voraussichtlich in erster Linie von der Größe der Komponenten bestimmt und in anschließenden Teil von Material-Durchsatz. Da  $\alpha$ -dichte Zellen nicht erforderlich sind, vereinfacht sich die Ein- und Ausschleus-Technik. Zweckmäßigerweise sind die Zellen des kontaminierten sowie die Räume des sauberen Bereiches jeweils zu einem Komplex zusammengefasst und mit Schleussystemen zwischen den Bereichen versehen. Die Zellen sollten nach Entfernen der Abfälle im Prinzip einzeln kurzzeitig betretbar sein, ohne daß der Betrieb der übrigen gestört wird.

Neben den eigentlichen Arbeitszellen ist es bei größeren Anlagen vorteilhaft, für unerläßliche Nebenaufgaben, wie in erster Linie Be- und Entladen von Transportbehältern sowie Ein- und Ausschleusen, Wartung und Reparatur kontaminierter Geräte, Lagerung kontaminierter Geräte

bis zur Wiederverwendung, Hilfszellen vorzusehen. Auf diese Weise können die Arbeitszellen für ihre eigentliche Aufgabe voll ausgenutzt werden und die Leistungsfähigkeit der Anlage bzw. die Sicherheit lassen sich erhöhen. Auch die Hilfszellen sollten in die Komplexe integriert sein, so daß aktive Gegenstände, abgesehen vom "Produkt", nicht außerhalb einer geschlossenen Abschirmung gebracht werden müssen. Hierdurch würden zeitraubende Aus- und Einschleus-Operationen überflüssig und das Kontaminations-Risiko erheblich verringert. Vor allem sollten Geräte mit Schlüssel-Funktionen rasch in eine Wartungszelle gefahren werden können.

Für schwere Arbeiten bieten sich elektrische Kraft-Manipulatoren und für komplizierte elektrische Master-Slave-Manipulatoren an, beide Arten in sehr kräftigen Ausführungen. Mechanische Master-Slave-Manipulatoren könnten als Ergänzung dienen. Für das Transportieren schwerer Lasten sind Brücken-Kräne zweckmäßig.

Für eine Konditionierungsanlage entstehen besondere Probleme beim Einschleusen der Groß-Komponenten in die Zerlegungszelle sowie beim kontaminationsfreien Ausschleusen der Abfälle. Für das Einschleusen wird ein vertikal arbeitendes in vier Zonen unterteiltes System mit Einschleuszelle und für das Ausschleusen Doppeldeckel-Systeme in einer extra Zelle vorgeschlagen.

Zur Zerkleinerung in der Zerlegungszelle kommen thermische Trennverfahren und Trennschleifen in Frage, wenn bereits mittlere Teile mit Querschnitten von ca. 500x500 mm oder kleiner vorliegen, Sägen und für dünnere Rohre schrottscheren, ferner Schlagschrauber und ggf. weitere Werkzeug-Arten.

Die Anlage sollte natürlich auch mittlere Komponenten sowie ihren eigenen Schrott und Abfall verarbeiten können.

Hinsichtlich der Abfall-Fässer sollten größere Abmessungen als solche mit einem Inhalt von 200 l angestrebt werden.

Die Fixierung wird voraussichtlich mit Beton erfolgen.

Der saubere Bereich umfaßt Räume für Beladung der Transportabschirmbehälter und Zwischenlagerung (wenn der Standort vom Endlager getrennt ist). Das nochmalige Ankoppeln der Abfallbehälter und chargenweise Fixieren wie bisher üblich stellt jedoch für eine Groß-Anlage keine geeignete Lösung dar.

Die Verfahrens-Abläufe der sechs in Frage kommenden Behandlungsarten für aktive schwere Reaktor-Komponente wurden analysiert und die wesentlichen Verfahrensschritte und deren Reihenfolge ermittelt. Es wurde ferner die Bedeutung und Anwendungsmöglichkeit der verschiedenen Behandlungsarten abgeschätzt, ein erster vereinfachter schematischer Grundriß für den Kern einer Konditionierungsanlage zur Diskussion gestellt.

Es wurde zunächst angenommen, daß sich die Konditionierungsanlage nicht direkt bei einem Endlager befindet. Sollte dies doch der Fall sein, würden sich hinsichtlich des kontaminationsfreien Teiles der Anlage Vereinfachungen bzw. Änderungen ergeben. An die Stelle einer Be- und Entlade-Zelle sowie einer Zwischenlager-Zelle z.B. ähnlich wie bei der Anlage FERAB würde dann z.B. eine Zelle treten mit Einrichtungen vergleichbar denjenigen, wie sie z.Z. bei GfK für das Tieflager ASSE II geplant wird.

In Bild 4421-1 sind die Arbeitsabläufe der sechs verschiedenen Behandlungsarten, um einen Überblick zu vermitteln und die Zusammenhänge zu verdeutlichen, in einem Schema dargestellt. Es wurde besonders berücksichtigt, daß es Fälle geben kann bei denen Vorgehen und das erreichbare Ziel von Messungen und Prüfungen abhängt. Entscheidungspunkte bezüglich der anzuwendenden Behandlungsweisen sind besonders hervorgehoben.

Bild 4421-2 gibt den gleichen Inhalt in einer anderen vereinfachten Darstellungsweise wieder, wobei die einzelnen Schritte so zu Gruppen zusammengefaßt wurden, wie sie etwa jeweils in verschiedenen Räumen durchgeführt werden würden. Würden alle Arten von Aufgaben etwa die gleiche Bedeutung haben und eine hohe Auslastung vorliegen, so müßte die Anlage nicht weniger als 4 bis 6 Behandlungsstraßen aufweisen!

Die Durchführung von Verschrottung und Reparatur erscheint bei hohem Durchsatz in dem gleichen Raum wegen der bei der Verschrottung auftretenden starken Kontamination und Bearbeitungsrückständen besonders bei mittelaktiven Abfällen sowie der erforderlichen verschiedenartigen maschinellen Ausrüstungen nicht möglich.

Für die weitere Betrachtung wird in erster Linie wegen der hohen Anforderungen bei den Abnahme-Prüfungen angenommen, daß es sich bei umfangreichen Reparaturen in einer gesonderten Anlage um Sonderfälle handelt. Es könnte dann auf besondere Räume dafür verzichtet werden. Ist einmal eine Reparatur auszuführen, müßte man allerdings eine gründliche vorangehende Reinigung und Dekontamination sowie Umrüstung in Kauf nehmen.

Die Verschrottung und die Dekontamination kann ebenfalls kaum im gleichen Raum wegen der andersartigen notwendigen Ausrüstung und Arbeitsbedingungen durchgeführt werden. In einer Dekontaminationszelle oder -Box sind bekanntlich an die Material- und Oberflächen-Güte der Stahlauskleidung bzw. der Innenwände und der Einrichtungen besonders hohe Anforderungen zu stellen.

Um die Kosten der Anlage in vernünftigen Grenzen zu halten wird für das folgende angenommen, daß es ausreicht, die Dekontaminationsräume für mittelgroße Komponenten zu dimensionieren. Es müßte daher ggf. in den Zerkleinerungsräumen eine Vorzerlegung stattfinden. In Sonderfällen erscheint es auch möglich, Innen-Dekontaminationen von großen Behältern und Systemen nach entsprechenden Vorbereitungen auch in den Zerkleinerungsräumen vorzunehmen.

Da die Verschrottung wegen der Abmessungen und Gewichte der Komponenten ohnehin weitestgehend maschinell erfolgen muß, ist zu überlegen, ob man bei den schwachaktiven Komponenten noch den nicht allzugroßen Schritt bis zur Fernbedienung hin tut. Dies würde zu einer sehr einfachen, in erster Linie auf die Verschrottung mittelaktiver Komponenten ausgelegten Anlage sowie zu einer Verringerung der Strahlenbelastung des Personals und Verbesserung der Arbeitsbedingungen bei der Behandlung schwachaktiver Abfälle führen.

### 3. Zerlegemethoden

Zur Feststellung von Art, Anzahl, Größe, Gewicht, Material und anderen Daten der in einer Konditionierungsanlage für Reaktor-Großkomponenten (KARG) zu bearbeitenden Reaktor-Großkomponenten wurde von einigen der größten LWR in der Bundesrepublik eine Datensammlung angelegt.

Über die für eine Zerlegung von Reaktor-Großkomponenten in Frage kommenden Werkzeugmaschinen und Geräte wurden Unterlagen beschafft und zum Großteil ausgewertet. Mit den Herstellern wurden Gespräche geführt über mögliche Änderungen bzw. Leistungssteigerungen der Maschinen zur Anpassung an den Einsatz in einer sogenannten "Heißen Halle" (Fernbedienbarkeit, fernbedienter Werkzeugwechsel, hohe Standzeiten etc.). Zudem wurden Berichte ausgewertet, in denen für die Zerlegung von Reaktor-Großkomponenten in Frage kommenden Werkzeuge und Geräte in ihrer Anwendung beschrieben wurden (z.B. ERR, Diorit, Lucens).

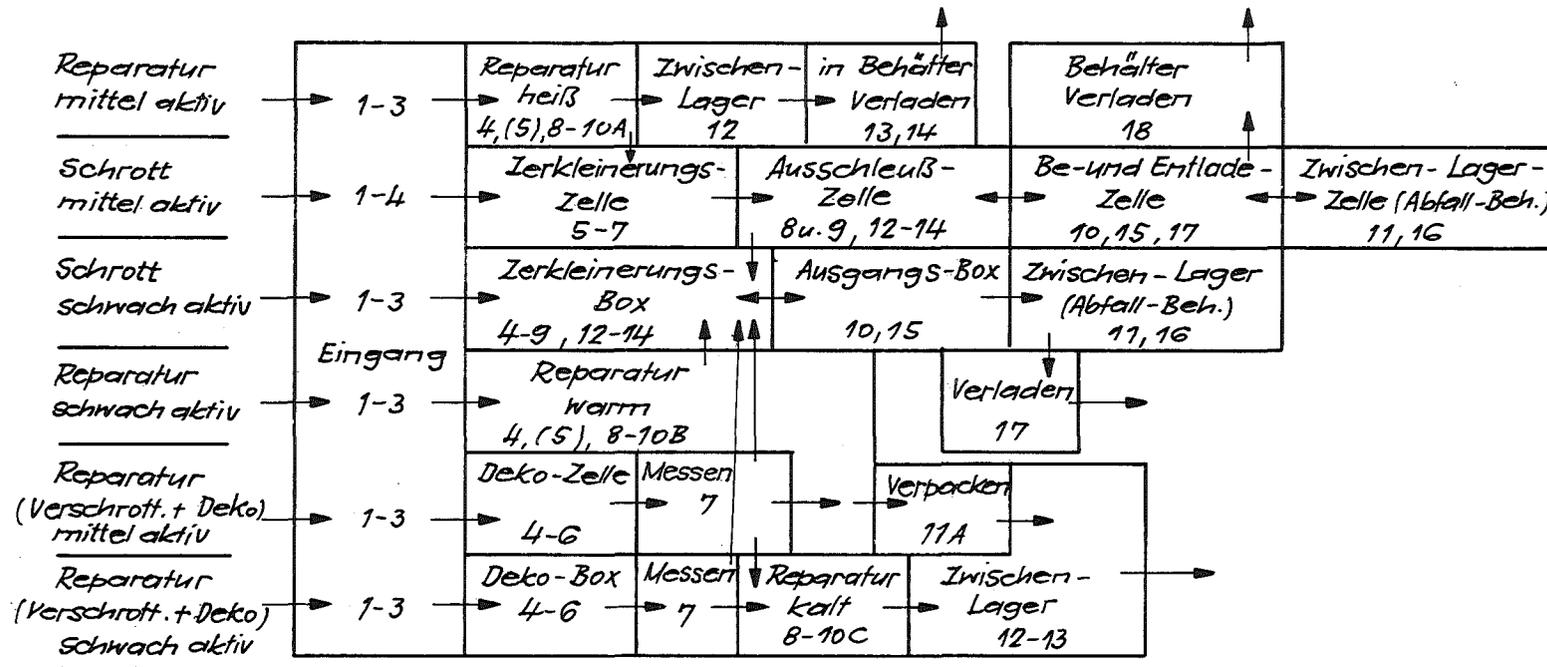
Bei den in einer Konditionierungsanlage für Reaktor-Großkomponenten anfallenden Reaktor-Großkomponenten kann man davon ausgehen, daß eine erste Zerlegung in angemessener Zeit nur mit thermischen Schneidverfahren wie dem Plasmaschneiden oder dem Trennen mit der Sauerstofflanze oder einem artverwandten Verfahren möglich ist. (Kein autogenes Brennschneiden möglich, da hochlegierte Stähle.)

Je nach Größe der Endlagerbehälter (zweckmäßig wären größere Einheiten als die heutigen 200-l- bzw. 400-l-Fässer) kämen für die weitere Zerlegung Sägen verschiedener Bauart (Kreissäge, Bandsäge, Bügelsäge) in Frage, sowie für dünnwandige Teile (z.B. Rohre, Bleche) auch Schrottscheren.

Mit Sicherheit sind die angebotenen Maschinen und Geräte nicht unverändert zu übernehmen, möglicherweise sind sogar Sonderanfertigungen unumgänglich, um alle Anforderungen zu erfüllen, die ein Betrieb in einer "Heißen Zelle" an die Maschinen stellt.

# Konditionierungs-Anlage für Groß-Komponenten

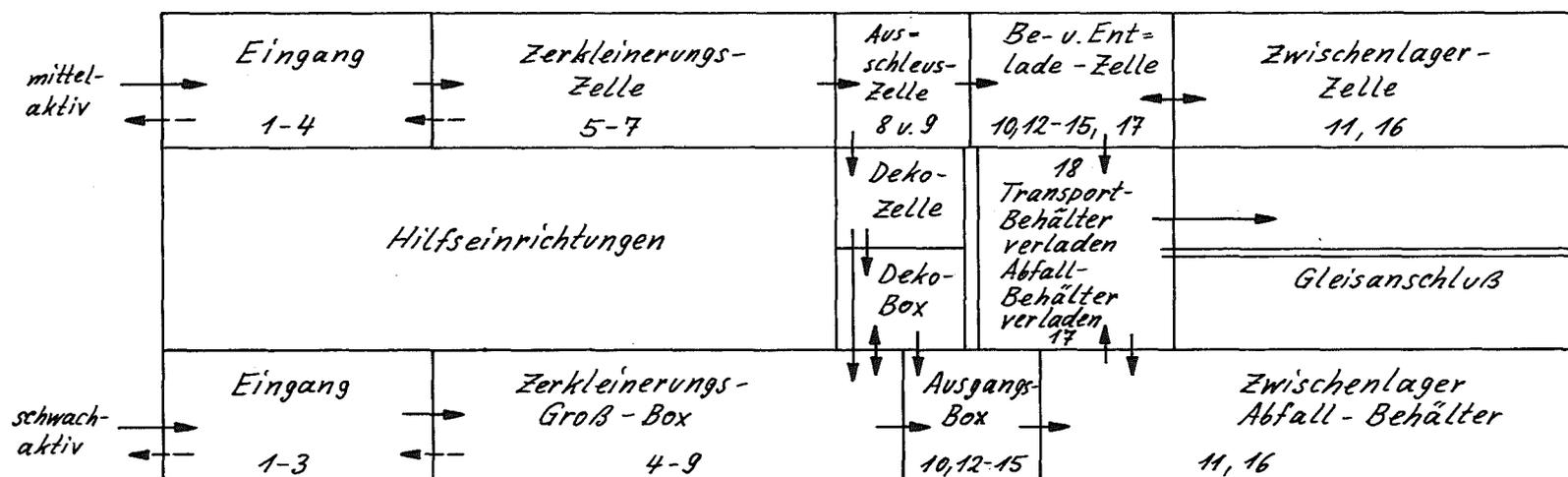
Bild 8: Vereinfachtes Funktions-Schema,  
Verschrottung und Reparatur, mittel- und schwach-aktiv



Anm.: Die Nummerierung der Schritte bezieht sich auf die Bilder 1 bis 4

## Konditionierungs-Anlage für Groß-Komponenten

Bild 9: Schematischer Grundriß (vereinfacht)



- Anm.: 1) Die Numerierung der Schritte bezieht auf die Hauptaufgaben gemäß Bilder 1. u. 2  
 2) ←--- = Bei Nebenaufgaben Reparatur

4422 Ferngesteuerte Arbeitsgeräte und mobile  
Systeme zur Schadenserfassung

(G.W. Köhler, M. Salaske, RBT-IT)

1. Ferngelenktes Fahrzeug "MF3" \*)

Das Fahrgestell des leichten Manipulator-Fahrzeuges "MF3" wurde fertig montiert und Werkserprobungen sowie Abnahme-Prüfungen unterzogen. Bemerkenswert ist, daß alle Funktionen des Fahrwerkes mit variabler Geometrie nach dem Zusammenbau auf Anhieb nachgewiesen werden konnten. Letzte Optimierungsarbeiten sind noch im Gange.

2. Einsatzsteuerung für "MF3"

Die Einsatz-Steuerung (Bild 4422-1) für das komplette MF3-System zur Befehls-gabe, Informationsübermittlung und Energie-Versorgung für das Fahrgestell MF3, zwei elektrische Master-Slave-Manipulatoren EMSM II, eine Stereo-Fernsehanlage und mehrere Geräte wurde nach Abschluß der Planung ausgeschrieben, und es liegen jetzt Angebote von Industrie-unternehmen vor.

Zum Lieferumfang werden auch zwei Stereo-Fernsehkameras und einige weitere Geräte gehören, so daß das Fahrzeug MF3 nur mit der Einsatz-steuerung ausgerüstet bereits begrenzt zur Schadenserfassung verwendbar ist!

Die Einsatzsteuerung besteht im wesentlichen aus 12 Komponenten:

1. Einem Schaltkasten auf dem Fahrzeug
2. einem Schaltkasten auf der Bedienungsseite
3. einem Kabel zwischen beiden Schaltkästen mit Kabeltrommel
4. einem tragbaren Steuerkasten für die Steuerung des Fahr-gestells MF3

---

\*) Siehe auch Halbjahresberichte 1972 bis 1975 des PNS, insbesondere KFK 1702 und 1859

5. einem Fuß-Bedienungskasten für die Betätigung des Elektrowerkzeuges, der Fernsehkameras sowie mit Hauptschaltern für den linken und rechten Manipulator
6. einem Bedienungs- und Anzeigekasten für die diversen Geräte sowie Azimut-Anzeigen für die Slave-Einheit und den Schwenk-Neige-Kopf
7. einem Schwenk-Neige-Kopf
8. einem Paar Stereo-Fernsehkameras auf dem Schwenk-Neige-Kopf
9. zwei Scheinwerfern auf dem Schwenk-Neige-Kopf
10. einem Paar Stereo-Mikrofonen auf dem Schwenk-Neige-Kopf
11. einem Gamma-Dosisleistungsmesser (Ionisationskammer montiert in Vorderwand des Schaltkastens auf dem Fahrzeug)
12. einem Luft-Temperaturmesser (Fühler ebenfalls montiert in Vorderwand des Schaltkastens auf dem Fahrzeug).

Die beiden Schaltkästen auf dem Fahrzeug und der Bedienungsseite beinhalten als Kern der Einsatzsteuerung u.a. folgende Baugruppen:

- eine Zeitmultiplex-Anlage mit 18 Analog- und 40 Digital-Kanälen für die Befehlsgabe und 24 Analog-Kanälen zur Informationsübermittlung sowie zugehörigen Wandlern
- Baugruppen zur Stereo-Fernseh- und Stereo-Ton-Übertragung
- Sender und Empfänger sowie Koppel- und Weichen-Systeme, damit die Übertragung aller Signale und der Energie über ein Koaxial-Kabel möglich ist
- Steuereinheiten und Leistungsteile (auf der heißen Seite)
- Baugruppen für die Stromversorgung.

Die Datenübertragungsanlagen werden nach dem Pulse-Code-Modulationsverfahren arbeiten.

Als Codierung ist Phasencodierung Bi  $\emptyset$  M vorgesehen.

Wegen der erforderlichen äußerst kompakten Bauweise und der sonst zu erwartenden zu großen Wärmeentwicklung im Fahrzeug müssen die Empfangs- und Sendeeinheit in Low-Power-Schottky-Technik aufgebaut werden.

### 3. Elektrische Master-Slave-Manipulatoren "EMSM II" für "MF3"

Nach Abschluß der Planung und Konstruktion wurde eine Ausschreibung durchgeführt, und es liegen jetzt ebenfalls für die Manipulatoren Angebote von Industrieunternehmen vor.

Das komplette Manipulationssystem "EMSM II" besteht im wesentlichen aus drei Komponenten, die durch Kabel miteinander verbunden sind, nämlich einer doppelarmigen Slave-Einheit, die auf dem Träger-Fahrzeug MF3 installiert wird<sup>\*)</sup>, einer doppelarmigen Master-Station sowie einem auf der Bedienungsseite befindlichen kombinierten Schalt- und Steuerschrank (Zentraleinheit).

Bei elektrischen Master-Slave-Manipulatoren werden von Hand ausgeführte Bewegungen und aufgebrachte Kräfte bzw. Drehmomente vom Master-(Bedienungs-)Arm auf den Slave-(Arbeits-)Arm sowie ein echtes Gefühl in die Hand des Operateurs entsprechend den mit dem Slave-Arm ausgeübten oder auf diesen einwirkenden Kräfte bzw. Drehmomente in umgekehrter Richtung (Kraft-Reflexion) durch ein elektrisches System übertragen.

Das neue Geräte arbeitet nach dem gleichen Prinzip wie das Muster "EMSM I", d.h. der Slave- und der Master-Arm werden mit bilateral wirkenden vermaschten Regelkreisen über Verstärker durch Elektromotoren angetrieben, wobei, von der Stromversorgung abgesehen, lediglich Steuerbefehle von der Bedienungs- zur Arbeitsseite und zurück übertragen werden.

Die hauptsächlich baulichen Unterschiede gegenüber dem Typ "EMSM I" sind folgende:

1. Wesentlich geringere Abmessungen und geringes Eigengewicht
2. zwei Freiheitsgrade weniger pro Arm
3. der Eigengewichtsausgleich erfolgt mechanisch (statt elektrisch).

Jeder Arm verfügt über sieben unabhängig voneinander ausführbare mit Kraft-Reflexion ausgestattete Bewegungsmöglichkeiten (Bild 4422-2).

---

<sup>\*)</sup> Siehe 1. Halbjahresbericht 1973 des PNS, KFK 1859

Alle Antriebseinheiten eines Armes sind bis auf die für eine Bewegung in einem gemeinsamen Gehäuse untergebracht. Sie bestehen beim Arbeits- und Bedienungsarm aus je zwei Motoren (der geringeren Trägheit wegen) mit Bremse bzw. je einem Motor, einem Getriebe und einem Positionsgeber. Von den Antriebseinheiten erfolgt die Kraftübertragung bei den vier unteren Bewegungen mit Drahtseilen und den drei oberen mit Zahnrädern.

Die Zangenbacken sind fernbedient auswechselbar.

Nach dem vorliegenden Konzept konnte allen Forderungen in ausreichendem Maße entsprochen werden. Durch sehr kleine und formgünstige Antriebseinheiten sowie Anordnung des Oberarme über dem Antriebsgehäuse konnten so geringe Abmessungen des Antriebsgehäuses, vor allem in der Breite, erzielt werden, wie sie für einen paarweisen Einsatz auf einem leichten Fahrzeug erforderlich sind.

Hauptdaten des Slave-Armes:

Tragfähigkeit (normal/maximal)	12/24 kp
Breite des Antriebsgehäuses (Gesamtbreite)	255 mm
Kraftverstärkung (wahlweise)	1:1; 1:2; 1:6
Gewicht Arm mit Antrieben	ca. 45 kg

Die Arbeitsweise der Übertragung für eine Bewegung ist gemäß dem Blockschaltbild (Bild 4422-3) im Prinzip folgende:

Durch Betätigen des Master-Armes wird der Positionsgeber der Master-Seite ausgelenkt. Sein Signal wird einem Vergleicher zugeführt. Das von der Slave-Seite kommende entsprechende Signal differiert bei einer Auslenkung des Master-Armes gegenüber dem der Master-Seite um einen geringen Betrag proportional dem Verstellwinkel und ggf. entsprechend der Bewegungsrichtung auch der Polarität nach.

Der Vergleicher leitet das gebildete Differenz-Signal einem Regler mit PID-Verhalten zu. Im Regler wird durch Ableitung des Positionssignals ein Geschwindigkeitssignal gewonnen. Das gebildete resultierende Signal wird sowohl über die Übertragungstrecke der Einsatzsteuerung zum Verstärker der Slave-Seite als auch, nachdem es in das gewünschte

Verhältnis gebracht worden ist, zu dem der Master-Seite geleitet. Die Antriebsmotoren stellen den Slave-Arm in Richtung der Auslenkung des Master-Armes so lange nach, bis Stellungsgleichheit herrscht. Die Antriebseinheit der Master-Seite wirkt der aufgebrachten Bewegung beim Ausüben oder Einwirken einer Kraft bzw. eines Drehmomentes auf den Slave-Arm entsprechend verstärkt entgegen, so daß auf diese Weise dem Operateur am Handgriff ein Gefühl für die Größe der Belastung vermittelt wird.

Der Vorgang ist im Prinzip reversibel! Diese wesentliche Eigenschaft, die durch die Gleichrangigkeit von Master- und Slave-Arm in den Regelkreisen gewährleistet wird, ist die Voraussetzung für eine Krafterückmeldung mit der Qualität einer "Kraft-Reflexion" und damit für die Leistungsfähigkeit derartiger Manipulatoren.

Das Gesamt-Blockschaltbild (Bild 4422-4) zeigt den Umfang der Anlage, die Unterschiede der Regelkreise der einzelnen Bewegungen im Detail sowie die Verknüpfungen.

Die nächsten Schritte bei den Teilvorhaben "EMSM II" und "Einsatzsteuerung" werden sein:

- Empfehlung des Sachverständigenkreises "Geräte für den Notfall und zur Störfallfolgen-Beseitigung"
- Förderungsantrag für die Entwicklungsvorhaben an das BMFT
- Bereitstellung von Sondermitteln vom BMFT
- Vergabe von Aufträgen an Industrie-Unternehmen.

Mit der Realisierung der Manipulatoren EMSM II und der Einsatzsteuerung sowie Integrierung zusammen mit dem Fahrgestell MF3 zu einem kompletten System, würde dem KTH ein leichtes in Räumen von Gebäuden und auch im Gelände einsetzbares Fahrzeug zur Verfügung stehen, das für ferngesteuerte Ausführung von Arbeiten und Schadenserfassung verwendet werden kann.

#### 4. Manipulator "EMSM I"

Die am Prototyp des elektrischen Master-Slave-Manipulators "EMSM I" für Versuchseinsätze notwendigen Ergänzungen (Hubwagen für Slave- und Master-Einheit, Stereo-Fernsehanlage, Beleuchtungseinrichtung, mechanische und elektromotorisch angetriebene Werkzeuge sowie zugehörigen Bereithalte- und Wechsellvorrichtungen) konnten fertiggestellt werden.

Mit der Erprobung, insbesondere dem fernbedienten Einsatz der Werkzeuge, wurde begonnen. Mit diesen Geräten sollen unter möglichst echten Bedingungen erste Erfahrungen im Arbeiten mit Manipulator-Fahrzeugen in Räumen gesammelt werden.

Bedienungsstand

Manipulator-Fahrzeug

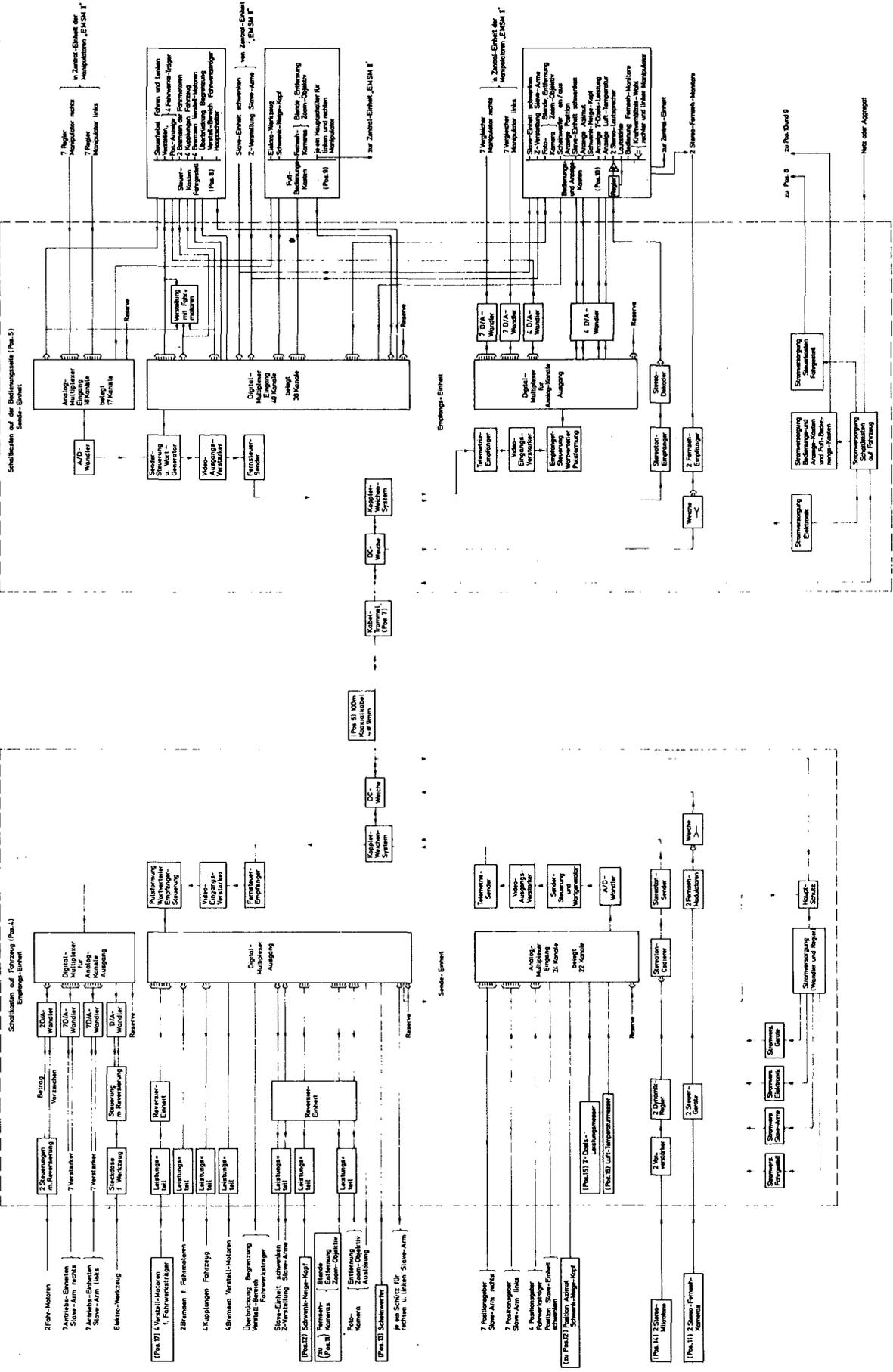


Bild 4422-1

Einsatzsteuerung	
1. Einsatzsteuerung	2. Einsatzsteuerung
3. Einsatzsteuerung	4. Einsatzsteuerung
5. Einsatzsteuerung	6. Einsatzsteuerung
7. Einsatzsteuerung	8. Einsatzsteuerung
9. Einsatzsteuerung	10. Einsatzsteuerung
11. Einsatzsteuerung	12. Einsatzsteuerung
13. Einsatzsteuerung	14. Einsatzsteuerung
15. Einsatzsteuerung	16. Einsatzsteuerung
17. Einsatzsteuerung	18. Einsatzsteuerung
19. Einsatzsteuerung	20. Einsatzsteuerung
21. Einsatzsteuerung	22. Einsatzsteuerung
23. Einsatzsteuerung	24. Einsatzsteuerung
25. Einsatzsteuerung	26. Einsatzsteuerung
27. Einsatzsteuerung	28. Einsatzsteuerung
29. Einsatzsteuerung	30. Einsatzsteuerung
31. Einsatzsteuerung	32. Einsatzsteuerung
33. Einsatzsteuerung	34. Einsatzsteuerung
35. Einsatzsteuerung	36. Einsatzsteuerung
37. Einsatzsteuerung	38. Einsatzsteuerung
39. Einsatzsteuerung	40. Einsatzsteuerung
41. Einsatzsteuerung	42. Einsatzsteuerung
43. Einsatzsteuerung	44. Einsatzsteuerung
45. Einsatzsteuerung	46. Einsatzsteuerung
47. Einsatzsteuerung	48. Einsatzsteuerung
49. Einsatzsteuerung	50. Einsatzsteuerung
51. Einsatzsteuerung	52. Einsatzsteuerung
53. Einsatzsteuerung	54. Einsatzsteuerung
55. Einsatzsteuerung	56. Einsatzsteuerung
57. Einsatzsteuerung	58. Einsatzsteuerung
59. Einsatzsteuerung	60. Einsatzsteuerung
61. Einsatzsteuerung	62. Einsatzsteuerung
63. Einsatzsteuerung	64. Einsatzsteuerung
65. Einsatzsteuerung	66. Einsatzsteuerung
67. Einsatzsteuerung	68. Einsatzsteuerung
69. Einsatzsteuerung	70. Einsatzsteuerung
71. Einsatzsteuerung	72. Einsatzsteuerung
73. Einsatzsteuerung	74. Einsatzsteuerung
75. Einsatzsteuerung	76. Einsatzsteuerung
77. Einsatzsteuerung	78. Einsatzsteuerung
79. Einsatzsteuerung	80. Einsatzsteuerung
81. Einsatzsteuerung	82. Einsatzsteuerung
83. Einsatzsteuerung	84. Einsatzsteuerung
85. Einsatzsteuerung	86. Einsatzsteuerung
87. Einsatzsteuerung	88. Einsatzsteuerung
89. Einsatzsteuerung	90. Einsatzsteuerung
91. Einsatzsteuerung	92. Einsatzsteuerung
93. Einsatzsteuerung	94. Einsatzsteuerung
95. Einsatzsteuerung	96. Einsatzsteuerung
97. Einsatzsteuerung	98. Einsatzsteuerung
99. Einsatzsteuerung	100. Einsatzsteuerung

Leistung für Aufzug

Leistung für Antrieb

Leistung für Steuerung

Leistung für Beleuchtung

Leistung für Heizung

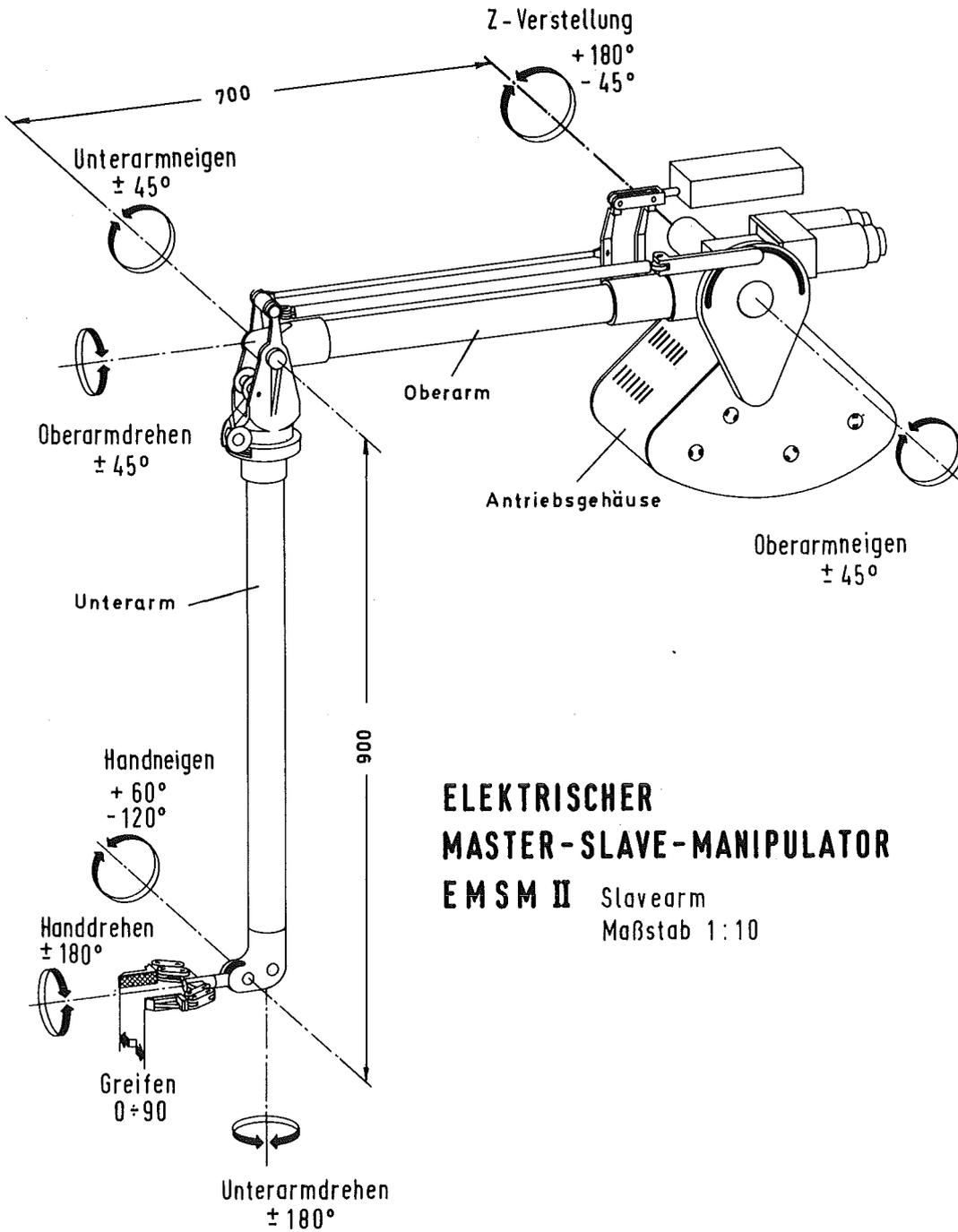
Leistung für Wasserversorgung

Leistung für Abwasserentsorgung

Leistung für Lüftung

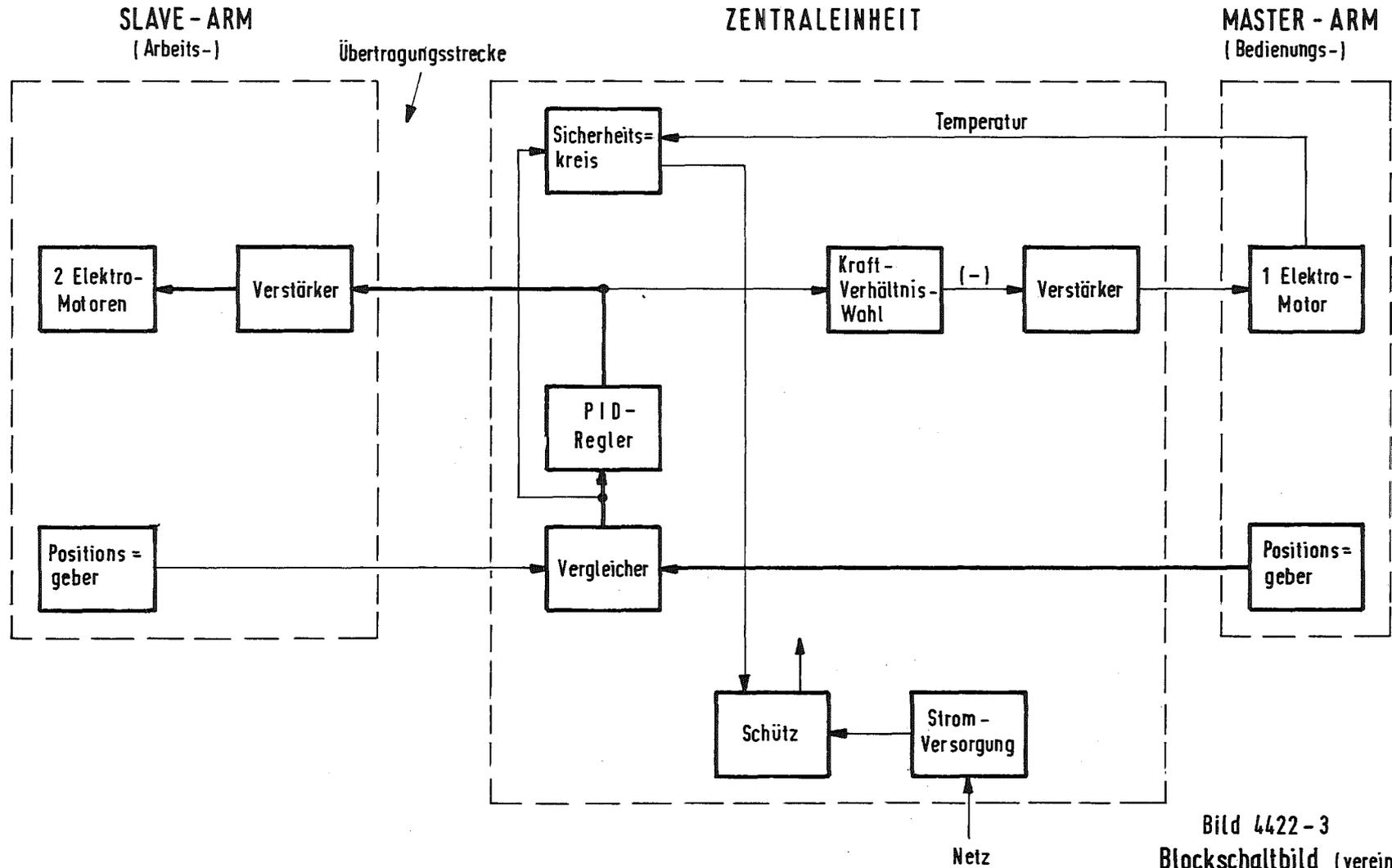
Leistung für Sicherheit

Leistung für Sonstiges



**ELEKTRISCHER  
MASTER-SLAVE-MANIPULATOR  
EMSM II** Slavearm  
Maßstab 1:10

21.2.73 la

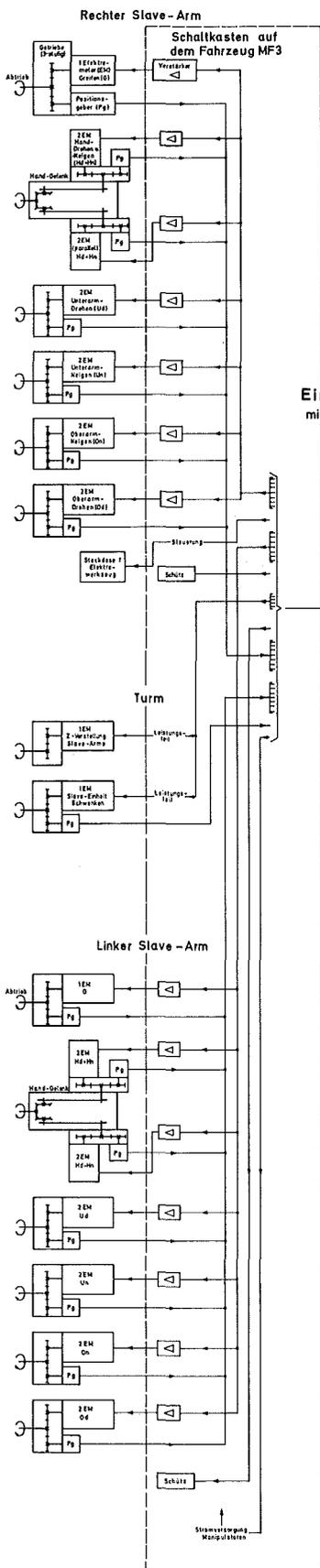


- 454 -

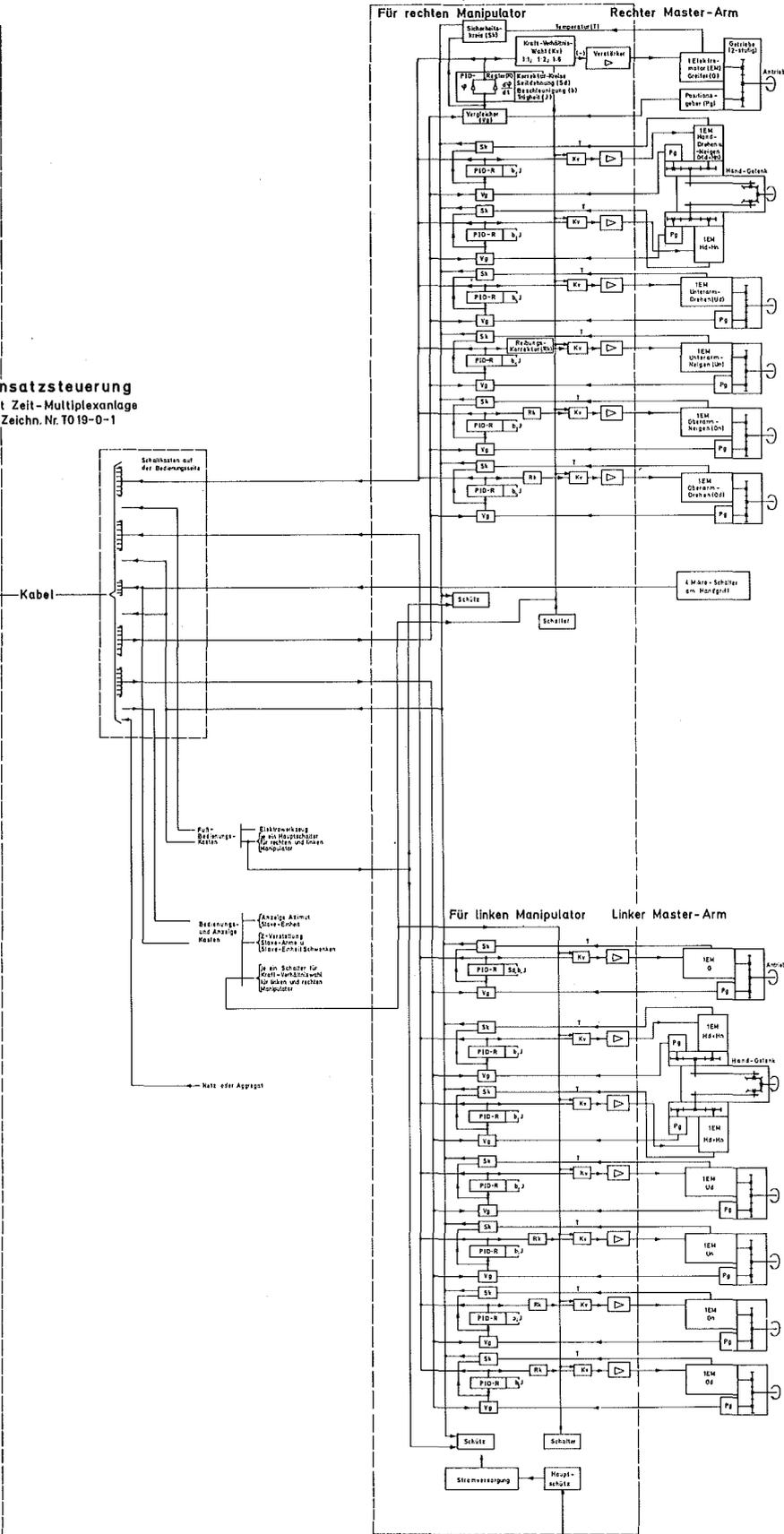
Bild 4422-3  
Blockschaltbild (vereinfacht)  
für eine Bewegung  
Elektrischer Master-Slave-Manipulator „EMSM II“

# Manipulator-Fahrzeug

# Bedienungsseite



Einsatzsteuerung  
mit Zeit-Multiplexanlage  
Zeichn. Nr. T0 19-0-1



Blockschaltbild T0K-0-2	
1	2
3	4
5	6
7	8
9	10
11	12
13	14
15	16
17	18
19	20
21	22
23	24
25	26
27	28
29	30
31	32
33	34
35	36
37	38
39	40
41	42
43	44
45	46
47	48
49	50
51	52
53	54
55	56
57	58
59	60
61	62
63	64
65	66
67	68
69	70
71	72
73	74
75	76
77	78
79	80
81	82
83	84
85	86
87	88
89	90
91	92
93	94
95	96
97	98
99	100

Bild 4422-4

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1975

2. Halbjahresbericht 1974 des Projekts Nukleare Sicherheit,  
KFK 2130, Mai 1975

D. Schiesser,  
Erzeugung und Freisetzung von Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135,  
Cs-137, Ce-141 und Ce-144 durch Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungs-  
anlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000  
KFK 2153 (1975)

K.D. Appelt, M. Cramer, F. Eberle, J. Kadlec,  
Vorläufige Resultate der Untersuchungen des Druckpulsationsfeldes in  
der Wasservorlage der Kondensationskammer und der entsprechenden dynamischen  
Reaktion des Sicherheitsbehälters während der Entlastungsventilversuche  
im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL  
Reaktortagung des Deutschen Atomforums e.V., Berlin, 8. - 11. April 1975

K.D. Appelt, J. Kadlec, E. Wolf,  
"Investigation of the Resonance Phenomena in the PS-Containment of the  
MARVIKEN Reactor during Blowdown",  
European Nuclear Conference, Paris, April 21-25, 1975

R. Löffel, B. Räßle,  
Anlage zur Neutronenaktivierung von Gasen  
(wird demnächst veröffentlicht)

R. Papp et al.,  
Statusbericht - Methoden zur quantitativen Analyse von Kernenergie-  
Risiken  
KFK 2100, März 1975

H. Fabian, U. Krugmann, K. Laßmann, R. Schwarz,  
Methodenvergleich für die Berechnung großer Hüllrohrdeformationen beim  
Kühlmittelverlustunfall von LWR  
KFK 2176, Juni 1975

H. Jordan, Chr. Sack,  
PARDISEKO III A Computer Code for Determining the Behavior of Contained  
Nuclear Aerosols.  
KFK 2151, Mai 1975

G. Class, G. Hofmann, K. Wiehr,  
Probleme des Brennstabverhaltens bei Kühlmittelverlustunfällen und  
deren Untersuchung in "out-of-pile"-Experimenten

W. Sengpiel, W. Gulden,  
Auslegung von Experimenten zur Blowdown-Simulation mit dem  
Programmsystem SSYST

M. Bocek, S. Leistikow, P. Hofmann,  
Materialverhalten von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustun-  
fall

E. Karb, L. Sepold,  
In-pile-Experimente zur Untersuchung des Brennstabversagens  
beim Kühlmittelverlustunfall

R. Schützle,  
Nachrechnung von Kesselblowdown-Experimenten mit RELAP

M. Kadlec, E. Wolf,  
Untersuchung der beim Blowdown im Druckabbausystem des Kernkraftwerkes  
Marviken aufgetretenen Druckpulsationen

K.D. Appelt, M. Cramer, F. Eberle, B. Goeller, J. Kadlec, B.M. Laursen,  
E.G. Schlechtendahl,  
Vorläufige Ergebnisse von Untersuchungen zum dynamischen Verhalten des  
Containments für das Kernkraftwerk Brunsbüttel beim Blowdown

Vorträge gehalten auf der gemeinsamen Fachtagung der Fachgruppen "Reaktor-  
sicherheit" und "Thermo- und Fluidodynamik" der Kerntechnischen Gesellschaft  
im DAtF vom 28. - 30. Januar 1975 in Stuttgart

Projektberichte (beschränkter Verteiler)

W. Hübschmann, D. Papadopoulos, P. Thomas,  
Meßstellennetz in der Umgebung kerntechnischer Anlagen zur Bestimmung  
der Gamma-Dosisleistung bei Störfällen  
Februar 1975

T. Vollmer, K. Hain,  
Pyrometrische Temperaturmessung über Lichtleiter am Simulationsbrennstab  
Februar 1975

W. Hübschmann, S. Vogt,  
Kritische Würdigung des Modells der atmosphärischen Ausbreitung  
in der Reaktorsicherheitsstudie (Rasmussen-Studie)  
März 1975

H. Schultz, E. Voelz, Arbeitsgruppe f. Techn. Strahlenschutz der TU Hannover  
Statistische Analyse des Ausbreitungsverhaltens von Abluftfahnen während einer  
mehrstündigen Emission in Norddeutschland  
April 1975

J.W. Palmowski,  
Detail-Spezifikation der sicherheitstechnischen Untersuchungen am HDR  
"Blowdown-Versuche"  
Mai 1975

H. Dilger, P. Thomas,  
Untersuchungen zur Ausbreitung von Abluftfahnen in der Atmosphäre -  
Ein Vergleich der in der KFA Jülich und im KFK Karlsruhe durchge-  
führten Versuche  
Juni 1975

S. Dorner  
Verhinderung der Bildung eines Knallgasgemisches nach Versagen der  
Notkühlung  
Mai 1975

H. Thomas, D. Papadopoulos,  
Abschätzung der Gamma- und Inhalationsdosen in der Umgebung kerntechnischer  
Anlagen bei schweren Störfällen  
Juni 1975