

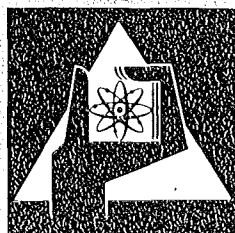
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

November 1975

KFK 2244

Projekt Nukleare Sicherheit

**Jahreskolloquium 1975
des Projekts Nukleare Sicherheit**



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

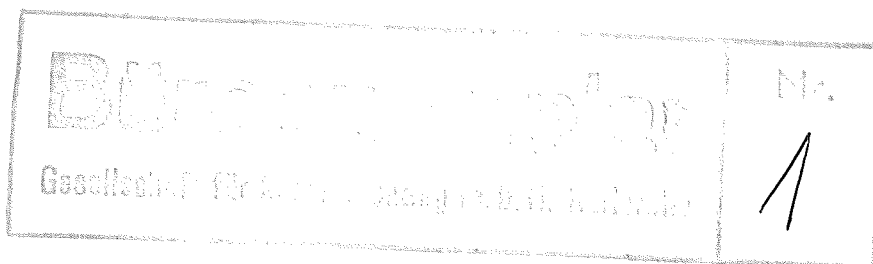
KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE



KFK 2244

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

Sammlung der Vorträge zum
Jahreskolloquium 1975 des
Projekts Nukleare Sicherheit

Karlsruhe, am 11. November 1975

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.
Karlsruhe

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Zielsetzung und Struktur der Reaktorsicherheitsforschung H. Seipel, Bundesministerium für Forschung und Technologie	1
Stand und Ergebnisse des Projekts Nukleare Sicherheit M. Fischer, Projektleitung	11
Die Verminderung des Restrisikos in Druckwasser-Kernkraftwerken D. Smidt, Institut für Reaktorentwicklung	39
(Dieser Vortrag erscheint demnächst in der Atomwirtschaft, Verlag Handelsblatt GmbH, Düsseldorf)	
Materialforschung zum Brennelementverhalten bei Reaktorstörfällen F. Thümmler, Institut für Material- und Festkörperforschung	40
Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs- anlagen J.G. Wilhelm, H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer, Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik	65
Krypton-85-Abtrennung bei der Wiederaufarbeitung R. v. Ammon, Institut für Heiße Chemie	85
Zur Prognose der Strahlenbelastung der Bevölkerung bei hypothetischen Störfällen W. Hübschmann, Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit	97

JAHRESKOLLOQUIUM 1975

des

PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Zielsetzung und Struktur der Reaktorsicherheitsforschung

H. Seipel

Bundesministerium für Forschung und Technologie

Meine Damen und Herren,

ich bin sehr gern der Einladung gefolgt, zur Einstimmung des Jahreskolloquiums des Projekts Nukleare Sicherheit einige Worte zur Reaktorsicherheitsforschung in der Bundesrepublik zu sagen. Ich werde dabei versuchen, das Projekt Nukleare Sicherheit in den größeren Zusammenhang des deutschen Forschungsprogramms Reaktorsicherheit zu stellen und von dort her unter verschiedenen Gesichtspunkten zu beleuchten.

Der Stellenwert, den die Reaktorsicherheitsforschung im Rahmen der kerntechnischen Entwicklung in der Vergangenheit eingenommen hat, läßt sich leicht ablesen, wenn man einen Blick auf die für Reaktorsicherheitsforschung aufgewendeten Haushaltsmittel wirft und diese in Relation setzt zur Gesamtheit der für die kerntechnische Entwicklung aufgewendeten Mittel.

Diese Mittel betragen (in Mio)

<u>1969</u>	<u>1970</u>	<u>1971</u>	<u>1972</u>	<u>1973</u>	<u>1974</u>	<u>1975</u>
5.0	6.9	16.25	29.98	28.20	43.10	59

Planwert 1976

64

Diese Zahlen enthalten nicht die im GfK-Haushalt eingebundenen Aufwendungen für PNS, die folgende zus. Beträge ausmachen

<u>1972</u>	<u>1973</u>	<u>1974</u>	<u>1975</u>	<u>1976</u>
4.4	9.09	22.3	26.8	31.3
			└──────────┘ Plan	

Man muß allerdings dazusagen, daß im Rahmen der Entwicklung fortschrittlicher Reaktorlinien in nicht unerheblichem Maße sicherheitsbezogene Forschungs- und Entwicklungsarbeiten durchgeführt wurden. Diese Untersuchungen waren und sind zum Teil noch integrale Bestandteile der Entwicklungsprojekte und lassen sich von dort nicht sinnvoll separieren.

Die Zahlen zeigen deutlich, daß die Aufwendungen für eigenständige Reaktorsicherheitsforschung, insbesondere mit Zuordnung zu Leichtwasserreaktoren, nur marginal waren, in den ersten Atomprogrammen weniger als 2 % der Gesamtaufwendungen betragen und daß erst ab 1970 ein steiler Anstieg erfolgte.

Es ist aufschlußreich sich rückschauend zu fragen, wo die Ursachen für diese Entwicklung lagen.

Ich glaube, daß diese Entwicklung zunächst vor dem Hintergrund zu sehen ist, daß die ersten größeren Kernkraftwerke in der Bundesrepublik auf der Grundlage amerikanischer Lizenzen gebaut wurden und daß diese Anlagen sich hinsichtlich des Sicherheitskonzeptes auf umfangreiche amerikanische Forschungsarbeiten und Großexperimente, insbesondere zur Klärung von Reaktivitätsstörfällen, abstützen konnten.

Mit zunehmender Erfahrung aus atomrechtlichen Genehmigungsverfahren bei deutschen Herstellern, Betreibern, Genehmigungsbehörden und deren Gutachtern und insbesondere angesichts zunehmender deutscher Eigenentwicklung im Kernkraftwerksbau, die sich mehr und mehr von den amerikanischen Vorbildern entfernte, kamen neue Fragestellungen zur Sicherheit auf, die es eigentlich nahegelegt hätten, relativ früh mit eigener Sicherheitsforschung zu beginnen.

Nach meinem heutigen Verständnis gab es aber offensichtlich eine psychologische Barriere, die einer breit angelegten Sicherheitsforschung im Wege stand - nämlich die Sorge, daß es widerspruchsvoll und unverständlich erscheinen müsse, wenn einerseits Kernkraftwerke genehmigt und gebaut werden, während andererseits gleichzeitig umfassende sicherheitstechnische Forschungsprogramme eingeleitet werden. Jede Fragestellung, die Gegenstand der Sicherheitsforschung wäre, könnte als Indiz unzulänglichen Wissens angesehen werden und Zweifel an der Gewährleistung der Genehmi-

gungsvoraussetzungen aufwerfen. Es wurde befürchtet, die subtile Art der Beweisführung ausreichender Sicherheit im Genehmigungsverfahren, getragen von analytischen Ansätzen mit partieller experimenteller Absicherung und ergänzt durch vorsichtige Annahmen und Grenzabschätzungen, dort wo Detailwissen fehlt, - diese Art der Beweisführung sei zu kompliziert, um in öffentlicher Auseinandersetzung in ihrer Schlüssigkeit nachvollzogen zu werden.

Es kam ein weiteres Problem hinzu, das geeignet war, die Initiativen der Reaktorhersteller zu dämpfen; diese mußten nämlich die Erfahrung machen, daß Bemühungen um konkrete sicherheitstechnische Verbesserungen natürlich den Stand von Wissenschaft und Technik zu verschieben begannen und damit Behörden und Gutachter auf den Plan riefen, die in ihren sicherheitstechnischen Anforderungen auf eben diesen Stand von Wissenschaft und Technik Bezug nehmen. So geschah es nicht selten, daß zunächst freie Initiativen der Hersteller, noch bevor sie zu konkreten Ergebnissen geführt hatten, als ein "muß" mit terminierten Nachweiszwängen im atomrechtlichen Genehmigungsverfahren bumerangartig zurückschlugen.

Ich möchte nur am Rande erwähnen, daß dies Problem in gewissem Umfang auch heute noch besteht, wenn auch das Differenzierungsvermögen aller Beteiligten hinsichtlich der sicherheitstechnischen Bedeutung bestimmter Fragestellungen inzwischen sehr viel ausgeprägter ist.

In den Jahren 1969 und 1970 vermehrten sich die Anstöße und Zwänge, die psychologische Barriere zu durchbrechen und ein eigenständiges umfaßendes Forschungsprogramm zur Sicherheit von Leichtwasserreaktoren einzuleiten.

Vorrangig ist an dieser Stelle die Auseinandersetzung um das stadt- und industriennahe Kernkraftwerksprojekt der BASF zu nennen und die sich abzeichnende Perspektive, daß es in der Bundesrepublik viel früher und in größerem Umfang als z. B. in den USA erforderlich sein würde, Kernkraftwerke in der Nähe von Ballungsgebieten zu erstellen und auch zuzulassen, daß mit zunehmender Industrieansiedelung um vorhandene Kernkraftwerke

eine nachträgliche Zunahme der Besiedlungsdichte erfolgen kann.

Ein weiterer Aspekt war die eigenständige Weiterentwicklung von Leichtwasserreaktoren durch deutsche Reaktorhersteller und eine sich abzeichnende Konkurrenzfähigkeit gegenüber amerikanischen Firmen am Weltmarkt. Diese Entwicklung trug sicher dazu bei, daß die Bereitschaft z.B. der USAEC nachließ, ihre Forschungsergebnisse weiterhin kostenlos, verzögerungsfrei und umfassend mitzuteilen und daß der Informationsfluß über Ergebnisse der Sicherheitsforschung deutlich zäher wurde.

Es kam hinzu, daß in der Bundesrepublik im atomrechtlichen Genehmigungsverfahren Anforderungen gestellt wurden, die über die US-Praxis hinausgingen und die durch die amerikanische Forschung nicht abgedeckt wurden. Beispielsweise möchte ich nennen

- Umfang, Art und Genauigkeit der zerstörungsfreien Prüfung des Reaktordruckbehälters
- Vorsorgemaßnahmen gegen dynamische Containmentbeanspruchung bei Kühlmittelverlust
- Schutz von Kernkraftwerken gegen äußere Einwirkungen wie Flugzeugabsturz, Explosionsdruckwellen, Sabotage.

Dies also war der Hintergrund der Einleitung des Forschungsprogramms Reaktorsicherheit. Während bisher punktuell Einzelaktivitäten gefördert wurden, die überwiegend von den Forschungsstellen selbst angeregt worden waren, stand nun die systematische Sammlung, Ordnung und Wichtung sämtlicher Fragen, die für die Sicherheit von Leichtwasserreaktoren von Bedeutung sein könnten, am Anfang.

Der Zuschnitt des Programms wurde dabei so weit gewählt, daß nicht nur solche Störfälle und Ereignisabläufe, die im atomrechtlichen Genehmigungsverfahren als glaubhaft eingestuft waren, und die folglich für die Schadensvorsorge unmittelbare Bedeutung hatten, eingeschlossen wurden. Vielmehr sollten auch sogenannte "hypothetische Störfälle" ausgeleuchtet werden, die für so unwahrscheinlich gehalten wurden, daß man sie als Teil eines ungeschützt hinzunehmenden Restrisikos für akzeptabel hielt.

Beispielhaft ist in diesem Zusammenhang die Untersuchung des Kernschmelzens im Falle eines Versagens der Kernnotkühlung zu nennen.

Damit wurde eine weitere Barriere durchbrochen, die bisher verhindert hatte, daß über solche Ereignisse, die jenseits des "Glaubhaften" lagen, weiter nachgedacht und geforscht wurde.

Heute, da jedermann über die Rasmussen-Studie spricht und da der Bundesminister des Innern ein Risikokzept in den Raum gestellt hat, erscheint dies sehr naheliegend und folgerichtig. 1970 aber war dies ein Schritt, der außerordentlich Sorge und Unruhe ausgelöst hat und der viel Kritik, insbesondere auch bei der USAEC gefunden hat. Heute besteht weitgehend Konsens; daß wir sowohl die Eintrittswahrscheinlichkeit als auch die Folgen selbst der als "unglaublich" angesehenen Störfälle noch besser verstehen müssen, um das nukleare Gesamtrisiko beschreiben zu können.

Nachdem das Programm unter aktiver Mitwirkung aller kompetenten Fachleute und Organisationen in der BRD konzipiert, die Schwerpunkte gesetzt und erste Maßnahmen geplant waren und es nun galt die Durchführung zu organisieren, zeigte sich sehr bald, daß die Hauptschwierigkeit nicht etwa in der Bereitstellung der erforderlichen Mittel bestand, sondern vielmehr in der Verfügbarkeit der personellen Kapazität mit ausreichender Qualifikation und Erfahrung. Da lag es natürlich nahe zu prüfen, ob nicht die Kernforschungszentren bei der Lösung der im Programm aufgezeigten Aufgaben in stärkerem Maße teilnehmen sollten. Dies galt umsomehr, als dort gerade zu diesem Zeitpunkt aus Sorge um fehlende Zukunftsaufgaben in vermehrtem Umfang Überlegungen zur Diversifizierung angestellt wurden. Die Kernforschungszentren hatten sich zuvor ganz auf die Entwicklungsprobleme neuer Reaktorlinien konzentriert, wohl in dem Verständnis, daß die Probleme der Leichtwasserreaktoren weitgehend gelöst, die Lösung verbleibender Probleme zumindest aber Aufgabe der herstellenden Industrie wäre.

Die ersten groben Konturen eines möglichen Beitrages der Gesellschaft für Kernforschung am Forschungsprogramm Reaktorsicherheit ergaben sich dann aus einem Gespräch zwischen Angehörigen des damaligen Bundesministeriums

für Bildung und Wissenschaft und den Geschäftsführern und weiteren Angehörigen der GfK. Bei diesem Gespräch wurde versucht, alle Ansatzpunkte durchzumustern, die innerhalb der GfK aufgrund der Auseinandersetzung mit Sicherheitsproblemen in anderen Programm- und Projektzusammenhängen bestanden.

Aus weiteren Diskussionen sowohl über die fachlichen Beiträge als auch über die organisatorischen Aspekte der Arbeiten und der Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Vorhaben innerhalb des gesamten Forschungsprogramms Reaktorsicherheit entstand schließlich das Projekt Nukleare Sicherheit.

Die Abgrenzung der fachlichen Beiträge der GfK zum Forschungsprogramm Reaktorsicherheit ergab sich ausschließlich aus Zweckmäßigkeitserwägungen. Maßgeblich waren dabei die vorhandenen Kapazitäten, Erfahrungen, Kenntnisse, Einrichtungen und sonstigen Ansatzpunkte aus früheren Arbeiten. Grundsätzlich hätte aber jede einzelne Aufgabe auch bei anderen Forschungsstellen durchgeführt werden können. Es lag deshalb auf der Hand, daß die PNS-Vorhaben in jeder Weise eine Gleichbehandlung mit anderen aus Projektmitteln finanzierten Forschungsvorhaben innerhalb des Forschungsprogramms Reaktorsicherheit erfahren sollten.

Man muß nun an dieser Stelle erwähnen, daß mit den sogenannten "Leitlinien" Spielregeln für die Durchführung von Forschungsvorhaben in staatlichen Forschungseinrichtungen festgelegt sind, in denen insbesondere die Einflußnahme des Staates auf die Forschungseinrichtungen, die Eigenständigkeit und Eigenverantwortlichkeit der Forschungseinrichtungen und die Mitwirkungsrechte der Mitarbeiter umrissen sind. Danach stellt der Staat zwar die aus gesellschaftlichen und volkswirtschaftlichen Forderungen abgeleiteten Aufgaben und setzt die Prioritäten, nimmt jedoch im allgemeinen auf die Durchführung nur nach dem Prinzip der "Globalsteuerung" und vornehmlich über seine Vertreter in den Aufsichtsorganen Einfluß.

Es besteht folglich die Möglichkeit, daß ein Vorhaben lediglich dadurch, daß es entweder bei einer Vertragsforschungsorganisation auf der Grundlage eines F+E-Vertrages oder **aber** bei der GfK im Rahmen der institutionellen Förderung als Bestandteil des F+E-Programms durchgeführt wird, von

dem zuständigen Referenten im Ministerium im Hinblick auf

- fachliche, terminliche und finanzielle Einzelheiten der Durchführung
- Korrektur des Arbeitsprogramms
- Weitergabe und Nutzung der Forschungsergebnisse

sehr unterschiedlich beeinflußt werden kann.

Dies wäre zweifellos ein sehr unbefriedigender Zustand, zumal die einzelnen Vorhaben innerhalb des Forschungsprogramms Reaktorsicherheit aufeinander aufbauen, sich wechselseitig bedingen und durch die verschiedensten Rückwirkungen miteinander verbunden sind.

Für die Übernahme von Teilen des Forschungsprogramms Reaktorsicherheit durch die GfK war folglich ein Weg zu suchen, der einerseits den Erfordernissen der Gleichbehandlung aller Arbeiten dieses Programms Rechnung trug und andererseits den in den Leitlinien enthaltenen Grundgedanken berücksichtigte, daß der Eigeninitiative und der Eigenverantwortlichkeit der Kernforschungszentren ein möglichst großer Freiraum gegeben werden sollte.

Wir haben uns deshalb gemeinsam mit der GfK bemüht, Aufgabenkomplexe für das PNS vorzuzeichnen, die größere, zusammenhängende Problemfelder umfassen, und die der GfK Gelegenheit geben, in der Ausfüllung dieser Felder große Eigeninitiative zu entfalten und zugleich die aus unserer Sicht erforderliche Flexibilität in der kurzfristigen Anpassung des Arbeitsprogramms an neue akute Fragestellungen in diesem Feld unter Beweis zu stellen. Die Vorhaben des PNS werden deshalb neben der Beratung im Projektrat auch in die Sachverständigenberatung einbezogen, die sämtliche Untersuchungen im Rahmen der Reaktorsicherheitsforschung, nach fachlichen Schwerpunkten gegliedert, begleiten.

Aus meiner Sicht sind unsere bisherigen Erfahrungen mit dem Versuch des Einbeziehens der GfK in ein mit hoher Auflösung vorgegebenes Programm, bei dessen Durchführung viele Stellen intensiv zusammenarbeiten müssen, positiv zu werten. Ich möchte insbesondere hervorheben, daß das PNS den

ihm gegebenen Freiraum gut genützt hat und wertvolle eigene Beiträge zur Lösung wichtiger Fragen leistete. An dieser Stelle möchte ich beispielhaft, und ohne den Wert der übrigen Arbeiten zu schmälern, das Untersuchungsprogramm zum Brennstabversagen erwähnen, das auch im Ausland erhebliche Beachtung und Anerkennung findet.

Diese positiven Erfahrungen zeigen deutlich, daß mindestens ebenso wichtig wie die Vorgabe der richtigen Strukturen für die Festlegung der Forschungsziele und -maßnahmen sowie deren Durchführung die Fähigkeit der beteiligten Personen ist, diese sinnvoll und je nach Art der Aufgabenstellung differenziert und flexibel auszufüllen.

Ich halte es für außerordentlich wichtig, daß im Selbstverständnis des Forschungszentrums und seiner Mitarbeiter global vorgegebene Aufgaben, die erst strukturiert und durch ausschließlich eigene Initiativen ausgestaltet werden müssen aber auch nach Zielen und Maßnahmen bis ins Detail spezifizierte Arbeiten nebeneinander Platz haben.

Mein positives Resümee der bisherigen Erfahrungen bedeutet im übrigen nicht, daß nicht in einzelnen Punkten noch weitere Überlegungen zur Gleichbehandlung von institutionell und projektfinanzierten Forschungsarbeiten erforderlich sind. Dies gilt zum Beispiel für die Veröffentlichung, Weitergabe und Nutzung der Forschungsergebnisse in der Bundesrepublik und im Ausland.

Diese Feststellung führt mich zugleich zu einem weiteren Thema, das ich zum Schluß kurz behandeln will: nämlich zur internationalen Zusammenarbeit bei der Reaktorsicherheitsforschung.

Lassen Sie mich dazu an den Anfang stellen, daß wir grundsätzlich bestrebt sind, die Ergebnisse der Reaktorsicherheitsforschung im In- und Ausland freizügig mitzuteilen, um dazu beizutragen, daß kerntechnische Anlagen überall in der Welt noch sicherer werden.

Man muß allerdings sehen, daß das sicherheitstechnische Know-How und die daraus resultierenden Möglichkeiten der Verbesserung von Sicherheitssystemen und der Anlagenoptimierung für die Konkurrenzfähigkeit verschiedener Reaktorsysteme nicht ohne Bedeutung sind. Hier liegt die Ursache, daß

weltweit die Bereitschaft zu völlig offener und uneingeschränkter Zusammenarbeit und umfassendem Ergebnisaustausch nur unter bestimmten Vorbehalten gegeben ist. Bei unseren wichtigsten Zusammenarbeitspartnern, insbesondere den USA, herrscht die Auffassung vor, daß die Zusammenarbeit bei der Reaktorsicherheitsforschung auf der Grundlage von möglichst ausgewogenem Geben und Nehmen erfolgen sollte.

Dieser Sachverhalt zwingt uns dazu, den gesamten Informationsfluß für die internationale Zusammenarbeit zu kanalisieren und zentralisieren, um auf diese Weise die zur Gewährleistung der Ausgewogenheit erforderliche Bilanzierung vornehmen zu können. Das heißt, daß es keiner der am Forschungsprogramm Reaktorsicherheit beteiligten Stellen selbst überlassen werden kann, wie und an wen die Forschungsergebnisse weitergegeben werden. Die Weitergabe von Forschungsergebnissen insbesondere an ausländische Partner muß vielmehr gezielt, evtl. gebündelt, aufgrund einer zentralen Informationspolitik erfolgen.

Andererseits sollen natürlich nicht die für wissenschaftliche Arbeiten so wichtigen direkten Kontakte der Wissenschaftler im In- und Ausland unterdrückt werden. Sie sollen vielmehr als Elemente der vereinbarten Zusammenarbeit in einer Art und Weise gefördert werden, daß die ausgetauschten Erfahrungen eine möglichst breite Nutzung finden.

In der letzten Zeit hat sich das Netzwerk internationaler Zusammenarbeit bei der Reaktorsicherheitsforschung sehr verdichtet:

Wir haben Zusammenarbeitsverträge mit den USA und Japan, die europäische Zusammenarbeit wird intensiviert und neuerdings gibt es im Rahmen der Internationalen Energieagentur der OECD zahlreiche Vorschläge für multilaterale Zusammenarbeitsprojekte.

Die daraus erwachsenden Möglichkeiten lassen sich nur noch sinnvoll nutzen, wenn die Zusammenarbeit gut organisiert wird, ohne sich allerdings dabei in eine überzogene Bürokratisierung zu verlaufen. Das BMFT hat der Abteilung Forschungsbetreuung im Institut für Reaktorsicherheit den Auftrag gegeben, die internationale Zusammenarbeit für uns zu organisieren und insbesondere den Informationsfluß in beiden Richtungen zu verfolgen und optimal für alle interessierten Gruppen in der Bundesrepublik zu steuern.

Die zunehmende internationale Zusammenarbeit wird auch ihren Niederschlag finden in der Arbeit des Projekts Nukleare Sicherheit.

Hier ist in erster Linie das Brennstabversagensprogramm zu nennen, das die Basis bildet für eine deutsche Beteiligung an den amerikanischen in-pile-Versuchen zum Brennstabversagen in der Power Burst Facility (PBF) in Idaho Falls. Auf diesem Gebiet wird es ausschließlich oder zumindest überwiegend Aufgabe der GfK sein, die Optionen, die uns der bilaterale deutsch-amerikanische Zusammenarbeitsvertrag und darüber hinaus ein speziell auf das PBF-Projekt bezogener Vertrag bieten, zu nutzen. Im Vollzug dieser Zusammenarbeit soll ein Wissenschaftler austausch erfolgen und es wird zugleich nötig sein, die analytischen Gruppen zu verstärken, um die beim PBF anfallenden experimentellen Ergebnisse zu Hause zu analysieren und zugleich im Zusammenspiel mit den deutschen Fachleuten vor Ort einen Beitrag zum optimalen Verständnis der gefundenen Vorgänge zu leisten. Weitere Rückwirkungen auf das PNS werden sich ergeben aus dem amerikanischen LOFT-Projekt, möglicherweise aus dem italienischen Essor- und dem japanischen NSRR-Projekt und last not least aus der Öffnung des deutschen HDR-Projektes für internationale Zusammenarbeit im Rahmen der Internationalen Energieagentur.

Ich möchte abschließend der Hoffnung Ausdruck geben, daß das PNS diese vor ihm liegenden Aufgaben in gleicher Weise erfolgreich angeht wie es das mit den bisherigen Aufgaben getan hat. Dem heutigen Kolloquium und der weiteren Arbeit des PNS wünsche ich einen erfolgreichen Verlauf.

JAHRESKOLLOQUIUM 1975

des

PROJEKTES NUKLEARE SICHERHEIT

Stand und Ergebnisse des Projekts Nukleare Sicherheit

M. FISCHER

1. Einleitung

Der verstärkte Ausbau der Kernkraftwerksleistung und des dazugehörigen Brennstoffkreislaufes wird von umfassenden Sicherheits- Auflagen und -Maßnahmen begleitet. Es ist damit zu rechnen, daß die Energieversorgungsunternehmen zumindest in den nächsten zwei Jahrzehnten den geplanten Ausbau der Kraftwerksleistung zum größten Teil mit Leichtwasserreaktoren vornehmen werden. Der dazu gehörende Brennstoffkreislauf wird ebenfalls mit allen verfügbaren Kapazitäten entwickelt.

Bei diesem Ausbau der Kerntechnik erzwingen zunehmende Größe und räumliche Ballung kerntechnischer Anlagen einerseits und die Notwendigkeit zur Beherrschung postulierter Störfälle andererseits die fortgesetzte Überprüfung und Verbesserung der Sicherheitskonzepte.

Zu diesem Zweck wird das in der BRD praktizierte rigorose Genehmigungsverfahren von einem umfangreichen und mit besonderer Priorität ausgestatteten Sicherheitsforschungs-

programm der Bundesregierung technisch unterstützt.

Die Hauptziele des deutschen Reaktorsicherheits-Forschungsprogrammes sind :

1. Weitere Reduktion der Eintrittswahrscheinlichkeit von Störfällen durch Entwicklungsarbeiten zur weiteren Erhöhung der Betriebszuverlässigkeit von Komponenten und Systemen (Qualitätssicherung, Bauteilsicherheit).
2. Bereitstellung von experimentell verifizierten Methoden zur Analyse der Mechanismen und der Auswirkungen von Störfällen, einschließlich hypothetischer Störfälle, sowie zur Ermittlung der vorhandenen und notwendigen Sicherheitsreserven, damit Lücken im detaillierten Verständnis von Störfallabläufen immer weniger durch Grenzwertbetrachtungen und konservative Annahmen überbrückt werden müssen.
3. Weiterentwicklung von Sicherheitseinrichtungen zur Beherrschung solcher Störfälle und zur Eindämmung von Störfallfolgen.
4. Ermittlung der quantitativen Risiken, die durch die expansive Nutzung der Kernenergie in der dicht besiedelten BRD entstehen.

Dadurch wird sowohl eine organische Weiterentwicklung der Sicherheitstechnik ermöglicht, wie auch eine optimalere Abstimmung zwischen den Anforderungen an den Schutz des Betriebspersonals und der Umgebung einerseits und an die Wirtschaftlichkeit andererseits gewährleistet.

Bei der Reaktorsicherheitsforschung wird auch stets die Notwendigkeit zur unabhängigen Begutachtung eine wesentliche Rolle spielen.

2. Ziele und Arbeitsschwerpunkte des PNS

Vor dem Hintergrund der übergeordneten Zielsetzung der Reaktorsicherheitsforschung konzentriert sich das Projekt auf die in Abb. 1 dargestellten Arbeitsschwerpunkte.

In der sequentiellen Logik möglicher Störfallabläufe handelt es sich in erster Linie um folgende Arbeiten :

- die Untersuchung der dynamischen Beanspruchungen von Druckabbausystemen und RDB-Einbauten bei Störfällen und die Weiterentwicklung dieser Komponenten und Systeme und zugehöriger Sicherheitseinrichtungen. Dies erfolgt insbesondere auch im Rahmen der Blowdown-Versuche im HDR;
- die Untersuchung des Brennstabverhaltens bei KVV und ATWS; die Quantifizierung der Sicherheitsreserven in den Notkühlkriterien und die Weiterentwicklung der Brennelemente und der Notkühlsysteme;
- die Untersuchung des Abschmelzverhaltens von LWR-Brennelementen, das Reaktions- bzw. Abdampf- und Entmischungsverhalten einer Coreschmelze sowie die hiermit verbundene Spaltproduktfreisetzung;

Im linken Block sind die Arbeiten zum radiologischen Umgebungs-schutz zusammengefaßt:

- es geht hier in erster Linie zunächst um die Entwicklung von Störfall-Umluftfilter für KKW zur Reduktion des Gefährdungspotentials freigesetzter Schadstoffe im Containment;
- außerdem um die Identifizierung der auftretenden Jodverbindungen in Reaktorabgasen;
- die Entwicklung der Abgasreinigung für die große Wiederaufarbeitungs-Anlage der KEWA; im Vordergrund steht die Abscheidung von Jod und Spaltedelgasen, vor allem Kr 85. Auf diesem Gebiet

arbeitet das PNS eng mit dem Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) der GfK zusammen.

- ferner werden hier die Ausbreitungsvorgänge von freigesetzten nuklearen Schadstoffen in der näheren und weiteren Anlagenumgebung nach Störfällen untersucht.

Im rechten Block sind die Arbeiten des PNS zur Entwicklung von Techniken zur Eindämmung und Beseitigung von Störfallfolgen und zur sicheren Stilllegung und Endbeseitigung kerntechnischer Anlagen zusammengefaßt.

Das Ziel all dieser Arbeiten ist :

- Die Bereitstellung experimentell verifizierter Methoden zur verbesserten Auslegung und Beurteilung von Sicherheitseinrichtungen und deren Weiterentwicklung und
- Die quantitative Risikobeurteilung von Kernkraftwerken und des zugehörigen Brennstoffkreislaufes.

Zur Lösung dieser umfangreichen F+E-Aufgaben setzt die GfK im Rahmen des Projekts erhebliche Entwicklungskapazitäten mit bis heute ansteigender Tendenz ein.

Zur Bearbeitung dieser Aufgaben führt das PNS gegenwärtig 34 Einzelvorhaben durch.

Dafür stehen im Jahr 1975 152 Mitarbeiter aus dem F + E - Programm zur Verfügung. Hinzu kommen aus externen Mitteln 8 Mannjahre, sowie eine im Auftrag des PNS im Institut für Kernenergetik der TU Stuttgart an der Entwicklung eines Rechenprogramms zum Brennstabverhalten arbeitende Gruppe, die 5 Personen umfaßt und die uns ebenfalls unmittelbar zuarbeiten.

Außerdem hat die amerikanische Nuclear Regulatory Commission USNRC einen Resident Engineer, Herrn Morris Osborne, zum PNS für zunächst 2 Jahre delegiert. Das Projekt hat seinerseits z.Z. 2 Mitarbeiter zum amerikanischen Sicherheitsforschungsprogramm entsandt. In 1976 wird der Wissenschaftler-Austausch noch verstärkt.

Insgesamt sind daher in 1975 rd. 166 Mitarbeiter unmittelbar für die F+E-Arbeiten des Projekts tätig.

Eine personelle Aufstockung ist von 1975 auf 1976, im Rahmen der sehr beschränkten Möglichkeiten eingeplant und zur Lösung der fixierten Aufgaben unumgänglich.

Im Jahr 1976 werden daher, unter Einschluß aller uns inner- und außerhalb der GfK unmittelbar zuarbeitenden Kapazitäten, 180 Mitarbeiter zur Verfügung stehen.

3. Stand und Ergebnisse des PNS

Nach einer einleitenden Phase der Projektdefinition und -spezifikation sowie der Prioritätensetzung wurden die meisten der heute laufenden Arbeiten des PNS in den Jahren 1973 und 1974 begonnen.

Es ist daher besonders erfreulich, dieses Jahr sagen zu können, daß gute Fortschritte bei den meisten Einzelvorhaben zu verzeichnen sind und in einigen Bereichen herausragende Ergebnisse angefallen sind.

In der Anlage 1 sind - gegliedert nach den in Abb. 1 gezeigten Projektbereichen - die Arbeitsergebnisse der einzelnen Projektarbeiten zusammengefaßt.

Mehr im Detail werden beim diesjährigen Jahreskolloquium unsere Arbeiten zum radiologischen Umgebungsschutz von Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen bei Routinebetrieb und Störfällen behandelt.

In zwei weiteren Fachvorträgen werden die Möglichkeiten zur Verminderung des Restrisikos in Druckwasser-Kernkraftwerken vor dem Hintergrund der Rasmussen-Studie und unsere mit höchster Priorität laufenden Arbeiten auf dem Gebiet der Materialforschung zum Brennelementverhalten bei Störfällen diskutiert.

Diejenigen Projektbereiche, die heute nicht in Fachvorträgen angesprochen werden, sind in den Halbjahresberichten des Projekts ausführlich dargestellt.

4. Internationale Zusammenarbeit

Auf dem Gebiet der Reaktorsicherheitsforschung gewinnt die internationale Zusammenarbeit eine immer größere Bedeutung. Es ist hervorzuheben, daß das PNS großen Nutzen insbesondere aus der engen Kooperation mit der USNRC gezogen haben.

4.1 USNRC

Auf der Grundlage des im März 1974 zwischen dem BMFT und der USNRC abgeschlossenen Rahmenabkommens zur Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Reaktorsicherheitsforschung, hat das Projekt die unmittelbare Abstimmung und Durchführung gemeinsamer Vorhaben in folgenden Bereichen übernommen :

- a) Brennstabverhalten bei Störfällen
- b) Freisetzung und Transport von Spaltprodukten bei Reaktorstörfällen.

Die vereinbarte Zusammenarbeit verlief nach Auffassung beider Seiten bisher sehr erfolgreich.

Zur Zeit umfaßt die Zusammenarbeit die 15 auf deutscher Seite bei GfK und KWU laufenden Arbeiten zum Brennstabverhalten und zur Spaltproduktfreisetzung bei Störfällen.

Von der USNRC sind ebenfalls alle Vorhaben auf diesen Gebieten eingebracht und uns voll zugänglich :

1) Das experimentelle in-pile-Programm des PBF-Projekts

- a) Power-Cooling Mismatch (PCM)-Tests
 - PCM 2o (incl. ATWS!)
 - Irradiation Effects and Simulation Experiments
- b) Reactivity Initiated Accidents (RIA)
- c) Loss-of-Coolant Accidents (LOCA)
- d) Inlet Flow Blockage
- e) Fuel Rod Properties Tests (PBF Gas Conductance Tests)

2) Das theoretische Programm zur Beschreibung des Brennstabverhaltens.

- a) Code-Development (FRAP S und T)
- b) Code Verification

3) Das experimentelle out-of-pile-Programm im HNL (ORNL)

- a) Multirod Burst Tests
- b) Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics
- c) Creep and Collapse of Zry
- d) Fission Products Release (LOCA Release from LWR Fuel)
- e) Decay Heat
- f) 10 MW-Blowdown Heat Transfer Experiments

4) Die Untersuchungen zum Brennstab-Materialverhalten im ANL

- a) Mechanische Eigenschaften von Zry bei LOCA-Transienten in Gegenwart von Sauerstoff
- b) Transientes Verhalten des Brennstoffs und der Spaltgasfreisetzung bei LOCA-Transienten

5) Das experimentelle Programm zum Verhalten von bestrahltem Zry im Battelle Columbus Lab.

- a) Festigkeit und Zähigkeit von bestrahlten Zry-Hüllrohren
- b) Aerosol- und Spaltgas-Freisetzung beim Coreschmelzen

Der Erfahrungsaustausch zwischen den Fachleuten ist in vollem Gang, die beiderseitigen experimentellen und theoretischen Arbeitsprogramme sind ausgetauscht und durchdiskutiert.

Es zeigte sich, daß sich sowohl durch die unterschiedliche Vorgehensweise und Anlage der umfangreichen experimentellen Untersuchungen aber auch durch akzentuiert unterschiedliche Ziele, beide Programme sehr gut ergänzen und gegenseitig absichern.

Während die beiderseitigen Untersuchungen zum Brennstabverhalten zeitlich im Schnitt gleichauf liegen, haben unsere Arbeiten zum Coreschmelzenunfall einen deutlichen Vorsprung. Daher hat die NRC auch einen Fachmann zu unserem Coreschmelzenprojekt für zunächst zwei Jahre delegiert.

Wir haben unsererseits zu den Multirod Burst Tests und zu dem 10 MW-Blowdown Heat Transfer Experiment in Oak Ridge einen Fachmann für zwei Jahre entsandt.

Zur detaillierten Abstimmung des experimentellen Programmes im amerikanischen Sicherheitsreaktor PBF mit unseren Vorstellungen befindet sich ein Experte aus Karlsruhe für einige Monate in Idaho. Im nächsten Jahr werden wir 2 ständige Vertreter zum PBF-Projekt entsenden.

Vom 19. bis 30. Mai d. J. fanden mit den maßgebenden Experten der GfK und einem Fachmann des IRS in USA das erste im Zusammenarbeitsvertrag vorgesehene Experten-Meeting statt.

4.2 EPRI (Electric Power Research Institut)

Das EPRI führt im Auftrag der amerikanischen EVU's ein Reaktorsicherheitsforschungsprogramm durch, das im finanziellen Volumen das der NCR sogar übersteigt. Insbesondere beim Brennstabverhalten in Störfallsituationen laufen beim EPRI sehr umfangreiche Arbeiten, zum größten Teil parallel aber auch komplementär zum obigen NRC-Programm.

Ein Vertrag zwischen BMFT und EPRI zur Zusammenarbeit steht unmittelbar vor dem Abschluß.

Parallel dazu hat PNS eine Reihe von Unterlagen von EPRI bekommen, Kontakte zwischen den Fachleuten sind geknüpft.

Ein Vertreter des PNS hat im September d. J. in Palo Alto bereits am 1. gemeinsamen NRC/EPRI-Review Group Meeting zum Zry-Verhalten teilgenommen.

4.3 CEA

Auf dem Gebiet der Ausbreitung radioaktiver Schadstoffe in der Umgebung nach Reaktorstörfällen, wird z. Z. vom PNS eine Zusammenarbeit mit dem CEA vorbereitet.

Wir sind an den weiträumigen Ausbreitungsexperimenten des CEA im Rhonetal im Vergleich zu unseren entsprechenden Arbeiten im Oberrheingebiet besonders interessiert.

Nachdem wir mit der NRC beim PBF-Projekt zusammengekommen sind, sollte nun wie geplant, die Wechselwirkung mit den Experimenten im zur Zeit im Bau befindlichen PHEBUS-Sicherheitsreaktor in Cadarache vertraglich geregelt werden.

4.4 Halden - Programm

PNS hat maßgebend an der Gestaltung der nächsten Halden-Programmphase (1976 - 1978) mitgewirkt. Ein gemeinsames Experiment mit der NRC in Halden zur transienten Gasströmung vom Brennstablennum zur aufgeblähten Hüllrohrpartie bei Brennstäben mit verschiedenen Abbrandzuständen befindet sich zur Zeit in der Beratung.

4.5 Japan

Ein japanischer Fachmann, Herr Murao, arbeitet im PNS bei unseren Arbeiten zum Brennstabverhalten mit.

Zum Schluß soll darauf hingewiesen werden, daß die Lösung der sicherheitstechnischen Probleme, die sich jetzt im Zusammenhang mit dem verstärkten Zubau von Leichtwasserreaktoren einschließlich des zugehörigen Brennstoffkreislaufes mit Plutonium in den nächsten 10 Jahren stellen, und die dabei sich ergebenden Standards, auch für die spätere Einführung fortgeschrittener Reaktoren maßgebend sein werden.

Forschung und Entwicklung zur Sicherheit kerntechnischer Anlagen sind von grundsätzlicher Bedeutung für die Überwindung der Energieprobleme geworden. Die Mitarbeiter des Projekts Nukleare Sicherheit sind sich der damit verbundenen Verantwortung voll bewußt.

ANLAGE 1

STAND UND ERGEBNISSE DES PNS (STAND NOVEMBER 1975)

SPEZIFISCHE ZIELE

VERBESSERUNG DER BETRIEBSSICHERHEIT DER JODABSCHIEDUNG IN KKW

IDENTIFIZIERUNG DER AUFTRETENDEN JODVERBINDUNGEN IN REAKTOR-ABGASEN

ENTWICKLUNG VON STÖRFALL-UMLUFTFILTER ZUR REDUKTION DER GEFÄHRDUNG DURCH RADIOJOD NACH STÖRFÄLLEN

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- WIEDERHOLUNGSPRÜFUNGEN ERGABEN EIN Z.T. STARKES ABSINKEN DER ABSCHIEDELEISTUNG DER AKTIVKOHLE BEREITS NACH 6 MONATEN, EIN VORFILTER WURDE ENTWICKELT UND ZUM TEST IN EIN GROSSES KKW INSTALLIERT (LAF II)
- FALLS NICHT NACHGEWIESEN WIRD, DASS DER ANTEIL AN ELEMENTAREM JOD AUSREICHEND NIEDRIG IST, IST MIT SCHWIERIGKEITEN ZU RECHNEN, DAHER WURDEN DISKRIMINIERENDE JODSAMMLER ENTWICKELT ZUR TRENNUNG UND KLASSIFIZIERUNG VOR ORT, ANFANG 1976 ERSTE ERGEBNISSE (LAF II)
- ERSTE VERSUCHSREIHE MIT DEM ENTWICKELTEN PROTOTYP-STÖRFALLFILTER ERGAB HOHE ABSCHIEDELEISTUNGEN ($\approx 99,9\%$) BEI 150°C DAMPFTEMP. UND HOHER FEUCHTE, FORTSETZUNG DER VERSUCHE BEI 5 BAR ÜBERDRUCK (LAF II)

ENTWICKLUNG DER JODABSCHIEDUNG
AUS DEM ABGAS DER KEWA-WA-ANLA-
GE (1500 JATO)

- MIT DEM IN KARLSRUHE ENTWICKELTEN JODSORPTIONS-
MATERIAL AC 6120 /H1 WURDEN UNTER SIM. ABGASBE-
DINGUNGEN EINER WA-ANLAGE HOHE ABSCHIEDEGRADE
GEGEN J₂ UND METHYLJODID ERZIELT.

ENTWICKLUNG DER KR-85 ABTREN-
NUNG FÜR DIE KEWA-WA-ANLAGE
(1500 JATO)

- DER ENTWURF DER KEWA-PROTOTYPISCHEN FILTERKOMP.,
ZUR ERPROBUNG IN DER WAK IST ABGESCHLOSSEN
(RBT / IT)

- AUF GRUNDLAGE VON ING. STUDIEN ENTSCHEIDUNG ZUGUN-
STEN DER TIEFTEMP. REKTIFIKATION (TTR). (1HCH, RBT)

AUFTRAG ZUM BAU EINER TTR-VERSUCHSANLAGE MIT 50 Nm³/H
WURDE VERGEBEN. (RBT)

SPEZIFISCHE ZIELE

ENTWICKLUNG DER KR-85 ABTREN-
NUNG FÜR DIE KEWA-WA-ANLAGE
(1500 JATO)

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- KONSTRUKTION DER TTR-VERSUCHSANLAGE ABGESCHLOSSEN, LIEFERUNG ANFANG 1976, INBETRIEBNAHME MITTE 1976 GEPLANT. (RBT)
- VORLÄUFIGER SICHERHEITSBERICHT ZUR REDUKTION MIT H₂ ERARBEITET; GUTACHTER WURDE EINGESCHALTET. (IHCH, RBT)
- CO₂/ H₂O -VORREINIGUNG WURDE SPEZIFIZIERT, ANGEBOTS- PHÄSE LÄUFT. (IHCH)
- LABORVERSUCHE ZUR NO_x/O₂ - VORREINIGUNG ERMÖGLICHEN JETZT DIE AUSWAHL DES KATALYSATORS (RUTHEN) BEI DER KATALYT. REDUKTION. (IHCH)

SPEZIFISCHE ZIELE

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

ERMITTLUNG DER LANGFRISTIGEN RADIOLOGISCHEN UMGEBUNGSBELASTUNG DURCH EINE RÄUMLICHE HÄUFUNG KERNTechN. ANLAGEN

- DIE BERECHNUNG DER BELASTUNG FÜR TRITIUM, JOD, RADIOAKT. EDELGASE, STRONTIUM, CAESIUM, RUTHEN ÜBER DEN LUFTPFAD SIND ABGESCHLOSSEN UND ZEIGEN, DASS DIE ORTSABHÄNGIGEN GANZKÖRPERDOSISRATEN IN 1985 < 10 MREM /JAHR BLEIBEN WERDEN (IM SÜDD. RAUM) (INR)

- DIE ERFASSUNG DES WASSERPFADDES WURDE IN ANGRIFF GENOMMEN UNTER BERÜCKSICHTIGUNG VON PU UND ANDEREN TRANSURANEN. (INR)

AUSBREITUNG RADIOAKTIVER GASE UND AEROSOLE NACH HYPOTH.STÖRFÄLLEN IN ABHÄNGIGKEIT METEOROLOGISCHER AUSARBEITUNGSBEDINGUNGEN

- EIN KOMPLETTER SATZ VON WAHRSCHEINLICHKEITSVERTEILUNGEN FÜR DIE AUSBREITUNGSKATEGORIEN, WELCHE DAS UNFALLAUSMASS BESTIMMEN, WURDE ALS FUNKTION DER TAGESZEIT FÜR DAS OBERRHEIN-GEBIET AM BEISPIEL KARLSRUHE AUFGESTELLT. (ASS)

SPEZIFISCHE ZIELE

AUSBREITUNG RADIOAKTIVER GASE UND AEROSOLE NACH HYPOTH. STÖRFÄLLEN IN ABHÄNGIGKEIT METEOROLOGISCHER AUSARBEITUNGSBEDINGUNGEN

RADIOÖKOLOGISCHES VERHALTEN VON JOD-129 AUS WA-ANLAGEN
(HZ = $1,6 \cdot 10^7$ A)

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- DER EINFLUSS DER BODENRAUHGHEIT (D.H. AUCH VON BEBAUTEN ZONEN) KANN MODELLMÄSSIG ERFASST WERDEN (ASS)
- EIN MESSTELLENNetz ZUR BESTIMMUNG DER GAMMA-DOSISLEISTUNG IN DER ANLAGEN-UMGEBUNG NACH STÖRFÄLLEN WURDE MIT DEM ZIEL KONZIPIERT UND DURCHGERECHNET, RÜCKSCHLÜSSE AUF DIE QUELLSTÄRKE DER FREIGESetzten AKTIVITÄT UND DIE HÖHE DER AKTIVITÄTSFAHNE ZU ERLAUBEN (NOTWENDIGE INF. FÜR DIE ZEITLICHE VORAUSBERECHNUNG VON DOSISBELASTUNGEN IN KATASTROPHENSITUATION). (ASS)
- DIE NOTWENDIGEN EMPFINDLICHEN MESSMETHODEN WURDEN ENTWICKELT UND STEHEN JETZT GEPRÜFT ZUR VERFÜGUNG: NACHWEISGRENZE VON $3 \cdot 10^{-4}$ pCi/g FÜR PFLANZEN-, BODEN-, FLEISCH- UND FISCHPROBEN; $1 \cdot 10^{-3}$ pCi/L FÜR MILCHPROBEN. (ASS)

SPEZIFISCHE ZIELE

DYNAMISCHE BEANSPRUCHUNG VON LWR-
DRUCKABBAUSYSTEMEN BEI KVVU :
ERMITTLUNG DER AUFTRETENDEN DRUCK-
PULSATIONEN UND DER DYNAMISCHEN
ANTWORT DER STRUKTUR (MARVIKEN,
BRUNSBÜTTEL, GROSSWELZHEIM)

MASSENSTROMMESSUNG BEIM BLOWDOWN

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- AUSWERTUNG DER EXPERIMANTE AM DRUCKABBAU-
SYSTEM IN BRUNSBÜTTEL WEIST AUF UMLAUFENDE
DRUCKWELLEN IN TORUS-GEOMETRIE HIN, DER
VERGLEICH DER TRANSIENTEN SPANNUNGSANA-
LYSE DER CONTAINMENT-STRUKTUR MIT GEMES-
SENEN BELASTUNGEN ZEIGT IN VIELEN BEREI-
CHEN EINE GUTE ÜBEREINSTIMMUNG. (IRE)
- ENTWICKLUNG DES "TRUE MASS FLOW METER" IST AB-
GESCHLOSSEN UND KANN BEI DEN EXPERIMENTEN ZUM
BRENNSTABVERHALTEN IN DER BLOWDOWN-PHASE EIN-
GESETZT WERDEN. (IRE/RBT)
- DAS RADIOTRACER-VERFAHREN UMFASST NUN AUCH DIE
GESCHW.MESSUNG DER FLÜSSIGEN PHASE, EINE ZEIT-
AUFLÖSUNG VON 20 msec IST ERREICHT WORDEN, DAS
VERFAHREN WURDE IN EINER KALTWASSER /LUFT-STRECKE
ERPROBT. (LIT)

VERBESSERUNG DES SYSTEMVERHALTENS KERNTechN., ANLAGEN BEI StöRFÄLLEN / 2

SPEZIFISCHE ZIELE

MASSENSTROMMESSUNG BEIM BLOWDOWN

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- DIE TESTSTRECKE ZUR KALIBRIERUNG DER VERSCHIEDENEN MASSENSTROMMESSVERFAHREN KANN VORAUSSICHTLICH IM APRIL 1976 IN BETRIEB GENOMMEN WERDEN. (IRB)
- SEHR GUTE FORTSCHRITTE HAT DIE ENTWICKLUNG DES INFRAROTABSORPTIONSVERFAHRENS ZUR MASSENSTROMMESSUNG IN NEBELSTRÖMUNG GEMACHT, DAMIT KÖNNEN ERSTMALS LUFT-, DAMPF- UND WASSER-DICHTEANTEILE GEMESSEN WERDEN, DAS VERFAHREN WIRD IN KOMBINATION MIT DEM RADIOTRACER-VERFAHREN IN MARVIKEN II UND FÜR DIE CONTAINMANT-VERSUCHE IM HDR EINGESETZT (IRE, ITS TU KARLSRUHE, LIT)

VERBESSERUNG DES SYSTEMVERHALTENS KERNTechN. ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN / 3

SPEZIFISCHE ZIELE

HDR-BLOWDOWN-PROGRAMM :
EXPERIMENTELL VERIFIZ. METHODEN ZUR
BERECHNUNG DER DYN. BELASTUNGEN UND
BEANSPRUCHUNGEN VON

- RDB-EINBAUTEN
- CONTAINMENTSTRUKTUREN
- SICHERHEITSARMATUREN
- GEBROCHENEN ROHRLEITUNGEN

BEI KVU IN LWR

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- DIE DETAILSPEZIFIKATION DER HDR-BLOWDOWN-EXPERIMENTE WURDE ABGESCHLOSSEN.
- DIE KONSTRUKTIVE GESTALTUNG UND AUSLEGUNG DER RDB-VERSUCHSEINBAUTEN WURDE FESTGELEGT.

DAS VERSUCHSPROGRAMM UMFASST 30 BLOWDOWNVERSUCHE UND HAT EINEN FINANZ. UMFANG VON CA. 20 MIO.DM

(IRS, LRA, BATTELLE, SULZER, IRE, LIT, KWU)

SPEZIFISCHE ZIELE

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

VERHALTEN VON LWR-BRENNSTÄBEN
BEI KVV UND ATWS

- ENTWICKLUNG UND VERIFIZIERUNG
EINES PROGRAMMSYSTEMS ZUM
STAB- UND BÜNDELVERHALTEN

- MATERIALVERHALTEN VON ZRY-
HÜLLROHREN
 - MECH. VERHALTEN
 - HOCHTEMP. OXIDATION
 - WECHSELWIRKUNG
BRENNSTOFF (SPALTPROD.)/ZRY-HÜLLE

- PROGRAMMSYSTEM S_{SSYST}-MOD 1 IST ENTWICKELT UND
DOKUMENTIERT. Z. ZT. WIRD EIN VERGLEICH MIT
DEN AMERIKAN. PROGRAMMEN FRAP S UND T ANHAND
EINES STANDARD PROBLEMS VORBEREITET. DIE SCHRITT-
WEISE VERIFIZIERUNG WURDE IN ANGRIFF GENOMMEN.
(IRE, IKE TU STUTTGART).

- UNTERSUCHUNGEN ZEIGEN, DASS DAS VERFORMUNGSVERHAL-
TEN VON ZRY NEBEN DER TEMP. IN STARKEM MASSE VON
DER VERFORMUNGSGESCHWINDIGKEIT UND ANISOTROPIEEF-
FEKTEN ABHÄNGIG IST (IMF II)

SPEZIFISCHE ZIELE

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- BEI NIEDRIGEREN VERFORMUNGSGESCHW. WURDE ZWISCHEN 850 UND 950 °C AUSGEPRÄGT SUPERELASTISCHES VERH. VON ZRY BEOBACHTET. UNTERHALB VON 820 °C UND BEI GRÖßEREN VERF. GESCHW. WURDE IN ALLEN FÄLLEN NORMAL PLASTISCHES VERHALTEN BEOBACHTET. (IMF II)
- WIDER ERWÄRTEN VERSCHWINDET DER ANISOTROPIE-EINFLUSS (TEXTUR) NICHT BEI HOHEN TEMP. DAHER MÜSSEN IN VERSTÄRKTEM MASSE ROHRVERSUCHE DURCHGEFÜHRT WERDEN (IMF II)
- MESSUNGEN DER OXIDATIONSRATE VON ZRY IN DAMPF ZWISCHEN 900 UND 1300 °C ZEIGEN, DASS EINE WESENTLICH GERINGERE OXIDATIVE DURCHDRINGUNG ZU ERWARTEN IST, ALS NACH DER HEUTE VERWENDETEN BAKER-JUST-KORREL. (IMF II)
- GUTE ÜBEREINSTIMMUNG MIT RECHENPROGRAMM ZUR BESCHREIBUNG DER OXIDATIONSKINETIK (IRB)

SPEZIFISCHE ZIELE

- BRENNSTABVERHALTEN IN DER BLOW-DOWNPHASE (HOCHDRUCKPHASE);
OUT-OF-PILE EXPERIMENTE

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- VERSTÄRKTE FORTFÜHRUNG DER OXIDATIONSEXP. MIT INNENDRUCKBEAUFSCHLAGTEN ZRY-ROHREN (IMF II)
- DER EINFLUSS DES ABBRANDABHÄNGIGEN SAUERSTOFF-POTENTIALS DES UO_2 IST AUF DIE MECH. EIGENSCHAFTEN DES ZRY GRÖßER ALS DER EINFLUSS DER SPALTPRODUKTE.
- VERSUCHSSTAND KURZ VOR DER FERTIGSTELLUNG, FORTSCHRITTE BEI DER ENTWICKLUNG EINES SIMULATOR-BRENNSTABES (IRE/ RBT)

VERBESSERUNG DES SYSTEMVERHALTENS KERNTECHN. ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN /7

SPEZIFISCHE ZIELE

- BRENNSTABVERHALTEN IN DER WIEDER-
AUFFÜLL- UND FLUTPHASE (NIEDER-
DRUCKPHASE)
 - OUT-OF-PILE EXPERIMENTE
 - INPILE EXPERIMENTE

- AUSWIRKUNGEN VON BRENNSTABSCHÄDEN
AUF DIE WIRKSAMKEIT DER NOTKÜHLUNG;
 - OUT-OF-PILE EXPERIMENTE

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- VERSUCHSSTAND KURZ VOR DER INBETRIEBNAHME (IRB)

- DIE ERSTEN BEIDEN INPILE-VERSUCHE WURDEN DURCH-
GEFÜHRT,
QUALITATIV; AUFBLÄHEN DES ZRY-HÜLLROHRES BIS AN
DIE UMGEBENDE ROHRSTRUKTUR BEOBACHTET. (RBT)

- VERSUCHSSTAND KURZ VOR DER INBETRIEBNAHME (IRB)

SPEZIFISCHE ZIELE

ABLAUF HYPOTHETISCHER CORESCHMELZENUNFÄLLE ; ENTWICKLUNG VON EINRICHTUNGEN ZUR BEHERRSCHUNG SOLCHER UNFÄLLE :

- ABSCHMELZVERHALTEN VON LWR-BRENNSTÄBEN

- REAKTIONSVERHALTEN VON LWR-CORESCHMELZEN

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- IN NICHT OXIDIERENDER ATMOSPHERE BEGINNT DAS ABSCHMELZEN BEI 1850 °C. ZRY UND UO₂ SCHMELZEN GEMEINSAM UND BILDEN EINE LEGIERUNG. IN DAMPF OXIDIERT DAS ZRY VON AUSSEN VOR DEM ABSCHMELZEN INNEN. DIE SCHMELZE BEGINNT IM NOCH FESTEN HÜLLROHR HERUNTERZULAUFEN. DANN VERDAMPFT BRENNSTOFF UNTERHALB 2000 °C UND SPRENGT DIE HÜLLE (RBT, IMF I)
- EINIGE DER WICHTIGSTEN PHASENDIAGRAMME FÜR DIE DEUTUNG DER ZEITLICHEN KONSTITUTIONSÄNDERUNG DER SCHMELZE LIEGEN VOR. ES KÖNNEN SICH HETEROGENE, HOMOGEN METALLISCHE, ODER HOMOGEN OXIDISCHE SCHMELZEN BILDEN. EINE STUDIE ÜBER THEORETISCHE UND EXPERIMENTELLE MÖGLICHKEITEN ZUR BESTIMMUNG DER STOFFWERTE VON CORIUM WURDE ABGESCHLOSSEN (IMF I)

SPEZIFISCHE ZIELE

- ERMITTLUNG UND BEHERRSCHUNG DER SPALTPRODUKT-FREISETZUNG UND -AUSBREITUNG

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- DIE VERSUCHSANLAGE "SASCHA" WURDE IN BETRIEB GENOMMEN, 500 g CORIUM KONNTEN ERSCHMOLZEN WERDEN, BIS ZUM ENDE DES JAHRES WIRD DIE HERSTELLUNG VON SCHWACH AKTIVEM FISSIUM AUFGENOMMEN, GAMMA-SPEKTROSKOPIE UND AKTIVIERUNGSANALYSE FÜR DIE FILTERRÜCKSTANDSUNTERSUCHUNGEN SIND EINSATZBEREIT (RBT, IRCH)

ENTWICKLUNG VON VERFAHREN ZUR EINDÄMMUNG U. BESEITIGUNG VON STÖRFALLFOLGEN U.
ZUR SICHEREN STILLEGUNG / 1

SPEZIFISCHE ZIELE

ENTWICKLUNG VON DEKONTAMINATIONS-
VERFAHREN MIT MINIMALEM RADIOAK-
TIVEN ABFALL BEI HOHER DEKO-
WIRKSAMKEIT

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- ALS DEKO-MITTEL AM BESTEN BEWAHRT SALZSCHMELZEN:
PHOSPHATE KH_2PO_4 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$
FORTSCHRITTE BEI DER ENTWICKLUNG EINER OPTIMALEN
AUFTRAGTECHNIK, ERPROBUNG DER HALBTECHNISCHEN
APPARATUR ERFOLGT AN ORIGINALEN KOMP. AUS PRIMÄR-
KREISLÄUFEN VON KKW.

ENTWICKLUNG VON VERFAHREN ZUR EINDÄMMUNG U. BESEITIGUNG VON STÖRFALLFOLGEN U.
ZUR SICHEREN STILLEGUNG / 2

SPEZIFISCHE ZIELE

LÖSUNG FOLGENDER PROBLEME BEI DER
STILLEGUNG STEHEN IM VORDERGRUND:

- AUSBAU, DEKONTAMINATION, ZERLE-
GUNG UND ENDLAGERFERTIGE AUF-
BEREITUNG DER PRIMÄRKREISKOMP.
- BESEITIGUNG AKTIVIERTER BETON-
STRUKTUREN DER PRIMÄRZELLEN IN
KKW.

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- GESAMTKONZEPT ERARBEITET IM SK "STÖRFALL-
FOLGENBESEITIGUNG UND SICHERE STILLEGUNG"

SPEZIFISCHE ZIELE

BESTIMMUNG DER WAHRSCHEINLICHKEITS-
VERT. VON BESTR. DOSEN IN DER UMGE-
BUNG, BEI STÖRFÄLLEN UNTER BERÜCK-
SICHTIGUNG METEOROLOGISCHER BED.

STRAHLENSCHÄDEN DURCH WAHRSCHEIN-
LICHKEITSVERTEILTE STRAHLENDOSSEN
UNTER BERÜCKSICHTIGUNG STANDORT-
SPEZIF. PARAMETER

VERBESSERUNG UND ANWENDUNG VON METH.
ZUR AUSFALLART- UND FEHLEREFFEKT-ANA-
LYSE, FEHLERBANNANALYSE

HERAUSRAGENDE ERGEBNISSE

- GUTE FORTSCHRITTE BEI DER ENTWICKLUNG EINER
EXPERIMENTELL VERIFIZIERTEN METHODE, MITTE
1976 SOLL IM RAHMEN DES BMFT-PROGRAMMS "ZU-
VERLÄSSIGKEIT UND RISIKO" EIN ERSTER EINSATZ
ERFOLGEN (ASS)

(NEUER ARBEITSSCHWERPUNKT)

- DER BEITRAG ZUR LEISTUNGSPRÜFUNG VORHANDENER
METHODEN WIRD ENDE NOV. IM RAHMEN DES BMFT-
PROGRAMMS "ZUVERLÄSSIGKEIT UND RISIKO" ABGE-
SCHLOSSEN (IRE)

JAHRESKOLLOQUIUM

des

PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Die Verminderung des Restrisikos in Druckwasser-Kernkraftwerken

D. Smidt

Institut für Reaktorentwicklung
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Dieser Vortrag erscheint demnächst in der
Atomwirtschaft, Verlag Handelsblatt GmbH,
Düsseldorf

JAHRESKOLLOQUIUM 1975
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Materialforschung zum Brennelementverhalten bei Reaktorstörfällen

F. Thümmler

Institut für Material- und Festkörperforschung

1. Allgemeines

Kernkraftwerke mit Druckwasserreaktoren sind heute in allen Industrieländern teilweise in grösserer Zahl in Betrieb. Das mit ihnen verbundene Risiko und das in besonderer Weise definierte Restrisiko haben sich aufgrund der bisher vorliegenden Betriebserfahrungen einerseits und theoretischer Studien (z.B. der "Rasmussen-Studie" /1/) andererseits als ausserordentlich gering herausgestellt. Das Gesundheitsrisiko ist auch im Vergleich zu anderen grosstechnischen Anlagen oder Prozessen, zu Verkehrs- oder Naturereignissen, als gering einzuschätzen, dennoch wird es oft weniger bereitwillig akzeptiert, aus welchen Gründen auch immer. Die Verminderung des Restrisikos ist ein zentrales Anliegen der Reaktorsicherheitsforschung, weil Sicherheitsfragen in der Reaktortechnik einen besonderen Stellenwert besitzen.

Es ist zweifellos gerechtfertigt, die Rasmussen-Studie als eine Art Meilenstein der Reaktorsicherheitsforschung zu betrachten. Sie ist deshalb im In- und Ausland und natürlich auch in der GfK gründlich durchgearbeitet worden. Es zeigte sich, dass wichtige Aussagen über Unfallwahrscheinlichkeiten und Auswirkungen an unsere Verhältnisse angepasst werden müssen. Darüber hinaus sind auch bestimmte Annahmen bzw. Eingabedaten zu korrigieren, z.B. solche, die sich auf das Materialverhalten beziehen /2/. Dazu darf zunächst folgende Feststellung getroffen werden: Zum Zeitpunkt der starken Ausweitung der Arbeiten zum Brennelementverhalten bei Reaktorstörfällen, die in der Bundesrepublik und in den USA ab 1973 erfolgte, war die Situation durch ein weitgehendes Fehlen selbst von grundlegenden Kenntnissen zum Materialverhalten beim Störfall gekennzeichnet. Ohne solche Kenntnisse ist das Brennelementverhalten sowohl beim Kühlmittelverlustunfall als auch beim hypothetischen Coreschmelzen-Unfall nicht hinreichend zu erfassen, geschweige denn zu verstehen. Dementsprechend ist es auch nicht verwunderlich, dass in der Rasmussen-

studie bestimmte Annahmen, die sich auf das Materialverhalten beziehen, zu korrigieren sind. Notwendige Änderungen wurden inzwischen zusammengestellt; ich nenne drei Beispiele:

- Das mechanisch-physikalische und das Oxidations-Verhalten des Zircaloy konnte beonders bei den Temperatur- und Drucktransienten eines KVU nicht realistisch eingeschätzt werden.
- Der Schmelzpunkt des Cores wird mit dem Schmelzpunkt des UO_2 gleichgesetzt, was eine viel zu hohe Temperatur ergibt.
- Das physikalisch-chemische Verhalten der Coreschmelzen wird zu vereinfacht angenommen. So werden keine Abdampfvorgänge und Phasenneubildung sowie keine Entmischungen in Betracht gezogen.

Die Auswirkung dieser mangelnden Kenntnisse für die Analyse mit Hilfe von Rechenprogrammen ist für die verschiedenen Fälle vielleicht unterschiedlich und mag von anderer Seite eingeschätzt werden. Jedenfalls wurden die Kenntnislücken von den verschiedensten Seiten als wesentlicher Mangel empfunden. Dies führte dazu, dass der Materialforschung innerhalb des Reaktorsicherheitsforschungsprogrammes der Bundesregierung und seitens des PNS der GfK ein hoher Stellenwert beigemessen wird.

Meine folgenden Ausführungen sollen einen Überblick über die einschlägigen Arbeiten innerhalb der GfK vermitteln.

2. Kühlmittelverlustunfall mit Notkühlung

Die abnehmende Festigkeit des Hüllrohres mit steigender Temperatur, der steigende Innendruck und der fallende Systemdruck bringen die Voraussetzungen für eine plastische Aufweitung oder Aufreissen der Brennstabhüllen beim zeitweiligen Ausbleiben des Kühlmittels mit sich. Für eine befriedigende Beschreibung dieses Verhaltens müssen zunächst die Geschwindigkeit der Dimensionsänderung, d.h. das "balloning", als Funktion des Druckes und der Temperatur bekannt sein. Dieses Aufblähen kann u.U. grossen Umfang annehmen. Darüber hinaus wird Zircaloy im Verlaufe des Abbrandes, aber besonders während der Überhitzungsphase bei KVU durch Aussenkorrosion, wie auch durch Innenkorrosion chemisch angegriffen sowie durch hohe Neutronendosen belastet. Durch diese Vorgänge wird sein plastisches Verhalten verändert. Dies führt zur Notwendigkeit der

Kenntnisse über Bruchdehnungen und Bruchspannungen für den vorliegenden mehrachsigen Spannungszustand, d.h. zur Kenntnis von Grenzwerten, bei denen die Rohre versagen. Da Zircaloyrohre aufgrund ihrer Herstellung texturbefahftet sind und somit anisotrope Eigenschaften besitzen, diese Texturen sich zudem bei hohen Temperaturen ändern können, muss der Textureinfluss ebenfalls bekannt sein. Der interessierende Temperaturbereich für den "normalen" Notkühlfall erstreckt sich bis ca. 950°C, für ein verzögernd oder unvollständig funktionierendes Notkühlssystem interessieren Temperaturen bis etwa 1200 oder 1300°C. Diese hohen Temperaturen müssen gleichzeitig als Vorstufe für einen hypothetischen Coreschmelzen-Unfall angesehen werden.

2.1 Plastisches Verhalten von Zircaloy-4 unter Aussenkorrosionsbedingungen /3/

Zunächst wurden im einachsigen Zugversuch Verformungskennwerte von Zry-4 gewonnen, und zwar bis 1200°C an Luft. Hierdurch wird der chemische Angriff durch Wasserdampf beim KVU näherungsweise simuliert. Der Angriff in Luft scheint sogar stärker als in Wasserdampf zu sein, weshalb hier pessimistische Oxidationsbedingungen vorliegen. Abb. 1 zeigt den starken Anstieg der Bruchdehnung im $\alpha+\beta$ -Bereich, d.h. bis 850°C, und die ziemlich geringen Werte bei 950°C und höher. Letzteres wird auf Sauerstoffversprödung der metallischen Phase zurückgeführt. Den beiden Kurven liegen um eine Grössenordnung unterschiedliche Dehnungsgeschwindigkeiten zugrunde. Die Streckgrenze hingegen (Abb. 2) nimmt bis zu 1000°C stark ab, um danach wieder leicht anzusteigen. Auch dies dürfte durch die Sauerstoffaufnahme bedingt sein. Diese Ergebnisse zeigen, dass bei den voraussichtlichen Temperaturen eines KVU, sehr hohe Dehnungen, d.h. Hüllaufweitungen möglich sind, sofern die Bedingungen für das Auftreten grösserer plastischer Deformation erfüllt sind.

Eine genauere Analyse der Abhängigkeit der Fließgrenze von der Verformungsgeschwindigkeit ergibt, dass der Geschwindigkeitsexponent m^+ in diesem Bereich hohe Werte (bis 0,5 und höher) annimmt, was auf

⁺) $m =$ Spannungsempfindlichkeit der Dehnungsgeschwindigkeit, $\left(\frac{d \log \sigma}{d \log \dot{\epsilon}}\right)_T$

superplastisches Verhalten hinweist. Normalplastisches Verhalten ist durch m -Werte von 0,1 - 0,2 gekennzeichnet. Man kann solche Daten durch Geschwindigkeitswechselversuche in der Zugprüfmaschine (diskontinuierliche Änderung der Verformungsgeschwindigkeit unter Beobachtung der sich dabei einstellenden Fließspannungswerte) bestimmen. Die extrem hohen Dehnungswerte sind somit keine normalplastischen Bruchdehnungen. Im superplastischen Bereich wirkt ein Sauerstoffangebot während der Verformung nicht versprödet, sondern bewirkt eher das Gegenteil. Bruchbilder von Flachzugproben sind in Abb.3 gezeigt. Die bei 860°C verformten Proben zeigen superplastisches Verhalten, was durch einen Bruch ohne Einschnürung und durch bestimmte Gefügemerkmale gekennzeichnet ist.

Zur Auswertung im Hinblick auf die Hüllrohrverformung müssten die Daten des einachsigen Zugversuches auf mehrachsigen Spannungszustand umgerechnet werden. Es ist noch offen, ob dies mit hinreichender Sicherheit möglich sein wird. Die Schwierigkeiten liegen vor allem in der Anisotropie der mechanischen Eigenschaften des Zry, die infolge der ausgeprägten Texturen des Hüllrohres makroskopisch wirksam werden. Bei Temperaturen des KVU ist vor allem das superplastische Verhalten (ausgedrückt in Form des Geschwindigkeitsexponenten) anisotrop (Abb. 4). Die oberen Teilbilder zeigen, dass die m -Werte sehr davon abhängen, in welchem Winkel die Zugproben zur Verformungsrichtung eines Bleches entnommen worden sind. Bei normalplastischem Verhalten (unteres Teilbild) ist eine Richtungsabhängigkeit kaum mehr festzustellen. Die Konsequenz dieses Tatbestandes ist, dass nach den Versuchen mit einachsig belasteten Proben Versuchsserien an Rohren unter Innendruck erfolgen müssen, die z.Zt. konzipiert werden. Weitere Arbeiten gelten dem Zusammenhang zwischen dem plastischen Verhalten einschliesslich der Superplastizität und der Gefügebeseffenheit von Zry. Man kann davon ausgehen, dass Massnahmen, die zur Kornvergrößerung führen, die Superplastizität vermindern oder beseitigen.

2.2 Oxidation von Zry-4 in Wasserdampf /3/

Es ist bekannt, dass die Oxidation von Zirkonium und Zr-Legierungen in Wasser und Dampf bei den Betriebstemperaturen der Druck- oder Siedewasserreaktoren zu einer Oxid-Schutzschicht führt, die den weiteren An-

griff stark behindert, solange die Schicht fest haftet. Bei höheren Temperaturen, etwa oberhalb 900°C , wird zusätzlich zur Schichtbildung auch eine Zr-O-Mischkristallbildung beobachtet, da die O-Diffusion in der metallischen Phase hinreichend stark wird. Dies gilt auch für Expositionszeiten von nur wenigen Minuten. Das führt zu mehrschichtigen Oxidationsprodukten, wie in Abb. 5 zu erkennen ist. Gemäss dem Zr-O-Phasendiagramm besitzt sowohl das α - als auch das oberhalb 862°C existierende β -Zr eine stärkere Löslichkeit für Sauerstoff, was nach Abkühlung zu den in Abb. 5 dargestellten Gefügeständen führt. Das Entscheidende für den KVVU ist hierbei, dass schon nach einigen Minuten grössere Querschnitte durchoxidiert werden (Abb. 6). So werden gemäss Abb. 6 bei 1200°C bei doppelseitiger Oxidation (nach 15 Minuten) mehr als 0,5 mm, d.h. ziemlich die gesamte Wandstärke des Hüllrohres durchoxidiert. Während die eigentliche ZrO_2 -Schicht den tragenden Querschnitt des Hüllrohres reduziert, verändert der in die metallische Phase eindiffundierte Sauerstoff deren plastisches Verhalten, wie oben angedeutet wurde.

Die bisher durchgeführten Oxidationsversuche sind allerdings noch nicht repräsentativ für einen KVVU, weil sie einerseits isotherm erfolgten, zum anderen die starken Effekte erst bei Zeiten auftreten, die weit über den für einen KVVU veranschlagten Zeiten von 1 - 2 Minuten liegen. Deshalb ist vorgesehen, solche Korrosionsversuche mit einem Temperaturzeitprogramm zu fahren, welches dem angenommenen KVVU weitgehend entspricht. Dabei sollen Zry-Rohrproben mit variablen Geschwindigkeiten und unter Argon-Innendruck aufgeheizt und der während des Unfalles auftretende Temperaturpeak wirklich gefahren werden. Es soll sich zeigen, ob hierdurch die Oxidationskinetik eine massgebende Änderung gegenüber der isothermen Beanspruchung erfährt.

2.3 Deformation von Zry-4-Hüllrohren unter Innenkorrosionsbedingungen /3/

Parallel zu diesen Untersuchungen prüfen wir das Versagen von geschlossenen Ar-gefüllten Hüllrohrproben, die einen teilweise abbrandsimulierten Brennstoff enthalten. Von Arbeiten über Brüter-Brennelemente war bekannt, dass bestimmte Spaltprodukte in Verbindung mit einem hinrei-

reichenden Sauerstoffpotential aggressiv wirken. Die bisherigen Untersuchungen an Zry-Hüllen ergaben mit UO_2 verschiedener Stöchiometrie als Brennstoff mit und ohne Anwesenheit von Spaltprodukten ein starkes Aufweiten, teilweise mit anschliessendem Bersten der Hüllen ab $800 - 900^\circ C$. Dabei ergaben sich Umfangsdehnungen bis etwa 100%. Das Phänomen entspricht weitgehend den o.a. hohen Dehnungswerten im einachsigen Zugversuch. Die erreichte Umfangsdehnung bzw. Volumenzunahme und ggf. Aufplatzen ist abhängig vom Sauerstoffgehalt, der mit UO_{2+x} eingebracht wurde. Unterhalb eines O/M-Verhältnisses von etwa 2,02 blähen sich die Rohrproben auf, oberhalb kommt es auch zum Aufplatzen. Abb. 7 zeigt einige Ergebnisse mit Brennstoffen im niederen Stöchiometriebereich. Wir beobachteten allgemein, dass bei Anwesenheit von Brennstoff gerade mit niedrigem O/U, d.h. bei schon geringem Sauerstoffangebot vom Brennstoff her ziemlich hohe Umfangsdehnungen auftreten. Sie liegen wesentlich höher als in Vergleichsversuchen ohne Brennstoff. Mit noch höherem O/M-Verhältnis (im Bild nicht gezeigt) ergibt sich eine Abnahme der Duktilität, d.h. der Umfangsdehnung des Zry-Rohres und die Tendenz zum Bersten nimmt zu. Hiernach sind die Vorgänge am Hüllrohr beim KVU nicht nur mechanischer Natur, sondern dem Einfluss des Brennstoffes kommt wesentliche Bedeutung zu, in jedem Falle, d.h. sowohl beim Aufweiten als auch beim Bersten, sind die von uns ermittelten, z.Tl. auch gemessenen Innendrucke überraschend niedrig, nämlich um 4 - 5 bar.

Bei Anwesenheit von simulierten Spaltprodukten (J, Te und Cs) erwarten wir einen stärkeren Einfluss, vor allem des Jods. Die Ergebnisse zeigen, dass auch hier der Einfluss des Sauerstoffes aus dem UO_{2+x} bezüglich der Hüllrohrveränderungen dominiert, dass aber das Jod die Umfangsdehnung der Hüllrohrproben herabsetzt. Cäsium bildet im überstöchiometrischen Brennstoff sauerstoffhaltige, ziemlich stabile Verbindungen, was zur Stabilisierung der Brennstoffstöchiometrie beiträgt und die Neigung zum Bersten der Rohre verringert. Elementar und ohne Brennstoff vorliegendes J oder Cs wirken infolge des Aufbaus eines zusätzlichen Druckes im Sinne einer verstärkten plastischen Hüllrohrdeformation.

Die bisherigen Arbeiten sollen fortgeführt werden in Form genauerer, möglichst reaktorspezifischer Parameterstudien, wobei vor allem dem Innendruck Aufmerksamkeit zu widmen ist. Es soll mit höheren, d.h. rea-

listischen Innendruckten gearbeitet werden, die dann auch zu höheren Dehnungsgeschwindigkeiten führen. Leider kennen wir die hier aufgetretenen Dehnungsgeschwindigkeiten noch nicht genau, so dass wir auch noch nicht sagen können, in wie weit diese Ergebnisse für einen KVU etwa bedeutsam sein könnten. Die out-of-pile Untersuchungen unterstreichen die Notwendigkeit von in-pile-Untersuchungen und Untersuchungen an abgebrannten Brennstäben, da auch die beste Simulation nicht zu sicheren Aussagen führen kann. Wir hoffen, aus dem Versuchsprogramm im Halden-Reaktor geeignetes Versuchsmaterial erhalten zu können, um hierdurch zu weiteren Aussagen über die Rolle des Brennstoffes und der Spaltprodukte, zunächst einmal für den Reaktornormalbetrieb zu kommen. Besonders wichtige Ergebnisse sind aus der Power Burst Facility in Idaho Falls zu erwarten, an deren Untersuchungen die GfK teilnimmt. Diese out-of-pile Parameterstudien zeigen aber, welche Brennstabveränderungen beim KVU möglich sind und dass diese in ihrer Auswirkung voraussichtlich vom Brennstoff beeinflusst und vom Abbrand abhängig sein werden.

Die beschriebenen Einzelarbeiten haben in summa das folgende Ziel: Die experimentelle Erarbeitung einer Zustandsfunktion, die die Umfangsdehnungen in Abhängigkeit von Zeit, Temperatur, Spannung, Aussenoxidation, Brennstoff und abbrandbedingten Faktoren beinhaltet und die den Parameterbereich des KVU umfasst. Dies ist eine nicht einfache Aufgabe, zu deren Erreichung noch grössere Anstrengungen nötig sind.

3. Kühlmittelverlustunfall ohne Notkühlung (Coreschmelzen)

Bei dem rein hypothetischen Fall, dass neben dem Hauptkühlkreislauf auch alle unabhängig voneinander wirkenden Notkühlssysteme eines Reaktors versagen, kann infolge der Nachwärme durch radioaktiven Zerfall es zum Aufheizen der Brennelemente bis zum teilweisen oder vollständigen Schmelzen kommen. Zur Temperaturerhöhung trägt auch die Reaktion Zircaloy-Wasserdampf bei. Einem solchen Vorgang wird zwar nur eine extrem niedrige Wahrscheinlichkeit beigemessen, er wird jedoch nicht prinzipiell ausgeschlossen. Bisher ist keine Unfallwahrscheinlichkeit in der Kerntechnik festgelegt worden, unterhalb derer man sich um die dabei auftretenden Vorgänge und Gefahren nicht zu kümmern brauchte. Somit

wird auch das Coreschmelzen im Rahmen des Forschungsprogrammes des BMFT zur Sicherheit von Leichtwasserreaktoren untersucht.

Ein grosser integraler Coreschmelzversuch schied von vornherein aus verschiedenen Gründen aus. Hingegen werden die einzelnen Phasen und Mechanismen eines Coreschmelzen-Unfalles, wie z.B. das Abschmelzverhalten von Brennelementen, die Schmelzbereiche und der Zustand von Coreschmelzen, wichtige Stoffwerte der Schmelzphasen, ihr Reaktionsverhalten sowie die Freisetzung und der Transport von Spaltprodukten untersucht. Wesentliches Ziel dieser Arbeiten ist es, die mit einem solchen Unfall verbundenen physikalisch-chemischen Phänomene kennenzulernen und zu erfassen sowie Berechnungsunterlagen zu schaffen, die einen solchen Unfallablauf quantitativ beschreiben.

3.1 Abschmelzexperimente /4/ und Konstitutionsuntersuchungen /5/

Die indirekte Erwärmung eines Brennstabsimulators mittels zentralem Wolframheizer gestattet die Bestimmung des zeitlichen Verlaufes des Abschmelzvorganges bei unterschiedlicher Wärmezufuhr (Abb.8), wobei auch temporäres und lokales Wiedererstarren verfolgt werden kann. Die Zusammensetzung der Schmelze und ihre zeitliche und örtliche Änderung sind deshalb von Bedeutung, da hiervon die Eigenschaften einschliesslich evtl. Entmischung, das Verhalten der Spaltprodukte, die weitere Reaktion mit dem Druckbehälter u.a. abhängen.

Abb. 9 zeigt abgeschmolzene Stäbe. Solche Experimente werden sowohl unter Schutzgas (Helium) als auch an Luft vorgenommen. Das Verhalten in Schutzgas kommt solchen Bereichen des Cores nahe, in denen Mangel an Wasserdampf herrscht, während in Luft die oxidierende Atmosphäre des Wasserdampfes simuliert wird. In Schutzgas wurden die ersten Schmelzerscheinungen um 1800°C festgestellt. Das Produkt enthält eine uranhaltige Schmelzphase, die also schon unterhalb des Schmelzpunktes der Komponenten auftritt. Die Erklärung hierfür liefert die Untersuchung des ternären Systems Uran-Zirkonium-Sauerstoff (Abb. 10). Konstitutionsuntersuchungen bei 1000 , 1500 und 2000°C haben gezeigt, dass sich UO_2 und Zr nicht im Gleichgewicht befinden, sondern dass zum Schnitt UO_2 -Zr (der dem Kontakt Pellet-Hülle entspricht) die Phasen

UO_2 , $\alpha\text{-Zr(O)}$ und, bereits bei $T \leq 1500^\circ\text{C}$, eine U-Zr-Schmelze gehört. Bei der Dynamik des Aufheizprozesses wird diese Schmelze beim praktischen Abschmelzversuch aber erst bei ca. 1800°C makroskopisch sichtbar, da die Gleichgewichtseinstellung eine gewisse Zeit erfordert. Die vom Brennstabsimulator hergestellten Gefügebildungen zeigen darüber hinaus, dass bereits im festen Zustand Sauerstoff in das Zircaloy diffundiert, wodurch auch in inerter Atmosphäre das Zr(O) entstehen kann. Hat man von vornherein sauerstoffgesättigtes Zr vorliegen, dann liegt der Schmelzbeginn etwa bei 1830°C , wie das quasibinäre System $\alpha\text{-Zr(O)-UO}_2$ ausweist (Abb. 11).

Abschmelzversuche an Luft zeigen eine höhere Versagenstemperatur des Brennstabes, da sich auf der Aussenseite des Hüllrohres eine ZrO_2 -Schicht bildet (Abb. 12). An der Innenseite finden jedoch die eben beschriebenen Reaktionen statt, da das Hüllrohr nicht völlig durchoxidiert. Bei etwa 1900°C wird der ZrO_2 -Mantel durchbrochen und ein Teil der Schmelze fließt aus dem Stab heraus. Der Oxidmantel schützt aber vor völligem Zusammenbruch und schmilzt auch bei 2200°C noch nicht zusammen. Er ist umso stärker, je langsamer das Aufheizen erfolgt. Nach dem Phasendiagramm $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ könnte ein weiteres oder vollständiges Schmelzen bei ca. 2400°C auftreten.

In vielen Fällen wurde eine metallographische und röntgenographische Phasenanalyse der abgeschmolzenen Brennstabsimulatoren durchgeführt, wofür Abb. 13 ein Beispiel zeigt. Teilbild a und b zeigt Übersichtsaufnahmen, c bis f Details aus verschiedenen Zonen. Es besteht eine völlige Übereinstimmung zwischen den hier gefundenen Phasen und den o.a. Konstitutionsuntersuchungen, was bedeutet, dass es sich um Gleichgewichtsphasen handelt. Die Mengenanteile in den verschiedenen aufgeschmolzenen Bereichen sind aber unterschiedlich, so dass im zeitlichen Verlauf eines Coreschmelzvorganges sehr unterschiedliche Schmelzen auf dem Druckbehälterboden ankommen.

Weitere Abschmelzversuche werden in Wasserdampf mit unterschiedlichem Partialdruck erfolgen, darüber hinaus wird austenitischer Stahl mit in die Experimente einbezogen. Es ergibt sich dabei das 6-Stoffsystem U-Zr-O-Fe-Cr-Ni, das natürlich nur in Teilsystemen, zunächst innerhalb des 4-Stoffes U-Zr-O-Fe, betrachtet werden kann. Hier haben die Kon-

stitutionsuntersuchungen einen gewissen Vorlauf vor den Abschmelzexperimenten, da die Untersuchung der wichtigsten ternären Systeme weitgehend abgeschlossen ist.

Von besonderem Interesse sind die Konzentrationsschnitte UO_2 -Fe und ZrO_2 -Fe, die je eine Mischungslücke im Schmelzbereich enthalten, d.h. es existieren je eine metallische und eine oxidische, miteinander nicht mischbare Schmelze. Dies ist für viele Metall-Metalloxidsysteme charakteristisch und wurde auch am System UO_2 -Zr gezeigt (Abb. 10). Bei stärker oxidierenden Bedingungen dürfte diese Mischungslücke aber verschwinden. Coreschmelzen, die unter Mangel an Wasserdampf oder Luft entstehen, sind also zunächst in bestimmten Zusammensetzungsbereichen mehrphasig, d.h. sie bestehen möglicherweise auch aus mehreren Schichten. Mehrphasig und mehrschichtig sind hier allerdings nicht gleichbedeutend, und die Ausbildung mehrerer Schichten hängt von der Thermo- hydraulik der Schmelze ab. Im Verlauf längerer Zeiten dürfte sich an oxidierender Atmosphäre jede Coreschmelze in Richtung auf eine homogene, oxidische Schmelze verändern. Spekulationen über die dafür zu veranschlagenden Zeiten bzw. ob dieser Endzustand erreicht wird, sollen hier jedoch unterbleiben.

3.2 Untersuchungen an "Corium" /5, 6, 7/

Da eine Coreschmelze somit unter sehr verschiedenen Bedingungen entstehen kann, ist ihre Zusammensetzung von vornherein nicht festgelegt. Zur Gewinnung der notwendigen Informationen muss ein weites Zusammensetzungsfeld betrachtet werden. Abb. 14 zeigt den Unterschied des sogenannten Corium A und Corium E, wie sie im Coreschmelzenausschuss definiert worden sind. Im Corium A wird angenommen, dass nur die Brennelemente einschliesslich der Abstandshalter und die Trageplatte zusammenschmelzen, woraus sich ein relativ niedriger Stahlanteil ergibt. Beim Corium E kommen weitere Einbauten im Reaktor hinzu. Die angegebenen Gesamtzusammensetzungen berücksichtigen nur die Hauptlegierungselemente. Corium A ist heterogen und besteht aus einem metallischen und einem nichtmetallischen Schmelzanteil (Abb. 15). Corium E ist eine homogene Schmelze mit metallischem Charakter. Beide Coriumarten (und auch mögliche Zwischenzusammensetzungen) können sich sowohl durch selektive

Verdampfung als auch durch Reaktion mit der Atmosphäre verändern. Hierdurch ergibt sich das gesamte Feld möglicher Coreschmelzen (Corium X), wie in Abb. 16 schematisch gezeigt wird. Von oben nach unten haben die Schmelzen zunehmenden Stahlanteil, von links nach rechts zunehmend oxidischen Charakter.

Bei dieser Betrachtung wurde die o.a. selektive Verdampfung noch nicht berücksichtigt. Hierdurch werden die Zusammensetzungen wiederum verschoben, wie Abb. 17 zeigt. Die hier durchgeführten Schmelzversuche zeigen eine Abnahme von Uran, Sauerstoff und Zirkonium und eine relative Zunahme des Anteiles der Stahlkomponenten. Solche Effekte müssen bei weiteren Arbeiten am Corium Berücksichtigung finden.

In die Rechenprogramme zur Beschreibung eines Coreschmelzenunfalles gehen verschiedene Stoffwerte sowohl der Corekomponenten als auch der Coreschmelzen ein, nach dem gegenwärtigen Stand die folgenden: Grenzflächenenergien, Schmelzwärmen, spezifische Wärmen, Wärmeleitfähigkeiten, Viskositäten und Photoemission. Für die Werte wird eine Genauigkeit gefordert, die jeweils zwischen 20 und 50% liegt. Die geforderten Daten sind nur zum geringsten Teil bekannt. In der Bundesrepublik werden deshalb an verschiedenen Stellen "Stoffwertstudien", zum Teil auch Experimentaluntersuchungen durchgeführt bzw. vorbereitet, um Werte bereitzustellen. Vor kurzem wurde von uns eine zusammenfassende Darstellung der theoretischen und experimentellen Möglichkeiten zur Bestimmung solcher Stoffwerte gegeben /6/, aus der u.a. folgendes hervorgeht: Aufgrund bekannter physikalisch-chemischer Zusammenhänge können manche Stoffwerte mit hinreichender Genauigkeit abgeschätzt werden, in anderen Fällen bestehen jedoch zu grosse Unsicherheiten. Die Abschätzungen für den flüssigen Zustand gehen zum Teil von den Eigenschaften des festen Zustandes aus. Experimentelle Bestimmungen in realistischen Systemen sind zum grossen Teil sehr schwierig, besonders wegen der extremen Zustandsbedingungen. Bestimmte Eigenschaften, wie Grenzflächenenergien, Schmelzwärmen, Leitfähigkeit und Viskosität könnten jedoch besser abgeschätzt werden, wenn unterstützende Experimente durchgeführt würden.

Als Beispiel sei die Abschätzung der Viskosität von Coreschmelzen am Schmelzpunkt angegeben (Abb. 18), wofür die Gleichung von Andrade /6/

benutzt wurde. Ihre Anwendung für die Einzelkomponenten des Coriums setzt die Kenntnis der Schmelztemperaturen und der Molvolumina voraus. Aus den erhaltenen Viskositäten der Komponenten kann unter Annahme der Gültigkeit der Mischungsregel die Viskosität des Coriums berechnet werden. In die Gesamtabstätzung gehen allerdings mehrere Unbekannte ein. Da die metallischen Komponenten einer hypothetischen Coreschmelze wegen ihres im Vergleich zum oxidischen Anteil niedrigeren Schmelzpunktes in überhitzter Form vorliegen und die Temperaturabhängigkeit der Viskosität nicht als hinreichend gesichert anzusehen ist, wird vorgeschlagen, die Viskosität der metallischen Schmelzen und ihre Temperaturabhängigkeit experimentell zu bestimmen.

Zum Verhalten hypothetischer Coreschmelzen werden weitere Fragestellungen in der GfK bearbeitet, die hier nur kurz Erwähnung finden können. Zum Teil bildet ihre Lösung die Voraussetzung dafür, Coreschmelzen überhaupt handhaben zu können.

Hier stand zunächst die Frage des Tiegelmaterials /8/, das bei Temperaturen von 2000 - 2400^oC hinreichend beständig ist, d.h. wenigstens über Zeiträume von 10 - 30 Minuten. Nach Auswertung vieler Versuche hat sich nur ThO₂ in reiner hochdichter Form als einigermaßen brauchbar erwiesen, mit anderen Werkstoffen wie Graphit, ZrO₂ und hochschmelzenden Carbiden finden zu starke Reaktionen statt. U.a. von diesem Verträglichkeitsverhalten hängt die erfolgreiche Durchführung von den gerade anlaufenden Spaltprodukt-Freisetzungsversuchen /7/ ab. Sie sollen Auskunft geben über die Geschwindigkeit der Abgabe von Spalt- und Aktivierungsprodukten und über deren physikalischen und chemischen Zustand. Zu diesem Zwecke wurde eine Anlage ("Sascha") installiert, die es gestattet, Temperaturen von 2800^oC unter oxidierenden oder inerten Bedingungen zu erreichen und eine gewisse Zeit zu halten. Dabei kommen Probemengen im Hundertgrammbereich in Form von abbrandsimuliertem Brennstoff zum Einsatz.

Bei weitgehendem Zusammenschmelzen des Cores muss auch mit einer Reaktion der Schmelze mit dem Stahlbehälter und dem darunter befindlichen Beton gerechnet werden. Dabei interessiert einerseits die Ausbreitungsgeschwindigkeit, d.h. das Eindringen der Schmelze in den Beton, zum anderen die dabei auftretenden Zustände und Eigenschaften der Schmelze und schliesslich die sich etwa ändernde Freisetzungskinetik der Nuklide.

Vorversuche zeigen, dass sich eine Coreschmelze in Anwesenheit von Beton stark verändert. Es bilden sich höherviskose, glasähnliche Schmelzanteile, die möglicherweise auch die weitere Oxidation der metallischen Anteile behindern. Zur Wechselwirkung von Corium mit Beton sind deshalb ausführlichere Untersuchungen geplant.

4. Schlussbemerkung

An den Arbeiten zur Materialforschung im PNS sind neben dem Institut für Material- und Festkörperforschung (Teilinstitut I und II) auch das Institut für Radiochemie und die Abteilung Reaktorbetrieb und Technik beteiligt. Den Arbeiten kam das Erfahrungspotential zugute, das im Rahmen der PSB-Arbeiten in den vergangenen Jahren auf dem Materialgebiet gewonnen wurde. Auch konnte ein grosser Teil der vorhandenen materiellen Ausrüstung für die Arbeiten des PNS Verwendung finden. Dies erlaubte einen raschen Start und die Gewinnung von Ergebnissen innerhalb relativ kurzer Zeit. Die Untersuchungen sind jetzt voll im Fluss, die hier mitgeteilten Ergebnisse haben international Beachtung gefunden und führten zu einem intensiven Erfahrungsaustausch mit Experten der NRC, der jetzt auch durch Personalaustausch intensiviert wird. Somit können Materialuntersuchungen zur Sicherheit von Leichtwasserreaktoren in der GfK effektiv und kostengünstig durchgeführt werden.

Literatur

- /1/ An Assessment of Accident Risks in U.S.-Commercial Nuclear Power Plants, WASH - 1400 (Aug. 1974)
- /2/ Unveröffentlichte Berichte verschiedener GfK-Autoren (1975)
- /3/ M.Boček, P.Hofmann, S.Leistikow, C.Petersen:
Zum Materialverhalten von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverlustunfall, KfK-Nachrichten 7 (1975, H.3) S.34-44
- /4/ S.Hagen:
Experimentelle Untersuchung des Abschmelzverhaltens von LWR-Brennelementen, KfK-Nachrichten 7 (1975, H.3) S.45-49

- /5/ P.Hofmann, H.Holleck, C.Politis, A.Skokan:
Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Komponenten
beim Coreschmelzen, KFK-Nachrichten 7 (1975, H.3) S.50 -57
- /6/ S.Nazaré, G.Ondracek, B.Schulz:
Über theoretische und experimentelle Möglichkeiten zur Be-
stimmung der Stoffwerte von Corium, KFK 2217 (Okt. 1975)
- /7/ H.Albrecht, D.Perinic:
Experimentelle Untersuchung zur Freisetzung von Spaltpro-
dukten bei hypothetischen Reaktorunfällen in: KFK 2101
(Nov. 1974) und KFK 2195, PNS 4243
- /8/ P.Hofmann:
1.PNS Halbjahresbericht 1975, KFK 2195, PNS 4243.

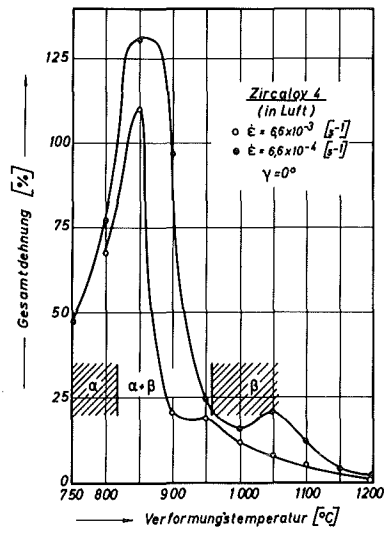


Abb. 1: Bruchdehnung als Funktion der Temperatur für zwei Verformungsgeschwindigkeiten (γ :Winkel zwischen Probenachse und Verformungsrichtung) /3/

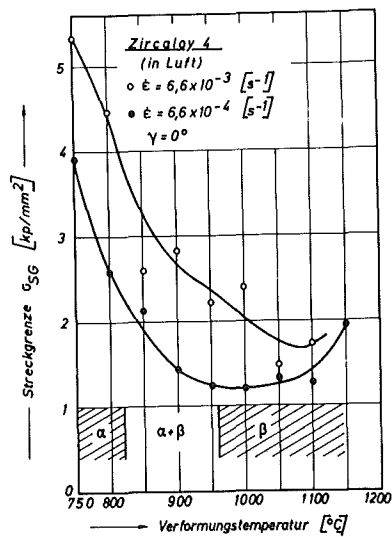


Abb. 2: Streckgrenze als Funktion der Temperatur für zwei Verformungsgeschwindigkeiten /3/

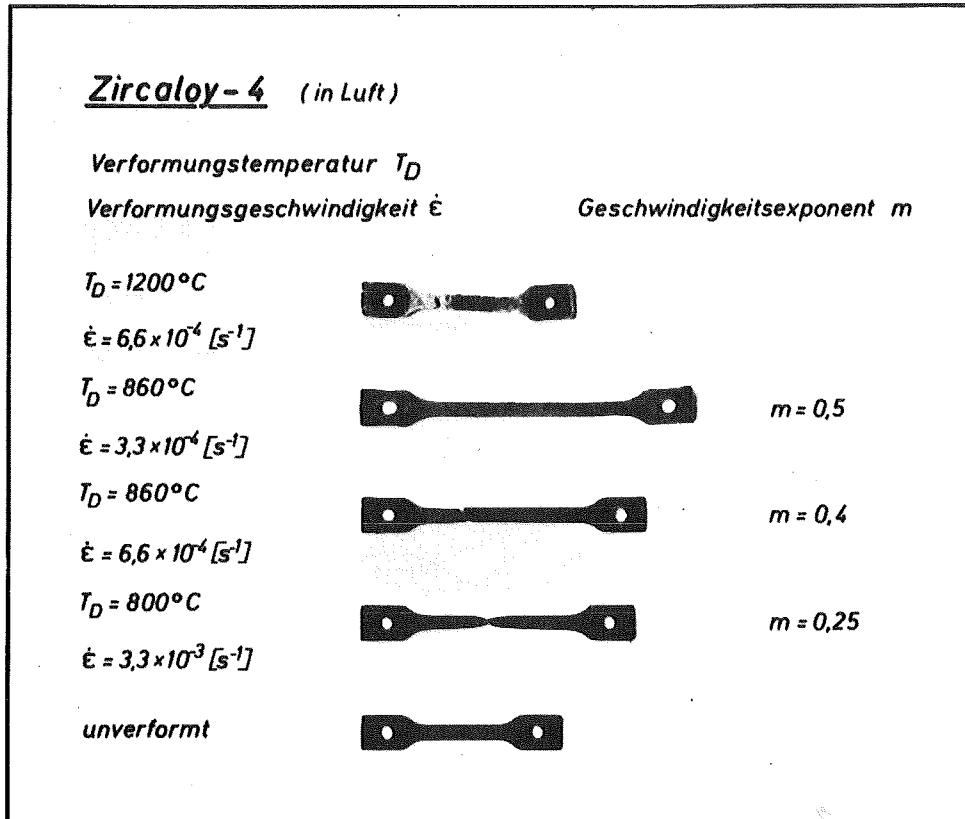


Abb. 3: Das Bruchverhalten von Flachzugproben /3/

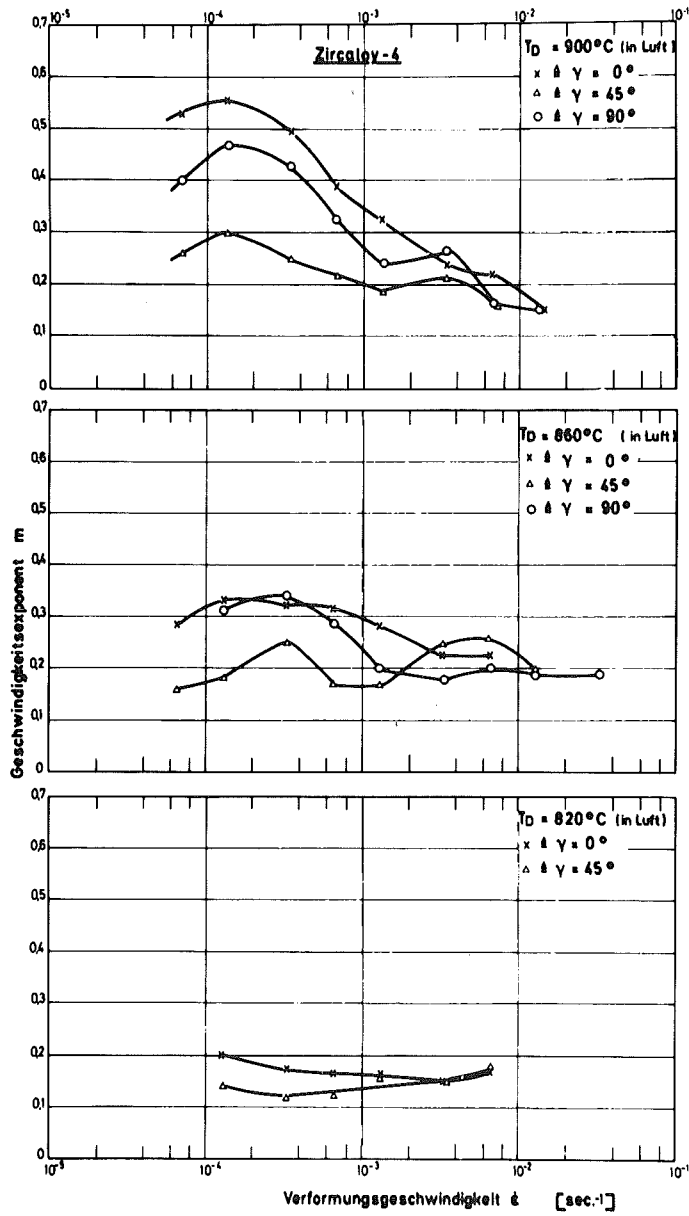


Abb. 4: Die Anisotropie des Geschwindigkeits-
exponenten m /3/

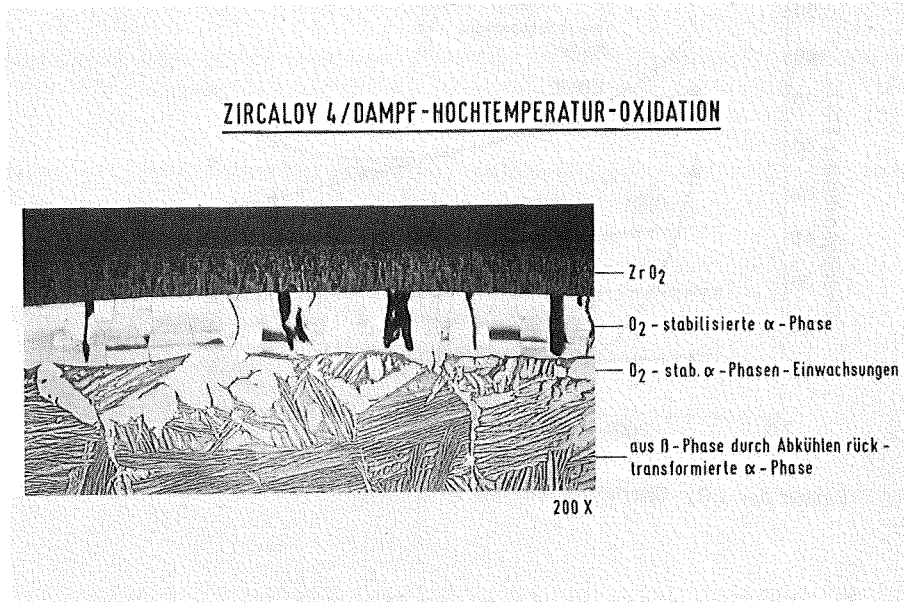


Abb. 5: Oxidationsprodukte auf Zry-4 nach Hochtemperatur-Dampfoxidation /3/

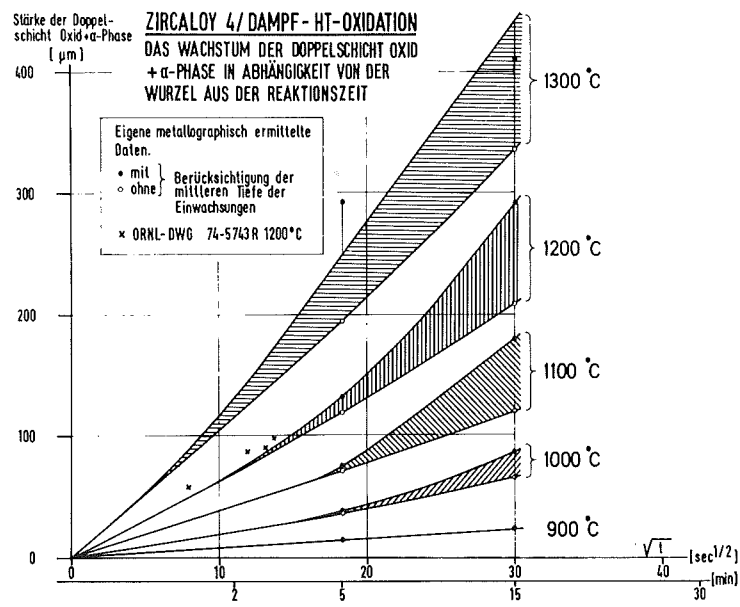
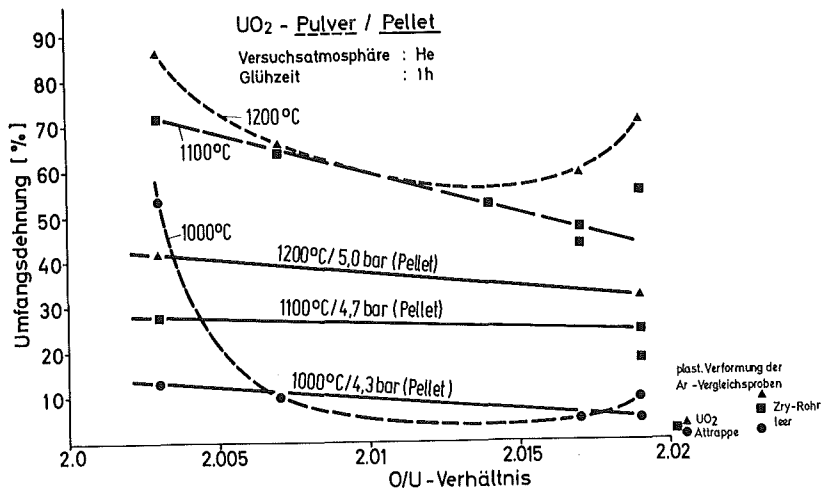


Abb. 6: Schichtwachstum auf Zry-4 (Oxid+O-haltige Metallphase) /3/ bei der Hochtemperatur-Dampfoxidation



Einfluß der UO₂ - Oberfläche auf das Verformungsverhalten der Zry-4 -Rohre

Abb. 7: Verformungsverhalten von Zry-4-Rohrabschnitten in Anwesenheit von UO₂-Brennstoff mit verschiedenem O/U-Verhältnis

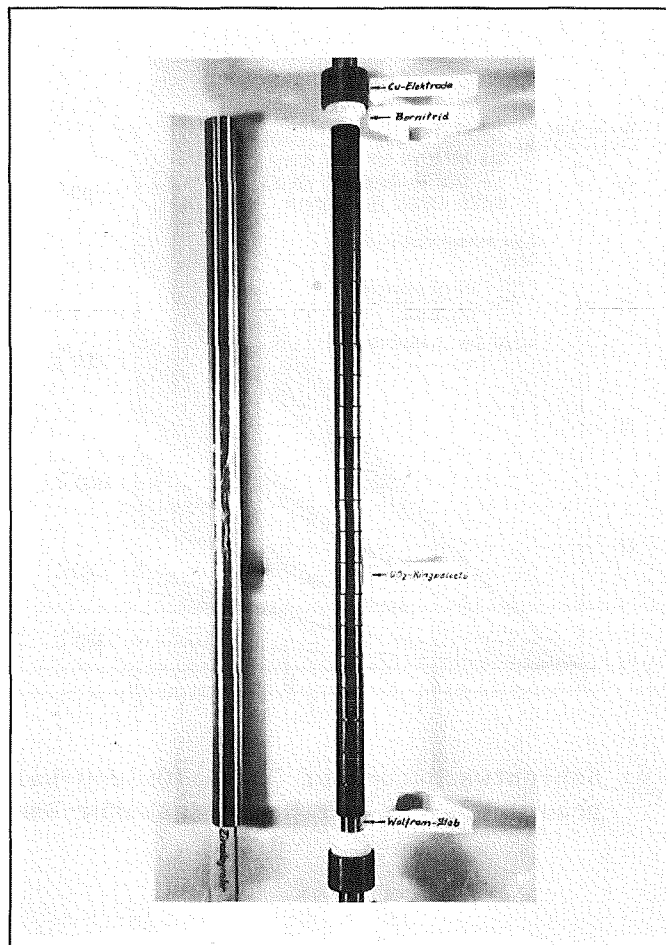


Abb. 8: Einzelteile des Brennstabsimulators /5/

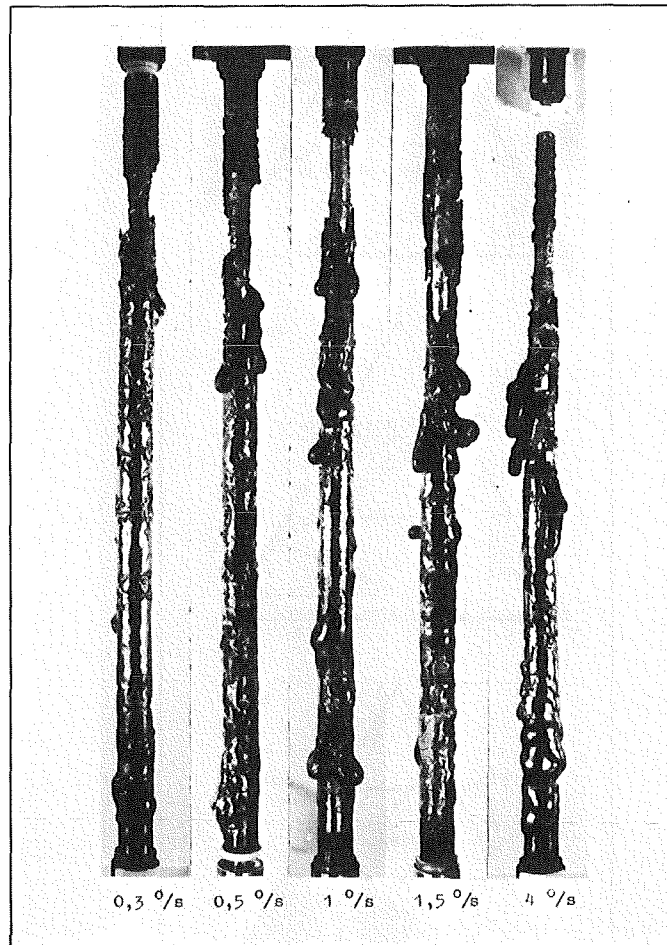


Abb. 9: In Schutzgas mit verschiedenen Temperaturanstiegen abgeschmolzene Stäbe /4/

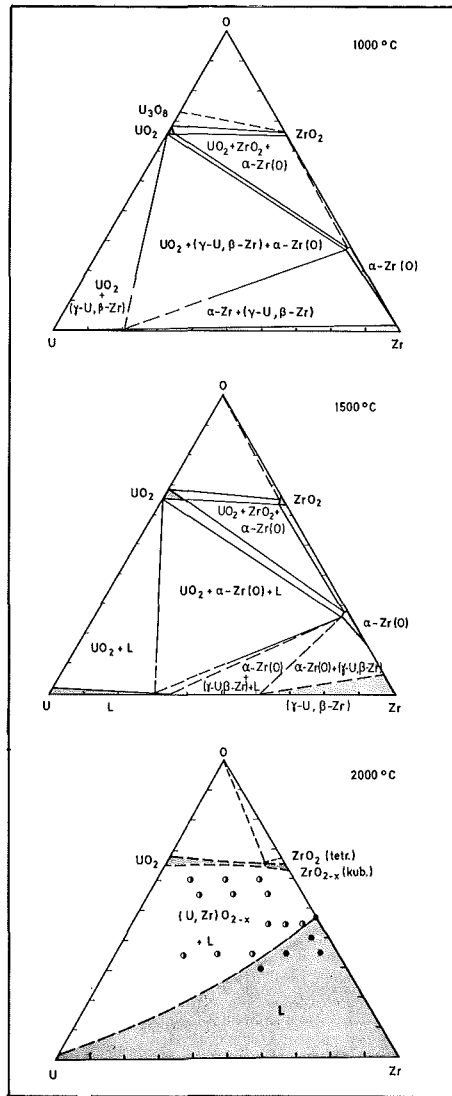


Abb. 10: Isotherme Schnitte im System U-Zr-O
/5/

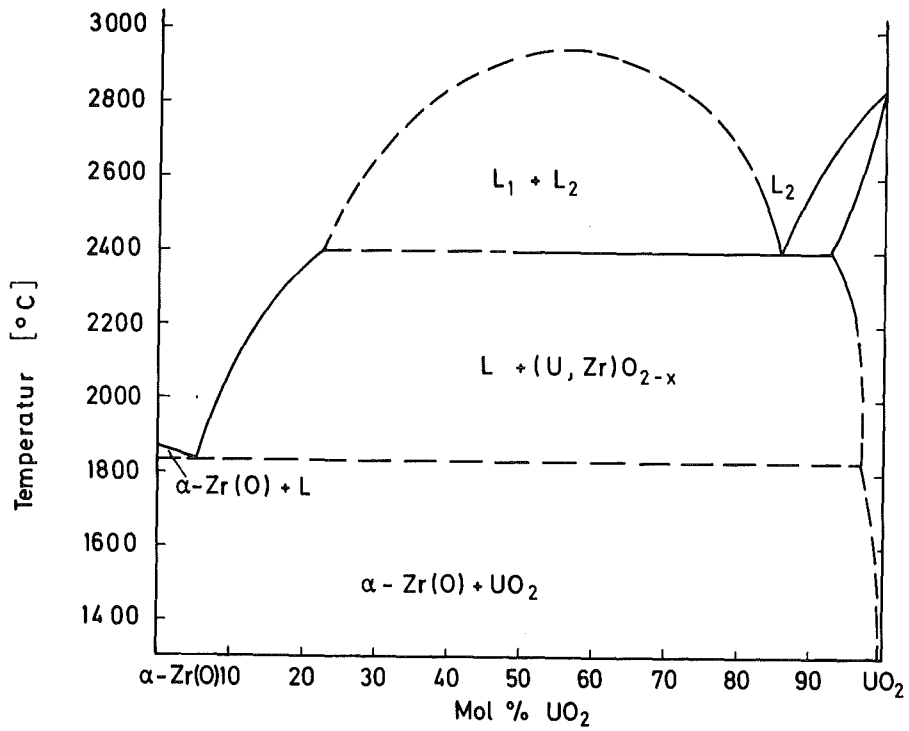


Abb. 11 : System Zr(O)-UO₂ /5/

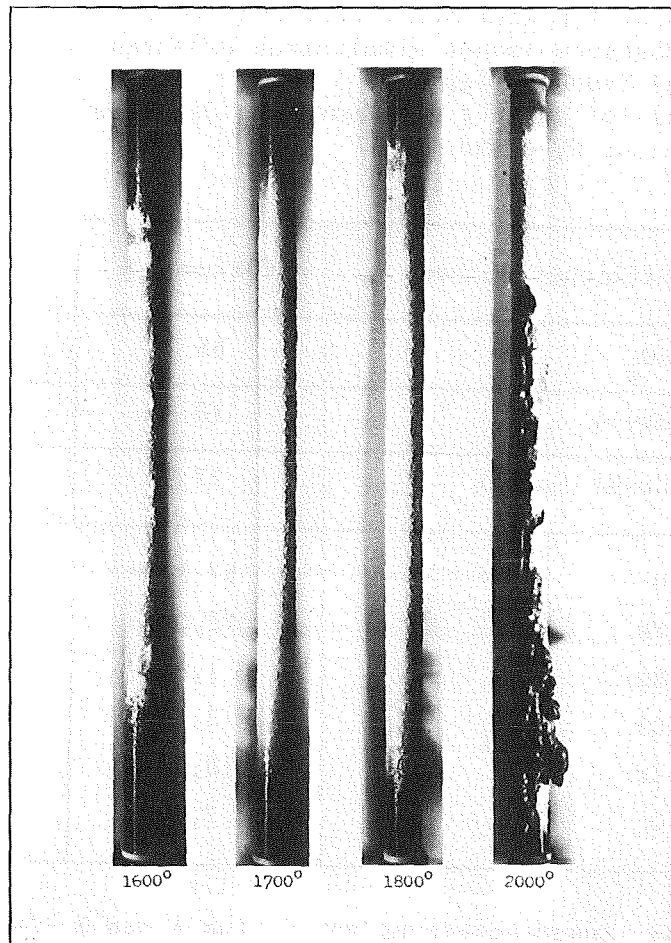


Abb. 12 : In Luft bis zu den angegebenen Temperaturen (°C) aufgeheizte Stäbe /5/

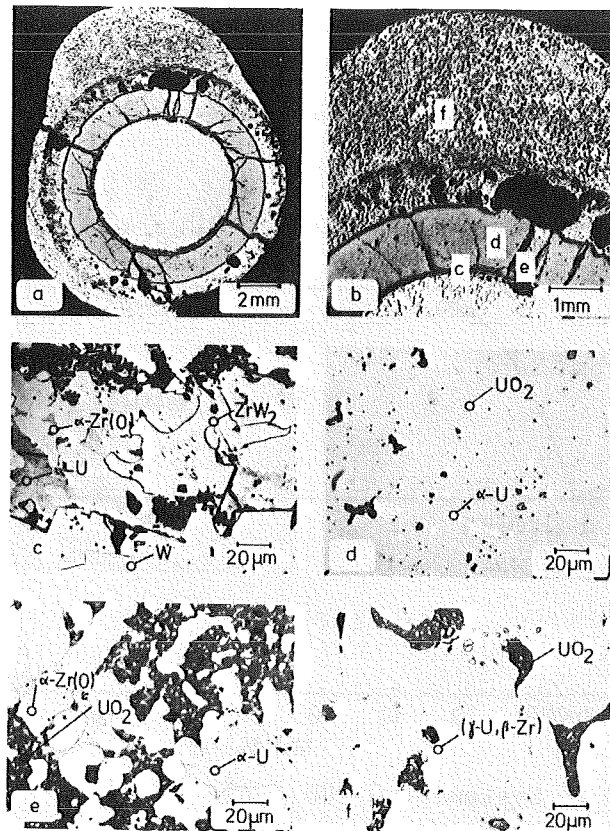


Abb. 13: Schliffbilder von Proben aus dem unteren Teil eines abgeschmolzenen simulierten LWR-Brennstabs
 a) Gesamtansicht
 b) Teilansicht mit Zuordnung der Detailaufnahmen c, d, e und f /5/

Stofflicher Aufbau		Corium A	Corium E
Komponenten (Gew.%)	UO ₂	65	35
	Zry-4	18	10
	Stahl 1.4550	17	55
Elemente (Gew.%)	U	57,3	30,8
	Fe	12,0	38,9
	Ni	1,8	5,8
	Cr	3,1	10,3
	Zr	18,0	10,0
	O	7,8	4,2

Abb. 14: Zusammensetzung von Corium A und E /6/

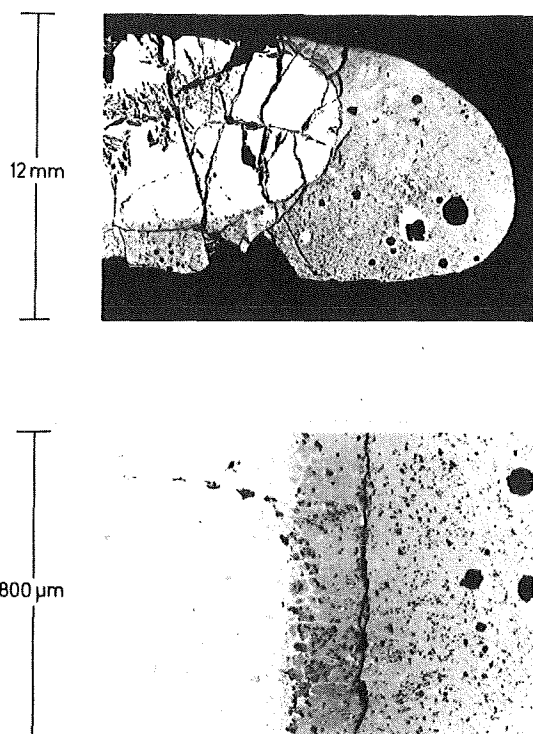


Abb. 15: Corium A, lichtbogengeschmolzen /5/

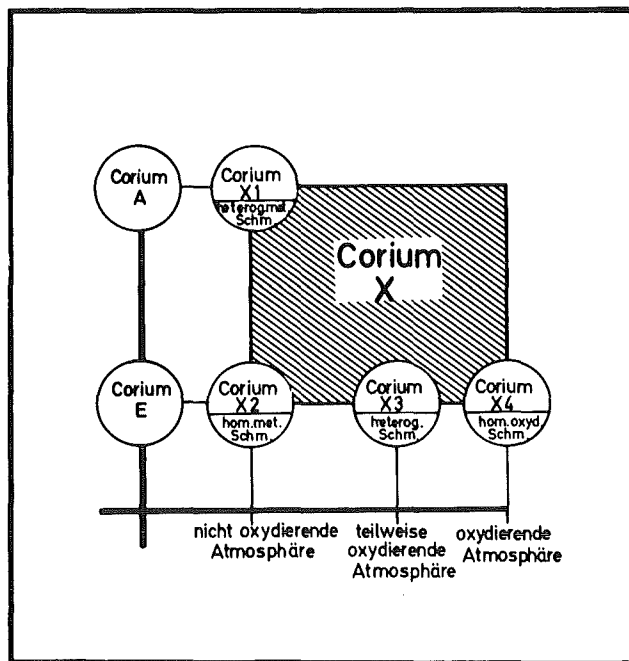


Abb. 16: Corium /6/

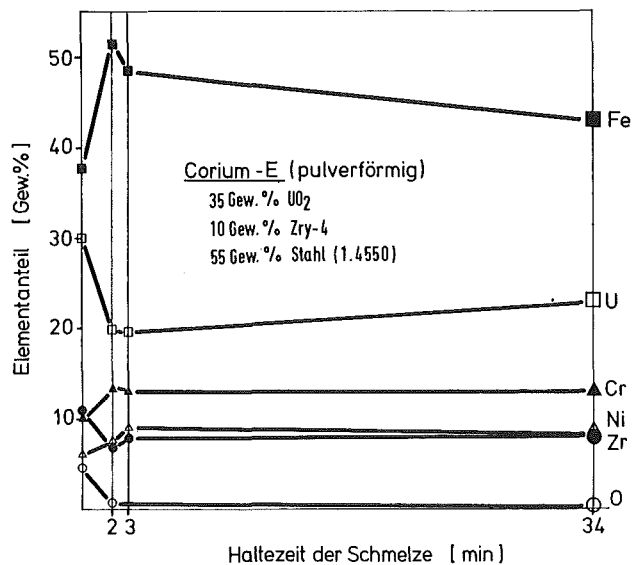


Abb. 17: Änderung der Corium E-Zusammensetzung bei ca. 2400°C in Abhängigkeit der Zeit (600 Torr Ar) /5/

Corium	Zustände	T _s (K)	η(cP)
Corium A (X ₁)	metallisch	2275	5,4
	oxidisch	2675	5,7
Corium E (X ₂)	metallisch	2275	5,4
Corium E (X ₃)	metallisch	1825	5,4
	oxidisch	2675	5,7
Corium E (X ₄)	oxidisch	2075	4,3

Abb. 18: Abgeschätzte Viskositäten von Corium bzw. Coriumanteilen bei der Schmelztemperatur /6/

JAHRESKOLLOQUIUM 1975
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen

J.G. Wilhelm, H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtrertechnik

1. Abscheidung von Spaltjod aus der Abluft von Kernkraftwerken

1.1. Jodfreisetzung aus Kernkraftwerken

Ein Vergleich der Strahlenbelastung, die infolge der Emission verschiedener Radionuklide in der Umgebung von Kernkraftwerken zu erwarten ist, zeigt, daß ^{131}J auch bei Einsatz der heute vorhandenen Filtertechnologie für die Umgebungsbelastung das entscheidende Radionuklid ist. Diese Aussage kann weitgehend ungeachtet der Tatsache gemacht werden, daß die Konzepte des Sicherheitseinschlusses und der Lüftungsanlagen der verschiedenen Reaktortypen eine große Variationsbreite zeigen und die absolute und relative Höhe der tatsächlich auftretenden Abgaben durch die jeweils gewählten Konzeptionen beeinflusst werden.

In Abb. 1 wird eine stark vereinfachte Darstellung des Lüftungskonzeptes eines modernen Druckwasserreaktors wiedergegeben. Es wurden die verschiedenen Filter eingezeichnet, die zur Reduzierung der Spaltjodabgabe eingebaut werden. Ähnliche Konzeptionen werden bei den zukünftigen Siedewasserreaktoren vorgesehen. Die im Rahmen des PNS durchgeführten Arbeiten zur Jodfilterung in Kernkraftwerken betreffen die Abluftfilter für bestimmungsgemäßen und für Störfallbetrieb (Position 6 und 7 in Abb 1), Störfallumluftfilter im Sicherheitsbehälter (die mit 4 bezeichneten Positionen könnten durch Störfallumluftfilter besetzt werden) und die Identifizierung der anfallenden Spaltjodgemische in der Ab- und Fortluft.

1.2. Jodabscheidung bei bestimmungsgemäßem Betrieb

Moderne Jod-Sorptionsfilter erreichen unter den Bedingungen des bestimmungsgemäßen Betriebes für elementares und organisch gebundenes Spaltjod Abscheidegrade von $> 99,9\%$. Die Jodabscheidung aus der Abluft unter den Bedingungen des Normalbetriebes könnte damit als weitgehend gelöst angesehen werden.

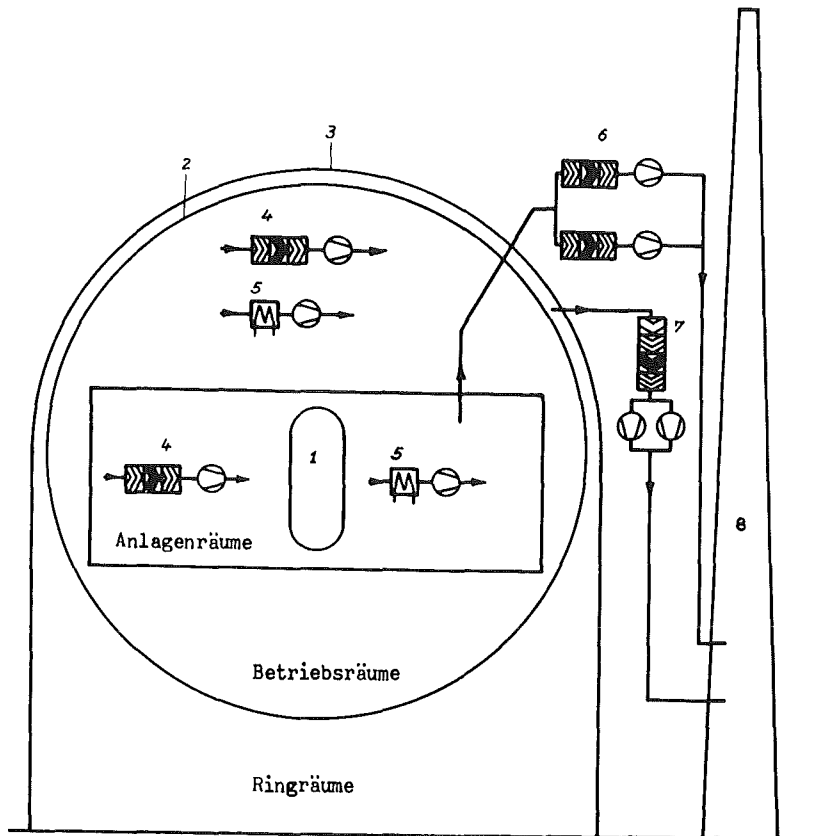


Abb. 1 Lüftungskonzept eines modernen DWR
(vereinfachte Darstellung)

- | | |
|-----------------------|------------------------|
| 1 Reaktortank | 5 Umluftkühlung |
| 2 Sicherheitsbehälter | 6 Abluftfilteranlage |
| 3 Betonabschirmung | 7 Störfallfilteranlage |
| 4 Umluftfilteranlage | 8 Kamin |

Jedoch ist ein aktuelles Problem der Jodfilterung, das sich besonders bei kontinuierlich betriebenen Abluftfiltern zur Jodabscheidung bei bestimmungsgemäßen Betrieb stellt und für den Störfallbetrieb zum Sicherheitsrisiko werden kann, durch den Verlust an Abscheideleistung mit steigender Betriebszeit der zur Jodabscheidung eingesetzten Aktivkohle gegeben.

Vom Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik II (LAF II) der Gesellschaft für Kernforschung durchgeführte Wiederholungsprüfungen an Jodfilteranlagen in Kernkraftwerken, die eine Prüfung der Abscheideleistung der Aktivkohle mit einem hier entwickelten Verfahren einschließen, zeigten ein teilweise sehr starkes Absinken der Abscheidegrade, insbesondere bei Anlagen in neu in Betrieb genommenen Kernkraftwerken.

In Tab. I sind die Ergebnisse der Laborprüfungen von Aktivkohleproben aus Kontrollfiltern, die parallel zu den Jod-Sorptionsfiltern angeordnet sind, wiedergegeben (1). Durch Ausführung und Anordnung der Kontrollfilter ist gewährleistet, daß die darin befindlichen Aktivkohlen den gleichen Einflüssen unterliegt wie die eigentlichen Jod-Sorptionsfilter.

Tab. I: Laborprüfung von Aktivkohleproben aus Kontrollfiltern

Nr.	Aktivkohle aus Jodfiltern zur Reinigung von:	Verweilzeit [s]	Abscheidegrad [%]	Durch Analyse nachgewiesene Filterschadstoffe bzw. Veränderungen +)	Betriebs- bzw. Standzeit [Monate]	Abscheidegrad bei Inbetriebsetzung
1	Anlagenabluft	0,4	96,1	Maschinen- u. Heizöl	ca. 6	> 99,99
2	Ringraumabluft	1,0	99,1	Lösungsmittel	ca. 12	99,68
3	Anlagenabluft	2,0	99,9	Heizöl und Lösungsmittel	ca. 12	>> 99,99
4	Anlagenabluft	2,0	99,4		ca. 12	>> 99,99
5	Spülluft	0,4	83,8	Lösungsmittel	ca. 6	99,76
6	Ringraumabluft	1,0	97,7	Verlust an KJ-Imprägnierung	ca. 6	99,994
7	Anlagenabluft	1,0	82,8	extrem hohe Lösungsmittel-Beladung	ca. 6	> 99,994
8	Anlagenabluft	1,0	77,9	extrem hohe Lösungsmittel-Beladung	ca. 6	> 99,994
9	Umluft	0,4	28,9	extrem hohe Lösungsmittel-Beladung	ca. 6	> 99,99
10	Umluft	0,4	73,9	extrem hohe Lösungsmittel-Beladung	ca. 6	> 99,99

Als Ursache für den sehr schnell eintretenden Verlust der Jod-Sorptionsfilter an Abscheideleistung, z. B. nach 6 Monaten Filterbetriebszeit von einem Abscheidegrad > 99,994 % auf 77,9 % (Nr. 8 in Tab. I), stellte sich die Adsorption von Filterschadstoffen heraus, die vorwiegend aus Anstrichen und Kunststoffen in den zu filternden Abgasstrom freigesetzt werden. In Tab. II sind Abscheidegrade und Lösungsmittelbeladung einer im Kernkraftwerk eingesetzten Jodfilter-Aktivkohle im Vergleich zur frischen Aktivkohle aufgeführt (2). Die lösungsmittelbeladene Aktivkohle stammt aus dem Kontrollfilter eines Anlagenabluftfilters.

Tab. II: Lösungsmittelbeladung und Abscheidegrad für $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ einer im Kernkraftwerk eingesetzten Aktivkohle

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

Trägergas : Feuchtluft, 50°C, ~ 75 % rel. Feuchte.

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

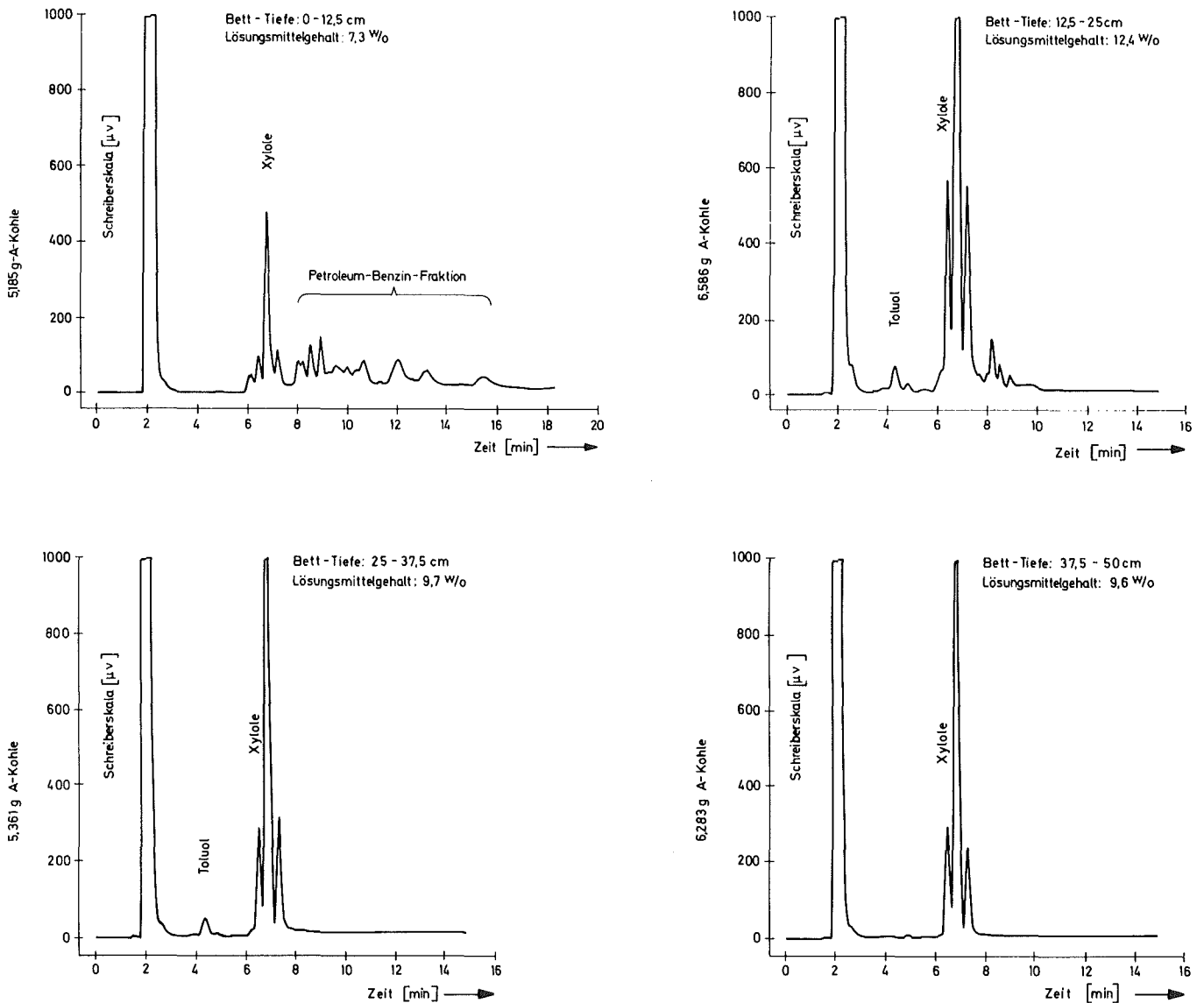
Aktivkohle aus:		Kontrollfilterbett-Tiefe [cm]				Integrale Werte
		0-12,5	12,5-25	25-37,5	37,5-50	0-50 [cm]
frische Aktivkohle	Abscheidegrad %	92,6	92,6	92,6	92,6	99,994
Anlagenraumabluftfilter I	Abscheidegrad %	10,4	49,4	39,0	37,5	82,8
	Lösungsmittelgehalt w/o	11,1	11,9	9,4	4,2	9,2
Anlagenraumabluftfilter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

Aus den Werten der Tab. II kann darauf geschlossen werden, daß eine einfache Zuordnung zwischen dem Lösungsmittelgehalt der Aktivkohle und dem Abscheidegrad nicht gegeben ist.

Abb. 2 zeigt die Gaschromatogramme der CCl_4 -Extrakte aus der Aktivkohle des Anlagenraum-Abluftfilters II aus Tab. II.

Im einzelnen wurden Toluol, Xylol und Anteile der Petroleum-Benzinfraktion gefunden. Die Petroleum-Benzinfraktion wurde in der ersten Hälfte des Aktivkohlebettes praktisch vollständig zurückgehalten, die Xylol und Toluol brachen durch. Aufgrund der Gaschromatogramme besteht die Aussicht, den höher siedenden Anteil der Lösungsmittel durch Voradsorption an Aktivkohle zurückzuhalten. Um die Lösungsmittelspeicherung der Jod-Sorptionsfilter zu verringern, wird daher z. Z. die Wirkung von Vorfiltern untersucht. Ein Filtermaterial-Prüfstand für diese Untersuchungen wurde vor einigen Monaten rohluftseitig vor den Anlagenraum-Abluftfiltern eines Kernkraftwerkes installiert (Abb. 3).

Abb.: 2
Gas-Chromatogramme der CCl_4 Extrakte aus Anlagenabluftfilter eines Kernkraftwerkes



Im Laboratorium des LAF II werden z. Z. die ersten Proben aus dem Filtermaterial-Prüfstand auf Schadstoff-Beladung und Verteilung sowie auf Abscheideleistung gegenüber $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ als Prüfmittel untersucht. Außerdem wird die Eignung verschiedener Sorptionsmaterialien zur Abscheidung einzelner, identifizierter Filterschadstoffe geprüft. Die Arbeiten zur Schadstoff-Beladung von Jod-Sorptionsfiltern werden als Teilaufgabe von PNS-Programmpunkt 4114 durchgeführt.

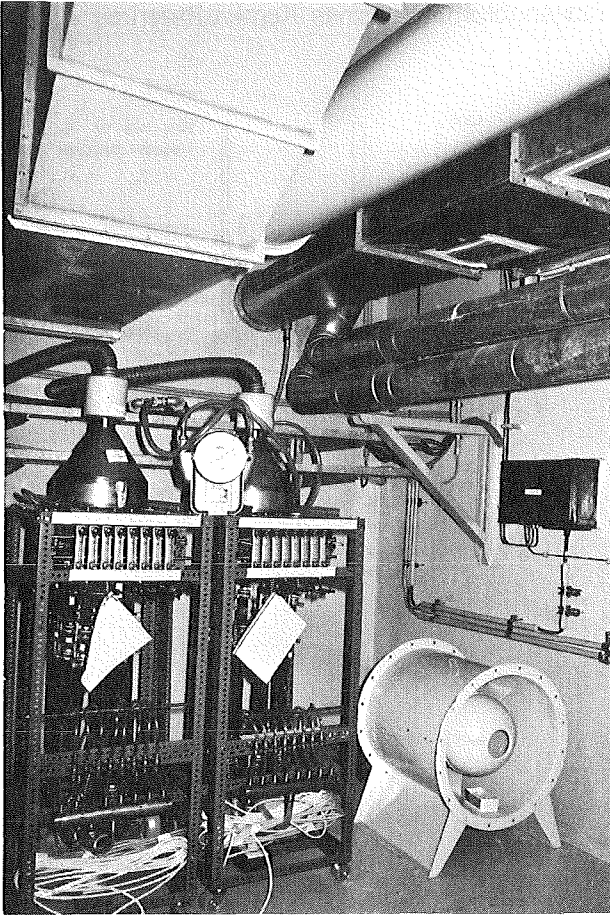


Abb. 3: Mobiler Filtermaterial-
prüfstand des LAF II
in einem Kernkraftwerk

1.3. Jodabscheidung bei Reaktor-Störfällen

Da in der BRD Jodfilter, die zur Begrenzung von Störfallfolgen eingesetzt werden, nicht bei bestimmungsgemäßem Betrieb mit Abluft beaufschlagt werden dürfen, besteht eine Vergiftungsgefahr für diese Filter nicht in dem Maße wie bei den kontinuierlich beaufschlagten Abluftfiltern für bestimmungsgemäßen Betrieb. Wiederholungsprüfungen zeigten, daß trotzdem eine periodische Kontrolle der Abscheideleistung der Aktivkohle dieser Filter notwendig ist.

Entwicklung von Störfallumluftfiltern

Höchste Anforderungen an ein Jodfilter werden dann gestellt, wenn es der Atmosphäre in einem Reaktorsicherheitsbehälter nach einem schweren Störfall ausgesetzt wird. Die zu erwartenden Betriebsbedingungen nach einem Kühlmittelverlust-Störfall zeichnen sich durch hohe Temperaturen, Aktivitätskonzentrationen und Ortsdosisleistungen sowie extreme Luftfeuchten und starken Kondensatanfall aus.

Jede einzelne dieser Bedingungen erschwert die Jodabscheidung. Die im LAF II laufenden Untersuchungen sind auf die schnelle Abscheidung von Spaltjod und Schwebstoffen aus dem Sicherheitsbehälter eines Druckwasserreaktors zur Verringerung der potentiellen Quellstärke für den Luftpfad ausgerichtet. Es wird eine Ortsdosisleistung bis zu $1 \cdot 10^7$ rad/h und, durch die Auslegung des Sicherheitsbehälters bedingt, ein Maximaldruck der wasserdampfgesättigten Atmosphäre von 5,7 bar sowie eine Maximaltemperatur von 157°C angenommen.

Als Sorptionsmaterial für gasförmiges Jod kommt wegen der hohen Betriebstemperaturen, die durch die Zerfallswärme der zurückgehaltenen Spaltprodukte noch erhöht wird, Aktivkohle nicht in Frage, da mit Entzündung gerechnet werden muß und bereits bei relativ niedrigen Temperaturen unter Einwirkung hoher Strahlungsdosen Desorption eintritt.

In Abb. 4 ist die Temperatur in einem Störfallumluftfilter nach der Abscheidung von 25 % des Spaltjodes und 0,5 % des sonstigen Kerninventars eines $3000 \text{ MW}_{\text{th}}$ -Reaktors für verschiedene Luftdurchsätze angegeben (3). Bei einem Volumenstrom von $20.000 \text{ m}^3/\text{h}$ erreicht die Temperatur einen Maximalwert von 200°C , der mit verschiedenen anorganischen Jod-Sorptionsmaterialien in trockenen Gasen ohne weiteres beherrscht werden kann.

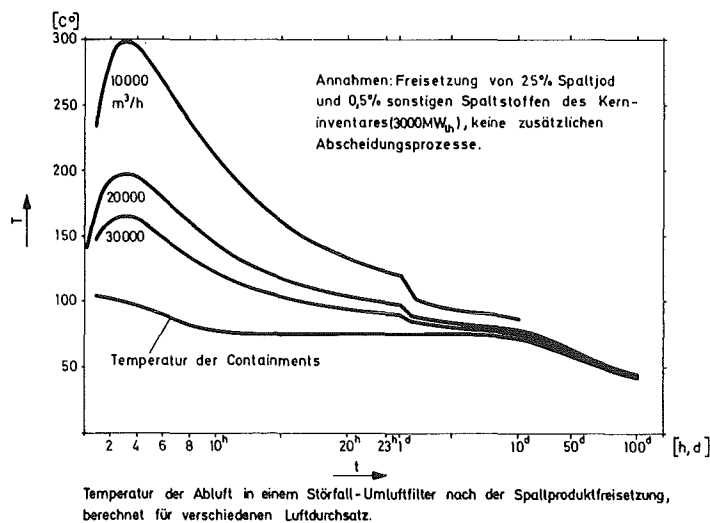


Abb. 4

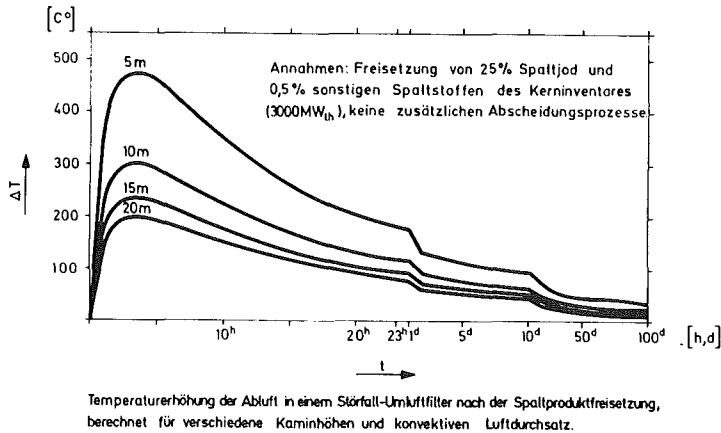


Abb. 5

Fallen die Ventilatoren der Umluftfilteranlage aus, wird eine Kühlung nur noch durch Thermokonvektion bewirkt. Die Abb. 5 zeigt, daß bei einem 10 m hohen Kamin eine Erhöhung der Temperatur der Luft im Störfallumluftfilter von max. 300°C auftritt, so daß insgesamt 400°C im Sorptionsmaterial knapp überschritten werden. Bei dieser Betriebstemperatur können Silberzeolithe eingesetzt werden.

Schwierigkeiten für die Jodabscheidung durch Störfallumluftfilter bereiten die großen Kondensat- und Dampfmenen, die im Sicherheitsbehälter eines wassergekühlten Reaktors bei einem Kühlmittelverlustunfall anfallen. Durch Tropfenabscheider kann der Wasseranteil in der Zuluft der Filter weitgehend abgesenkt werden, allerdings werden Tropfen < 10 µm nur noch mit geringen Abscheidegraden entfernt. Die Erprobung und Auswahl geeigneter Tropfenabscheider gehört zum Versuchsprogramm des LAF II.

Die Sättigungsfeuchte der Filterzuluft, die eine Abscheidung des Spaltjodes wesentlich erschwert, kann durch Erwärmung der Zuluft mit Heizern abgesenkt werden. Nach schweren Störfällen wird das Sorptionsmaterial durch die Zerfallswärme der abgeschiedenen Radionuklide weit über den Taupunkt der Sicherheitsbehälteratmosphäre erhitzt. Da nach einem Kühlmittelverlustunfall in Sicherheitsbehältern eine wasserdampfgesättigte Atmosphäre angenommen werden kann, entspricht der Taupunktastand der Luft im Jod-Sorptionsmaterial eines Störfallumluftfilters im Mittel ungefähr der halben Temperaturdifferenz zwischen der Ablufttemperatur des Störfallumluftfilters und der Temperatur im Containment (s. z. B. Abb. 4).

Die ersten Untersuchungen an einem Prototyp-Störfallumluftfilter unter erhöhter Temperatur und Feuchte wurden abgeschlossen (3). Die Ergebnisse bei Einsatz des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 sind in Tab. III wiedergegeben.

Tab. III: Untersuchung zum Betriebsverhalten eines Prototyp-Störfallumluftfilters unter erhöhter Feuchte und Temperatur

Prüfmedium : ca. 150 mg CH₃¹²⁷J + ca. 1 mCi CH₃¹³¹J
 Jod-Sorptionsschicht: AC 6120 mit ca. 7,9 g Ag/100 g Träger
 Schichtdicke : 5 cm $\hat{=}$ 0,2 s Verweilzeit
 Durchsatz : ca. 1200 m³/h

Betriebsbedingungen [°C]	Druck [bar]	Betriebsdauer des Einzelversuches [d]	Betriebszeit insgesamt [d]	Abscheidegrad [%]	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 % Gasfeuchte

Die mit dem Störfallumluftfilter erreichten Abscheidegrade lagen nach der Gesamtbetriebszeit von 18 Tagen (ohne Einrechnung der An- und Abfahrtzeiten) noch immer nahe der Nachweisgrenze, da aus Sicherheitsgründen die eingesetzte Aktivitätsmenge auf Aktivitäten ≤ 1 mCi je Versuch begrenzt wurde.

Nach Errichtung eines Drucktanks werden die Versuche mit höheren Feuchtegehalten und unter Überdruck bis 5 bar fortgesetzt. Die Verwendbarkeit des Sorptionsmaterials AC 6120 für Störfallumluftfilter im Reaktorschutzgebäude eines Hochtemperaturreaktors wurde geprüft und für den zu erwartenden Temperaturverlauf bei einem Druckentlastungsstörfall nachgewiesen (4).

Zur Zeit werden Untersuchungen zur Beständigkeit verschiedener anorganischer Jod-Sorptionsmaterialien in Heiß- und Sattedampf für längere Betriebszeiten unter Störfallbedingungen durchgeführt.

Die Komponenten einer Störfallumluftfilteranlage können nach schweren Störfällen einer hohen Strahlenbelastung ausgesetzt sein. Dies gilt insbesondere für das Sorptionsmaterial und die Schwebstofffilter, in denen die Radionuklide aus der Atmosphäre des Reaktorsicherheitsbehälters abgeschieden werden. Bereits früher in Karlsruhe durchgeführte Bestrahlungsuntersuchungen am Sorptionsmaterial AC 6120 zeigten praktisch keine Verringerung der Abscheideleistung bei Strahlungsdosen bis zu $8,6 \cdot 10^8$ rad. Die Bestrahlung konnte jedoch nur unter statischen Bedingungen (kein Spülgas) durchgeführt werden. Eine geeignete Anordnung für Abscheidungsuntersuchungen aus Gasen im Strahlungsfeld setzt eine sehr hohe Dosisleistung der Strahlenquelle voraus. Im Savannah River Laboratory (SRL), USA, sind entsprechende Bestrahlungseinrichtungen vorhanden. In einem 5 h Abscheidungs- und Desorptionstest mit elementarem Jod wurde an einem 2,5 cm tiefen Bett aus AC 6120 bei einer γ -Dosisleistung von $2,6 \cdot 10^7$ rad/h und einer Gesamtdosis von $1,3 \cdot 10^8$ rad ein Abscheidegrad von 99,967 % in Feuchtluft gemessen (5).

Zur Messung der Abscheideleistung von Schwebstofffiltern unter simulierten Störfall-Bedingungen ist die Entwicklung eines geeigneten Prüfverfahrens notwendig, das u. a. die Erzeugung eines geeigneten Feststoff-Aerosols voraussetzt. Versuche mit dem Flammenverdampfungsverfahren bei Benutzung von NaCl verliefen erfolgreich (6, 7). Wegen der Korrosionsgefahr für den technischen Filterprüfstand des LAF II muß dieses Verfahren jedoch auf die Verwendung weniger korrosiver Salze, z. B. Silberjodid, umgestellt werden. Entsprechende Untersuchungen sind durchzuführen bevor der infolge der großen technischen Schwierigkeiten sehr aufwendige Aerosolgenerator zum Einsatz im Filterprüfstand gebaut werden kann.

Die Arbeiten zur Entwicklung von Störfallumluftfiltern werden im Rahmen des PNS-Programmpunktes 4111 durchgeführt.

1.4. Bestimmung der Jodverbindungen am Emissionsort

Bei der Berechnung der zulässigen Abgaben von Radiojod mit der Fortluft von Kernkraftwerken wird in der BRD von der Annahme ausgegangen, daß das abgegebene Jod in Form von elementarem, sich leicht am Grünfütter abscheidenden Jod vorliegt und über den Weide-Kuh-Milchpfad inkorporiert werden kann.

Die in Hinsicht auf eine potentielle Schilddrüsenbelastung zulässigen Jodabgaben erniedrigen sich durch Berücksichtigung des Weide-Kuh-Milchpfades um mindestens zwei Größenordnungen. Zum Beispiel wurde für Obrigheim in der Grünfütterperiode eine Abgaberate von 14 $\mu\text{Ci/h}$, während des restlichen Jahres von 1700 $\mu\text{Ci/h}$ genehmigt, also der 121fache Wert (s. Tab. IV).

Tab. IV: Abgaben von gasförmigem ^{131}J mit der Kaminfortluft von Kernkraftwerken

Standort	Typ	Leistung MW _e	Inbetriebnahme	Jodfilterung kontinuierlich	Aktivkohleverzögerungsstrecke	^{131}J -Abgabe				genehmigte Abgaberate $\mu\text{Ci/h}$
						1972 $\mu\text{Ci/h}$	1972 mCi/a	1973 $\mu\text{Ci/h}$	1973 mCi/a	
Gundremmingen	SWR	252	1966	nein	ja	22	195	218	1910	2500
Obrigheim	DWR	345	1969	ja	nein	0,7	6	0,57	5	1700 ⁺⁾
Stade	DWR	662	1972	ja	nein	4,9	43	5,6	49	24

⁺⁾ Während der Grünfütterperiode 14 $\mu\text{Ci/h}$

Die Annahme einer ausschließlichen Abgabe von elementarem Jod liegt zwar auf der sicheren Seite, wird aber den tatsächlichen Verhältnissen nicht gerecht. Unter Berücksichtigung der Lüftungs- und Filterkonzepte moderner Kernkraftwerke dürfte vorwiegend nur ein Restanteil an schwer abscheidbaren Jodverbindungen abgegeben werden,

während radioaktives elementares Jod aus den kontinuierlich gefilterten Abluftströmen praktisch vollständig ausgefiltert wird. Die Bestimmung der abgegebenen Jodverbindungen in der Fortluft und die Aufklärung ihres Abscheidungsverhaltens werden daher entscheidend zu einem realeren Bild der tatsächlichen, wesentlich geringeren Umgebungsbelastung beitragen.

Aufgrund neuer Erkenntnisse zur Ausbreitung und Ablagerung von elementarem Jod ist mit einer weiteren, erheblichen Reduktion der zulässigen Abgaben an ^{131}J zu rechnen. Diese kann zu Werten unterhalb der bereits genehmigten Abgaberraten führen, falls nicht nachgewiesen wird, daß der Anteil an elementarem Jod im Jodgemisch der Fortluft ausreichend niedrig gehalten werden kann und die Jodaktivität in der Trinkmilch durch das Verhältnis zwischen leicht und schwer adsorbierbaren Jodformen am Emissionsort entscheidend beeinflußt wird. Die Arbeiten zur Bestimmung der Jodverbindungen in der Kaminfortluft erhalten daher eine sehr hohe Dringlichkeit.

Im Rahmen des PNS-Programmpunktes 4114 werden im LAF II diskriminierende Jodsammler entwickelt, mit denen eine Trennung und Klassifizierung am Emissionsort möglich ist (7). Anfang 1976 werden voraussichtlich die ersten Messungen mit nachweisbar einwandfrei diskriminierenden Jodsammlern durchgeführt werden können.

Aufgrund der Erfahrungen zum Abscheidungsverhalten von elementarem Spaltjod in Jodfiltern und seiner Reaktionsfähigkeit wird erwartet, daß die Jodabgaben aus Kernkraftwerken mit modernen Lüftungskonzepten, die eine kontinuierliche Filterung der Anlagenraumabluft einschließen, bei bestimmungsgemäßem Betrieb nicht zur Überschreitung des zulässigen Dosisgrenzwertes für die Schilddrüsenbelastung führen und auch durch die Errichtung von mehreren Kernkraftwerksblöcken an einem Standort trotz potentieller Überlagerung der Abluftfahnen bei angemessener Ausrüstung mit Jodfilteranlagen keine unzulässige Umgebungsbelastung erfolgt.

2. Jodabscheidung aus dem Abgas von Wiederaufarbeitungsanlagen

2.1. Anforderungen an die Abscheideleistung

Die erste große deutsche Wiederaufarbeitungsanlage wird für einen Durchsatz von ca. 1500 t/a ausgelegt. Nimmt man an, daß der aufzuarbeitende Brennstoff aus Leichtwasserreaktoren stammt und in

Zukunft einen Abbrand von 45.000 MWd/t erreicht, fällt in der Wiederaufarbeitungsanlage pro Jahr eine Gesamtmenge von 536 kg Jod, bestehend aus ^{129}J (Gesamtaktivität: 75 Ci, $T_{1/2} = 1,7 \cdot 10^7$ a) und ^{127}J an. Die nach einer Lagerzeit von 210 d im Brennstoff noch vorhandene Menge an ^{131}J ($T_{1/2} = 8,05$ d) spielt nur in Hinsicht auf ihre Aktivität eine Rolle. Insgesamt fallen pro Jahr 21 Ci ^{131}J an, dies entspricht einer Menge von 0,17 mg.

Die sicherheitstechnischen Anforderungen an die ^{129}J -Abscheidung sind heute noch nicht klar zu definieren, da die Anreicherung von ^{129}J in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage weitgehend ungeklärt ist. Bei einem Gesamtdeduktionsfaktor von 1000 für die Jodabscheidung würde sich am Kaminausgang eine Quellstärke von 75 mCi/a ergeben. Unter Berücksichtigung des Weide-Kuh-Milchpfades läßt sich bei einem durchschnittlichen Ausbreitungsfaktor von $2 \cdot 10^{-7}$ s/m³ für die kritische Bevölkerungsgruppe eine Schilddrüsendosis von maximal einigen 10 mrem/a errechnen. Eine genauere Angabe ist z. Z. nicht möglich, zumal die an verschiedenen Standorten unterschiedliche Konzentration an natürlichem Jod in der Luft entscheidend in die Rechnung eingeht.

Wird aus dem Auflöserabgas das ^{85}Kr durch ein Tieftemperatur-Rektifikationsverfahren abgeschieden, müssen vor der Durchführung von Tieftemperatur-Prozessen die Stickoxide beseitigt werden. Der zur Reduktion der Stickoxide bei der Vorreinigung der Abgase ggf. benötigte Katalysator wird durch Jod vergiftet. Bei einem Anfall von 536 kg/a und einem DF von 1000 wird der Katalysator mit 536 g Jod/a belastet. Die zulässige Jodbelastung des Katalysators dürfte u. U. zu höheren Anforderungen an die Jodfilter im Auflöserabgas führen als strahlenschutzmäßige Gesichtspunkte der Umgebungsbelastung.

Unter Annahme von 300 Arbeitstagen pro Jahr mit Auflöserbetrieb ergibt sich bei einer Lagerzeit der Brennelemente von 210 d eine durchschnittliche Abgasaktivität von 2,9 mCi ^{131}J /h. Nimmt man eine zulässige Abgasaktivität von 0,1 mCi ^{131}J /h an (ein Wert der bei einem sehr hohen Abgasschornstein für einen Standort in Norddeutschland ggf. noch genehmigt werden könnte), müßte ein Mindestdeduktionsfaktor (DF) von 29 erreicht werden, d. h., der niedrigste zulässige Abscheidegrad η beträgt 96,6 %.

Der Auslegungswert für das Jodfilter sollte aus Sicherheitsgründen um einen Faktor 10 höher gewählt werden, das bedeutet:

$$DF_{\text{Auslegung}} = 300; \quad \eta_{\text{Auslegung}} = 99,7 \% \text{ (abgerundete Werte)}$$

Da anzunehmen ist, daß die Lagerzeit des Brennstoffes 210 d übersteigt, wird ^{131}J für die Umgebungsbelastung in Relation zum ^{129}J zu vernachlässigen sein.

2.2. Austreibung von Spaltjod aus der Brennstoff-Lösung und Verfahren zur Abscheidung aus dem Auflöserabgas

Um eine Verteilung des aus dem Brennstoff freigesetzten Jodes auf die Prozeßlösungen der Wiederaufarbeitungsanlage zu vermeiden, sollte das Gesamtjod möglichst vollständig bereits im Auflöser aus der Brennstofflösung ausgetrieben werden. Dadurch wird die Freisetzung von Jod bei den einzelnen Verfahrensschritten bis hin zu der für die Endlagerung vorgesehenen Verglasung der hochaktiven Abfälle vermieden bzw. auf ein Minimum beschränkt. Für die Austreibung von Spaltjod aus der Brennstofflösung kann ein Wert zwischen 95 und 99 % angenommen werden. Entscheidend ist die Destillationsrate der Säure aus dem Auflöser während des Lösungsvorganges.

Grundsätzlich kommen zur Jodabscheidung Naßwaschverfahren, z. B. mit Natronlauge, quecksilbernitrathaltiger verdünnter Salpetersäure und mit überazeotroper, 20 molarer Salpetersäure (Jodox-Verfahren), in Frage. Bei allen Naßwaschverfahren muß das in der Waschlösung befindliche Jod in weiteren Prozeßschritten aus der Lösung abgeschieden und in einen lagerfähigen Zustand überführt werden. Die praktisch erreichbaren Dekontaminationsfaktoren der Naßwaschverfahren sind nicht ausreichend bekannt. Nach Laborversuchen sind Dekontaminationsfaktoren in der Größenordnung von 10^4 z. B. mit dem Jodox-Verfahren erreichbar (8, 9). Die Überführung des ausgewaschenen Spaltjodes in einen zur Endlagerung geeigneten Zustand ist bisher weitgehend ungelöst.

Alternativ zur Naßwäsche besteht die Möglichkeit, das Spaltjod aus dem Auflöserabgas direkt an einem festen Sorptionsmaterial abzuscheiden. Da es sich um stickoxidhaltige Abgas handelt, können nur anorganische Jod-Sorptionsmaterialien wie Molekularsiebe (10) und imprägnierte anorganische Trägermaterialien (11) eingesetzt werden.

Aktivkohlen scheiden wegen Vergiftungs- und Entzündungsgefahr aus. Die Abscheidung des Spaltjodes an festen Sorptionsmaterialien bietet dann wesentliche Vorteile, wenn:

1. mit dem Sorptionsmaterial hohe Abscheidegrade erreicht werden können,
2. das Spaltjod in einer unmittelbar für Lagerung und Transport geeigneten Form abgeschieden wird und damit weitere Behandlungsschritte entfallen,
3. die Konstruktion der Filter einfach und zuverlässig ausgeführt werden kann und der Filterwechsel auch fernbedient durchführbar ist,
4. das Sorptionsmaterial zu einem Preis verfügbar ist, der mit den Naßwaschverfahren vergleichbare Gesamtkosten für die Abscheidung und Überführung des Spaltjodes in einen lagerungsfähigen Zustand zuläßt.

Das Jod-Sorptionsmaterial AC 6120 in Form einer neuen, hochimprägnierten Variante, dem AC 6120/H₁ mit 12 % Ag, erfüllt die vorstehend genannten Bedingungen weitgehend (12). Dieses Material wird jetzt im Rahmen eines Lizenzvertrages zwischen der Gesellschaft für Kernforschung, Bayer/Leverkusen und der Südchemie von der zuletzt genannten Firma in industriellem Maßstab hergestellt und vertrieben.

Da die Abscheidung des Spaltjodes am AC 6120 auf der Umsetzung zu dem sehr schwer löslichen Silberjodid bzw. Silberjodat beruht, ist der Silberverbrauch ein entscheidender Kostenfaktor. Ein möglichst quantitativer Umsatz des Silbers ist anzustreben. Laboruntersuchungen zeigten, daß 75 - 94 % des Silbers der Imprägnierung durch das Jod umgesetzt werden können. Weitere Versuche werden in den Originalabgasen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe durchgeführt. Ein Preisvergleich zwischen den Kosten für die Jodabscheidung mit AC 6120/H₁ und mittels Naßwaschverfahren ist z. Z. nicht möglich, da vor allem Angaben zur Überführung des durch Naßwaschverfahren abgeschiedenen Jodes in einen zur Lagerung geeigneten Zustand fehlen.

2.3. Abscheidung von elementarem Jod und von Jodverbindungen mit dem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120

In Laborversuchen mit AC 6120/H₁ wurden unter den simulierten Bedingungen des Abgases einer Wiederaufarbeitungsanlage Abscheidegrade von > 99,999 % gegenüber J₂ bei einer Bett-Tiefe erreicht, die für eine einzelne Filtertrommel eines 2stufigen Jodfilters vorgesehen ist (12). Die Abscheidegrade für Methyljodid liegen in gleicher Höhe.

Abb. 6 zeigt ein Abscheidungsprofil während der Beladung eines Filterbettes, außerdem sind die in den einzelnen Teilbetten abgetrennten Jodmengen angegeben.

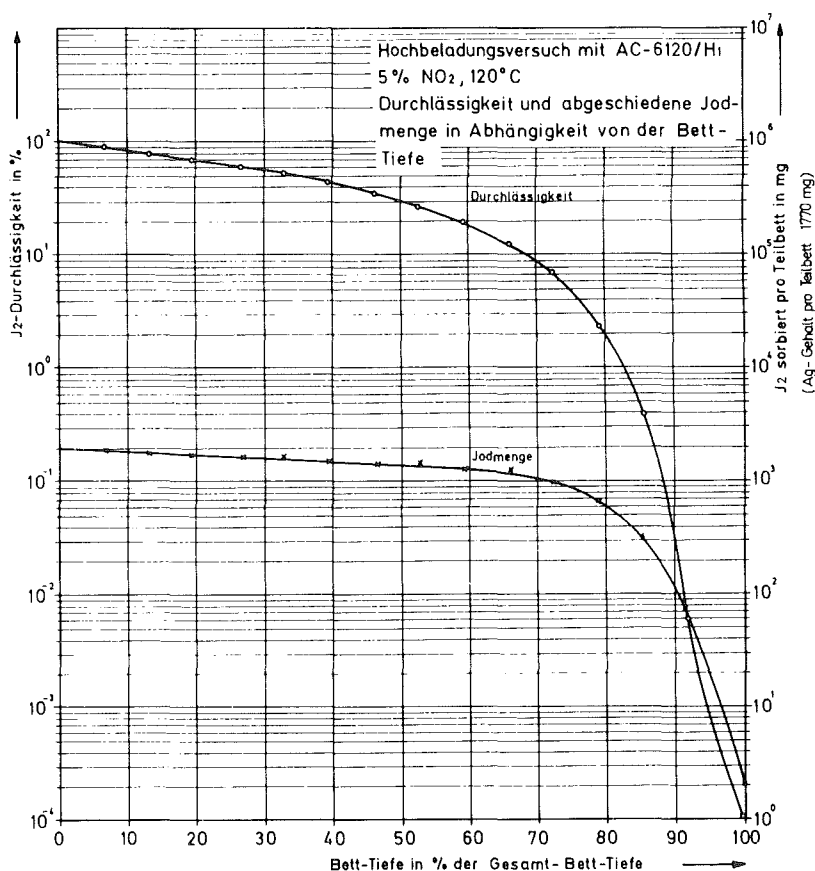


Abb. 6

Aufgrund von weiteren Laboruntersuchungen zur Abscheidung von organischen Jodverbindungen werden keine Schwierigkeiten bei der Jod-Sorption am anorganischen Sorptionsmaterial AC 6120/H₁ in den Abgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage erwartet. Primäre, sekundäre und tertiäre Alkyljodide setzten sich jeweils unter Bildung von AgJ um. Ebenso reagierten alicyclische Jodverbindungen und seitenketten-substituierte aromatische Jodverbindungen.

Jod-Benzol als kernsubstituierte aromatische Jodverbindung reagiert auch bei Temperaturen bis 180°C nicht mit der AgNO_3 -Imprägnierung von AC 6120.

In dem Prozeß der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen ist eine Zugabe von Aromaten bisher nicht vorgesehen. Das Auftreten von Jod-Benzol bzw. von Aromaten in der Abluft in Mengen, die die Filterwirkung wesentlich beeinträchtigen, wird daher nicht erwartet. Bei Abänderung bisheriger Lösungs- und Extraktionsschritte sollten Aromaten, die leicht einer Jodierung unterliegen, nicht verwendet werden.

Als Schadstoff für AC 6120 sind das Tri-n-Butylphosphat und seine Zersetzungsprodukte anzusehen, da das Ag^+ der AgNO_3 -Imprägnierung zu Silberphosphaten umgesetzt wird. Der Anteil an recyklierter Säure und damit an Tri-n-Butylphosphat und seinen Zersetzungsprodukten im Auflöser wird daher einen Einfluß auf den Verbrauch an AC 6120/ H_1 im Jodfilter haben. Dodecan verhält sich bei der vorgesehenen Betriebstemperatur von 150°C völlig inert (13).

Da nach dem jetzt vorliegenden Konzept einer GWA das Trägergas in der Abgasstrecke des Auflösers wegen der nachfolgenden Kr-Abscheidung mittels Tieftemperatur-Rektifikation u. U. Stickstoff sein wird, muß z. Z. in weiteren Laborversuchen das Verhalten von AC 6120/ H_1 in N_2/NO_x -Gemischen untersucht werden. Durch NO im reinen Stickstoff wird die AgNO_3 -Imprägnierung des AC 6120/ H_1 zum metallischen Silber reduziert. Die Folge ist ein Verlust an Abscheideleistung. Durch gleichzeitige Anwesenheit von NO_2 kann diese Reaktion unterdrückt werden. In dem von Jod zu reinigenden Gasstrom sollte aufgrund der bisher durchgeführten Untersuchungen möglichst ein Überschuß an NO_2 im Verhältnis zum NO eingestellt werden.

In der WAK und der SAP Marcoule werden in diesem im nächsten Jahr Untersuchungen zum Verhalten des AC 6120/ H_1 in dem Originalabgas einer Wiederaufarbeitungsanlage durchgeführt (14). In beiden Anlagen ist das Trägergas für das Spaltjod allerdings ein Luft- NO_x -Gemisch, so daß eine ausreichende Simulation der Bedingungen im Abgasstrom einer GWA nicht erreicht wird. Es sind deshalb zusätzlich Jod-Abscheidungsexperimente unter Auflösung von nicht bestrahltem Brennstoff im Technikumsmaßstab in Zusammenarbeit mit dem Institut für Heiße Chemie geplant.

2.4. Ausführung der Jodfilter für eine große Wiederaufarbeitungs- anlage

Abb. 7 zeigt das Fließbild einer geplanten GWA-Jodfilteranlage.

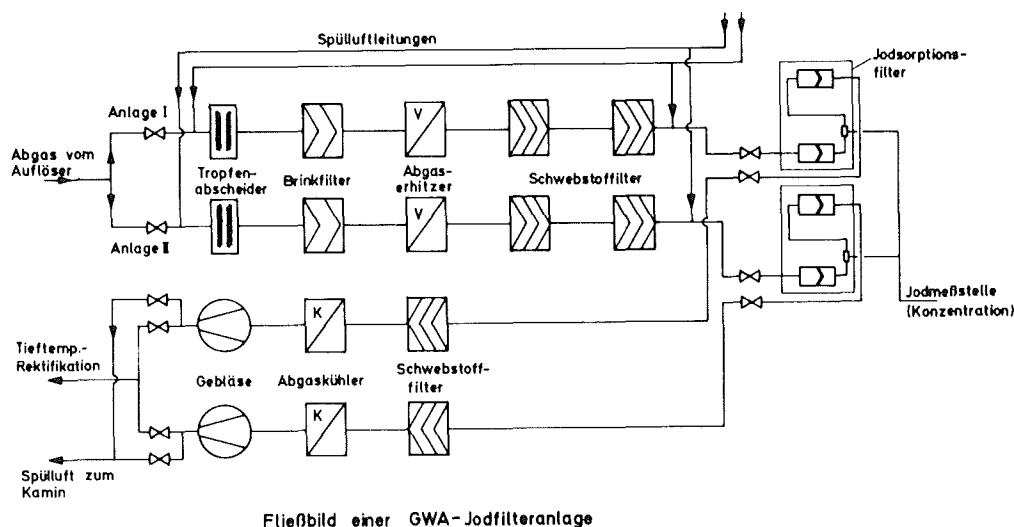


Abb. 7

In Zusammenarbeit mit der RBT/IT wird ein 2stufiges Trommelfilter zur Abscheidung des gasförmigen Spaltjodes entwickelt. Die Anzahl der Stufen ist durch den Konzentrationsgradienten des Jodes im Sorptionsmaterial und die Notwendigkeit zur möglichst vollständigen Ausnutzung des abziehenden Sorptionsmaterials gegeben. Volumenstrom bzw. lineare Gasgeschwindigkeit gehen direkt in den erreichbaren Konzentrationsgradienten ein. Ein Trommelwechsel wird bei vollem Durchsatz einer GWA alle 6 d notwendig. Die Filtertrommeln passen unmittelbar in die üblichen Rollreifenfässer zur Aufnahme von radioaktivem Abfall. Pro Jahr fallen bei vollem Durchsatz einer GWA ca. 50 Rollreifenfässer mit 200 l Fassungsvermögen an. Es wird also ein geringer Lagerraum benötigt.

Das Verhalten von jodbeladenem AC 6120/H₁ im Salz wird der Gegenstand weiterer Untersuchungen sein. Falls die Auflagen zur Auslaugbarkeit des Spaltjodes im Endlager nicht erfüllt werden, ist geplant, die 200 l Rollreifenfässer mit dem AC 6120/H₁ in 400 l Fässer einzuzementieren.

Als erste Wiederaufarbeitungsanlage wurde vor kurzem die WAK mit einem Filter zur Abscheidung des Jodes aus dem Auflöserabgas an AC 6120 ausgerüstet.

Die hier anfallenden Erfahrungen werden in die Auslegung eines Prototyp-Jodfilters für die Abgasreinigung einer GWA einfließen, das 1978 zur Erprobung vorliegen wird.

Literaturverzeichnis

- (1) K. Gerlach, Vor-Ort-Prüfung von Jodfilteranlagen in Kernkraftwerken, in KFK 2165, S. 28 (Juni 1975).
- (2) J. Furrer, R. Kaempffer, Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien, in KFK 2195 (im Druck).
- (3) H.-G. Dillmann, H. Pasler, Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälteratmosphäre, in KFK 2195 (im Druck).
- (4) J. Furrer, R. Kaempffer, Verhalten von AC 6120 bei hoher Temperatur, in KFK 2165, S. 4 (Juni 1975) sowie: Untersuchungen zum Einfluß wechselnder Betriebstemperaturen auf die Abscheideleistung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120, in KFK 1973 , S. 88 (1974).
- (5) Strahlungsbeständigkeit des Sorptionsmaterials Bayer, Sorbens AC 6120 (Untersuchungen in Zusammenarbeit mit dem Savannah River Laboratory), in KFK 2165, S. 3 (Juni 1975).
- (6) A. Weinert, Bau eines Aerosolgenerators zum Einsatz unter simulierten Störfallbedingungen, in KFK 2195 (im Druck), KFK 2165, S. 7 und KFK 1973, S. 90.
- (7) H. Deuber, Entwicklung von diskriminierenden Jodsammlern, in KFK 2195 (im Druck) und KFK 2165, S. 24, (Juni 1975).
- (8) O.O. Yarbrow, J.C. Mailer, W.S. Groenier, Iodine Scrubbing from Off-Gas with Concentrated Nitric Acid, CONF-740807, Vol. II, S. 832 (März 1975).
- (9) W.S. Groenier, B.A. Hannaford, An Engineering Evaluation of the Iodox Process, Part 2 - 4, ORNL-TM-4701 (1975).
- (10) J.G. Wilhelm, Verhalten von Jod-Sorptionsmaterialien, EURATOM-Seminar, Doc. V/559/74, S. 1.

- (11) J.G. Wilhelm, H. Schüttelkopf, An Inorganic Adsorber Material for Off-Gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants, CONF-720823, S. 540 (1972).
- (12) J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen, in KFK 2165, S. 9 (Juni 1975).
- (13) J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen, in KFK 1973, S. 93 (1974).
- (14) J. Furrer, R. Kaempffer, Aufbau von Prüfeinrichtungen für Aerosole und Spaltjod aus Auflöserabgasen in Wiederaufarbeitungsanlagen, in KFK 2195 (im Druck).

JAHRESKOLLOQUIUM 1975
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Krypton-85-Abtrennung bei der Wiederaufarbeitung

R. v. Ammon
Institut für Heiße Chemie

Kr-85 ist mit 10.76 Jahren Halbwertszeit das längstlebige der bei der Kernspaltung entstehenden radioaktiven Edelgasnuklide. Entläßt man es bei der Brennelement-Wiederaufarbeitung, wo es schon in der Eingangsstufe quantitativ freigesetzt wird, in die Atmosphäre, dann akkumuliert es sich wegen seiner Inertheit dort, wobei das Gleichgewicht aus freigesetztem und zerfallendem Krypton erst bei sehr hohen Konzentrationen erreicht werden würde. Tatsächlich hat man seit Beginn der kerntechnischen Ära eine stetige Zunahme gemessen.

Der gegenwärtig zulässige Dosisleistungswert von 30 mrem/Jahr für gasförmige radioaktive Schadstoffe wird zwar dabei noch längst nicht erreicht und wird auch im Jahr 2000 noch nicht erreicht werden, selbst wenn man eine starke Zunahme der Kernenergie annimmt. Das gilt allerdings nur für eine gleichmäßige globale Verteilung. Lokal kann es in der Umgebung von großen Wiederaufarbeitungsanlagen durchaus zu unzulässigen Belastungen kommen. Deshalb ist es unbestritten, daß das Krypton aus dem Abgas von solchen Anlagen in der Zukunft entfernt werden muß. Hier soll vom Stand der PNS-Arbeiten zur Errichtung einer Versuchsanlage berichtet werden, an der die Kr-Abtrennung zunächst kalt, d.h. ohne aktives Kr demonstriert werden soll. Ihr Gasdurchsatz soll 50 Nm³/h betragen, also etwa zwischen Labor- und technischer Anlage liegen.

1. Möglichkeiten der Abtrennung

Prinzipiell bieten sich für die Kr-Abtrennung mehrere Methoden an, die wegen der Reaktionsträgheit der Edelgase

alle auf physikalischen Prinzipien beruhen, wenn man von den recht instabilen Fluoriden und Clathraten absieht, den einzigen chemischen Verbindungen, zu deren Bildung das Krypton überhaupt befähigt ist. In Abb. 1 sind diese Möglichkeiten zusammengestellt. Der Zeitdruck, den uns die KEWA-Planung auferlegt, zwingt dazu, dem Entwicklungsstand der einzelnen Verfahren hohe Bedeutung zu geben.

Die ersten drei Methoden: Thermodiffusion, Trenndüse und Ultrazentrifuge sind meines Wissens überhaupt noch nicht ernsthaft für die Edelgasabtrennung in Betracht gezogen worden; Hauptschwierigkeit dürfte der hohe mechanische Aufwand bei vielstufiger Ausführung sein. Die Diffusion durch semipermeable Membranen wird zwar z.Zt. von einer japan. Firma im Labor entwickelt, doch gibt es noch keine Membranen, die gegenüber Schadstoffen wie NO_x und vor allem gegenüber radioaktiver Strahlung genügend resistent sind.

Wir haben deshalb nur die drei letzten Verfahren: Aktivkohle-Adsorption, Absorption in Freon oder CO_2 und die Tieftemperatur-Rektifikation (TTR) in die engere Wahl gezogen.

2. Wahl des Verfahrens

Nach reiflicher Überlegung haben wir uns aus folgenden Gründen für die TTR entschieden:

- a) Das Verfahren mit dem höchsten Entwicklungsstand ist eindeutig die TTR, da sie in der Luftzerlegungstechnik weltweit angewendet wird. Dazu existieren auch in der Kerntechnik bereits vereinzelt Erfahrungen mit der TTR bei der Gewinnung der Edelgase aus dem Auflöserabgas von kleinen Pilot-Anlagen, z.B. in Idaho, USA. Dagegen wird die Adsorption an Aktivkohle zwar in Kernkraftwerken zur verzögerten Abgabe der Edelgase weithin ver-

wendet, ihre Eignung zur Trennung und Aufkonzentrierung der großen in WA-Anlagen anfallenden Edelgasmengen ist aber noch nicht erwiesen. Da diese Methode längerfristig nicht aussichtslos erscheint, führen wir selbst gegenwärtig zusammen mit der Bergbauforschung, Essen ein grundlegendes Versuchsprogramm durch.

Auch die Absorption in Freon oder CO_2 , prinzipiell aussichtsreich, wurde erst in einer relativ kleinen, kalten Versuchsanlage in Oak Ridge erprobt.

- b) Im Hinblick auf die Endlagerung des abgetrennten Kryptons ist grundsätzlich das Verfahren zu bevorzugen, welches ein möglichst konzentriertes und möglichst reines Produkt liefert. Auch unter diesem Gesichtspunkt schneidet die TTR am günstigsten ab: eine Abtrennung des im großen Überschuß vorliegenden inaktiven Xenons vom Krypton und damit eine hohe Anreicherung des Kryptons ist hier am leichtesten möglich. Korrosive Verunreinigungen sind im Endprodukt nicht zu erwarten, wie im folgenden dargelegt wird.

3. Das TTR-Verfahren

3.1 Die Vorreinigung des Abgases

Das TTR-Verfahren verlangt, daß das Abgas vor seiner Verflüssigung von einer ganzen Reihe von störenden Komponenten befreit wird: einmal von solchen, deren Schmelzpunkte in der Nähe der Kolonnentemperaturen liegen, die somit ausfrieren und zu Verstopfungen führen könnten; zweitens von solchen, deren Kondensation und Akkumulation im Kolonnensumpf ein Sicherheitsrisiko darstellen würde. Zur ersten Gruppe gehören vor allem die Stickoxide und Wasser von der Auflösung her sowie CO_2 aus der Luft, falls diese das Trägergas darstellt (Abb. 2).

In die zweite Kategorie fallen die Kohlenwasserstoffe und, im Zusammenhang damit, der Sauerstoff. Beide zusammen stellen in der flüssigen Phase an sich schon ein explosives Gemisch dar, weshalb in der Luftzerlegungstechnik die Auskondensation von Kohlenwasserstoffen peinlichst vermieden wird. Bei Anwesenheit von Kr-85 verschärft sich das Problem noch, weil dann mit der Bildung von Ozon zu rechnen ist: die β -Strahlung spaltet nämlich ähnlich der hochenergetischen UV-Strahlung in der oberen Atmosphäre O_2 ; die O-Atome bilden mit weiteren O_2 -Molekülen in einer Dreierstoßreaktion in hoher Ausbeute O_3 (Abb. 3), das bei 161.7 K siedet und in der flüssigen Phase recht stabil ist, so daß im Kolonnensumpf hohe Anreicherungen stattfinden können. So wurden in der schon erwähnten Anlage in Idaho bis zu 30 % Ozon im Sumpf gemessen. Solange es keine sicher erprobte Möglichkeit gibt, den O_3 -Pegel im Sumpf durch kontrollierte Zersetzung etwa in einem Seitenstrom auf einer ungefährlichen Höhe zu halten, gehen wir davon aus, daß der Sauerstoff aus dem Gasstrom vor dessen Eintritt in die TTR entfernt werden muß.

Als Konsequenz haben wir vorgesehen, den Sauerstoff gemeinsam mit den Stickoxiden in einem Schritt zu entfernen, und zwar durch Reduktion mit Wasserstoff. Diesem Reduktionsmittel ist gegenüber Kohlenwasserstoffen oder CO, die in der Industrie aus Wirtschaftlichkeitsgründen üblicherweise verwendet werden, der Vorzug zu geben, weil dann nur Stickstoff und Wasser als Endprodukte entstehen (Abb. 4). Lediglich ein geringer Teil der NO_x -Reduktion geht weiter bis zum NH_3 , das somit zusätzlich eingeschleppt wird.

Diese Reduktion kann sowohl thermisch bei Temperaturen über $1100^\circ C$, oder katalytisch bei wesentlich niedrigeren Temperaturen ($400-500^\circ C$) durchgeführt werden. Wir haben im vor-

läufigen Fließschema (Abb. 5) die letztere Variante vorgesehen, sind uns dabei aber bewußt, daß bei ihr der Nachteil einer möglichen Katalysatorvergiftung durch Reste des Spaltjods und durch möglicherweise eingeschlepptes TBP in Kauf genommen werden muß. Diese Frage wird gegenwärtig in Laborversuchen geklärt.

Weiterhin ist bei der Katalysatorvariante auch die Regelung der Wasserstoffzufuhr nicht ganz einfach; es ist ein Verdünnungskreislauf vorgesehen, der den H_2 -Gehalt stets unter der Explosionsgrenze von 4 % hält und damit auch eine Überhitzung des Katalysators verhindert.

An die O_2 -, NO_x -Entfernung schließt sich nach einem Wasserabscheider als 2. Vorreinigungsstufe eine Molekularsieb-Adsorber-Einheit zur Beseitigung der Reste an H_2O und NO_x , des CO_2 , des NH_3 und der Kohlenwasserstoffe an. Diese Stufe ist konventionell, sie wird in der Luftzerlegungstechnologie gemeinhin verwendet. Die einzige Abweichung besteht hier darin, daß statt der zwei üblichen drei Adsorberbetten verwendet werden, weil vor die Regeneration des beladenen Bettes ein Spülschritt zur Entfernung des koadsorbierten Kryptons geschaltet werden muß. Nur dann können die bei der Regeneration freigesetzten Gase an die Umwelt abgegeben werden.

3.2 Die Tieftemperatur-Rektifikation

Nach der Vorreinigung besteht das Gas nur noch aus Stickstoff, überschüssigem H_2 von der Reduktion, Argon aus der Luft und etwa 0.1 % Kr-Xe. In einem Wärmetauscher (Abb. 5) wird es nun auf 114 K abgekühlt und in die 1. Rektifizierkolonne eingespeist. Diese ist 8 m hoch, enthält 37 Siebböden und trennt die Edelgase Kr-Xe, die sich im Sumpf ansammeln vom Stickstoff, der am Kolonnenkopf abgezogen wird, von wo er, 93 K kalt, zur Abkühlung des Rohgases in den

Wärmetauscher zurückgeführt wird. Der Rücklauf in der Kolonne wird durch einen mit flüssigem Stickstoff gekühlten Kondensator erzeugt. Die Trennstufenzahl dieser Kolonne ist so reichlich bemessen, daß der angestrebte Kr-Dekontaminationsfaktor von 10^3 ohne weiteres erreichbar sein sollte.

Das Sumpfprodukt Kr-Xe wird sodann in die 2. Kolonne, eine Füllkörperkolonne von etwas kleineren Dimensionen als die erste überführt. In ihr erfolgt die Trennung des Kr vom Xe. Das leichter siedende Kr soll mit etwa 80 % Reinheit am Kopf abgezogen werden, wo es bis zur Abfüllung in einem gekühlten Sammelbehälter aufbewahrt wird. Bis hierher sind alle Apparate des TTR-Teils in einem Vakuum-Isoliertank untergebracht. Beim Sumpfprodukt Xe ist die Reinheits-Anforderung wesentlich schärfer als beim Kopfprodukt Kr, weil das ganze Trennkonzepit darauf beruht, dieses inaktive Xenon an die Umwelt abgeben bzw. weiterverwenden zu können, um das Kr-Endlager nicht damit belasten zu müssen. Der Trennfaktor muß daher etwa bei 10^5 liegen.

Der TTR-Teil dieser Anlage wird Anfang 1976 errichtet werden, so daß wir hoffen, mit dem Versuchsbetrieb im nächsten Sommer beginnen zu können.

4. Abfüllung und Endlagerung

Von den verschiedenen diskutierten Möglichkeiten der Endlagerung des abgetrennten Kr-85 ziehen wir nur die Abfüllung in konventionellen Druckstahlflaschen und deren kontrollierte Lagerung ernsthaft in Betracht. Die Erprobung der sicheren Abfüllung ist Bestandteil des Versuchsprogramms an der Testanlage. Hier sollen nur einige Punkte erwähnt werden, die bei der Wahl der endgültigen Lagerform bedacht werden müssen: geht man von der Abfüllung eines zu 80 % angereicherten Kryptons in 50 l Flaschen unter 140 at Druck

aus, dann befinden sich $3.4 \cdot 10^5$ Ci in einer Flasche. Die Wandung dieser Flaschen nimmt dabei durch die absorbierte β -Strahlung eine Temperatur von $120-130^\circ\text{C}$ an, d.h. man muß im Endlager eine gute Lüftung und Kühlung vorsehen; der relativ geringe γ -Anteil an der Strahlung des Kr-85 (0,4 %) verlangt im Gaslager eine Abschirmung, die etwa 8 cm Blei entspricht. Die in Anbetracht der notwendigen Lagerzeit von ca. 100 Jahren erforderliche Reinheit des Endprodukts, um innere Korrosion der Stahlflaschen zu vermeiden, glauben wir mit der TTR erfüllen zu können. Eine mögliche Gefahrenquelle ist jedoch bei keinem Verfahren auszuschließen: das beim radioaktiven Zerfall des Kr-85 entstehende stabile Rubidium. Nach vollständigem Zerfall des Kr-85 haben sich in einer Flasche immerhin 850 g dieses aggressiven Alkalimetalls gebildet, das wegen seines niedrigen Schmelzpunkts von 39°C flüssig vorliegt. Da die hohe Stabilität von Stahl gegenüber einem vergleichbaren Alkalimetall, dem Natrium, bei Temperaturen unter 400°C bekannt ist, könnte es allerdings durchaus sein, daß sich das Rubidium erst am Ende der Lagerzeit, beim Öffnen der Flaschen nämlich, unangenehm bemerkbar macht.

5. Ausblick

Das geschilderte Verfahren zur Kr-85-Abtrennung wird nach Durchführung des geplanten Versuchsprogramms an der Demonstrationsanlage noch nicht reif zum Einbau in die große KEWA-Anlage sein. Dazu fehlen noch Versuche unter aktiven Bedingungen. Es wird Gegenstand von Entscheidungen sein, die in der allernächsten Zeit zu fällen sind, ob eine TTR-Anlage zur Krypton-Abtrennung im Rahmen der verbesserten Abgasreinigung an der WAK installiert werden soll.

Methode	Problematik	Entwicklungsstand
Thermodiffusion Trenndüse Ultra-Zentrifuge	} Aufwendige Mechanik	_____
Membran-Diffusion	Beständige Membranen	Labor, Fa. Toshiba (Japan)
Aktivkohle - Adsorption	Produkt-Anreicherung	{ KKW: Verzögerungsstrecken { WA: Labor, Bergbauforschung - Esser
Absorption in Flüssigkeiten (Freon, CO ₂)	Produkt-Anreicherung und -Reinheit	{ Versuchsanlage, kalt: Oak Ridge { Labor: KFA
Tieftemperatur-Rektifikation	Vorreinigung	{ Technik: Luftzerlegung { WA: Versuchsanlage, heiß: Idaho; { kalt: CEA, CEN

Abb.1: Mögliche Verfahren zur Edelgasabtrennung

Schmelzpunkte (K) störender Stoffe im Abgas	Siedepunkte (K) der Komponenten des Rektifiziergemisches
NO 109.6	H ₂ 20.4
N ₂ O 182.4	N ₂ 77
CO ₂ 195	A 87.3
NO ₂ 262	Kr 120
H ₂ O 273.2	Xe 165

Abb. 2: Abgasbestandteile, die in der TTR-Kolonne ausfrieren können

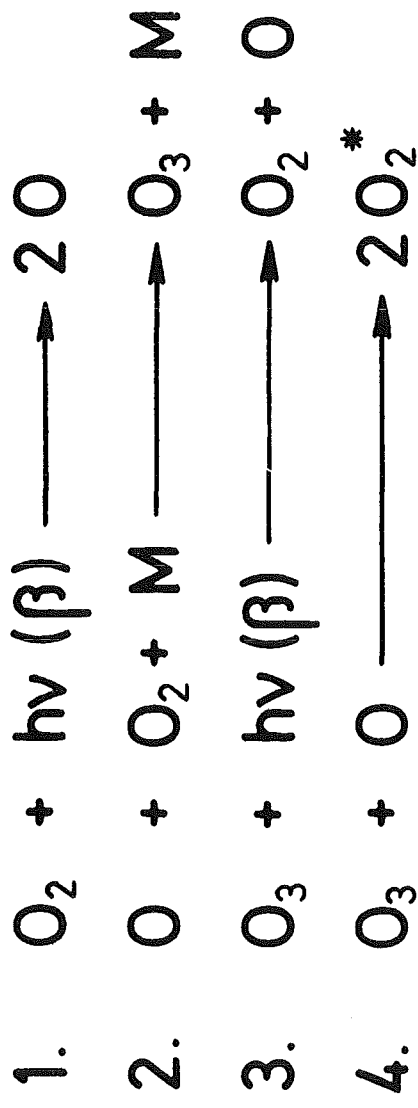


Abb.3 Mechanismus der Ozonbildung

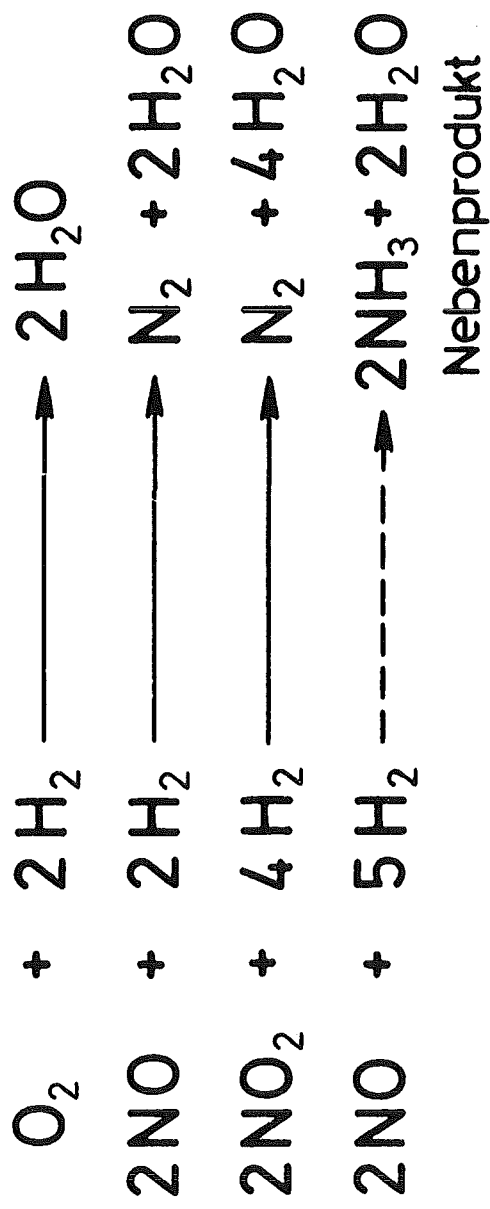


Abb.4: Reduktion von O₂ und NO_x mit Wasserstoff

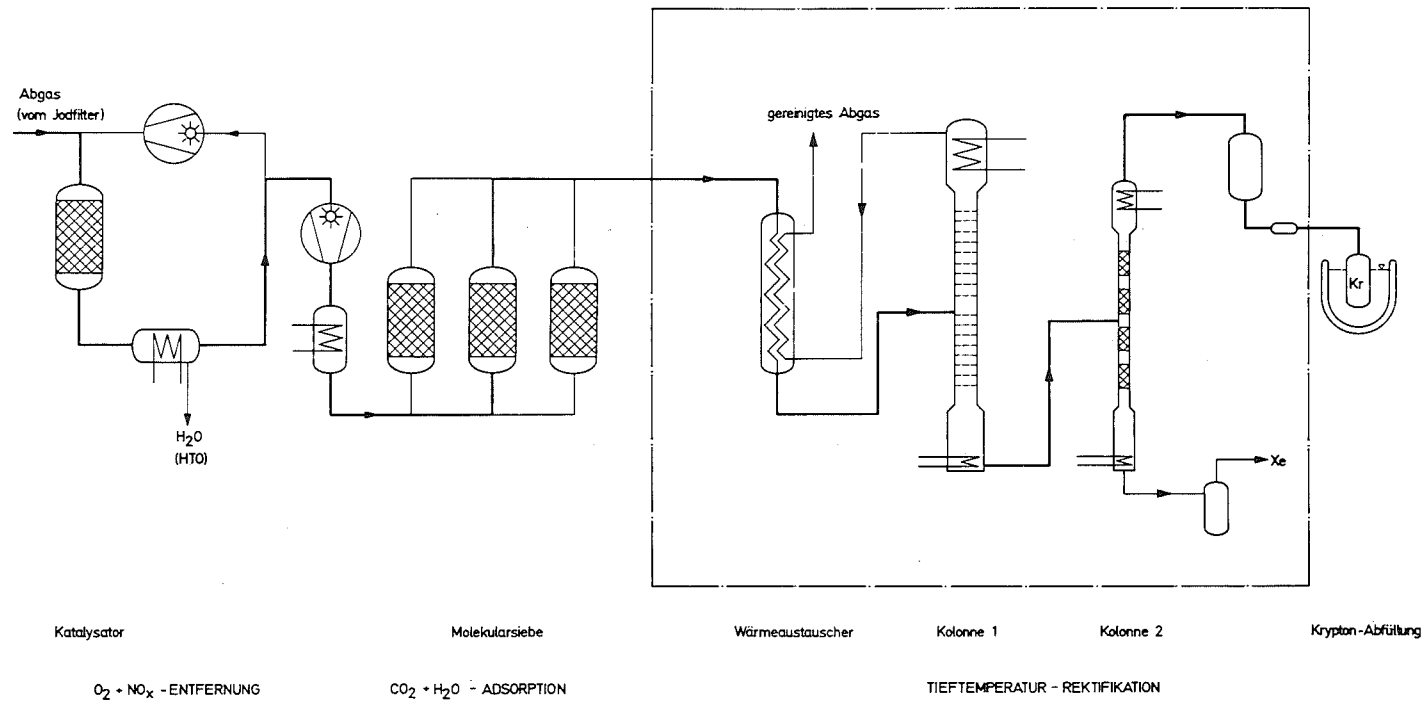


Abb.5: Fließschema der Teststrecke für die Krypton-Abtrennung

JAHRESKOLLOQUIUM 1975
des
PROJEKTS NUKLEARE SICHERHEIT

Zur Prognose der Strahlenbelastung der Bevölkerung
bei hypothetischen Störfällen

W.G. Hübschmann

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit

1. Notwendigkeit der Prognose bei hypothetischen Störfällen

Hypothetische Reaktorstörfälle sind Ereignisse, deren Eintrittswahrscheinlichkeit - bedingt durch die aktiven und passiven Schutzeinrichtungen der Anlage - ausreichend klein ist, so daß die u.U. schwerwiegenden Folgen solcher Ereignisse in Kauf genommen werden können. Es handelt sich dabei um Störfälle, deren Auswirkungen auf die Umgebung des Kernreaktors und somit auf die Bevölkerung über die des größten anzunehmenden Unfalls hinausgehen. Solche Störfälle sind im "Rasmussen Report" /1/ anhand US-amerikanischer Kernkraftwerke analysiert. Die hypothetischen Störfälle mit nennenswerten Auswirkungen auf die Bevölkerung sind durchweg mit einem Versagen der Reaktorkühlung, Niederschmelzen der Brennelemente und mit undichtem Sicherheitsbehälter verbunden; denn nur unter diesen Randbedingungen können ausreichend große Mengen radioaktiver Spaltprodukte in die Atmosphäre freigesetzt werden. Diese Störfälle haben nach /1/ eine Wahrscheinlichkeit von etwa 10^{-5} bis 10^{-6} pro Jahr; insgesamt ist nur alle 10^4 bis 10^5 Reaktorbetriebsjahre ein derartiger Unfall zu erwarten.

Wenn es auch angesichts der Wahrscheinlichkeit solcher Unfälle weniger dringlich erscheint, Gegenmaßnahmen zu ergreifen, die deren Wahrscheinlichkeit weiter verringern, mehren sich doch die Stimmen, die zumindest eine Planung zum Schutz der Bevölkerung auch für diese sehr unwahrscheinlichen Fälle fordern; denn das Gefährdungspotential ist in diesen Fällen z.T. erheblich groß, s. /1/. Solche Überlegungen werden unter dem Thema "Notfallplanung" angestellt. Erste Bedingung einer wirksamen Notfallplanung ist eine möglichst zuverlässige Prognose der Gefährdung der Bevölkerung bei einem nuklearen Störfall; denn nur wenn eine mögliche Gefährdung zuverlässig abgeschätzt werden kann, lassen sich die richtigen Gegenmaßnahmen planen und durchführen.

2. Problematik der Prognose im diskreten Störfall

Diese Prognose kann in zwei Bereiche gegliedert werden:

2.1 Emissionsprognose

Dazu gehört

- a) die Quellstärke radioaktiver Spaltprodukte \dot{A} (in Ci/s) möglichst gegliedert nach Einzelnucliden,
- b) die Quellstärke thermischer Energie \dot{Q} (in kW), z.B. Energiefreisetzung in Form von Wasserdampf,
- c) der zeitliche Verlauf $f(t)$ beider Quellstärken,
- d) die effektive Höhe H der beiden Quellen (in m).

Diese Größen lassen sich bestenfalls als Istwerte angeben, und zwar nur dann, wenn die Emission auf normalem Wege über den Kamin erfolgt. Dort wird zumindest im Prinzip die Quellstärke radioaktiver Spaltprodukte gemessen. Detailprobleme wie Meßbereich und Kalibrierung der Meßgeräte für große Aktivitäten sowie die Nuklid-Analyse seien hier nur angedeutet. Die thermische Energie der emittierten Abluft könnte im Prinzip ebenfalls bestimmt werden. Der zeitliche Verlauf (Konstanz und Dauer der Emission) jedoch kann auch in diesem optimalen Fall nur geschätzt werden. Dieser Fall entspricht dem Größten Anzunehmenden Unfall (GAU). Seine Auswirkungen auf die Umgebung sind klein, verglichen mit den übrigen Unfallkategorien des "Rasmussen-Reports".

Nimmt man hingegen ein Versagen der Dichtheit des Sicherheitsbehälters an, dann werden Aktivität und thermische Energie aus dem Sicherheitsbehälter direkt in die Atmosphäre freigesetzt. In diesem Fall gibt es noch keine Instrumentierung, welche die Emissionsstärke von Aktivität oder thermischer Energie auf direktem Wege anzeigen könnte. Bestenfalls kann die Emissionshöhe abgeschätzt werden.

Dennoch sind gerade bei einem dieser letzteren Störfälle alle diese Angaben erforderlich, um die zu erwartende Strahlenbelastung der Bevölkerung abschätzen zu können. Man kann also zur Emissionsprognose beim akuten Störfall hypothetischer Größenordnung folgendes feststellen: die Quellstärke der Aktivität und der thermischen Energie, deren zeitlicher Verlauf und die Nuklidzusammensetzung können mit größter Wahrscheinlichkeit nur geschätzt, nicht aber gemessen werden. Lediglich die effektive Emissionshöhe kann möglicherweise angegeben werden. Schätzungen dieser Größen sind wahrscheinlich obere Grenzwerte. Deshalb gehört zu einer einigermaßen zuverlässigen Prognose der Strahlenbelastung in der Umgebung bei solchen hypothetischen Störfällen eine Messung der Aktivitätskonzentration an geeigneten Punkten in der Umgebung, um einen Rückschluß auf die Quellstärke der Aktivität ziehen zu können.

Fehler in der Emissionsprognose wirken sich voll auf die Prognose der Strahlenbelastung der Bevölkerung aus. Diese Fehlermöglichkeit enthebt uns aber nicht der Notwendigkeit, diese Prognose zu erstellen, wenn wir überhaupt Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung bei derartigen Störfällen planen wollen.

Im folgenden wollen wir annehmen, die Emissionsprognose, enthaltend die vorgenannten 4 Elemente, liege vor.

2.2 Ausbreitungsprognose

Ein positiveres Bild bietet sich bei der Ausbreitungsprognose. Durch die Messung meteorologischer Parameter, wie Windrichtung und -geschwindigkeit, vertikaler Temperaturgradient und Windrichtungsfluktuation, läßt sich die gegenwärtig wirksame atmosphärische Ausbreitung mit vergleichsweise großer Zuverlässigkeit angeben. Die folgenden 4 Elemente bestimmen die atmosphärische Ausbreitung radioaktiver Stoffe, die in der Höhe H über Grund in die Atmosphäre emittiert werden:

- a) Windrichtung ϕ ,
- b) Windgeschwindigkeit u ,
- c) Stabilitätsklasse SK (nach Pasquill mit
A - labil bis F - stabil bezeichnet)
- d) Ausbreitungsparameter $\sigma_y(x,SK)$ und $\sigma_z(x,SK)$

Im Kernforschungszentrum Karlsruhe wurde ein meteorologisches Informationssystem entworfen /2/, welches mit vertretbarem Aufwand (Meßmast, Prozeßrechner) die ersten 3 Elemente ermittelt, s. Abb. 1.

Die Messung von ϕ und u bereitet keine Probleme. Die Stabilitätsklasse kann optimal mit einer Vektorfahne bestimmt werden. Andere Bestimmungsschemata (Temperaturgradient und Windgeschwindigkeit oder Horizontalfluktuation einer Windfahne) haben den Nachteil größerer Ungenauigkeit in der SK-Bestimmung, s. /3/.

Die Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z bestimmen Breite und Höhe der Abluftfahne. Sie werden in Ausbreitungsversuchen ermittelt, bei denen eine Leitsubstanz mit konstanter Quellstärke emittiert und die Konzentrationsverteilung auf der Leeseite an diskreten Probenahmestellen bestimmt wird. Bei derartigen Versuchen im KFZ Karlsruhe /4/ wie auch in der KFA Jülich /5/ wurde ein starker Einfluß der Rauigkeit der Bodenbedeckung festgestellt. Diese Rauigkeit sorgt für eine verstärkte Durchmischung der bodennahen Luftschicht, was allerdings zu erhöhten Maximalkonzentrationen am Boden in der Nähe des Emittenten führt.

Ist die Rauigkeit eines Geländes bekannt, dann läßt sich aus den oben genannten 4 Elementen die augenblickliche atmosphärische Ausbreitung, insbesondere die Lage und Höhe des Konzentrationsmaximums in Bodennähe, mit für diese Zwecke ausreichender Genauigkeit angeben. Auch die Ablagerung aerosolförmiger Spaltprodukte läßt sich berechnen, allerdings nur, wenn das Größenspektrum der Aerosolteilchen und somit ihre Ablagerungsgeschwindigkeit bekannt ist. Damit ist die erste Teilaufgabe lösbar, nämlich die zuverlässige Beschreibung des Gebietes, in welchem die erste Aktivitätsmessung vorzunehmen ist. Ist ein Prozeßrechner vorhanden, dann kann die Beantwortung dieser Frage automatisch und narrensicher über einen Bildschirm erfolgen, wie er im KFZK bereits installiert ist, s. Abb. 2.

Werden diese Ausbreitungsverhältnisse für die geschätzte Dauer der Emission als konstant angenommen, dann spricht man vom stationären Modell. Seine Prognose wird umso schlechter, je länger die Emission andauert, und ist praktisch nur für die erste Stunde des Emissionszeitraumes brauchbar. Bei länger dauernder Emission liefert es keine Anhaltspunkte über die Größe des möglicherweise mit Schadstoffen beaufschlagten Gebietes, sondern bestenfalls eine Abschätzung der maximal zu erwartenden Dosen.

3. Prognose bei größerer Emissionsdauer

Die Aufgabe eines dynamischen Prognosemodells kann angesichts der Schwierigkeit, eine zuverlässige Emissionsprognose zu stellen, etwa wie folgt formuliert werden:

1. Vorhersage des Gebietes, in welcher das Dosismaximum mit großer Wahrscheinlichkeit zu erwarten ist;
2. Vorhersage der wahrscheinlichen oberen Grenze zu erwartender Schadstoffkonzentrationen oder Strahlendosen.

Dabei darf ein bestimmter Prozentsatz besonders unwahrscheinlicher Wetterlagen unberücksichtigt bleiben.

3.1 Dosisstatistik

Eine erste Antwort auf die zu erwartenden Schadstoffkonzentrationen bei gegebener Emission gibt die Dosisstatistik. Nimmt man eine konstante Schadstoffemission während des Zeitraumes Δt , beginnend mit einer beliebigen Zeit t_0 , an, so kann man für jeden Ort in der Umgebung des Emittenten eine Dosisstatistik erstellen, indem man den Zeitpunkt t_0 in Schrittweiten von z.B. 1 h über einen Auswertzeitraum verschiebt und jedesmal die Schadstoffdosis am Aufpunkt P berechnet. Die nach Größe sortierten Dosen ergeben die Dosisstatistik. In Abb. 3 ist die Häufigkeit P, mit der eine gegebene Dosis D überschritten wird, im logarithmischen Maßstab eingetragen /6/. Die dünn gezeichneten Kurven geben die jeweils höchste Überschreitungshäufigkeit in einer gegebenen Entfernung x an. Die mit E bezeichneten Einhüllenden dieser Kurven geben die höchste im gesamten Gebiet irgendwo festgestellte Überschreitungshäufigkeit an.

Wird ein bestimmter Prozentsatz (z.B. 10 %) von Wetterlagen abgeschnitten, so können die mit 90 %iger Wahrscheinlichkeit höchsten zu erwartenden Dosen darin abgelesen werden. Bei dieser Dosisstatistik hat die Ausbreitungssituation zu Beginn der Emission keinen Einfluß mehr, da über alle auftretenden Ausbreitungslagen summiert wurde. Sie stellt ein Gegenstück zum stationären Modell dar, in welchem nur die Ausgangssituation, jedoch nicht die Dynamik des Ausbreitungsvorganges berücksichtigt wird. Sie findet Anwendung in allgemeinen Analysen von Reaktorstörfällen, in denen in der Tat die Ausgangswetterlage unbekannt ist, bzw. jede Wetterlage eine Wahrscheinlichkeit entsprechend ihrer Häufigkeit hat. Sie könnte außerdem bei Reaktorstationen, die nicht über das oben beschriebene meteorologische Info-System verfügen, bei Störfällen angewendet werden, um die Höhe (nicht die Lage) zu erwartender Maximaldosen abzuschätzen.

3.2 Spezifische Prognose unter Benützung aktueller meteorologischer Informationen

Diese Art der Prognose bedingt das Vorhandensein eines meteorologischen Informationssystems. Andererseits gehen wir davon aus, daß ein Meteorologe nicht anwesend oder verfügbar ist. Es kann sich also nicht um eine Prognose im Sinne der Wettervorhersagen des Deutschen Wetterdienstes handeln. Die hier angesprochene spezifische Prognose basiert lediglich auf der statistischen Analyse bisher registrierter Wetterabläufe. Dabei ändern sich Windrichtung, Windgeschwindigkeit und Stabilitätsklasse. Die Suche nach einer optimalen Antwort auf die Frage nach Lage und Höhe des Dosis bzw. Konzentrationsmaximums stellt eine der Aufgaben dar, die im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit in der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit des KFZ Karlsruhe bearbeitet werden. Diese Aufgabe wurde bis Anfang 1975 in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe für technischen Strahlenschutz der Technischen Universität Hannover durchgeführt.

Zunächst wurde untersucht, ob es ganz charakteristische Wetterabläufe gibt, die bei Vorliegen einer bestimmten Wettersituation mit überwiegender Wahrscheinlichkeit zu erwarten sind /7/. Das ist jedoch mit Ausnahme des zwangsläufigen Tag-Nacht-Zyklus nicht der Fall, selbst wenn man die dem täglichen Bericht des Deutschen Wetterdienstes zu entnehmende Großwetterlage zur Charakterisierung mit heranzieht. Das Mikroklima eines

bestimmten Standortes wird von örtlichen Effekten so stark beeinflusst, daß diese sogenannten Wetterabläufe keine deutlich genauere Aussage erbringen als die reine Statistik.

Was bleibt, ist der Tag-Nacht-Zyklus, welcher bewirkt, daß eine nächtliche Bodeninversion (Stabilitätsklasse E oder F) sich morgens nach Sonnenaufgang auflöst, und daß eine tagsüber herrschende Stabilitätsklasse B oder A gegen Abend mit Sicherheit von der neutralen Klasse D abgelöst wird. Daher erscheint es am sinnvollsten, die Ausbreitungsprognose nur von der Tageszeit und der Stabilitätsklasse abhängig zu machen. Aus der statistischen Analyse der registrierten meteorologischen Daten geht eine Fülle von Informationen hervor, s./8/, die hier schon aus Zeitmangel nicht alle gebracht werden können. Es werden nur die zwei wichtigsten Informationen herausgegriffen, die allerdings auch bei einem hypothetischen Störfall als die entscheidenden Informationen gelten können:

1. Breite $\Delta\phi$ des Sektors, in dem das Konzentrationsmaximum zu erwarten ist;
2. Entfernungsbereich Δx , in dem das Konzentrationsmaximum zu erwarten ist;

Tab. 1 und 2 zeigen als Beispiel die Bestimmung des Abstandes x_t des Dosismaximums.

$\Delta\phi$ und Δx können in einer Segmentdarstellung zusammengefaßt werden, s. Abb. 4. Dabei sind die ungünstigsten Wetterlagen (insgesamt 10 % aller Fälle) unberücksichtigt. Die Felder umfassen jeweils das Gebiet, in dem stellenweise mehr als 50 % der jeweiligen Maximalkonzentration zu erwarten ist. Da als Zeitpunkt für den Emissionsbeginn 1.00 Uhr gewählt wurde, wird die Größe der Felder maßgeblich von der Stabilitätsklasse F bestimmt, welche nachts häufig auftritt. Diese Stabilitätsklasse wurde bislang mangels ausreichender Versuchsergebnisse noch sehr konservativ behandelt. Man kann erwarten, daß bei realistischer Betrachtungsweise diese Felder erheblich schrumpfen werden.

Die Höhe zu erwartender Maximaldosen orientiert sich am stationären Modell (für kurze Emissionsdauer), sowie an der Dosisstatistik (für längere Emissionsdauer). Ob eine Verfeinerung dieser Aussage durch die spezifische Emissionsprognose zweckmäßig ist, wird noch geprüft.

4. Zusammenfassung

Bei der Prognose der Strahlenbelastung der Bevölkerung bei hypothetischen Störfällen stellt die Emissionsprognose das weitaus schwierigere Problem dar, während die Ausbreitungsprognose bei Vorhandensein eines meteorologischen Info-Systems zumindest bei kurzen Emissionszeiten (ca. 1 h) keine besonderen Schwierigkeiten bietet. Somit kann ein Strahlenmeßtrupp kurzfristig und gezielt entsendet werden, um im Gebiet des Konzentrationsmaximums die Aktivitätskonzentration (in der Luft oder auf dem Boden) messen zu können. Solche Messungen sind notwendig, um Rückschlüsse auf die Quellstärke ziehen zu können. Auf die Einrichtung eines ortsfesten Meßstellenringes um das Kernkraftwerk wird hier nicht weiter eingegangen.

Bei längerer zu erwartender Emissionsdauer (größer als 3 h) erweist sich eine spezifische Ausbreitungsprognose als zweckmäßig, welche auf die Tageszeit und Stabilitätsklasse zu Beginn der Emission bezogen ist und das Gebiet angibt, in welchem die Maximalkonzentrationen mit großer Wahrscheinlichkeit erwartet werden müssen. Diese Angaben stellen eine Erweiterung der Sofortinformation aus der Kurzzeitprognose dar und können in einfachen Diagrammen dem Reaktorpersonal verfügbar gemacht werden.

An den referierten Arbeiten waren die Mitarbeiter und Mitarbeiterinnen der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Bereich Theorie und Meteorologie, beteiligt, insbesondere die Herren H. Dilger, K. Nester, P. Thomas und S. Vogt, sowie E. Voelz von der Arbeitsgruppe Technischer Strahlenschutz der TU Hannover.

Literatur

- /1/ Reactor Safety Study, WASH-1400, Aug. 1974
- /2/ H. Dilger, W. Hübschmann, P. Thomas;
Meteorologisches Informationssystem für Kernkraftwerke,
Reaktortagung Nürnberg, April 1975
- /3/ H. Dilger, K. Nester;
Aufstellung und Vergleich verschiedener Schemata zur Bestimmung von
Ausbreitungskategorien,
Meteorologische Rundschau 28, 12-17 (1975)
- /4/ L.A. König, K. Nester, H. Schüttelkopf, M. Winter;
Experiments conducted at the Karlsruhe Nuclear Research Center to
Determine Diffusion in the Atmosphere by means of Various Tracers,
IAEA-SM-181/4, Wien, Nov. 1973
- /5/ K.J. Vogt, H. Geiß;
Kurzzeit- und Langzeitausbreitungsfaktoren zur Berechnung der Umwelt-
belastung durch Abluftfahnen,
ZST-Bericht Nr. 198 der KFA Jülich
- /6/ W. Hübschmann, K. Nester;
Die Dosisstatistik als Mittel zur Beurteilung der Umweltbelastung durch
Schadstoffemissionen in die Atmosphäre,
3. Internationaler Kongreß Reinhaltung der Luft, Düsseldorf 1973
- /7/ H. Schultz, E. Voelz;
Statistische Analyse des Ausbreitungsverhaltens von Abluftfahnen
während einer mehrstündigen Emission in Norddeutschland,
ATS-TUH-1078, Techn. Universität Hannover, April 1975
- /8/ S. Vogt;
Statistische Voraussagen für Lage und Betrag der maximalen Dosis bei
störfallbedingter Emission,
KFK 2215, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Tab. 1 Häufigkeit (in %) der das Dosismaximum bestimmenden Kategorie, abhängig von der zu Emissionsbeginn herrschenden Kategorie.

$\Delta t = 6 \text{ h}$

$t_0 = 1.00 \text{ Uhr}$

Quellstärke = const.

Kategorie zu Emissionsbeginn $\hat{=} X_0$	Kategorie, welche das Dosismaximum bestimmt $\hat{=} X_T$					
	A	B	C	D	E	F
D	-	-	0,4	89,2	8,1	2,3
E	-	-	-	34,4	56,1	9,5
F	-	-	-	15,9	36,5	47,6

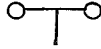

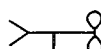

Tab. 2 Häufigkeit (in %) der das Dosismaximum bestimmenden Kategorie, abhängig von der zu Emissionsbeginn herrschenden Kategorie.

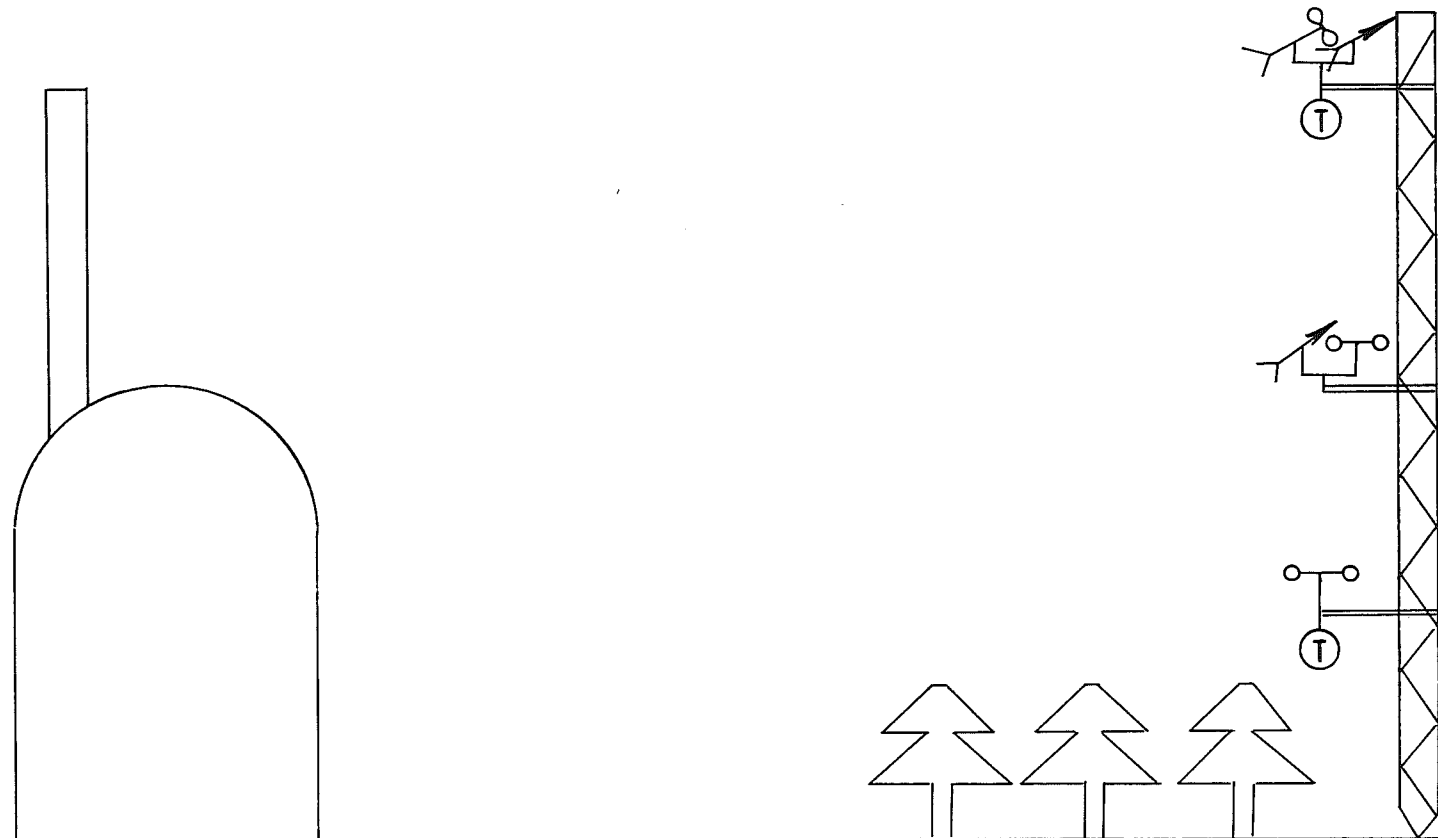
$\Delta t = 3 \text{ h}$

$t_0 = 1.00 \text{ Uhr}$

Quellstärke = const.

Kategorie zu Emissionsbeginn $= X_0$	Kategorie, welche das Dosismaximum bestimmt $\hat{=} X_T$					
	A	B	C	D	E	F
D	-	-	0,4	92,7	6,9	-
E	-	-	-	27,0	67,2	5,8
F	-	-	-	6,9	34,6	58,5

-  Anemometer
-  Schwertwindfahne
-  Vektorfahne
-  Temperaturfühler



Meteorologische Instrumentierung für ein Kernkraftwerk

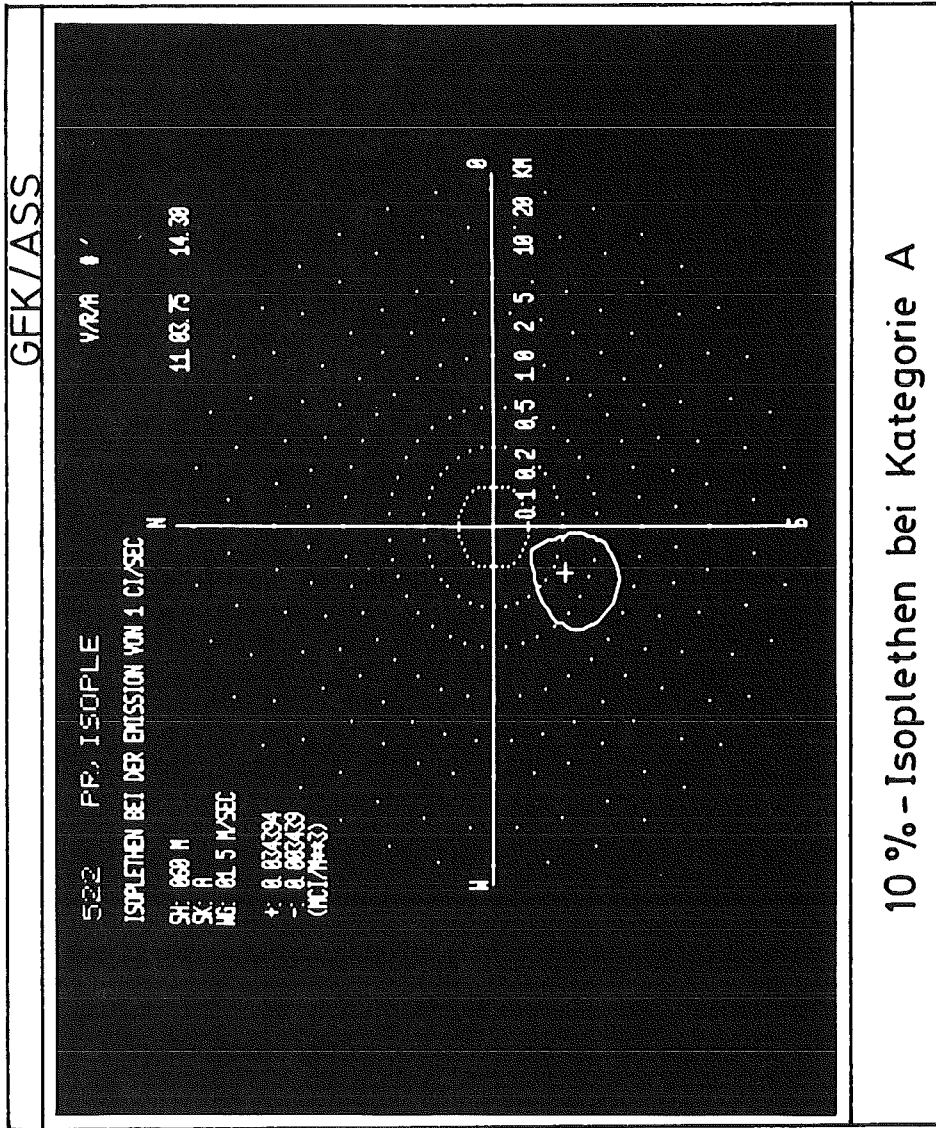
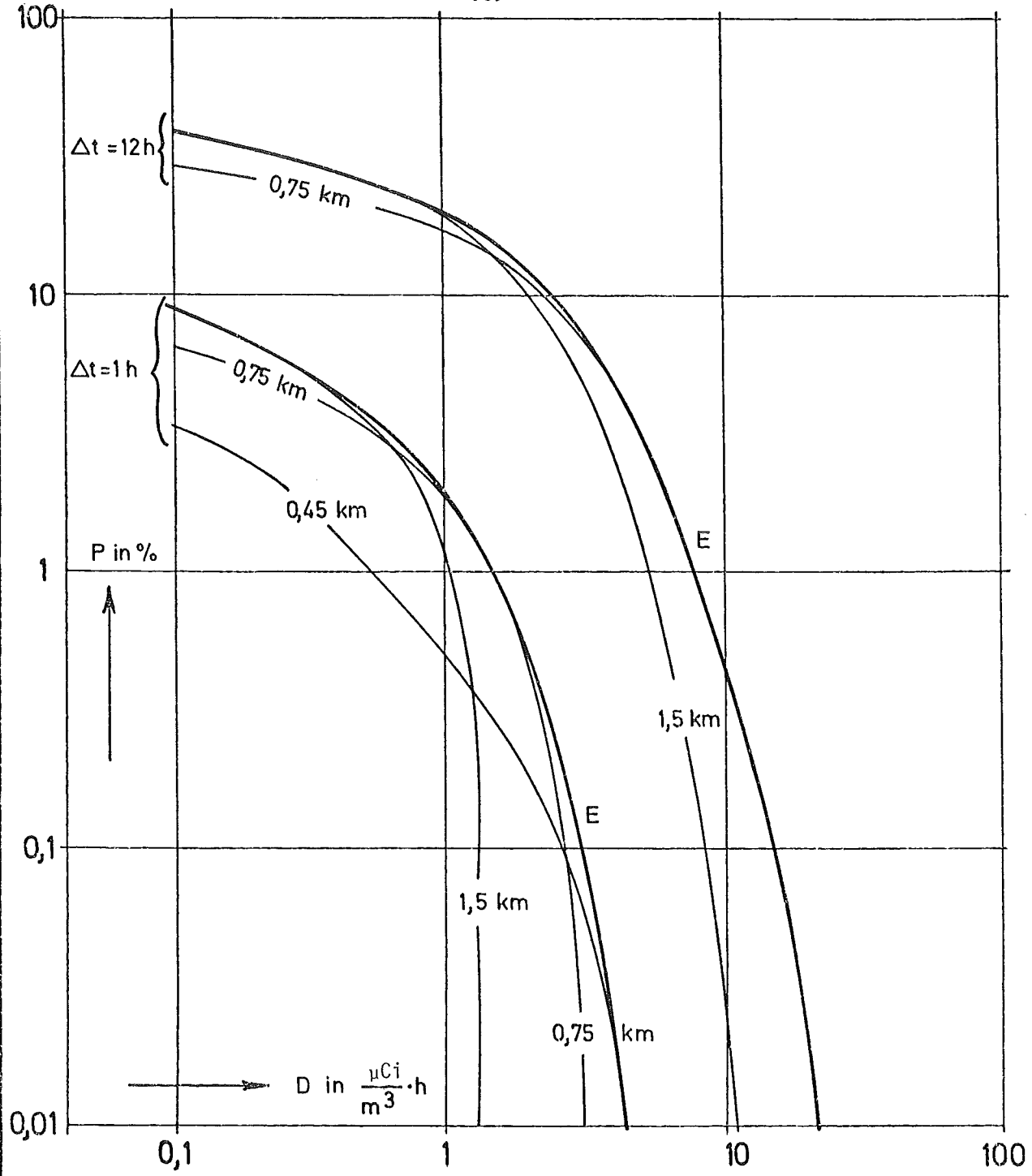


ABB. 2



ASS/TM
8-73

GfK

Summenhäufigkeit P für Dosen $> D$

$H = 60\text{ m}$

$Q = 1\text{ Ci/s}$

$F^* = 100\text{ m}^4/\text{s}^3$

$E = \text{Einhüllende}$

$\Delta t = \text{Integrationszeit}$

ABB. 3

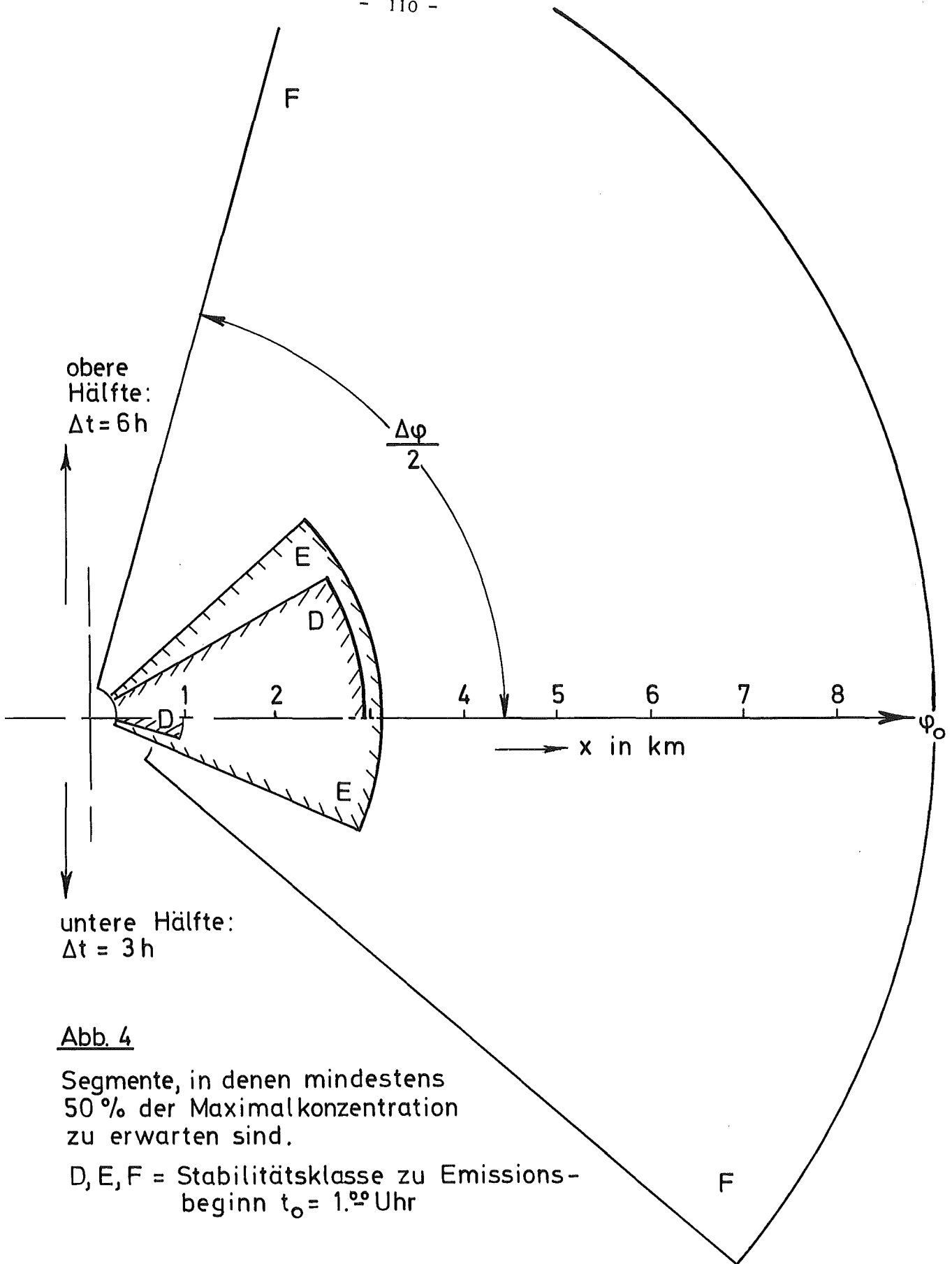


Abb. 4

Segmente, in denen mindestens 50% der Maximalkonzentration zu erwarten sind.

D, E, F = Stabilitätsklasse zu Emissionsbeginn $t_0 = 1.^{\circ}$ Uhr