

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

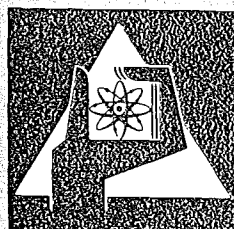
**KARLSRUHE**

Juni 1976

KFK 2262

Projekt Nukleare Sicherheit

**Halbjahresbericht 1975/2**



**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

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

K A R L S R U H E

Juni 1976

KFK 2262

Projekt Nukleare Sicherheit

Halbjahresbericht 1975/2

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe





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

KFK 2262

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

8. Halbjahresbericht/2. Halbjahr 1975

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



## Vorwort

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

Institut für Heiße Chemie	IHCH
Institut für Material- und Festkörperforschung	IMF
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik	INR
Institut für Reaktorbauelemente	IRB
Institut für Radiochemie	IRCH
Institut für Reaktorentwicklung	IRE
Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle	ABRA
Abteilung Reaktorbetrieb und Technik	RBT
Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit	ASS
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik	LAF
Laboratorium für Isotopentechnik	LIT

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

Der vorliegende 8. Halbjahresbericht 2/75 beschreibt die Fortschritte der Arbeiten des PNS, die von den Instituten und Abteilungen der GfK und den im Auftrag der GfK arbeitenden externen Institutionen auf dem Gebiet der nuklearen Sicherheit durchgeführt werden. Er enthält KURZFASSUNGEN in deutsch (S. 1 - 53 ) und englisch (S.54-106 ), in den über

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

jedes einzelnen Forschungsvorhabens kurz informiert wird.

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

NUCLEAR SAFETY PROJECT

SECOND SEMIANNUAL REPORT 1975

The 8th Project Report 2/1975 is a description of work within the Nuclear Safety Project performed in the last six month of 1975 in the nuclear safety field by GfK institutes and departements and by external institutions on behalf of GfK. It includes for each individual research activity short summaries (pp. 54 - 106 ) on

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

This report was compiled by the project management.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
KURZFASSUNGEN	1
SUMMARIES	54
DETAILLIERTE BERICHTE	107
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS- ANLAGEN	107
4110 Luftfilteranlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufar- beitungsanlagen	107
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spalt- produkten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	107
4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufar- beitungsanlagen	113
4114 Abluftfilterung an Reaktoren - Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien	123
4120 Reduktion der Aktivierung und Kontamination von Reaktorkreisläufen	139
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	142
4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung kerntechnischer Anlagen	142
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen	144
4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen	152
4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf ihre Umgebung	152

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	159
4210 Untersuchung von LWR-Druckabbausystemen, Entwicklung und Anwendung von Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	159
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen	159
4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen	177
4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	183
4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen	193
4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten	193
4222 Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche	195
4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid- und strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen in LWR	199
4230 Notkühlung von LWR	201
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Störfalltransienten und zur Auswirkung von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung	
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen und ATWS	201
4234 Messung der Nachzerfallswärme von $^{235}\text{U}$ im Zeitbereich 10 - 1000 sec.	213
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten	216
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial	216
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation an Zircaloy-Hüllrohrmaterial	233

4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffes auf die mechanischen Eigenschaften von Zircaloy-Hüllrohrmaterial	261
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles Out-of-pile Experimente mit elektrisch beheizten Einzelstäben	281
4237.1 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-loop des FR2	288
4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten PNS 4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren	295
4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung	300
4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles	318
4240 Coreschmelzen von LWR	334
4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von $UO_2$ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung	334
4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	347
4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen	366
4245 Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen	381
4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	394
4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen	394
4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments	394
4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole	413
4312 TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen	436

	<u>Seite</u>
4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN	451
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	451
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	451
4412 Wanderung langlebiger Transurane im Boden und in geologischen Formationen	463
Veröffentlichungen und Berichte im 2. Halbjahr 1975	468



KURZFASSUNGEN

- 4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS-  
ANLAGEN
- 4110 Luftfilteranlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs-  
anlagen  
(H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer, J.G. Wilhelm, LAF  
Jannakos RBT/IT)
- 4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der  
Sicherheitsbehälter-Atmosphäre

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Prüfung an Prototyp-Störfallfiltern wurde fortgesetzt. Erste Versuche unter Druck konnten an einem verkleinerten Jod-Sorptionsteil durchgeführt werden. Nach Einsatzzeiten von mehr als 10 Tagen bei ca. 160 °C, 4 at und 72% Gasfeuchte wurden gegenüber radioaktiv markiertem Methyljodid bei 0,2 s Verweilzeit Abscheidegrade > 99% erzielt.

Alternativ wurden neben AC 6120 auch Molekularsiebe auf ihre Beständigkeit bei GaU-Bedingungen untersucht. Die Ergebnisse sind vergleichbar, die Versuche wurden noch nicht abgeschlossen. Für Bestrahlungsversuche wurden theoretische Dosiswerte ermittelt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Versuche unter GaU-Bedingungen werden mit höheren Drücken, Gasfeuchten und Temperaturen fortgesetzt. An anderen Komponenten werden erste Versuche durchgeführt.

Die Materialuntersuchungen am Sorptionsteil werden fortgesetzt und bis auf die Bestrahlungsuntersuchungen im nächsten Berichtszeitraum abgeschlossen. Die Aerosolmeßtechnik wurde verbessert, ein Aerosolgenerator für GaU-Bedingungen wurde bestellt. Prüfstand-Messungen an Schwebstofffiltern unter GaU-Bedingungen werden nach Einbau des Generators aufgenommen.

## 4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

### Durchgeführte Arbeiten

Das hochimprägnierte Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H<sub>1</sub> wird unter den simulierten Abgasbedingungen einer großen Wiederaufarbeitungsanlage (GWA) im Labor geprüft. Da die endgültige Abgaszusammensetzung noch nicht feststeht, muß ein extrem großer Bereich möglicher Gasgemische untersucht werden.

Im Berichtszeitraum wurde der Einfluß von NO in reinem N<sub>2</sub> als Trägergas untersucht (stark reduzierende Bedingungen).

Die Laborversuche wurden durch Untersuchungen in den Original-Auflöserabgasen des SAP Marcoule ergänzt.

In der Auflöserabgasstrecke der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wurde das erste im Rahmen dieses Programmes entwickelte Jod-Sorptionsfilter eingebaut und als Betriebsfilter in Dienst gestellt.

Zum Bau der Prototyp-Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen wurde die Konzeption der Geräteanordnung ausgearbeitet und eine Schleuse und Transportsystem zum Auswechseln der beaufschlagten Filter konzipiert und entworfen.

Für das Jodfilter, das in der oben genannten Abgasanlage zum Einsatz kommt, wurden fünf Alternativlösungen erarbeitet. Mit Hilfe eines Auswahlverfahrens, das auf der Bewertung von Funktionskriterien basiert, wurde die Konzeption für das Jodfilter gewählt. Für diese Filterkonzeption wurde eine Filtertrommel entworfen und gebaut.

### Erzielte Ergebnisse

Durch NO in reinem N<sub>2</sub> als Trägergas wird die Imprägnierung des AC 6120/H<sub>1</sub> so stark reduziert, daß die Abscheideleistung absinkt. Durch gleichzeitige Anwesenheit von Sauerstoff oder NO<sub>2</sub> kann diese Reaktion unterdrückt werden. Zur Erhaltung der Abscheideleistung muß daher ein Überschuß an O<sub>2</sub> oder NO<sub>2</sub> gegenüber NO vorhanden sein. Dieser kann beim üblichen Auflöserbetrieb erwartet werden.

Im Original-Auflöserabgas des SAP Marcoule ergaben sich für Testbetten aus AC 6120/H<sub>1</sub> mit einer für eine GWA vorgesehenen Auslegung Abscheidegrade > 99,9% sowohl bei Einsatz vor als auch hinter der NO<sub>2</sub>-Adsorptionskolonne.

Das Jod-Sorptionsfilter in der WAK erreicht hohe Abscheidegrade. Der Auflösebetrieb konnte daher fortgesetzt werden.

Das Schleusen- und Transportsystem der Filteranlage sowie die Filtertrommel zur Aufnahme des Jod-Sorptionsmaterials wurden gebaut und erprobt. Die durchgeführten Versuche sind zufriedenstellend verlaufen.

#### Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Filteranlage für einen Versuchsstand zur Untersuchung der Auflöserabgas-Behandlung in einer GWA wird aufgebaut. Die Messungen in den Originalabgasen von in Betrieb befindlichen Wiederaufarbeitungsanlagen werden fortgesetzt.

Zur weiteren Erprobung der Filtertrommel, des Jodfilters und anderer Komponenten der Prototyp-Filteranlage wird ein Versuchsstand gebaut, der im 1. Halbjahr 1976 in Betrieb geht.

4114 Abluftfilterung an Reaktoren

4114.1 Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Messungen mit Vorfilterkohlen in einem Kernkraftwerk zeigten, daß unter den üblichen Bedingungen der Anlagenraumabluftfilterung die in großen Mengen auftretenden Lösungsmittelkomponenten Xylol und Toluol nicht für ausreichende Zeit zurückgehalten werden können. Die hochsiedenden Bestandteile der Petroleum-Benzinfraktion, die ebenfalls in der Abluft auftreten und erheblich zur Schadstoffbelastung der Jod-Sorptionsfilter beitragen, konnten mit Vorfilterbetten geringer Tiefe über einen Zeitraum von mehreren Monaten zurückgehalten werden.

Die ersten Laborversuche zur Bestimmung der Durchbruchzeiten wurden mit n-Pentan durchgeführt. Ein zur Radiojodabscheidung imprägnierter Aktivkohletyp

ergab einen dynamischen Adsorptionskoeffizienten, der mit den Werten von Aktivkohlen zur Lösungsmittelrückhaltung vergleichbar ist.

#### Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Laborversuche zur Bestimmung der Durchbruchzeiten werden mit weiteren identifizierten Filterschadstoffen fortgesetzt. Im Kernkraftwerk werden Mehrschicht-Filter erprobt.

#### 4114.2 Entwicklung diskriminierender Jodsammler

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Entwicklung diskriminierender Jodsammler wurde fortgesetzt. AC 6111-KJ, das als spezifisches Sorptionsmaterial für elementares Jod vorgesehen ist, zeigte eine nur unwesentliche Abscheidung von trägerfreiem  $\text{CH}_3^{131}\text{J}$  innerhalb des gesamten Parameterbereiches, der für die Untersuchung der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken von Bedeutung ist. Die Abscheidungsversuche an AC 6111-KJ mit trägerfreiem  $^{131}\text{J}_2$  lieferten infolge der unvermeidbaren Bildung von Jodverbindungen unbefriedigende Ergebnisse.

#### Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Fortsetzung und Abschluß der Versuche mit elementarem Jod; Aufnahme der Messungen in der Abluft von Kernkraftwerken.

4120      Reduktion der Aktivierung und Kontamination von Reaktor-  
              kreisläufen  
              (I. Michael, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten

In einem durch Goldinnenbeschichtung inertem Autoklaven wurde bei Betriebsbedingungen des Primärkreises von Druckwasser-Reaktoren die Metallabgabe von INCOLOY 800 an Druckwasser bei Variation der wasserchemischen Bedingungen untersucht. Daneben wurden die auf den INCOLOY-800-Proben entstandenen Deckschichten physikalischen Festkörper-Oberflächen-Analysen unterzogen.

### Erzielte Ergebnisse

Mittels Edelgasspülung thermischer- und chemischer Absenkung des Sauerstoffgehaltes des Deionats vom Normalwert um etwa eine Zehnerpotenz verminderte sich in einem 500-Studentest bei 342 °C und 150 bar der Eisen- und Nickelgehalt im Druckwasser um 33%, der Nickelgehalt um 40%, während der Chromgehalt bei sehr niedrigen Anfangswerten in der Nähe der Nachweisgrenze keine eindeutige Tendenz zeigte.

In den festkörperanalytischen Sekundärionen- und Augerelektronenspektren waren neben Oxiden auch Hydroxide und Hydride der Legierung-Hauptkomponenten feststellbar. Der Chromgehalt ist in der äußersten Korrosionsschicht höher, als im Grundmaterial.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Untersuchung des Metallgehaltes im Druckwasser als Folge der Metallabgabe und möglicher Transportmechanismen wird unter dem Einfluß einer veränderten Wasserchemie fortgesetzt. Bei der Änderung der Wasserchemie kommen sowohl die alkalische Fahrweise bis zu pH-Werten von 10, als auch die Zugabe von inhibierenden Substanzen in Betracht.

Durch Inbetriebnahme einer zweiten Autoklavenanlage wird das experimentelle Programm schneller durchgeführt werden können.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

### Durchgeführte Arbeiten

In der zweiten Hälfte des Jahres 1975 wurde die Probenahme und die monatliche Analyse von verschiedenen Abwasserproben der WAK und des KFZ Karlsruhe fortgesetzt. Die Messung der  $^{129}\text{J}$ -Aktivität in der Abluft der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wurde in wöchentlich gesammelten Proben gemessen. Seit der Wiederinbetriebnahme der WAK im November 1975 erfolgt die Bestimmung von  $^{129}\text{J}$  in mittelaktiven Abwässern, in Waschlösungen und in Speiselösungen der WAK.

Die  $^{129}\text{J}$ -Konzentration in Milchproben aus Friedrichstal und Linkenheim wird mit wöchentlich einer bis drei Proben kontrolliert. Außerdem wurden einige Schilddrüsenproben auf  $^{129}\text{J}$  analysiert.

#### Erzielte Ergebnisse

Die Destillate der niedrig aktiven Abwässer der WAK enthalten  $^{129}\text{J}$ -Konzentrationen im Bereich von ca. 10 pCi/l. Die Abwässer enthalten nach der Klärung und Vermischung mit anderen Wässern und vor der Abgabe des Abwassers in den Altrhein ca. 1 pCi/l. Die  $^{129}\text{J}$ -Emissionen mit der Abluft nahmen während der Betriebspause der WAK ständig ab. Nach dem Einbau eines Filters im Abluftstrom der WAK sank die  $^{129}\text{J}$ -Emission während der ersten Auflösungsprozesse im November auf einige  $\mu\text{Ci}/\text{Auflösung}$ . Die  $^{129}\text{J}$ -Konzentrationen in Kuh- und Ziegenmilch lagen zwischen 0,2 und 7 pCi/l, die gemessenen  $^{129}\text{J}$ -Konzentrationen in Schilddrüsen von Kaninchen lagen unter 10 pCi/Schilddrüse.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Messung von  $^{129}\text{J}$  in Abluft, Abwasser, Milch und Schilddrüsen wird fortgesetzt. Da durch den Einbau des Filters die  $^{129}\text{J}$ -Emissionen der WAK wesentlich reduziert wurden, wird die aktuelle Kontamination der Umgebung durch die Entnahme einer großen Zahl von Boden- und Pflanzenproben festgehalten. Mit der Messung von  $^{127}\text{J}$  in der Luft der Umgebung der WAK soll Ende 1976 begonnen werden.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das Programmsystem zur Berechnung der radiologischen Belastung wurde mit der Berücksichtigung einiger zusätzlicher atmosphärischer und hydrosphärischer Transporteffekte nahezu fertiggestellt. Die Eingabedaten wurden auf der Grundlage kürzlich veröffentlichter Berichte und persönlicher Kontakte auf den neuesten Stand gebracht, insbesondere die Standort-

charakteristiken, Abgaberaten und Ablagerungsgeschwindigkeiten. Für einige Expositionswege wurden Teilergebnisse erzielt.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nach Verbesserung einiger Unterprogramme, die vor allem den Radionuklidtransport im Boden und die Aufnahme in Pflanzen beschreiben, ist in Kürze mit den Endergebnissen zu rechnen. Auf der Basis dieser Referenzergebnisse werden Sensitivitätsstudien durchgeführt, um den Einfluß der Ungenauigkeiten von Daten und Modellen abzuschätzen. Die Untersuchungen werden Mitte des Jahres 1976 mit Herausgabe einer abschließenden Studie abgeschlossen werden.

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

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Komponenten der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage zur Krypton- und Xenon-Abtrennung (KRETA) wurden konstruiert und die Fertigung begonnen. Das Verfahrensschema wurde überarbeitet und um ein Notablaßsystem erweitert, mit welchem bei einem Störfall in der Anlage die Edelgase flüssig aufgefangen und gespeichert werden können. Mit der Erstellung von Programmen für die Berechnung des Kolonnenverhaltens bei Parameteränderungen wurde begonnen. Die Versorgungseinrichtungen für den Betrieb der Anlage wurden ausgelegt und bestellt.

Die Versuchsanlage für die, der Kr- und Xe-Abtrennung vorgeschalteten, CO<sub>2</sub>- und H<sub>2</sub>O-Entfernung wurde spezifiziert und angefragt. Der Lieferauftrag an eine Industriefirma wird zum Jahreswechsel erteilt. Es handelt sich um eine Adsorptionsanlage mit Molekularsieb (ADAMO).

Die Laborversuche zur Auswahl eines Katalysators für die gemeinsame Reduktion des Sauerstoffs und der Stickoxide mit Wasserstoff wurden abgeschlossen. Erste Ergebnisse von Vergiftungsversuchen mit Phosphorverbindungen liegen vor.



### Erzielte Ergebnisse

Es wurden 11 kommerzielle Edelmetall-Katalysatortypen auf ihre optimale Wirkung auf die NO-Reduktion und ihre minimale Beschleunigung der  $\text{NH}_3$ -Bildung getestet. Es wurden ein Ru-Katalysator auf  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Träger ausgewählt, der im Temperaturbereich  $> 300^\circ\text{C}$  Endwerte von  $< 1\text{ppm NO}$  und  $< 20\text{ ppm NH}_3$  zeigte.

Eine Vergiftung dieses Katalysators selbst durch große Beladungen von Tributylphosphat äußert sich lediglich in einer geringfügigen Erhöhung der "Anspringtemperatur" und der  $\text{NH}_3$ -Bildung.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nach dem Aufbau der Versuchsanlage wird im zweiten Halbjahr 1976 der Versuchsbetrieb mit KRETA beginnen. ADAMO wird noch 1976 installiert werden. Als weiterer Reinigungsschritt im Abgassystem einer Wiederaufarbeitungsanlage wird die  $\text{NO}_x$ - und  $\text{O}_2$ -Entfernung nach dem Verfahren der katalytischen Reduktion spezifiziert und bestellt.

Die Vergiftungsversuche des Katalysators werden mit Jod fortgeführt. Neben einigen Standzeitversuchen wird die  $\text{H}_2$ -Regelung an einer größeren Laboranlage untersucht werden. Die dynamische Koadsorption von  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NH}_3$  und  $\text{NO}_x$  in Gegenwart großer  $\text{H}_2\text{O}$ -Mengen wird an verschiedenen Adsorptionsmaterialien im Labormaßstab studiert.

4150      Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

4151      Untersuchung des Wärmeaustauschs Fluß/Atmosphäre am Beispiel des Rheins unterhalb des Kernkraftwerkes Philippsburg als Beitrag zu Abkühlungsmodellen

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

### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Bereich der Datenerfassung wurden Fehleranalysen durchgeführt, aus denen Hinweise für die nötigen Maßnahmen abgeleitet wurden, um die Zuverlässigkeit der Anlage auf ein zum Dauerbetrieb erforderliches Maß zu bringen.

So wurden Camac Moduln in intensiver Wechselwirkung mit dem Hersteller einer Nachentwicklung unterzogen und sowohl eine hardware- wie software-seitige Unterstützung ihrer Funktion entworfen. Durch System Engineering konnte die Fehlerquote weithin gesenkt werden.

Parallel wurde das zu Kontrollzwecken installierte analoge Registrierungssystem ausgebaut, um ein Back-up bei Rechenausfällen zu bilden. Bereits jetzt reicht die Störfreiheit aus, um die Messungen im geplanten Umfang durchzuführen. Mit Hilfe der z.Z. laufenden Arbeiten wird angestrebt, den erforderlichen Überwachungsaufwand zu senken und die Ausfallzeiten weiter zu verkürzen.

Seit November 1975 konnte eine digitale Registrierung von 80 % der Meßwerte über 70 % der Zeit erzielt werden, wobei auch Eingriffe und Abschaltungen zu Kontrollzwecken eingerechnet sind.

Die Übernahme der Daten auf die Großrechenanlage wird z.Z. erprobt und bietet keine prinzipiellen Schwierigkeiten.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nachdem Fehler, die zu einem Ausfall der Registrierung führen, auf Eintrittswahrscheinlichkeiten von einem in drei Tagen gesenkt werden konnten, soll nun zusätzlich ein automatisches Wiederstartsystem zur Aufrechterhaltung der Dauerregistrierung eingesetzt werden. Parallel zur Meßwernerfassung werden bereits laufend die Daten ausgewertet. Da das oberhalb der Meßstelle in Bau befindliche Kernkraftwerk erst Anfang 1977 in Betrieb genommen wird, kann der ganzjährige Vergleich von Daten vor und nach der Inbetriebnahme, eines der Ziele dieses Vorhabens, wie geplant durchgeführt werden.

Gemäß Projektratsbeschuß soll nach Abschluß der ersten Meßkampagne, die bis Mitte 1976 läuft, so früh wie möglich eine Übergabe des Vorhabens an die Landesanstalt für Gewässerkunde Karlsruhe angestrebt werden.

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

### Durchgeführte Arbeiten

Das bereits vorhandene 3-dimensionale Modell wurde erweitert, so daß jetzt auch die Doppelwirbelstruktur der Kühlturmfahne simuliert werden kann. Die mathematischen Grundlagen des neuen Programms wurden in /1/ zusammengestellt.

### Erzielte Ergebnisse

Mit dem erweiterten Rechenprogramm wurden Testrechnungen mit verschiedenen meteorologischen Umgebungsbedingungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind ebenfalls in /1/ enthalten. Der vorerst nur qualitativ mögliche Vergleich zwischen diesen Rechnungen und den Messungen /2/ liefert eine gute Übereinstimmung in Form und Struktur der Verteilung von Temperatur, Feuchte und Vertikalgeschwindigkeit in der Fahne.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Durch Testrechnungen mit den Bedingungen während des Meßprogramms und Vergleich mit den entsprechenden Meßdaten sollen das Rechenprogramm verifiziert werden. Für diese Verifizierung werden die detaillierten Meßdaten voraussichtlich 1976 zur Verfügung stehen, so daß die Arbeiten Ende 1976 mit der Dokumentation des verifizierten Codes und einem Abschlußbericht wie geplant abgeschlossen werden.

### Literatur

/1/ K. Nester;

Simulation der Wirbelstruktur der Abluftströmung aus Kühltürmen mit  
einem Rechenprogramm (WALKÜRE)  
KFK-Bericht Nr. 2249, 1976

/2/ H. Fortak;

Meßprogramm an Kühltürmen, III. Teil  
JÜL-1250, 1975

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

4210 Untersuchung von LWR-Druckabbausystemen, Entwicklung und Anwendung von Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Berechnung der akustischen Resonanzfrequenzen des MARVIKEN-Druckunterdrückungssystems wurde mit einem verbesserten mathematischen Modell fortgesetzt. Das Modell berücksichtigt die Kopplung der drei Einzelsysteme:

Überströmkanäle, Dampfverteilerkammer und Kondensationsrohre,

Bei Verwendung realistischer Werte für die Schallgeschwindigkeit von 280 bis 340 m/s liegen die damit errechneten ersten drei Eigenfrequenzen nahe bei den aus den Versuchsdaten abzuleitenden gemessenen Werten.

Die Laborentwicklung der Infrarot-Meßtechnik wurde abgeschlossen und an das MARVIKEN II-Projekt ein entsprechendes Angebot abgegeben. Nach Eingang der Bestellung für eine Meßstelle wurde die zu liefernde Meßeinrichtung entworfen, konstruiert und gefertigt. Der Stützrahmen und die Versorgungsleitungen wurden in MARVIKEN montiert, die Sende- und Empfangsteile sowie die elektrischen Versorgungseinheiten in der Werkstatt vormontiert und getestet. Diese Entwicklungsarbeiten werden gemeinsam mit dem Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe ausgeführt.

Die im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL im Juni 1975 mit einem Kondensationsrohr 600 mm  $\varnothing$  durchgeführte zweite Serie von Abblaseversuchen wurde ausgewertet. Die Ergebnisse zeigen, daß es ähnlich wie bei der ersten Versuchsserie auch bei diesen Versuchen zur Ausbildung von stehenden Druckwellen mit geringer Amplitude im ringförmigen Wasserraum kam.

Bei den Untersuchungen zum dynamischen Verhalten der Containment-Struktur wurde eine transiente Rechnung durchgeführt. Dazu wurde aus einem Freiblastversuch der ersten BRUNSBÜTTEL-Versuchsserie ein zeitliches und räumliches

Druckfeld interpoliert und dem Rechenmodell als Belastung aufgeprägt. Der Zeitverlauf der resultierenden Auslenkung von interessierenden Punkten des Containments wurde bestimmt. Die tatsächlichen Auslenkungen wurden durch zweifache Integration der gemessenen Beschleunigungen ermittelt und konnten so mit den Rechenergebnissen verglichen werden. Die Übereinstimmung ist noch nicht befriedigend.

Im Rahmen der von der Fa. KWU in Karlstein (bisher Großwelzheim) durchgeführten Kondensationsversuche wurden bei 11 Versuchen eigene Messungen vorgenommen. Gemessen wurde jeweils der zeitliche Druckverlauf an 15 Meßstellen, die auf drei rechtwinklig zueinander stehenden Meßlanzen angeordnet waren. Koordinatenursprungspunkt war das vermutete Blasenzentrum. Die Auswertung bezog sich zunächst bevorzugt auf die Versuche mit einer Massenstromdichte von  $16 \text{ kg/m}^2\text{s}$ , da mit diesem Wert alle Rohrkonfigurationen (Rohrdurchmesser, Rohrzahl) untersucht worden waren. Die Basisbreite der für luftfreie Kondensation charakteristischen Druckspitzen ist ausnahmslos sehr klein (ca. 15 ms), die gemessenen Amplituden erreichen hingegen in der Nähe der kollabierenden Dampfblasenwerte bis ca. 7 bar.

Im Berichtszeitraum wurden außerdem erste Parameterrechnungen mit einem die thermohydraulischen Vorgänge des Kondensationsvorganges beschreibenden Rechenprogramm begonnen. Dieses Programm berücksichtigt parallel arbeitende Kondensationsrohre und erfaßt die wichtigsten dampf- und wasserseitig vorhandenen Kopplungsmechanismen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Untersuchungen zur Frage der Systemresonanzen von Druckabbausystemen werden wegen anderer Aufgaben hoher Priorität (PNS 4222) in der nächsten Zeit nur mit geringer Intensität weitergeführt werden können. Dies scheint jedoch vertretbar, da im Jahre 1976 die MARVIKEN II-Versuche durchgeführt werden, deren Ziel es ist, weitere experimentelle Informationen auf diesem Gebiet zu erlangen. Im Rahmen der anschließenden Auswertung der MARVIKEN II-Meßdaten wird es jedoch sinnvoll sein, die theoretischen Arbeiten zur Frage der Systemresonanzen wieder zu verstärken.

Die nach MARVIKEN gelieferte Infrarot-Meßeinrichtung wird fertig montiert, in Betrieb genommen und für die bevorstehenden Versuche genutzt werden. Die

damit mögliche Messung der Gemischzusammensetzung wird u.a. Rückschlüsse auf die in den Zuströmräumen vorhandene Schallgeschwindigkeit zulassen. Die theoretischen Berechnungen der Systemresonanzen können auf diese Weise zusätzlich experimentell abgesichert werden.

Die Berechnungen zum dynamischen Verhalten der Containment-Struktur werden fortgesetzt werden. Durch Analyse weiterer Versuchsergebnisse sollen die Ursachen für die bisher unbefriedigende Übereinstimmung zwischen den berechneten und den experimentell gefundenen Auslenkungen ermittelt werden, so daß ggf. eine Verbesserung des Rechenmodells vorgenommen werden kann.

Die Auswertung der bei den KWU-Kondensationsversuchen in Karlstein gewonnenen Meßdaten wird abgeschlossen. Im Auftrag des TÜV-Baden werden im Rahmen einer neuen Versuchsserie im Großkraftwerk Mannheim vom IRE erneut Kontrollmessungen vorgenommen werden.

Die Parameterrechnungen zum Kondensationsvorgang an einem und mehreren parallelen Rohren werden mit zum Teil verbesserten Programmen fortgesetzt.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

An der Wasser-Luft-Teststrecke wurden Ein- und Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen im Bereich zwischen 0 und 50 Volumenprozenten Luftanteil durchgeführt. Die Untersuchung der Ursachen für die Instabilität der Meßelektronik wurden fortgesetzt. Außerdem gelang die Entwicklung eines neuen Frequenz-Spannungs-Konverters. Ein Auswerteprogramm unter Verwendung der Korrelationsanalyse wurde getestet. Zusätzlich wurden zwei verschiedene Rechenprogramme erstellt, von denen das eine die Laufzeit aus dem zeitlichen Abstand der Schwerpunkte der Impulsraten-Peaks und das andere aus dem Abstand der Wendepunkte in den ansteigenden und abfallenden Peakflanken ermittelt. Die Vorbereitungen der MARVIKEN II-Experimente wurden im September begonnen und laufen noch bis Ende Januar 1976.

### Erzielte Ergebnisse

Die an der Wasser-Luft-Teststrecke durchgeführten Ein- und Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen stimmen mit den Kontrollmessungen und-rechnungen über die Massenbilanz gut überein und brachten darüber hinaus folgende wesentlichen Ergebnisse:

1. Die Anlaufstrecken können inzwischen auf bis zu 0,1 m und die Meßstrecken auf bis zu 0,25 m verkürzt werden. Dadurch wird der Anwendungsbereich des Verfahrens im Hinblick auf kurze Rohre (wie z.B. HDR-Bruchstutzen) entscheidend erweitert.
2. Erste Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen am System Wasser/Luft im Bereich von  $v = 12,5$  bis  $25$  m/s und mit 0 bis 50 Vol.% Luft sind gelungen und ergaben einen Schlupffaktor von  $s = 1$ .

Durch spezielle Auswahl des Photomultipliers und Verbesserung des Verstärkers und des Diskriminators wird nunmehr eine Reduzierung der Peakverschiebungen von  $\pm 15\%$  auf  $\pm 3\%$  bei einer Zählratenänderung von 1 bis 100 kHz und damit eine wesentliche Verbesserung der Meßelektronik erreicht. Ein weiterer Fortschritt in der Meßtechnik wurde durch die Entwicklung eines neuen Frequenz-Spannungs-Konverters erzielt, mit dem die Zeitauflösung und die Empfindlichkeit um das Vierfache gesteigert werden kann.

Die Auswertung der Versuchsergebnisse mit dem Zeitserienanalysator lieferte bereits gute Ergebnisse.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Vorbereitung der MARVIKEN II-Experimente wird mit der Installation einer Gasgeschwindigkeitsmeßeinrichtung am Blowdown-Channel und einer Zweiphasengeschwindigkeitsmeßeinrichtung am Bruchstutzen des MARVIKEN-Reaktors Ende Januar 1976 abgeschlossen. Es sollen von Februar bis Oktober 1976 acht Blowdowns durchgeführt werden. Parallel zu diesem externen Projekt laufen die Versuche an der Wasser-Luft-Teststrecke und an dem "Gemeinsamen Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren von Zweiphasenmassenstrommeßverfahren" (RS 145/PNS 4215) des IRB und die Vorbereitungen auf die 1977 beginnenden HDR-Blowdown-Experimente.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Der Aufbau des Versuchsstandes hat folgenden Stand erreicht:

- Alle Armaturen, einschließlich der Druckhalteventile wurden ausgeliefert.
- Die Rohrleitungs montage wurde im November begonnen und zum größten Teil fertiggestellt.
- Die meß- und regelungstechnischen Komponenten wurden ausgeliefert. Mit der Montage wurde begonnen.
- Bei der Fertigung der Mischkammer traten schweißtechnische Probleme auf. Die Fertigstellung wird in Kürze erwartet.
- Die Meß- und Regeltechnik des Bensonkessels wurde überholt und den Erfordernissen des Zweiphasen-Versuchsstandes angepaßt.

Die Strömungsform soll sowohl mit einer optischen Methode (Hochgeschwindigkeitsphotographie) als auch mit einer lokal messenden Impedanz-Sonde bestimmt werden:

- Das Rohrstück, das die Beobachtungsfenster aus Saphir enthält, wurde weitgehend fertiggestellt.
- Eine statistische Auswertung der SONDENSIGNALE ermöglicht Aussagen über die Strömungsform auch in den Massenstrombereichen, in denen Filmaufnahmen kaum interpretierbar sind.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- Fertigstellung des Versuchskreislaufes und Inbetriebnahme
- Planung der Erweiterung des Versuchsstandes für instationäre Experimente
- Herstellung einer Sonde für Betriebsbedingungen



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

### Einleitung

Zentraler Punkt der Aktivitäten war die Definition der Forschungsziele, die mit den HDR-Blowdown-Versuchen erreicht werden sollten. Unter Beachtung des gegenwärtigen Wissensstandes ergab sich, daß die Verifizierung gekoppelter Fluid-Strukturdynamik-Codes zur Berechnung der maximalen Beanspruchung der Reaktordruckbehälter-Einbauten (Kernmantel) bei einem Blowdown im kalten Strang eines Druckwasserreaktors das Hauptziel darstellt.

### Durchgeführte Arbeiten

Die Kernmanteleinspannung war so auszulegen, daß auf der einen Seite für die Versuche klar definierte Randbedingungen vorlagen (feste Einspannung) und auf der anderen Seite die sichere Abdichtung zwischen Reaktorbehälter und Deckel nicht in Frage gestellt wurde. Hierzu waren detaillierte Spannungs- und Verformungsanalysen notwendig.

Die Kernmantelwandstärke war so zu bestimmen, daß beim schärfsten Blowdown das elastische Verformungspotential des Kernmantels möglichst vollständig ausgenutzt wird. Hierzu waren aufwendige transiente Finite-Element-Rechnungen für den Kernmantel als Schale unter Einbeziehung des oberen und unteren Flansches notwendig.

Eine wohldefinierte Einstellung der Enthalpie-Schichtung zu Beginn der Blowdown-Versuche muß möglich sein. Es wurde nachgewiesen, daß die vorgesehene Kreislaufführung zu nicht vorhersagbaren, instabilen Konvektionsströmungen führen wird und deswegen eine sichere Bestimmung der Ausgangsenthalpie-Schichtung sowie die Reproduzierbarkeit nicht gegeben ist. Daraufhin wurde die Konzeption und Untersuchung einer anderen Kreislaufführung in Angriff genommen.

### Erzielte Ergebnisse

- Der Entwurf für eine nahezu starre Kernmanteleinspannung wurde vorgelegt.
- Eine Kernmantelwandstärke von 23 mm wurde für die geplanten Blowdowns als absolut ausreichend ermittelt. Es muß sogar noch geprüft werden, welche Verschärfungen der Blowdown-Beanspruchungen möglich sind, um eine optimale Ausnutzung des elastischen Verformungspotentials des Kernmantels zu erzielen.
- Eine geänderte Kreislaufführung zur Erzielung einer stabilen Enthalpie-Schichtung zu Beginn der Blowdown-Versuche wurde vorgeschlagen.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit geeigneten Codes (evtl. YAQUI und STRUDL-DYNAL) und in 4223 entwickelten gekoppelten Fluid-Strukturdyn. Codes zunächst einfacher, später weiterentwickelter Version sollen Vorausberechnungen für die HDR Blowdown-Experimente durchgeführt werden.

4222      Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche  
(R.A. Müller)

### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Es wurde vereinbart, daß die benötigte Instrumentierung teilweise durch die Fa. Battelle (Temperatur, Druck- und Differenzdruck-Aufnehmer) und teilweise durch das IRE (Weg-, Beschleunigungs- und Dehnungsaufnehmer) bereitgestellt werden wird. Für die Erprobung der vom IRE zu liefernden Instrumentierung wurde eine Autoklaven-Testvorrichtung konzipiert. Sie wird gestatten, die einzelnen Musteraufnehmer realistischen bzw. verschärften Betriebsbedingungen zu unterwerfen. Die Untersuchungen über die für den vorliegenden Anwendungsfall geeignetsten Meßtechniken und Meßaufnehmer wurden fortgesetzt und ein erstes Testprogramm dafür vorbereitet.

## Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Der Testautoklav wird beschafft, im Labor installiert und probeweise in Betrieb genommen. Nach Anlieferung der Prototypaufnehmer werden die Instrumentierungsversuche durchgeführt. Diese Versuche haben zwei Zielsetzungen:

1. Ermittlung der mechanischen und elektrischen Betriebszuverlässigkeit unter den gegebenen Versuchsbedingungen und
2. Ermittlung der Meßgenauigkeit unter den gegebenen Versuchsbedingungen.

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

## Einleitung

Das Vorhaben umfaßt die begleitenden theoretischen Arbeiten zu den HDR-Blowdown-Versuchen (PNS 4221, PNS 4222), insbesondere die Entwicklung fluidstrukturdynamischer Codes zur Berechnung von Blowdown-Vorgängen insoweit, als sie zur Bestimmung der maximalen Beanspruchung von RDB-Einbauten von Bedeutung sind.

## Durchgeführte Arbeiten

Testrechnungen zweidimensionaler, transienter Strömungen mit dem von Los Alamos übernommenen und inzwischen stark modifizierten YAQUI-Programm wurden ausgeführt. Die erste Berechnung eines Blowdown-Vorganges im Ringraum ist in Vorbereitung. Die für eine gekoppelte Struktur-Fluidmechanik erforderliche Erweiterung der Gleichungen auf 2 1/2 Dimensionen ist abgeschlossen. Verschiedene Verfahren der Fluid-Struktur-Kopplung (von asynchroner Zeitintegration bis zu völliger Ausiteration jedes Zeitschrittes) wurden untersucht. Mit der Planung eines neuen Fluidmechanik-Codes für komplexe Geometrien wurde begonnen.

Auch die Arbeiten an geeigneten Singularitätsverfahren, die möglicherweise zur Beschreibung des Fluidbereiches im Inneren des Kernmantels herangezogen werden, konnten vorangetrieben werden.

Das halbanalytische Modell zur (biegesteifen) Schalendynamik wurde durch Berücksichtigung eines weiteren Trägheitsgliedes und durch Einführung realistischerer Randbedingungen zur Simulation des unteren Flanschlusses am Kernmantel verbessert. Die Erstellung eines entsprechenden Rechenprogrammes CYLDY1 wurde in Angriff genommen.

#### Erzielte Ergebnisse

- YAQUI wurde in vollem Umfang bereitgestellt. Auch die graphische Ausgabe ist jetzt möglich. Grobablaufplan und abstrakte Datenstruktur des neuen Codes FLUSTO1 liegen vor.
- Das Rechenprogramm CYLDY1 zum dynamischen Verhalten des Kernmantels unter angemessener Berücksichtigung des unteren Flansches wird in Kürze in die Testphase eintreten.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Modifikation des YAQUI-Codes wird abgeschlossen und der linear-elastische Code CYLDY1 für eine Zylinderschale wird bereitgestellt.

Methoden der Kopplung zwischen fluiddynamischen und strukturdynamischen Codes werden getestet. Ferner sind begleitende Laborexperimente vorgesehen.

- 4230 Notkühlung von LWR  
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Störfalltransienten und zur Auswirkung von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung
- 4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfall und ATWS  
(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE-Stuttgart)

#### Durchgeführte Arbeiten

Die erste Version (SSYST-Mod-1) des Programmsystems SSYST wurde fertiggestellt und ist in /1/ dokumentiert. Der Modul WQDEL zur Berechnung der Wärmequellverteilung für elektrisch beheizte Stäbe wurde für theoretische Begleitrechnungen zu den Experimenten entwickelt und in SSYST integriert. Im Modul WUEZ wurde der Wärmeübergang durch Festkörperkontakt zwischen Hülle und Brennstoff in Abhängigkeit vom Anpreßdruck mit berücksichtigt. Voruntersuchungen zum statistischen Hüllrohrblähen und zur Beschreibung von Stabbündeln in SSYST wurden durchgeführt. Zur Senkung der Rechenkosten wurde der Systemkern von SSYST der IMB 370 besser angepaßt. Das Programm WAK /2/ zur Berechnung der Kühlmittelbedingungen und des Wasserstandes im Kern während der Niederdruckkühlung wurde verbessert und als Modul zur Berechnung der Flutphase in das Programmsystem aufgenommen.

Mit SSYST wurde für die Berechnung eines mittleren Brennstabes eine DWR-Primärsystemanalyse durchgeführt (2F-Bruch einer Hauptkühlmittelleitung im kalten Strang). Die Ergebnisse sind in /3/ dargestellt. Der Einfluß der Wärmedurchgangszahl im Gasspalt auf das Temperaturverhalten im Brennstab wurde durch eine Parameterstudie untersucht. Für die Brennstabsimulation im Experiment (PNS 4237) wurde die adiabate Aufheizung unter Annahme einer Beule in Stabmitte berechnet. Zum Dehnungsverhalten von Zircaloy-Hüllrohren wurden Parameterstudien zur Ermittlung des Einflusses von lokalen Überhitzungen und Wandstärkeschwankungen durchgeführt.

Der Einfluß einiger Parameter (Kondensationswirkungsgrad, Wärmeabfuhr aus den Stäben durch Vorkühlung, Wärmeübergang im nicht benetzten Bereich) auf den Wiederauffüllvorgang wurde durch eine Empfindlichkeitsstudie erfaßt.

Die Auslegungsrechnungen für das Vorhaben PNS 4236 wurden fortgesetzt.

Die Arbeiten zu einer verbesserten Beschreibung der Zry-Stoffwerte wurden fortgeführt in der Nachrechnung von Zug- und Berstversuchen der Vorhaben PNS 4235.1 bzw. 4238 und in der Berechnung optimierter Konstanten für die Bestimmungsgleichungen der Diffusionskonstanten in  $ZrO_2$  und  $\beta$ -Zirkon, denen die Ergebnisse des Vorhabens 4235.2 (Oxidationsversuche) zugrunde gelegt wurden.

Bei den Arbeiten zur Berechnung der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Verformungen für das Hüllrohr wurden verschiedene Methoden an einfachen Beispielen getestet. Dabei zeigten sich das Verfahren des "Moment Matching" und die Monte Carlo-Methode als geeignet.

#### Erzielte Ergebnisse

SSYST-Mod-1 steht auf einer CDC 6600 und IBM 370/168 zur Verfügung. Die Primärsystemanalyse mit SSYST ergab Informationen über die wichtigsten Einflußgrößen (Wärmeleitkoeffizient im Spalt, Druckverlauf, Leckraten und Durchsatz intakter Loops, Temperaturverläufe im Brennstab, Brennstabdeformation und Flutgeschwindigkeit /3/). Eine Parameterstudie über den Einfluß der  $\alpha$ -Zahl im Spalt auf die Brennstabtemperatur ergab z.B. bei Werten unterhalb  $7000 \text{ W/m}^2 \text{ K}$  eine beachtliche Abhängigkeit. Die Parameterstudien zum Dehnungsverhalten von Zircaloy-Hüllrohren in Abhängigkeit von Wandstärke, zeitlichen und örtlichen Temperaturprofilen, Spannungsexponenten im Kriechgesetz führte zu einer Reihe interessanter Ergebnisse, die in /3/ dargestellt sind. Eine Analyse des Brennstabverhaltens beim Abblasen für verschiedene Abbrandzustände ergab für ein Referenzreaktormodell konservative Ergebnisse /3/.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Darstellung der Thermo- und Fluidodynamik wird ausgebaut. Daneben werden die Arbeiten zur Statistik des Hüllrohrblähens und zur Verbesserung der Stoffgesetze für Zry fortgeführt. Die Untersuchung von Versagenspropagation wird mit einfachen Modellen durchgeführt werden. Zur Verbesserung der Kenntnis über das gesamte Coreverhalten werden Brennstäbe eines DWR

in Schadenserkwartungsklassen eingeteilt. Für einen Stab jeder Klasse wird eine Einzelstabanalyse durchgeführt werden.

### Literatur

/1/ Gulden, W. et.al.: Dokumentation von SSYST-Mod-1. Ein Programmsystem zur Berechnung des Brennstabverhaltens bei einem Kühlmittelverluststörfall. (1975) unveröffentlicht

/2/ Seidelberger, E.: Beschreibung des digitalen Rechenprogrammes WAK (Wiederauffüllen des Kerns). (1973) unveröffentlicht

/3/ Unger, H. et.al.: Berichte über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit der GfK für den Zeitraum Juli-September 1975 und Oktober-Dezember 1975. (1975) unveröffentlicht.

4234 Messung der Nachzerfallswärme von  $^{235}\text{U}$  im Zeitbereich  
10-1000 sek.  
(K. Baumung, INR)

### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die konstruktiven Einzelheiten des Kalorimeters und der Transporteinrichtungen wurden festgelegt. Mit der Fertigung wurde begonnen.

Durch die Berechnung der Wärmequellverteilung in Abhängigkeit vom  $^{235}\text{U}$ -Gehalt konnte eine optimale Anreicherung der  $\text{UO}_2$ -Proben bestimmt werden, durch die der Einfluß der schlechten Wärmeleitfähigkeit des Oxids auf die Temperaturmessung minimalisiert wird.

Aus Monte-Carlo-Rechnungen der  $\gamma$ -Ausflussspektren wurden Korrekturfaktoren gewonnen, mittels derer aus den  $\gamma$ -Energieflußmessungen auf den gesamten

$\gamma$ -Energieverlust der Proben sowie auf die  $\beta$ - und  $\gamma$ -Anteile an der gesamten Nachzerfallswärme geschlossen werden kann.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Es soll die Meßapparatur sowie der  $\gamma$ -Energieflußmonitor gebaut und ein Transportfahrzeug für die Rohrpost entwickelt werden, das eine gute Kühlung der Proben während der Bestrahlung gewährleistet. Durchführung und Auswertung der Versuche erfolgt 1976 und 1977. Abschluß der Arbeiten ist für 1977 geplant.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial

(M. Boček, <sup>V</sup>IMF II)

#### Durchgeführte Arbeiten

Untersucht wurden:

- Die Verformungsgeschwindigkeits- und Temperaturabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten im Temperaturbereich von 400 ÷ 1100 °C in Luftatmosphäre.
- Die Verformungsabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten in Luftatmosphäre und in Vakuum.
- Der Einfluß von Wärmebehandlungen auf das Verformungsverhalten.
- Die Phasenverteilung beim  $\alpha \rightarrow (\alpha + \beta)$  Phasenübergang.
- Die Zeitstandfestigkeit von Zircaloy-4-Hüllrohren in isothermen Innendruckversuchen bei Temperaturen von 800 °C und 900 °C (Druckmedium: inertes Gas, Umgebung: Vakuum).

#### Erzielte Ergebnisse

- Im Temperaturbereich von 400 ÷ 840 °C ist der Geschwindigkeitsexponent  $m_a$  unabhängig von der Verformungsgeschwindigkeit. In diesem Temperatur-



bereich gilt:

$$\sigma = C \cdot \dot{\epsilon}_0^{m_a} \exp (Q/kT)$$

Zur Erstellung eines Deformationscodes wurden die Systemkonstante C, der Geschwindigkeitsexponent  $m_a$  und die scheinbare Aktivierungsenergie Q ermittelt.

- Verläuft die Verformung superplastisch, so nehmen die  $m_a$ -Werte, gemessen an Proben, die in situ der Luftatmosphäre ausgesetzt sind, mit der Verformung stark zu. Für Proben, die in Vakuum verformt wurden, sind die entsprechenden  $m_a$ -Werte weitgehend von der Verformung unabhängig. Ebenfalls sauerstoffhaltige Proben, sofern diese in inerter Atmosphäre gedehnt wurden, zeigten verformungsunabhängige  $m_a$ -Werte.
- Grobkörniges Zircaloy-4 zeigte, wie erwartet, im gesamten Temperatur- und Verformungsgeschwindigkeitsbereich normalplastisches Verhalten. Allerdings kann die Fähigkeit zur Superplastizität hergestellt werden, sofern im Laufe der Verformung bei höheren Temperaturen durch Polygonisation gleichachsige Subkörner (Durchmesser  $\sim 10 \mu\text{m}$ ) gebildet werden.
- Wie metallographische Untersuchungen gezeigt haben, erfolgt die Ausscheidung der  $\beta$ -Phase oberhalb  $840^\circ\text{C}$  zunächst überwiegend an den Korngrenzen. Besonders die Tripelpunkte sind bevorzugte Stellen. Dies ist von zweifacher Bedeutung. Einmal hemmt offensichtlich die  $\beta$ -Phase an den Korngrenzen das Wachstum der  $\alpha$ -Körper, zum anderen erniedrigt die  $\beta$ -Phase wahrscheinlich die  $\alpha$ -Korngrenzenenergie. Beide Effekte sind förderlich im Hinblick auf superplastisches Verhalten.
- Isotherme Innendruckversuche (Druckmedium: inertes Gas) an Zircaloy-4-Hüllrohren wurden im Temperaturbereich von  $800^\circ\text{C}$  und  $900^\circ\text{C}$  in Vakuum begonnen. Dabei wurden bei einer Temperatur von  $900^\circ\text{C}$ , einem Innendruck von  $35 \text{ kp/cm}^2$  und bei sehr kleinen Standzeiten, d.h. großen Verformungsgeschwindigkeiten, Umfangsdehnungen von über 80% erreicht.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Daten, die aus den Zugversuchen an Flachzugproben in Luftatmosphäre gewonnen wurden, werden zur Erstellung eines Deformationscodes für den

Bereich der "Normalplastizität" ( $400\text{ }^{\circ}\text{C} + 840\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) verwendet.

Innendruckversuche an Zircaloy-4-Hüllrohren in Vakuum werden verstärkt durchgeführt. Das Ziel ist es, apparative Möglichkeiten zur kontinuierlichen Messung der Umfangsdehnung zu schaffen.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Die oxidationskinetischen Untersuchungen der Zircaloy-4/Wasserdampf-Hochtemperatur-Reaktion wurden in angenähert isothermer Versuchsführung fortgesetzt, die in programmgesteuert temperaturtransienter Versuchsführung wurden begonnen. Diese Arbeiten wurden begleitet durch Rechnungen mit dem Zircaloy-Oxidations-Code SIMTRAN I des IRB. Daneben wurden kinetische Untersuchungen in anderen Gasen resp. Gasgemischen, wie Luft, Sauerstoff, Wasserstoff und Stickstoff, ausgeführt.

Zur Untersuchung des Einflusses von Tangentialspannungen auf die Oxidationskinetik sowie der mechanischen Effekte der Sauerstoffaufnahme wurden Kurzzeitstandversuche und Berstversuche an innendruckbeaufschlagten Rohrkapseln in äußerlich inerter und oxidierender Atmosphäre in einer neuen Versuchseinrichtung begonnen.

#### Erzielte Ergebnisse

Die in vorhergehenden angenähert isothermen Untersuchungen bei  $900\text{--}1300\text{ }^{\circ}\text{C}$  erzielten oxidationskinetischen Resultate wurden durch unabhängige Versuche bei induktiver Probenbeheizung voll bestätigt. Erste, dem Kühlmittelstörfallverlauf ähnliche Zeit-Temperaturverläufe ergaben um 25-30% niedrigere Sauerstoffaufnahmen des exponierten Rohrmaterials.

Das Gasgemisch Luft erwies sich in allen Versuchen bei  $900\text{--}1150\text{ }^{\circ}\text{C}$  aggressiver als Sauerstoff und Wasserdampf. Während in Wasserdampf totale Versprödung der Rohrwandung erst nach 15 min. bei  $1300\text{ }^{\circ}\text{C}$  eintritt, wurde

dieses in Luft bereits nach gleicher Zeit bei 1150 °C beobachtet.

Isotherme Kurz-Zeitstandversuche (zu Vergleichszwecken zuerst in Argon durchgeführt) ergaben Zeitstandskurven für 100 und 1100 °C, 20 sec - 20 min und 2-10 kp/mm<sup>2</sup>. Die gemessenen Umfangsdehnungen beliefen sich auf etwa 75-100%. Bei Berstversuchen in Wasserdampf wurde die Morphologie der Oxidationsprodukte bei schnellen und langsamen Kriechvorgängen und überlagertem Wasserdampfangriff studiert.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Weitere kinetische Untersuchungen zielen auf Oxidationsreaktionen in einem breiten Spektrum möglicher Störfallverläufe, wobei auch voroxidiertes Material eingesetzt werden soll.

Unter Innendruck belastete Rohrkapseln werden in temperaturkonstanten und temperatur-transienten Reaktionen auf ihre Oxidationskinetik und ihr mechanisches Verhalten untersucht werden.

4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffes auf die mechanischen Eigenschaften von Zircaloy-Hüllrohrmaterial  
(P. Hofmann, IMF I)

#### Durchgeführte Arbeiten

Um den Einfluß des Oxidbrennstoffs auf das Verformungs- und Bruchverhalten von Zircaloy-Hüllrohren bei Störfalltransienten zu ermitteln, wurden out-of-pile Glühversuche mit kurzen LWR-Brennstabsimulatoren, die mit Oxidbrennstoff und/oder Spaltprodukten (Cs, J.Te) gefüllt waren, zunächst bei geringen Differenzdrücken durchgeführt. Als Versuchsparameter wurden die Temperatur, das O/U-Verhältnis des Brennstoffes und die Spaltproduktkonzentration variiert.

Der Versuchsstand zur Messung der Drücke in den Rohrproben wurde fertiggestellt. Eine Druckkammer zur Beaufschlagung der Rohrproben mit einem Vorinnendruck und zum gasdichten Verschließen der Hüllrohre befindet sich in der Erprobung.

### Erzielte Ergebnisse

Die bisherigen Ergebnisse zeigen, daß es sowohl in Gegenwart von Oxidbrennstoff als auch Spaltprodukten bei geringen Differenzdrücken und Temperaturtransienten von 2 - 15 °C/sec. zu deutlich größeren plastischen Verformungen kommt als bei Argon-gefüllten Vergleichsproben. Die Zry-Rohre verhalten sich z.T. superplastisch mit Umfangsdehnungen bis etwa 110%. Die Zunahme in den Umfangsdehnungen hängen vom O/U-Verhältnis und der spezifischen Oberfläche des  $UO_2$  und von der Proben temperatur ab.

Die Spaltprodukte verursachen bei den geringen Differenzdrücken nur dann ein Bersten der Hüllrohre, wenn elementares Cäsium im Brennstabsimulator vorhanden ist, da es bei den hohen Temperaturen erheblich zum Druckaufbau beiträgt. Freies Cs tritt jedoch nur in Gegenwart von stöchiometrischem  $UO_2$  auf. In Gegenwart von überstöchiometrischem  $UO_2$  reagiert das Cs dagegen mit dem  $UO_2$  unter Bildung von Cäsiumuranat. Jod und Tellur reagieren mit dem Zircaloy, und es kommt zu einer Versprödung des Hüllmaterials gegenüber den mit spaltproduktfreiem  $UO_2$  gefüllten Rohrproben.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Systematische Untersuchungen des Einflusses des Sauerstoffpotentials des  $UO_2$  und der Spaltproduktkonzentration auf das mechanische Verhalten des Zry bei größeren Differenzdrücken. Die Experimente sollen dabei unter gleichzeitiger Temperatur- und Druckmessung durchgeführt werden. Die Verformung der Hüllrohre soll durch ein lichtoptisches Verfahren kontinuierlich gemessen werden.

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

### Durchgeführte Arbeiten

Die Erprobung des Simulationsbrennstabes mit  $Al_2O_3$ -Ringpellets wurde abgeschlossen und die Fertigung der Prototyp-Serie aufgenommen. Ebenfalls in

die Fertigung gingen die zwei verschiedenen Prototypen (mit und ohne Cosinus-Leistungsprofil) für den direkt beheizten Wärmeübergangsmessstab.

Die Rohrmontage des Hochdruckkreislaufes wurde abgeschlossen und eine erste Wasserdruckprobe des für die DWR-Betriebsbedingungen notwendigen Anlagenteils erfolgreich durchgeführt. Nach Montage der für die Heizstromversorgung der verschiedenen Versuchsstäbe, Teststreckenbeheizung und Kessel notwendigen Komponenten wurde mit der elektrischen Installation begonnen. In der Endmontage befindet sich auch die Warte zur Steuerung und Überwachung der Gesamtanlage.

Für die Massenstrommessung wurde eine Heißausführung des True-Mass-Flow-Meters konstruktiv ausgearbeitet. Die übrigen benötigten Sondermeßeinrichtungen wurden in Auftrag gegeben und teilweise schon geliefert.

Das Rechenprogramm für die Versuchsauswertung wurde in Angriff genommen und zum Teil fertiggestellt. Zur Ermittlung der Ventil-Steuerprogramme wurden Rechnungen mit einer speziellen RELAP3-Version durchgeführt.

#### Erzielte Ergebnisse

Von den mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Pellets bestückten Versuchsstäben sind zwei bereits einbaufähig. Auch die Wärmeübergangsmessstäbe stehen kurz vor der Fertigstellung. Die theoretischen Untersuchungen hinsichtlich der Verwendbarkeit von  $\text{ThO}_2$ -Pellets zeigten eindeutig, daß diese Stab-Alternative die beste Simulationsqualität aller betrachteten Varianten aufweist. Auch ein elektrischer Durchschlag, wie er beim beschichteten  $\text{UO}_2$ -Pellet auftreten kann, erscheint ausgeschlossen.

Die Pyrometereinsätze zur Ermittlung der Hüllrohroberflächentemperatur sind fertiggestellt und wurden vom Hersteller geeicht; die Auslieferung steht unmittelbar bevor. Eine zwischenzeitlich fertiggestellte spezielle Variante des Codes RELAP3 ermöglicht die thermo- und hydrodynamische Nachrechnung der Experimente unter Verwendung der gemessenen Versuchswerte. Die mit einem anderen modifizierten RELAP3 Code durchgeführten, der Ermittlung der Ventilsteuerprogramme dienenden Versuchs-Vorausrechnungen zeigen in ihren Resultaten eine gute Übereinstimmung mit Ergebnissen von Blowdown-Rechnungen für einen DWR.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Der Anlagenaufbau soll im 1. Quartal 1976 soweit komplettiert werden, daß am Quartalsende mit den Inbetriebnahmeversuchen begonnen werden kann.

Parallel dazu wird mit der Erprobung eines SIM-Stabes mit  $\text{ThO}_2$ -Ringpellets anstelle der jetzt verwendeten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Pellets begonnen. Bis Ende März 76 sollen auch die erforderlichen Rechenprogramme erstellt sein, so daß direkt mit den Vorversuchen auch deren jeweilige Auswertung erfolgen kann.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

a) Beginn der In-pile-Hauptversuche

Wie im letzten Halbjahresbericht angekündigt, konnten die Versuche mit Nuklearstäben im 2. Halbjahr 1975 beginnen. Zwei Brennstäbe wurden dabei mit Innendrücker von 50 und 100 bar (warm, He-Überdruck) beaufschlagt und im DK-Loop des FR 2 der gezielten Temperaturtransiente unterzogen. Der erste Stab platzte bei 50 bar (warm) und ca. 800 °C Hülltemperatur. Dieses Wertepaar liegt im Streuband der out-of-pile-Ergebnisse. Der zweite Stab konnte wegen eines Lecks am oberen Endstopfen nicht bis zum Bersten gefahren werden.

b) Temperaturmessung der Stabhülle

Das Konzept zur Temperaturmessung der Zircaloy-Hülle hat sich bewährt. Während der beiden Versuche ist kein Thermoelement ausgefallen. Wesentlich zu dieser guten Bilanz haben die Prüfbedingungen sowie die erfolgreiche Hülsenbefestigung der Herstellerfirma beigetragen.

c) Datenerfassung und- verarbeitung

Rechtzeitig zum Versuchsbeginn konnte der Anschluß an die CALAS-Datenverarbeitungsanlage fertiggestellt werden. Dieses System erlaubt neben einer Kontrolle und Protokollierung der Meßwerte (während der Versuche) eine spätere Auswertung vom Magnetband.

d) Vorbestrahlung der Brennstäbe im FR 2

Nach der Messung der Durchsätze und der Einlaßdrücke im BE-Prüfstand wurden die ersten zwei von sechs Vorbestrahlungseinsätzen in den FR 2 eingebracht. Alle Vorbestrahlungseinsätze werden instrumentiert mit

- Thermoelementen (Ein- und Austritt)
- Durchflußmessern (Woltmannflügel)
- Neutronenflußdichtemessern (Vanadium-Detektoren).

Der erste Vorbestrahlungseinsatz (Zielabbrand  $35000 \text{ MWd/t}_u$ ) weist zum Jahresende über  $5000 \text{ MWd/t}_u$  Abbrand auf, der zweite wurde im Dezember eingesetzt. Mit dem zweiten Einsatz befinden sich alle Brennstäbe mit dem höchsten Zielabbrand im Reaktor. Die Vorbestrahlungszeit wird über zwei Jahre dauern.

Die Thermodynamik der Vorbestrahlung wurde teilweise mit dem CARO-C3-Programm der KWU Erlangen berechnet. Aus den Rechnungen und den BE-Prüfstandswerten ging hervor, daß der Vorbestrahlungseinsatz sicherheitstechnisch wie ein FR 2-Brennelement einzustufen ist.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Anfang 1976 sollen die Vermessungen und die weiteren Nachuntersuchungen der beiden ersten Stäbe in den Heißen Zellen erfolgen.

Das Problem der Anbringung der Thermoelemente an bestrahlte Brennstabprüflinge soll 1976 vordringlich behandelt werden. Dies stellt eine der Arbeiten dar, die zur Vorbereitung der ersten Versuche mit bestrahlten Prüflingen notwendig sind.

Bei der Datenerfassung sind noch Fehler zu beheben. Unter anderem müssen Meßwertschwankungen, die durch die Störeinflüsse anderer elektrischer Geräte entstehen, beseitigt werden.

Die Vorbestrahlung wird mit weiteren Abbrandstufen fortgesetzt.

Die Versuche mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (BSS), die mit PNS 4237.2 kombiniert und dort beschrieben sind, werden fortgesetzt. Der Sicherheitsbericht für die Versuche mit vorbestrahlten Brennstabprüflingen

muß erarbeitet werden. Auch kleinere Umbauten am Versuchskreislauf werden 1976 noch erforderlich sein.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Fertigung einer ersten Serie von 5 Heizstäben für Vorversuche im DK-Loop wurde abgeschlossen. Davon wurde ein Stab mit  $Al_2O_3$ -Ringpellets in einen Versuchseinsatz eingebaut und im DK-Loop des FR 2 ca. 30 stationären und 3 transienten Versuchen unterzogen.

#### Erzielte Ergebnisse

Die Versuche verliefen im wesentlichen erfolgreich. Lediglich bei der Messung der Wandtemperaturen stellten sich Störungen ein, die sich auf die Erfassung axialer Temperaturprofile am Hüllrohr nachteilig auswirkten. Die übrigen Versuchsziele wurden erreicht. Sie lieferten Erfahrungen

- über die  $\gamma$ -Dosisleistung des bestrahlten Prüflings
- über notwendige Einstellzeiten (E-Heizung, Reaktor, Kreislauf)
- über mögliche Fehlerquellen am Prüfling, der Instrumentierung, der elektrischen sowie der meßtechnischen Anlagen einschließlich der Datenverarbeitung (CALAS);
- bei der Anwendung der Bestimmungsmethoden für die thermische bzw. elektrische Leistung,
- bei der Meßwertverarbeitung im stationären und instationären Betrieb.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im 1. Halbjahr 1976 sind weitere in-pile-Vorversuche vorgesehen, mit denen folgende Ziele angestrebt werden

- weitere Erprobung des Heizstabes, der elektrischen und meßtechnischen Anlage; Fehlerbeseitigung
- Bestimmung und Vergleich der in der Heizzone erzeugten Leistung (elektrisch, thermisch, nuklear)



- Bestimmung des  $\gamma$ -Wärmeanteiles an der thermischen Gesamtleistung.

Für diesen Zweck ist der Einsatz von drei weiteren Versuchseinsätzen geplant. Voraussetzung für diese Vorversuche ist der vorherige Einbau einer neuen, geeichten Meßblende in den Versuchskreislauf.

Die Auslegung und Erprobung des Prüflings wird weiterverfolgt, die Auswertung der in-pile-Vorversuche in Angriff genommen.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Entwicklung der Brennstabsimulatoren wurde abgeschlossen und mit der Fertigung begonnen. Die Instrumentierung der Brennstabsimulatoren mit Mantelthermoelementen wurde festgelegt. Die Thermoelemente der blähfähigen Brennstabsimulatoren werden außerhalb der aufblähenden Zone mittels einer auf die Thermoelementspitze aufgewalzten Platinhülle auf das Zircaloy-Hüllrohr aufgebracht, die Thermoelemente der Umgebungsstäbe werden in Nuten der Inconel-Hülle eingelegt und verlötet.

Der Aufbau des Prüfstandes wurde fertiggestellt. Die Montage der Meß- und Regelgeräte sowie des elektrischen Sicherheitssystems steht kurz vor dem Abschluß.

Die Röntgenanlage zur Erfassung des Aufblähvorganges der Zircaloy-Hülle wurde bei mehreren Aufblähversuchen erprobt. Die Helligkeit und Kontrastschärfe der mittels einer Filmkamera vom Röntgenbildverstärker aufgenommenen Bilder waren ausreichend, um eine Filmauswertung durch Ausmessung der Hüllrohrdehnung vorzunehmen.

Die Entwicklung des Quotientenpyrometers zur berührungslosen Messung der Hüllrohrtemperatur an der aufblähenden Stelle wurde zur Verbesserung der Genauigkeit und Absenkung der Anfangstemperatur fortgeführt. Durch eine zusätzliche Chopperung der einfallenden Strahlung und Messung der Dunkelströme wurden noch unterhalb 500 °C verwertbare Signale erzielt.

Die Meßdatenerfassungsanlage wurde nach Behebung verschiedener Mängel fertiggestellt. Zur regelmäßigen Überprüfung der Anlage wurde eine Checkliste erarbeitet und eine entsprechende Prüfvorrichtung erstellt.

Der Aufbau des rechnergesteuerten Datenübertragungssystems wurde abgeschlossen und Probeläufe durchgeführt. Die Funktionsprüfung des gesamten Meßdatenerfassungs- und Übertragungssystems unter Einbeziehung des Prozeßrechnersystems CALAS steht kurz bevor.

Ein 2-dimensionales instationäres Wärmeleitprogramm WAELP-2 zur thermischen Auslegung und Überprüfung der Brennstabsimulatoren wurde fertiggestellt. Berechnungen der Temperaturtransienten zeigten eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus ZET-2D Rechnungen. Der Vergleich von 1-dimensionalen instationären Wärmeleitrechnungen für das thermische Verhalten von Brennstab und Brennstabsimulator ergab gute Übereinstimmung. 2-dimensionale Rechnungen zeigten, daß sich die axiale Wärmeleitung bei sprunghaften axialen Änderungen der Randbedingungen lediglich in unmittelbarer Nachbarschaft dieser Sprungstelle bemerkbar macht (z.B. simulierte Beule) und daß die axialen und zeitlichen Verläufe der Hüllrohrtemperaturen von Brennstab und Brennstabsimulator auch im Bereich der simulierten Beule gute Übereinstimmung aufweisen.

Eine mit dem 1-dimensionalen Wärmeleitprogramm durchgeführte Empfindlichkeitsstudie zur Ermittlung der Einflüsse von Änderungen der Stoffwerte der Brennstabsimulator-Werkstoffe und der Geometrieabweichungen auf die Hüllrohrtemperatur wurde begonnen.

Theoretische Betrachtungen zur Beschreibung der Gasströmung im Spalt zwischen Pellet und Hülle zur aufblähenden Stelle hin zeigten, daß ein quasistationäres und quasiinkompressibles Modell verwendet werden kann, daß die Reynoldzahl bei isothermer Strömung in axialer Richtung konstant ist und ferner, daß Exzentrizitäten bei laminarer Strömung einen starken Einfluß auf den Massenstrom haben.

In ersten Versuchen wurde der Massenstrom am glatten Ringspalt und mit Ringpellets gemessen. Ein Vergleich mit den theoretischen Betrachtungen zeigte, daß beim glatten Ringspalt ausgebildete laminare Strömung entsteht, daß die Stoßstellen der Pellets die Ausbildung laminarer Strömung behindern und ferner, daß Exzentrizitäten bei turbulenter Strömung keinen Einfluß auf den Massenstrom haben.

Weitere Versuche befassen sich mit dem Übertragungsverhalten einer Kapillare einschließlich Druckmeßdose zur Ermittlung des lokalen Beulendruckes. Die aufgezeichneten Meßwerte zeigten, daß dieses Meßsystem mit einem Gesamtvolumen von  $70 \text{ mm}^3$  ein ausreichend schnelles Übertragungsverhalten hat und daß der Druckverlauf in der Beule genügend genau aus dem Meßsignal errechnet werden kann.

Erste Aufblähversuche an verkürzten indirekt beheizten Brennstabsimulatoren ergaben Werte für Dehnungsgeschwindigkeiten und Temperatur, die entsprechend den bei metallkundlichen Versuchen gewonnenen Erfahrungen im normalplastischen Bereich liegen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Als wichtige Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- Inbetriebnahme des Versuchsstandes
- Versuche zu Einzeleffekten
- Einzelstabversuche voller Länge in Dampfatosphäre
- Übernahme und Anpassung von SSYST-Moduln
- Begleitende theoretische Arbeiten zur Durchführung, Nachrechnung und Auswertung der Versuche.

- 4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanal-  
blockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühl-  
mittelverluststörfalles  
(S. Malang, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Montage des Versuchskreislaufes, der Teststrecke, der Stromversorgung, der Instrumentierung und der Datenerfassung wurde abgeschlossen.

Im Dezember wurde mit dem Probetrieb begonnen. Insgesamt 5 Heizstäbe wurden instrumentiert und ein Heizstab unter realistischen Betriebsbedingungen getestet. Hierbei zeigte es sich, daß der Stab und die Thermoelemente 40 Flutzyklen bei Ausgangstemperaturen bis zu 950 °C im wesentlichen unbeschädigt überstanden. Da sich Schwierigkeiten beim Fräsen der Thermoelement-Nuten in die Staboberfläche ergeben hatten, wurde in Zusammenarbeit mit der Industrie ein neues Fertigungsverfahren entwickelt. Hierdurch werden die Kosten wesentlich gesenkt und die Genauigkeit gesteigert. Beim Aufhämmern einer Zwischenbuchse zur Befestigung der Blockadekörper wurden die darunter liegenden Thermoelemente teilweise beschädigt. Deshalb wurde mit der Entwicklung einer anderen Befestigungsmethode begonnen.

Die zur Erfassung der Meßdaten erforderliche Software wurde spezifiziert und mit ihrer Erstellung begonnen.

Der Versuch, ein zu frühzeitiges Benetzen der Beobachtungsfenster in der Teststrecke durch elektrisches Heizen einer dünnen aufgetragenen Metallschicht zu verhindern, hatte keinen Erfolg. Die Lebensdauer der Schicht war bei den hohen Temperaturen zu kurz. Es zeigte sich jedoch, daß das Benetzungsproblem durch Aufheizen der Teststrecke auf eine hohe Ausgangstemperatur wesentlich entschärft werden kann. Die Filmaufnahmen der Nebelströmung zeigten auch bei einer Bildfrequenz von 4000 Bildern/sec eine zu grobe Bewegungsunschärfe. Um zu kürzeren Belichtungszeiten zu kommen, wurde anstelle des verwendeten Dauerlichtes eine Blitzlichteinrichtung mit einer Blitzdauer im Nano - Sekundenbereich ausgewählt und bestellt.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nach Abschluß des Einfahrbetriebes wird mit den Versuchen an der Stabreihe (5 Stäbe) ohne künstliche Blockadekörper begonnen. Daran anschließend beginnen die Untersuchungen verschiedener Blockadekörper, wobei alle Kühlkanäle gleichmäßig versperrt werden.

Zur Berechnung der Wärmeübergangszahlen aus den Meßwerten wird ein vorhandenes Rechenprogramm angepaßt.

Parallel laufen die Arbeiten zur Vorbereitung der Versuche mit einem 5 x 5 Bündel an.

Mit den Bündelversuchen soll Ende 1976 begonnen werden.

4240 Coreschmelzen von LWR

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

### Durchgeführte Arbeiten

In dem in diesen Halbjahresberichten schon früher beschriebenen Versuchsaufbau wurde im zweiten Halbjahr 1975 das Abschmelzverhalten von LWR-Brennstäben unter folgenden Bedingungen untersucht:

- 1) an Einzelstäben in Wasserdampf
- 2) an Einzelstäben mit Abstandshaltern  
in Schutzgas, Luft und Wasserdampf.

Bei der ersten Serie von Versuchen in stagnierendem Wasserdampf wurde die Oberflächentemperatur der Einzelstäbe jeweils auf  $1600\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $2000\text{ }^{\circ}\text{C}$  erhöht. Der Temperaturanstieg betrug  $0,5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ . Wegen der schon bei merklich niedrigen Temperaturen auftretenden Wechselwirkung zwischen dem Inconel des Abstandshalters und dem Zircaloy der Hülle, wurde bei der zweiten Serie von Versuchen die Endtemperatur zwischen  $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$  und  $1600\text{ }^{\circ}\text{C}$  variiert.

Der endgültige Versuchskessel, der Experimente mit längeren Stäben und die Verwendung von strömendem Dampf und Bündelexperimenten erlaubt, wurde zum Ende des Halbjahres fertiggestellt.

### Erzielte Ergebnisse

Ebenso- wie in Luft - bildet sich beim Aufheizen des Brennstabes in Wasserdampf eine oxidische Hülle. Im Gegensatz zur rauhen, pockennarbigen Schicht des in Luft erhitzten Stabes, ist die sich in Wasserdampf bildende Haut vollkommen glatt. Die Festigkeit der in Wasserdampf entstandenen Hülle scheint auch viel größer zu sein, da sie nicht - wie in Luft- bei einer Oberflächentemperatur von knapp  $1900^{\circ}\text{C}$  zur Bildung von Rissen und kleinen Löchern neigt, die das langsame Austreten der innen entstandenen Schmelzmasse von Restzircaloy und  $\text{UO}_2$  erlauben. In Wasserdampf blieb die Hülle bis  $2000^{\circ}\text{C}$  vollkommen intakt, brach dann aber in größere Stücke - vermutlich durch den Druck der entstandenen Schmelze - heftig auseinander.

Die ersten Versuche zum Einfluß der Wechselwirkung zwischen Abstandshaltern und Hüllrohr auf das Abschmelzverhalten zeigen, daß auch hier ein unterschiedliches Verhalten zwischen nichtoxidierender und oxidierender Atmosphäre vorliegt. In Schutzgas beginnt schon ab ca.  $1000^{\circ}\text{C}$  das Inconel mit dem Zircaloy an den Berührungsstellen zu reagieren und schmilzt dabei kleine Löcher in die Hülle. Mit zunehmender Temperatur werden dann immer größere Bereiche der Hülle durch die Legierungsbildung mit dem Inconel erschmolzen. Durch das abfließende Schmelzgut geht dieser Prozeß weit über den Bereich des Abstandshalters hinaus.

In Luft und Wasserdampf wurde dieser starke Angriff auf die Hülle durch das Inconel bisher nicht beobachtet. Dies ist vermutlich auf die Bildung einer Oxidschicht zurückzuführen. Es wurden aber in Luft und Wasserdampf bis jetzt auch nur Versuche bis  $1300^{\circ}\text{C}$  und max. Aufheizgeschwindigkeiten von  $0,5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ . durchgeführt.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Versuche mit Abstandshaltern an Einzelstäben werden in Schutzgas auf längere Stäbe ausgedehnt, um zu sehen, über welche Länge die herunterlaufende Schmelze des Abstandshalters die Hülle angreift.

In Luft und Wasserdampf werden die Abstandshalter-Versuche zu höheren Temperaturen und Temperaturanstiegsgeschwindigkeiten ausgedehnt.

Die Experimente an Einzelstäben in Wasserdampf werden bei weiteren Temperaturanstiegsgeschwindigkeiten wiederholt und auf strömenden Dampf und unterschiedliches Dampfangebot ausgedehnt.

Parallel zu diesen Versuchen wird an der Entwicklung eines Heizstabkonzeptes gearbeitet, bei dem auf den zentralen W-Heizer verzichtet werden kann.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Nach dem Abschluß zahlreicher Funktionstests mit der neu installierten Schmelzanlage SASCHA, wurden erste Freisetzungsversuche mit inaktivem Schmelzgut (Corium) sowie eine Reihe begleitender Untersuchungen durchgeführt, die der Klärung folgender Fragen dienen sollten:

- a) Welche Coriummengen lassen sich mit den z.Z. benutzten 40 KW-Hf-Generator schmelzen und welche Generatorleistung wird für Schmelzgut-mengen in kg-Maßstab benötigt?
- b) Wird die pyrometrische Temperaturmessung durch selektive Absorption der Dämpfe über der Schmelze beeinflusst?
- c) Läßt sich für die Absaugung der Freisetzungsprodukte aus der heißen Umgebung des Schmelztiegels eine kugelförmige Glasglocke mit einem anschließenden Rohrsystem aus Duranglas verwenden?  
Dadurch ist einerseits eine bessere Beobachtung des Versuchsablaufes möglich als bei Verwendung eines keramischen oder metallischen Rohrsystems, und andererseits ergeben sich praktische Vorteile bei der Bestimmung der abgelagerten Kondensationsprodukte.

- d) Welcher Anteil der insgesamt freigesetzten Produkte wird vor den Meßfiltern im Transportsystem abgeschieden und durch welche Maßnahmen läßt sich dieser Anteil verringern? (Die analytische Bestimmung von Filterniederschlägen ist wesentlich einfacher und genauer als von Ablagerungen im Transportsystem).
- e) Ist die Filterkapazität bei einem Filterdurchmesser von 50 mm ausreichend für die Abscheidung der bereits aus der Schmelzenmatrix (Corium ohne Spaltprodukte) freigesetzten Stoffe?

Da sämtliche Versuche zur Optimierung der Anlagenkomponenten mit inaktivem Schmelzgut durchgeführt werden, wurde die Analysetechnik für inaktive Corium- und Spaltprodukt-Gemische mit Hilfe simulierter Filterniederschläge erprobt und weiterentwickelt.

Etwa ab Mitte 1976 ist der Einsatz von schwach aktivem Fissium vorgesehen, mit dem sich Brennstoff-Abbrände beliebiger Größenordnung simulieren lassen und auch eine systematische Untersuchung des Transport- und Ablagerungsverhaltens möglich sein wird. Für die Herstellung des Fissiums wurde mit der Einrichtung einer abgeschirmten Boxenanlage begonnen, in der Brennstoffe und die Spaltprodukte ausgewogen, gemahlen, homogen vermischt, gesintert und schließlich in Zircaloy-Kapseln eingeschweißt werden können.

### Ergebnisse

- a) Bei Schmelzversuchen mit Corium-Proben von 500 g unter Luft ließen sich Temperaturen von 2300 - 2400 °C erreichen, beim Einsatz von 500 g Nickel unter Schutzgas jedoch nur 1400 °C. Offensichtlich tragen die stark exothermen Oxidationsreaktionen des Zircaloy und des Stahls wesentlich zur Temperaturerhöhung des Coriums unter Luft bei. Mit einer kleineren Nickelprobe (30 g) wurde daraufhin durch Messung der Haltezeit am Schmelzpunkt bei voller Generatorleistung die maximal in das Schmelzgut einspeisbare HF-Leistung bestimmt. Dabei ergab sich ein Wert von nur 1,2 KW trotz einer Generator-Blindleistung von 36 KVA.

Dieses Ergebnis macht deutlich, daß zum Schmelzen von kg-Massen, insbesondere unter Schutzgas, eine wesentlich gesteigerte Generatorleistung und eine effektivere HF-Einspeisung erforderlich sind.



Der bisher nur leihweise benutzte Generator wird daher durch ein Gerät mit 120 KW Nennleistung ersetzt und die HF-Zufuhr durch die Wand des Ofenkessels nach Plänen der Fa. EMA umgebaut. Die erste Serie von Freisetzungsexperimenten mit 30-60 g Corium bleibt davon unbetroffen.

- b) Eine Beeinflussung der bei der pyrometrischen Temperaturmessung benutzten Wellenlängen 500 und 580 nm durch Dämpfe über dem Schmelzgut konnten bisher weder für die Einzelkomponenten des Stahls (Fe, Cr, Ni) noch für unter Luft geschmolzenes Corium festgestellt werden.
- c) Der Einsatz einer kugelförmigen Glasglocke von 10,5 cm Durchmesser über dem Schmelztiegel zur Absaugung der Freisetzungsprodukte hat sich bisher bewährt. Auch nach Schmelzversuchen mit Temperaturen über 2700 °C wies das Glas keine Risse oder Erweichungserscheinungen auf.
- d) Mit 30 g Corium wurden 3 Freisetzungsversuche bei Drücken von 1,5 - 2,0 bar und Maximaltemperaturen > 2500 °C durchgeführt. Die bisher vorliegenden qualitativen Ergebnisse lassen erkennen, daß bei den Versuchen unter Argon und Wasserdampf die Transportverluste besonders niedrig waren (das Glas-system blieb optisch nahezu klar), während das Glas bei dem Luftversuch einen ziemlich gleichmäßigen, mit zunehmender Entfernung vom Tiegel deutlich schwächer werdenden, hellbraunen Niederschlag aufwies. Außerdem waren an einigen Stellen Schmelzgutpartikel in das Glas eingeschmolzen, die während der Oxidationsphase aus dem Tiegel herausgeschleudert worden waren. Auch die Filter wurden in diesem Versuch stärker beaufschlagt als in den beiden anderen Fällen.
- e) Die Filterkapazität erwies sich bisher als ausreichend. In den unter d) erwähnten Versuchen wurden jeweils zwei Filtersysteme beaufschlagt, das eine während der Aufheizphase ( $T \leq 2200$  °C), das zweite während der Hochtemperatur- und Abkühlphase. Der höchste durch Wägung ermittelte Filterniederschlag ergab sich für die 2. Phase des Freisetzungsversuches in Luft. Er betrug 63,3 mg, d.h. ca. 0,2% des Schmelzgutes.

#### Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Als wichtigste Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- quantitative Auswertung der bisherigen Freisetzungsversuche

- Fortsetzung der Versuche mit inaktivem Corium unter Variation der Atmosphäre, des Drucks und der Maximaltemperatur
- Einsatz eines Kondensationskernzählers zur Bestimmung der Aerosolkonzentration während der Freisetzung
- weiterer Ausbau der Boxenanlage zur Herstellung von schwach aktivem Fissium.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

##### a) Konstitutionsuntersuchungen:

Für den Schnitt  $UO_2$ -Zr-Fe des 4-Stoffsystems U-Zr-Fe-O wurden die Phasenverhältnisse bei 1000, 1500 und 2000 °C experimentell ermittelt. Darüberhinaus wurde das Schmelzverhalten innerhalb des Schnittes ( $U_{0,55} Zr_{0,45}$ )-Fe-O bei 2500 °C abgeschätzt und mit experimentellen Befunden der Reaktionsuntersuchungen im komplexen System  $UO_2$ -Zircaloy-Stahl verglichen.

##### b) Reaktionsuntersuchungen

Das Reaktions- und Schmelzverhalten von teilweise oxidiertem Corium-E (entspr.  $UO_2+ZrO_2+Stahl$ ) wurde durch Versuche unter Schutzgas im Lichtbogen- und im Induktionsofen untersucht. Für verschiedene Corium-Proben wurde der Schmelztemperaturbereich gemessen.

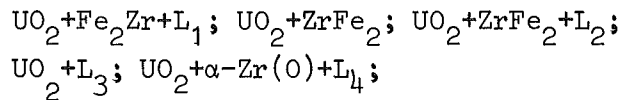
##### c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben

Es wurden phasenanalytische Untersuchungen an simulierten LWR-Brennstäben durchgeführt, die vergleichsweise in Helium und an Luft aufgeheizt wurden. Die Oberflächentemperaturen der Zry-Hülle betragen hierbei 1600, 1700 und 1800 °C für die Versuche in Helium und 1600, 1700, 1800 und 2000 °C für die Versuche in Luft.

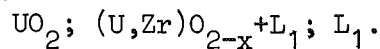
## Erzielte Ergebnisse

### a) Konstitutionsuntersuchungen:

Der Schnitt  $\text{UO}_2$ -Zr-Fe entspricht hinsichtlich seiner Phasenverhältnisse modellmäßig dem komplexen System  $\text{UO}_2$ -Zircaloy-Stahl, in welchem die Zusammensetzung einer Coreschmelze in verschiedenen definierten Entwicklungsstadien (Corium-A, Corium-E) unter inerten Bedingungen liegt. Die wichtigsten Phasenfelder dieses Schnittes sind bei  $1500^\circ\text{C}$ :



bei  $2000^\circ\text{C}$ :



Das abgeschätzte Schmelzverhalten im Schnitt  $(\text{U}_{0,55}\text{Zr}_{0,45})\text{-Fe-O}$  bei  $2500^\circ\text{C}$  stimmt gut überein mit Befunden an verschiedenen geschmolzenen Corium-Proben (Corium-A, Corium-E, Corium-A + Corium-E, teilweise bis vollständig oxidiertes Corium-E). Es existieren im wesentlichen je nach Sauerstoffgehalt der Schmelze drei Bereiche: je ein Zustandsfeld der homogenen metallischen und der homogenen oxidischen Schmelze und ein Feld, in dem beide Schmelzen entmischt vorliegen.

### b) Reaktionsuntersuchungen:

Bei vollständigem Ersatz des Zry durch  $\text{ZrO}_2$  in der Zusammensetzung von Corium-E bilden sich eine metallische Schmelze (Stahl) und eine oxidische Schmelze ( $\text{UO}_2$ - $\text{ZrO}_2$ ), bei 50%igem Ersatz bildet sich eine homogene Schmelze von metallischem Aussehen. Die Temperatur des Schmelzbeginns von Corium-E wurde mit  $1300^\circ\text{C}$ , die des vollständigen Schmelzens mit  $1900 - 2000^\circ\text{C}$  gemessen.

### c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben

Während bei den vorhandenen LWR-relevanten Aufheizbedingungen in Helium bei einer Hülloberflächentemperatur von  $1850^\circ\text{C}$  das  $\text{UO}_2$ ,

mit dem Zry reagierte und flüssige Phasen gebildet wurden, war unter oxidierenden Bedingungen (Luft) selbst bei 2000 °C, wie schon früher berichtet, eine zum größten Teil formstabile aufoxidierte Hülle vorhanden. Jedoch es kommt unter Luft durch den zum Teil aufoxidierten Wolfram-Heizstab zu niedrig schmelzenden ternären eutektischen Zusammensetzungen. Die Konstitution dieser auftretenden Phasen wurde weiter untersucht.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

- a) Konstitutionsuntersuchungen in den Schnitten  $UO_2$ - $\alpha$ -Zr(O)-Fe,  $UO_2$ -ZrO<sub>2</sub>-Fe und  $UO_2$ -ZrO<sub>2</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> des 4-Stoffsystems U-Zr-Fe-O und im Schnitt (U<sub>0,55</sub>Zr<sub>0,45</sub>)-Stahl-Sauerstoff des komplexen Systems U-Zr-Stahl-Sauerstoff.
- b) Weitere Untersuchungen an vollständig oxidiertem Corium-E und Untersuchungen zur Ermittlung der Reaktionsgeschwindigkeit der chemischen Wechselwirkung zwischen  $UO_2$  und Zircaloy bei Temperaturen oberhalb 1000 °C; Schmelzversuche unter Einbeziehung von Beton.
- c) Phasenanalytische Untersuchungen an niedergeschmolzenen simulierten LWR-Bündelstäben.

4245      Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Für die Beschreibung des Verhaltens des niedergeschmolzenen Cores ist die Kenntnis einiger Eigenschaften der Coriumschmelzen notwendig. Die Eigenschaften sind jedoch abhängig von dem Aufbau und der chemischen Zusammensetzung dieser Schmelzen. Je nach Sauerstoffpotential der umgebenden Atmosphäre können homogene oder heterogene Schmelzen auftreten, die sich sinnvollerweise in vier verschiedene Typen eingrenzen lassen.

Unter Ausschöpfung und Anwendung der vorliegenden theoretischen und experimentellen Daten wurde der Versuch unternommen, die Wärmekapazität,

Wärmeleitfähigkeit und Viskosität abzuschätzen. Die Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle zusammengefaßt.

Typ der Corium- schmelze	Schmelzpunkt (K)	spez. Wärme (cal/g K)	Viskosität (cP)	Wärmeleitfähigkeit ( $\frac{\text{cal}}{\text{cm K sec}}$ )
AX1 <u>Metall.-Phase</u>	~ 2275	0.085	5.4	
Oxid-Phase	~ 2675	0.071	5.7	
EX1	~ 2275	0.129	5.4	0.049
EX2 <u>Metall.-Phase</u>	~ 1825	0.146	5.4	0.044
Oxid-Phase	~ 2675	0.080	5.7	0.008
EX3	~ 2075	0.202	4.3	

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die weiteren Arbeiten haben zum Ziel, die theoretischen Abschätzungen durch gezielte Experimente zu ergänzen und zu verifizieren. Es ist geplant, Corium EX1 und EX3 sowie die beteiligten Phasen herzustellen und zu charakterisieren. Darüber hinaus werden Eigenschaften wie thermische Leitfähigkeit und thermische Ausdehnung als Funktion der Temperatur gemessen.

- 4300      AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN  
          BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN
- 4310      Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktions-  
          vorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Stör-  
          fällen
- 4311      Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen  
          in LWR-Containments

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Codeversion NAUA des Modells der Nachunfallatmosphäre wurde fertiggestellt. Sie enthält die Wasserdampfkondensation an Partikeln und die Aerosolabbauprozesse Koagulation, Diffusion, Sedimentation und Thermophorese. Die Teileinheit NAUCON zur Beschreibung der Kondensation wurde numerisch soweit verbessert, daß sie in das Gesamtmodell übernommen werden konnte.

Ein Konzept des Versuchsstandes wurde entworfen, die Instrumentierung wurde festgelegt. Die Konstruktion des für die Experimente notwendigen optischen Tröpfchengrößenspektrometers ist abgeschlossen.

#### Erzielte Ergebnisse

Rechnungen mit Mod 1 bestätigen in allen Fällen die Entstehung der bimodalen Größenverteilungen durch Wasserdampfkondensation an den Partikeln. Die bimodale Verteilung konnte in Vorversuchen qualitativ nachgewiesen werden. Ferner ergab sich, daß die Partikelfraktion relativ schnell durch Koagulation mit der Tröpfchenfraktion abgebaut wird. Daher wird das Langzeitverhalten der partikelförmigen Radioaktivität im Containment im wesentlichen durch den Abbau der durch Kondensation gebildeten Tröpfchen bestimmt.

Aus den Rechnungen und aus Vorversuchen ergaben sich wesentliche Einzelheiten für die Konstruktion des Versuchsstandes. Z.B. ist es notwendig, die Experimente bei den im Containment zu erwartenden Druck- und Temperaturverhältnissen durchzuführen, da der Ablauf des Kondensationsprozesses empfindlich davon abhängt. Die dadurch aufgeworfenen Schwierigkeiten bei der konventionellen Instrumentierung wurden gelöst.

Die Vorversuche zur Tröpfchengrößenmessung bestätigen die Notwendigkeit der in situ Messung. Eine Entnahme von Proben ist nicht zulässig, da das Aerosol infolge von Druck- und Temperaturschwankungen zu sehr verändert wird. Das Spektrometer wurde konstruiert und muß nur noch an den Versuchsstand angepaßt werden.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit dem Mod 1 wird eine Parameterstudie durchgeführt, die der endgültigen Spezifikation des Versuchsstandes und der Festlegung des experimentellen Programms als Grundlage dient. Nach Fertigstellung des Versuchsstandes wird mit den Experimenten zur Verbesserung des Mod 1 begonnen.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Es wurden 3 Ausbreitungsversuche mit chemischen Tracern durchgeführt. Die Tracer wurden in 60 m und 100 m Höhe emittiert; bei einem Versuch wurden sie gleichzeitig in beiden Höhen abgegeben. Die automatische Probenahmetechnik konnte durch den Einsatz von jeweils 2 automatischen Stationen erfolgreich getestet werden.

#### Erzielte Ergebnisse

Die Auswertung der Ausbreitungsversuche unterstützte die bereits bei früheren Versuchen gewonnenen Ergebnisse und verbreitert deren notwendige statistisch gesicherte Basis. Das Auswertungsverfahren wurde auch auf einen französischen Ausbreitungsversuch mit großer Reichweite im Rhonetal angewendet.

Die Untersuchung der zeitlichen Entwicklung der Ausbreitungsbedingungen wurde zu einem "Prognosemodell Karlsruhe" ausgebaut: abhängig von Tageszeit, herrschender Stabilitätsklasse und geschätzter Emissionsdauer wird das Feld angegeben, in welchem die maximalen Schadstoffkonzentrationen in Bodennähe zu erwarten sind.

Die Analyse der Rasmussen-Studie wurde mit einer Kontrollberechnung abgeschlossen. Diese ergab wichtige Aufschlüsse über die Beiträge der einzelnen Belastungspfade (Inhalation, Bestrahlung durch abgelagerte Aktivität und aus der vorbeiziehenden Wolke) zur Gesamtstrahlendosis sowie über Details der Modellvorstellungen, welche der Rasmussen-Studie zugrunde liegen.

Die Untersuchung der Meßdaten von Wind- und Vektorfahnen wurde fortgesetzt und führte zu einem Vorschlag der Modifizierung der  $C_y$ -Werte im Bereich der stabilen Ausbreitungsklassen E und F.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf

Die Ausbreitungsversuche werden fortgeführt, wobei im Jahre 1976 der Übergang zu automatischen Sammelstationen vollzogen werden soll. Damit wird die Möglichkeit geschaffen, Ausbreitungsversuche auch nachts bei stabiler Luftschichtung sowie am Tag bei größerer Emissionshöhe durchzuführen.

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

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

#### 1. Entwicklung einer Dekontaminationspaste

##### Durchgeführte Arbeiten

Durch Mischen von Titandioxid- Kunststoffpulver-Kombinationen bzw. von flusssäurebeständigen, hochdispersen Materialien mit oberflächenspannungsreduzierenden Säuregemischen ( $\text{HF}$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{HCl}$ ) wurden Pasten angesetzt und deren Dekontaminationswirkung an Edelstahlproben (Nr. 1.4541) geprüft, die im Autoklaven kontaminiert worden waren (500 h,  $300^\circ\text{C}$ , 88 atü).



Versuche zur Verbesserung der Konsistenz, der Verträglichkeit mit den derzeit angewandten Verfestigungsmethoden für radioaktiven Abfall und der Dekontaminationswirkung von salzsäurefreien und salzsäurehaltigen Pasten wurden fortgesetzt.

### Erzielte Ergebnisse

Bei Flußsäure- Salpetersäure- Titandioxid- Kunststoffpulver-Pasten konnte auch durch weitere Zusätze wie Phosphor oder/ und Schwefelsäure die Dekontaminationswirkung nur unwesentlich erhöht werden. Restaktivitäten von  $= 0,1\%$  wurden nur durch Zusätze von  $4,5 \text{ Gew.}\%$  Salzsäure erreicht. Die Homogenität dieser Pasten konnte nicht verbessert werden; besonders ungünstig wirkte sich die niedrige Dichte des Kunststoffpulvers beim Abspülen der Pastenreste nach der Dekontamination aus.

Diese Nachteile konnte durch Verwendung von flußsäurebeständigen, dispersen, thermisch stabilen Materialien anstelle von Titandioxid und Kunststoffpulver vermieden werden. Die Dekontaminationswirkung dieser salzsäurefreien Pasten wurde soweit verbessert, daß sie mit den salzsäurehaltigen Industriepasten vergleichbar sind. Restaktivitäten von  $0,1\%$  wurden jetzt schon mit Salzsäureanteilen um  $2\%$  erhalten.

### Ausblick auf den geplanten Fortgang

Mit Oberflächenuntersuchungen an pastenbehandelten austenitischen Edelstählen und Dekontaminationsversuchen an Werkstücken, die im Reaktorbereich kontaminiert wurden, wird die Entwicklung der bereits lizenzierten Paste abgeschlossen. Die weiteren Arbeiten zielen auf die Entwicklung einer optimalen Auftragstechnik mit den entsprechenden Geräten hin.

## 2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschnmelzen

### Durchgeführte Arbeiten

Mit der im 1. Halbjahresbericht 1975 beschriebenen Flammsspritzenanlagen wurden Dekontaminationsversuche mit Kaliumdihydrogenphosphat an geschweißten und ungeschweißten, im Autoklaven kontaminierten Edelstahlproben (W-St. 1.451) durchgeführt. Dabei mußten zunächst die optimalen Arbeitsbedingungen geklärt

werden. Nach Durchführung der Versuche mit der Flammsspritzeanlage wurde die Apparatur modifiziert. Statt der Flamme als Wärmequelle kam ein Heißluftstrahl zur Anwendung. Mit dieser Anordnung sind ebenfalls Dekontaminationsversuche durchgeführt worden. Mit Experimenten an Proben, die aus Reaktorkomponenten stammen, wurde begonnen.

### Erzielte Ergebnisse

Zunächst konnten mit der Flammsspritzeanlage keine befriedigenden Dekontaminationsergebnisse erhalten werden (Restaktivitäten ca. 50%). Daher war es notwendig, die Pulverzusammensetzung zu ändern und Erfahrungen mit der Handhabung der Flamme zu sammeln. Nunmehr wurden nach einer 10- bis 15-minütigen Behandlung Restaktivitäten < 7% erreicht. Da mit der Flamme die Werkstücktemperatur schlecht einzustellen ist, kam stattdessen ein Heißluftstrahl als Wärmequelle zur Anwendung. Auch hiermit konnten nach der entsprechenden Einwirkzeit Restaktivitäten < 7% erzielt werden. Bei diesen Versuchsanordnungen wird das aufgesprühte Salz ständig durch den Trägergasstrahl von der zu dekontaminierenden Fläche weggeblasen. Daher wurde bei einigen Versuchen das Werkstück von der Rückseite erwärmt. Hierbei ergaben sich Restaktivitäten von ca. 10%. An Proben, die von Komponenten aus dem Kernkraftwerk Obrigheim stammen, wurden erst nach ca. sechsmal längerer Behandlungszeit Restaktivitäten < 10% für  $^{60}\text{Co}$  erhalten.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit der geplanten Dekontamination von Proben aus dem Kernkraftwerk Lingen sind die Laborversuche mit den Salzschnmelzen weitgehend abgeschlossen. Die Experimente haben gezeigt, daß dieses Verfahren zur Dekontamination geeignet ist. Es wird nunmehr mit den gewonnenen Erfahrungen begonnen, eine Anlage für den technischen Einsatz zu entwickeln.

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

### Durchgeführte Arbeiten

Anhand einer Serie von grundlegenden Arbeiten über sämtliche Formen der Wechselwirkung (physikalische, chemische, biologische und deren Kombination) zwischen Transuranen und Einzelbereichen der Umwelt wurde eine Übersicht über die geowissenschaftlichen Aspekte des Problems verschafft. Es wurde vornehmlich auf folgende Gebiete Bezug genommen:

Plutonium-Quellen Einfluß der Umweltbedingungen, Transportmechanismen in der Natur, Plutonium-Umwelt - Reservoirs.

### Erzielte Ergebnisse

Eine Auswertung aus der Sicht der geowissenschaftlichen Aspekte dieser Problematik ergibt als besonders wichtige Erkenntnis, daß

- Plutonium im Boden die längste mittlere Aufenthaltsdauer hat;
- den potentiellen Wanderungsmechanismen in humiden Klimabereichen eine erstrangige Bedeutung bei Endlagerung der  $\alpha$ -Abfälle zukommen muß, (Fall Maxey Flats);
- die konventionell verwendeten Beziehungen auch bei Abschätzung des Plutonium-Transfers in terrestrischen Ökosystemen anwendbar sind.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

In diesem Zusammenhang muß die Frage

- der Anwendbarkeit von Tracer-Studien auf reelle Situationen;
  - des Einflusses der Bodenchemie auf die Mobilisierung der Transurane;
  - des Verhaltens von extrem niedrigen Plutonium-Konzentrationen in natürlichen Wässern
- noch geklärt werden.

Solange keine wissenschaftlich präzise Antworten auf diese und ähnliche Fragen vorliegen, ist nur ein effektiver box-modelartiger (und kein wissenschaftlich-analytischer) Zutritt bei Abschätzung der Wanderung möglich.

4420 Technik der Räum- und Demontgearbeiten

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Mit der Vorplanung des mittelaktiven Teiles einer Anlage zur Dekontamination und endlagerfähigen Aufbereitung aktiver, schwerer Reaktor-Komponenten (Konditionierungsanlage) wurde begonnen.

Es wurden wesentliche Teilgebiete untersucht:

- Prinzipieller Aufbau der Anlage und Gestaltung der Zellen für die verschiedenen Aufgaben
- Kontaminationsfreies Einschleusen einer Reaktor-Komponente
- Trenn- und Zerlege-Methoden für verschiedene Werkstoffe und Werkstoff-Kombinationen sowie Wanddicken und Komponenten-Abmessungen
- Verpacken und Fixieren der Abfälle sowie kontaminationsfreies Ausschleusen
- Fernbedientes Transportieren bzw. Handhaben der Reaktor-Komponente, der Werkzeuge, Abfall-Teile und - Behälter in der Anlage
- Sichtverhältnisse für fernbediente Operationen
- Wartung der maschinellen Ausrüstung in der Zerlege-Zelle
- Bauweisen für eine zum großen Teil wieder demontierbare Anlage aus Beton-Bausteinen und -Fertigteilen.

#### Erzielte Ergebnisse

Es wurden Entwürfe für den mittelaktiven Teil einer Konditionierungsanlage erarbeitet, und zwar für eine zentrale Anlage, je eine in unmittelbarer Nähe z.B. eines Kernkraftwerkes aufzubauende Anlage mit vertikaler und horizontaler Beschickung sowie eine Behelfslösung.

Für die Zerlegung von Großkomponenten sind in Anbetracht der Schnittlängen und teilweise sehr großen Materialdicken auch wirtschaftlich gesehen thermische Schneidverfahren am besten geeignet. Je nach Werkstoff oder Werkstoff-Paarung kommen autogenes Brennschneiden oder Plasma-Schmelzschnneiden oder auch beide kombiniert in Betracht.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Für eine in unmittelbarer Nähe des Kernkraftwerkes aufzustellende Konditionierungsanlage soll der Teil zur Behandlung schwachaktiver Komponenten und die gesamte Anlage unter Einschluß der Hilfseinrichtung entworfen sowie das Problem bei der Überführung einer Großkomponente vom Reaktorgebäude in die Konditionierungsanlage geklärt werden. Verschiedene Anlagen-Konzepte sind auch im Hinblick auf die Sicherheit und Dosisbelastung des Personals zu untersuchen. Aufgrund der Ergebnisse aus parallel laufenden Studien anderer Stellen (z.B. über Transport, Aktivitäten, Materialmengen) sind die Entwürfe ggf. zu modifizieren.

Unterwasser-Brennschneidverfahren sollen eingehend auf ihre Eignung, Leistungsfähigkeit und-grenzen sowie erforderliche Weiterentwicklung untersucht werden.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Optimierungsarbeiten am Fahrgestell des leichten Manipulator-Fahrzeuges "MF3" wurden abgeschlossen.

Die Einsatzmöglichkeiten des "MF3" wurden eingehend untersucht und in einem internen Bericht niedergelegt.

Der für Versuchseinsätze ergänzte Manipulator "EMSM I" wurde eingehenden Erprobungen unterzogen. Aufgrund der gemachten Erfahrungen wurden die

Belastbarkeit und die Kühlung verbessert sowie die Elastizität des Systems verringert. Es wurde über den "EMSM I" und seine Ergänzungen berichtet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf

Das Vorhaben "EMSM II" und Einsatzsteuerung wird dem zuständigen Sachverständigenkreis wieder vorgelegt, wenn die Zuständigkeitsfragen bezüglich des Kerntechnischen Hilfszug geklärt sind.

## S U M M A R I E S

SUMMARIES

4100 ENVIRONMENTAL IMPACT BY NUCLEAR POWER AND REPROCESSING PLANTS

4110 Fission Product Iodine Removal in Nuclear Power Plants and Reprocessing Plants

(H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer, A. Weinert, J.G. Wilhelm, LAF II; - K. Jannakos, RBT/IT)

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

Work Completed and Essential Results

Examination of prototype post-accident recirculation filters was continued. First tests were made under pressure with a scaled down iodine sorption unit. After more than 10 days of use at about 160 °C, 4 atm. and 72% of gas humidity removal efficiencies > 99% were achieved for 0,2 sec residence time for methyl iodide labeled by radioactivity.

As an alternative to AC 6120 also molecular sieves were investigated for their behaviour under MCA conditions. The results are comparable, the tests have not yet been terminated. Theoretical dose values have been assessed for irradiation tests.

Plans for the Near Future

The tests performed under MCA conditions will be continued with higher pressures, gas humidities and temperatures. First tests will be made with other components.

The material tests will be continued at the sorption unit and completed within the next reporting period except for the irradiation investigations. The aerosol measurement technique was improved, an aerosol generator was ordered for use under simulated MCA conditions. Measurement of aerosol filters under MCA conditions in a test rig will be started after installation of the generator.



4112 Development of Off-Gas Filters for Reprocessing Plants

### Work Completed

The test of the highly impregnated iodine sorption material AC 6120 was continued in the laboratory under simulated conditions of a 1500 t/a uranium reprocessing plant. The influence of NO in nitrogen as the carrier gas on the removal efficiency of the sorption material has been especially examined.

Several experiments on the removal efficiency of iodine sorption by the material AC 6120 were carried out in the original off-gas of the French processing plant SAP Marcoule while the filter system was installed on the one side directly behind the dissolver and on the other side behind the iodine desorption column.

The first iodine filter developed at the LAF II was installed in the off-gas line of the dissolver in the Karlsruhe reprocessing plant.

The filter system for the dissolver off-gas handling test rig of the IHCh was specified and ordered with an engineering firm.

The conception of the prototype off-gas filter system was selected and a lock and transport system allowing to replace filters was designed and subjected for testing.

Five alternative solutions were set up in order to find the appropriate filter concept. The method of selection based on the evaluation of performance criteria. According to the selected solution a filter drum was designed and constructed. The lock of the filter system has been designed and realized. Preliminary tests have been made.

### Essential Results

The influence of NO in N<sub>2</sub> as the carrier gas will be harmful if there is no oxygen or NO<sub>2</sub> present to reoxidize the reduced Ag NO<sub>3</sub> impregnation.

The experiments in the real dissolver off-gas showed the high removal

efficiency and the high capacity of the iodine sorption material. The removal efficiencies of this material installed directly behind the dissolver as well as in the off-gas behind the adsorption-desorption column were greater than 99,9%. In both cases the material had a high loading capacity. The filter installed in the dissolver off-gas line of the Karlsruhe reprocessing plant is loaded with the total iodine released from the dissolver solution. The removal efficiency after an operational period of now 2,5 months is still > 99,99% (residence time: 0,4 s).

With respect to the prototype filter system first tests covering the filter drum and the lock system have yielded satisfactory results. They related to the tightness and loading of the filter drum and to the performance of the double cover of the lock.

#### Plans for the Near Future

After startup of the test rig is scheduled to test the iodine filter, the filter drum and other components of the off-gas filter system.

4114 Exhaust Air Filtering at Reactors  
Aging and Poisoning of Iodine Sorption Materials

#### Work Completed and Essential Results

The measurements with upstream activated filter charcoals in a nuclear power station shows that the solvent components xylene and toluene occurring in large quantities under the usual conditions of shutoff room exhaust air filtering cannot be retained sufficiently long. The high-boiling components of the petroleum-gasoline fraction, which also occur in the exhaust air and substantially contribute to iodine sorption filter loading by pollutants, were retained over a period of several months by relatively low-depth upstream filter beds.

The first laboratory studies for determination of the penetration times were carried out with n-pentane. One type of activated charcoal impregnated for radioiodine removal yielded a dynamic adsorption coefficient which is comparable with the values of activated charcoals for solvent retention.

Plans for the Near Future

The laboratory tests for determination of the penetration times are carried on with other identified filter pollutants. Multi-layer filters are being tested in the nuclear power station.

Development of Discriminating Iodine Collectors

Work Completed and Essential Results

The development of discriminating iodine collectors was carried on. AC 6111-KI which is intended to be used as a specific sorption material for elemental iodine caused but negligible removal of carrier-free  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  within the entire range of parameters which is of significance for the examination of the exhaust and vent air from nuclear power stations. On account of the unavoidable formation of iodine compounds, the removal tests performed at AC 6111-KI with carrier-free  $^{131}\text{I}_2$  produced unsatisfactory results.

Plans for the Near Future

Continuation and termination of the tests involving elemental iodine; beginning of measurement in the exhaust air of nuclear power stations.

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

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

Work completed

In several test runs the oxygen content of the pressurized water was lowered by means of thermal degassing, flushing with noble gas, and addition of hydrazine.

The measures described above brought about a reduction by one power of ten of the deionate oxygen content by one power of ten.

### Essential Results

In the process of lowering the oxygen content the metal content in the pressurized water was reduced by 33% of iron after 500 hours at 342 °C and 150 bar. The metal content of nickel decreased by 40% while the chromium content could not be well defined due to the very low initial values which were within the range of the detection limit of the atomic absorption spectroscopy.

The surface layers formed on the INCOLOY samples after 500 h under operating conditions exhibited oxide, hydroxide and hydride fractions of the main components of the alloy. As compared to the fractions of the other main alloy components, there is a noticeable enrichment in the chromium content in the surface layer so that such surface can be assumed to behave chemically as a protective layer.

### Plans for the Near Future

The investigations of the metal loss to pressurized water are supplemented by variation of the pH-value of the pressurized water. Also, the solid content in the pressurized water will be especially analyzed.

To speed up the program, a second autoclave system is presently integrated.

4130 Long-Term Radiological Burden of the Environment

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

### Work Completed

Sampling and monthly analysis of various samples of effluent waters from WAK and the Karlsruhe Nuclear Research Center were continued during the second half of 1975. The  $^{129}\text{I}$  activity in the exhaust air of the Karlsruhe Reprocessing Plant was measured in samples taken once a week. The  $^{129}\text{I}$  content in medium-level effluent water, scrubbing solutions and feed solutions of WAK has been determined right from the restart of WAK operation in November 1975.

The  $^{129}\text{I}$  concentrations in milk from Friedrichstal and Linkenheim have been examined in one to three samples per week. Besides, some thyroid samples have been analyzed for  $^{129}\text{I}$ .

### Essential Results

For lack of time it has not yet been possible to measure the  $^{129}\text{I}$  concentration in low-level effluent water from WAK. Their distillation products contain  $^{129}\text{I}$  concentrations of about 10 pCi/l. After clarification and mixing with other waters and prior to discharge into an old branch of the river Rhine these effluent water contain approximately 1 pCi/l.  $^{129}\text{I}$  emissions with the exhaust air gradually decreased during the WAK shutdown period. After installation of a filter in the WAK exhaust air flow the  $^{129}\text{I}$  emission decreased to some  $\mu\text{Ci}$  per dissolution during the first dissolving processes performed in November. The  $^{129}\text{I}$  concentrations in the milk of cows and goats ranged from 0,2 to 7 pCi/l while the measured  $^{129}\text{I}$  concentrations in the thyroids of rabbits were inferior to 10 pCi/thyroid.

### Plans for the Near Future

Measurement is carried on of  $^{129}\text{I}$  in the effluent air, effluent water, milk and thyroids. Since the  $^{129}\text{I}$  emissions of WAK have been substantially reduced by the installation of the filter, the present contamination of the environment is determined by collection of a great number of soil and plant samples. It is planned to start the measurement of  $^{127}\text{I}$  in the environment of WAK by the end of 1976.

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

### Work Completed and Essential Results

After the incorporation of several additional atmospheric and hydrospheric transport effects the part of the computer program incorporating these effects is now nearly completed. The relevant input data like site characteristics, release rates, deposition velocities, etc. have been updated on

the basis of recent reports and personal communications. Partial results of a few exposure pathways have already been obtained.

#### Plans for the Near Future

After the improvement of several subroutines concerning mainly the terrestrial transport and the uptake in plants the first reference results are expected in the near future. Sensitivity studies will be started in order to estimate the accuracy of the results.

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

#### Work Completed

The low temperature rectification pilot plants has been laid out and constructed, a safety analysis for the operation of the plant has been carried out and plans for the simulation of the heating effect of Kr-85 have been considered. The molecular sieve adsorption pilot plant has been ordered.

The laboratory scale adsorption test apparatus has been installed. 11 commercial catalysts for the reduction step have been tested in the laboratory. One catalyst (0,3% Ru on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-carrier) has been selected for further tests. Criteria were maximum NO-reduction and minimum NH<sub>3</sub> production. A series of poisoning tests on this catalyst has been carried out.

#### Essential results

All 11 noble metal catalysts studied reduce NO and O<sub>2</sub> with H<sub>2</sub> somewhat in excess of the stöchiometric amount down to values < 1 ppm at temperatur  $\geq$  400 °C. However, the more active of them (mainly those on a Pd or Pt basis) also accelerate the formation of NH<sub>3</sub> from the carrier gas N<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>. Excessive NH<sub>3</sub>-yields are obtained there. Thus, a Ru-catalyst with medium specific surface area ( $\sim$ 100 m<sup>2</sup>/g) has been selected where NH<sub>3</sub>-formation

is < 20 ppm at 500 °C. Samples of this catalyst poisoned with varying amounts of tributylphosphate (TBP) showed some increase of the temperature of beginning reaction and some increase of the NH<sub>3</sub>-formation, but no decrease of the NO-reduction at 400 - 500 °C.

#### Plans for the Near Future

The low temperature rectification plant will be installed during summer of 1976. The test programm will start soon afterwards. The molecular sieve pilot plants will be installed at the beginning of 1977.

Laboratory tests on the adsorption properties of molecular sieves toward rare gases and trace impurities in the presence of large amounts of H<sub>2</sub>O will start early in 1976. Laboratory studies on the catalytic poisoning and reaction kinetics of the O<sub>2</sub>-NO<sub>x</sub>-reduction with H<sub>2</sub> will continue. The pilot plant will be specified and ordered late in 1976.

4150 Waste Heat Problems Associated with Nuclear Facilities

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

(G. Hoffmann, H. Sauter, W. Schikarski, LAF I)

#### Work Completed

For the digital data gathering system an extensive fault analysis was necessary in order to work out a number of effective steps to raise the level of reliability sufficiently for continuous data recording. In close cooperation with the manufacturer several improvements in the circuitry of camac modules have been installed as well as a more efficient software control of the function of these noduls. In addition, by means of system engineering, some typical breakdown points could be eliminated.

The analogous data recording system, initially installed for countercheck purposes, was extended in order to build a back-up solution in case of computer fail. The reliability of the data gathering system is now satisfactory. The work being done is to minimize the failure times and the maintenance intervals. 80% of the measurements have been registrated during 70% of the time since November 1975. The data transfer to the

central computer is handled using cassetts.

### Planing for the Near Future

Since failures inhibiting the registration of all data happen only once in about three days, an automatic system will be added for restart in case of such a failure. The necessary service for the sensors is to be performed as well as selection and interpretation of the data material. The nuclear power reactor being built 5 km upstream the measurement site is expected to work not earlier than the beginning of 1977. So it will be possible to gain data without waste heat influence for the first year in agreement with the original planning.

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

### Work Completed

The already available three dimensional model has been extended, so that the vortex-pair structure of the cooling tower plumes can be simulated too.

The mathematical basis of the new computer program is described in /1/.

### Essential Results

Test calculations by the extended computer program based on different ambient meteorological conditions were performed. The results are presented in /1/ too. The comparison between these calculations and the measurement /2/ which can be made only qualitatively for the time being gives a good agreement as to the profile and structure of temperature, humidity and vertical velocity distribution in the plume.

### Plans for the Near Future

It is intended to adapt to the real situation the program paramerters by test calculations based on the conditions during the measurements and by comparison with the respective measured data. For this adaptation of the computer program the detailed data are supposed to be available in 1976.



/1/ K. Nester;

Simulation der Wirbelstruktur der Abluftströmung aus Kühltürmen mit  
einem Rechenprogramm (WALKÜRE)

KFK-Bericht Nr. 2249, 1976

/2/ H. Fortak;

Meßprogramm an Kühltürmen, III. Teil

JÜL-1250, 1975

4200 SYSTEM BEHAVIOR OF NUCLEAR FACILITIES DURING INCIDENTS

4210 Dynamic Load of Components and Systems

4211 Dynamic Load of LWR Pressure Suppression Systems

Work completed

In the containment experiments performed in the Marviken Nuclear Power Station in 1972 and 1973 higher pressure oscillations were observed to occur in the pressure suppression system, above all in tests Nos. 10 and 13, which seemed to indicate possible system resonances. To explore these problems, the natural frequencies of the Marviken plant were calculated. A model was used for the calculations, which takes into account coupling of the three most important single systems, namely blowdown channel, header and vent pipe. The results are strongly dependent on the velocity of sound which in turn is determined mainly by the steam moisture.

For realistic values of the velocity of sound the first three natural frequencies calculated by this model come close to the measured values to be derived from the test data. Since also the exciting frequency from the water pool, which is caused by condensation, lies within the range of the first and second natural frequencies, conditions could actually have been passed during blowdown under which the steam and water volume fraction, respectively, in the drywell has generated such a sound velocity and hence natural frequency close to the frequency range of excitation that resonance took place. This would explain the greater pressure amplitudes observed.

The development work in the laboratory scale of the infrared measurement technique was terminated and an offer submitted to the Marviken II Project. After the order for one measuring position had been received, the measuring equipment was conceived, designed and manufactured. The supporting frames and the supply lines were installed in Marviken while the optical source and receiver components as well as the electric and electronic supply units were preassembled and tested in the workshop. This development work was carried out together with Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) of Karlsruhe University.

As a supplement to the tests with the pressure relief nozzles performed in the Brunsbüttel Nuclear Power Station in October 1975 further tests were made in June 1975 with a vent pipe of 600 mm  $\phi$ . The measured values recorded by IRE in the two test series were evaluated. In all tests standing pressure waves having low amplitudes were generated in the annular water pool in addition to the local events taking place.

A transient calculation was performed in the studies of the dynamic behavior of the containment structure. For this purpose, a pressure field in terms of time and space was interpolated from one of the first Brunsbüttel test series applied as a load to the model of calculation. The displacement with respect to time of interesting points of the containment was determined. The actual displacements were assayed by double integration of the measured accelerations and thus comparable with the calculated results. The agreement is not yet satisfactory.

Within a new series of condensation tests involving single and multi-pipe arrangements and carried out by KWU in Karlstein (previously Großwelzheim) measurements were performed in a total of 11 tests. These measurements related to the pressure development with respect to time at 15 points of measurement arranged on three coordinates at right angles to each other. The origin of the coordinates was the expected bubble center. The evaluation first preferably concerned the tests having a mass flow density of  $16 \text{ kg/m}^2 \text{ sec}$  since this value had been used to investigate all the configurations (pipe diameter, number of pipes).

Moreover, first parameter calculations were started within the period of reporting, using a computer program which describes the thermohydraulic events of the condensation process. In the program vent pipes operating in parallel are treated and significant coupling mechanisms on the steam and water sides are taken into account.

### Essential Results

The computations are well as the observations made during the Marviken I tests support the assumption that events resembling resonances might taken place in pressure suppression systems under specific conditions of geometry and operation, which might lead to pressure pulsation amplification.

According to the results of laboratory tests use of the infrared absorption measurement technique is promissory for determination of the moisture content of a two-phase flow in blowdown tests and for determination of the velocity of the liquid phase.

In toroidal water pools of pressure suppression systems standing pressure waves having low amplitudes are generated in addition to the local events caused by the individual vent pipes.

The high pressure peaks generated during condensation of air-free steam and superimposed to the usual pressure pulsations with smaller amplitudes have a very short base width of about 0,15 msec. Therefore, their significance with respect to current structural components is generally low.

#### Plans for the Near Future

Final assembly work, commissioning and use in future tests of the infrared measurement equipment delivered to Marviken.

The calculations will be continued relative to the dynamic behavior of the containment structure. Analysis of further test results is to yield the reasons of the as yet unsatisfactory agreement between the calculated and experimental displacements so that an improvement of the calculation model can possibly be achieved.

The parameter calculations concerning the condensation at one and several parallel pipes are being continued, partly by use of improved programs.

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

#### Work completed

One and two phase velocity measurements were performed at the water-air test section while the air content was varied from 0 to 50 vol.%.

Investigations into the causes of instabilities occurring in the measurement electronics are carried on. Besides, we succeeded in developing a new frequency voltage converter. A program of evaluation was tested by use of the correlation analysis. In addition, two different computer programs have been established; one of them determines the delay from the time interval between the central points of pulse rate peaks and the other from the spacing of reversing points at the leading and trailing edges of the peak. Preparation of the MARVIKEN II experiments started in September and will be completed at the end of January 1976.

### Essential Results

The one and two phase velocity measurements performed at the water-air test section agree well with the control measurements and computations via the mass balance and have yielded the following essential results in addition:

1. The starting sections can be reduced meanwhile to 0,1 m and the measurement sections to 0,25 m. This extends decisively the application of the method for short tubes (e.g. rupture connection of the superheated steam reactor).
2. First two phase velocity measurements at the water-air system have been successful in the range from  $v = 12.5$  up to 25 m/sec and with an air content of 0 to 50 vol.%. They yielded a slip factor  $S = 1$ .

Selection of a specific photomultiplier and improvement of the amplifier and discriminator allow to reduce peak shifting from  $\pm 15\%$  to  $\pm 3\%$  with a variation of the counting rate from 1 to 100 kHz, which means a significant improvement of the measurement electronics. Another progress in measurement technology was achieved with the development of a new frequency voltage converter allowing to increase by a factor of four the time resolution and the sensitivity.

Evaluation of test results using the time series analyzer has already yielded good results.

### Plans for the Near Future

Preparations for the MARVIKEN II tests will be terminated at the end of January 1976 by installation at the blowdown channel of a gas velocity measurement system and by a two phase velocity measurement system placed at the rupture connection of the MARVIKEN reactor. Eight blowdowns are scheduled for the period from February until October 1976. This external project is paralleled by the tests performed at the water-air test section and at the "joint test rig for testing and calibrating of different methods of two-phase mass flow measurement" (RS145/PNS 4215) of IRB as well as by preparation of the blowdown tests in the superheated steam reactor, which will start in 1977.

4215      Joint Test Rig for Testing and Calibrating of Different  
            Methods of Two-Phase Mass Flow Measurement  
            (J. Reimann, H. John, E. Wanner, IRB)

### Work Completed and Essential Results

The accuracy of the different measuring methods will be dependant on the flow regime. Therefore, it is necessary to have a method to identify the flow pattern. Two methods will be used:

- an optical technique (sapphire windows and high speed photography)
- an impedance probe

The test rig is designed for the generation of a steady-state steam-water-flow with a quality between 1 and 0 and a maximum pressure of 160 ata. Depending on the quality, the mass flow will reach a maximum level of 10 to 20 t/h. The test section has a total length of 8 m and consists of exchangeable tube sections. The tube diameters are 20,50 and 80 mm.

The most components like valves, pipes, fittings and the components of the control and measuring-system are delivered. The mounting of the control and measuring-system has been started, the mounting of the pipes has been nearly finished. To develop the electronic equipment

for the impedance probe and to compare the two methods of flow regime identification a water-air loop had been built up. Experiments have shown that the signal of the impedance probe is excellent suited also in flow regimes in which the visualization technique gives results which are difficult to interpret.

#### Plans for the Near Future

After the completion of the loop some time will be necessary for the setting in operation. The begin of the experiments is expected to be in April 1976.

Conceptional work is started to extend the test-facility for unsteady-state conditions.

- 4220      Dynamic Load of Pressure Vesel Internals in LWR Loss-of-Coolant Accidents
- 4221      Planning, Precalculation and Interpretation of the HDR-Blow-down Tests for Dynamic Loading of LWR Pressure Vesel Internals (R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

#### Introduction

Main activity was a detailed definition of the research goals of the HDR blowdown tests. On this basis of present day's knowledge it was concluded that the main research goal should be the verification of coupled fluid structure codes which are suited for the calculation of maximum stresses and strains in a core barrel of a PWR under blow-down conditions.

#### Work Completed

The design of the core barrel has to provide for welldefined (i.e. computable) test conditions and ensure tightness between reactor vessel and vessel head. A number of detailed stress and strain calculations was necessary.

Core barrel wall thickness. The dominant criterion was to take full advantage of the elastic deformation potential of the material in the most severe blowdown. Transient finite element calculations using shell elements for the core barrel and its flanges had to be carried out to this respect.

Temperature distribution at onset of blowdown. It is important to establish a welldefined (reproducible and predictable) temperature distribution in the water prior to the actual test. It was found that the previously planned heating loop would produce unacceptably unstable natural convection. Hence, a new design concept for the loop was developed.

#### Essential Results

- The design of an almost rigid core barrel clamping mechanism was completed.

A wall thickness of 23 mm was found to be sufficient for the core barrel. In fact, it will be necessary to find ways to increase the loading due to blowdown in order to utilize the elastic material strength in its full extent.

- A new heating loop concept which provides for a stable temperature distribution was established.

#### Plans for the Near Future

Precalculations for the HDR-blowdown experiments will be done by appropriate computer programs such as YAQUI, STRUDL/DYNAL and other codes which are going to be developed for project PNS 4223.



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

Work Completed and Essential Results

A proposal was worked out for instrumentation of the core barrel. It was agreed that part of the necessary instrumentation will be provided by Battelle (temperature, pressure, differential pressure transducers) and part by IRE (strain, acceleration and displacement transducers). An autoclave test device was conceived. It will be possible to expose the prototype transducers with this device to realistic even tightened up conditions of operation. Investigation started of the measurement techniques, which are best suited for the present case of application and a first instrumentation test program is being prepared.

Plans for the Near Future

The test autoclave system will be ordered, installed and subjected to test operation. After delivery of the prototype transducers the instrumentation tests will be carried out. These tests will pursue a double objective:

1. determination of the mechanical and electric operating reliability under the given test conditions and
2. determination of the accuracy of measurement under the given test conditions.

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

Work Completed

The code YAQUI, which was developed at LASL for 2D transient fluid flow, was implemented and modified. Test calculations with the code were carried out. Input for first blowdown calculations has been prepared. Equations

were derived for extension in 2 1/2 dimensions and coupling of a simple structural model. Various coupling methods (from asynchronous integration to full iteration in each step) have been reviewed. Planning work was started for an advanced code in complex geometries.

Work continued on the methods of singularities. This method is potentially suitable for describing the fluid in the core region. The semi-analytical model for shells with bending-resistance has been improved by inclusion inertia term and accounting for more realistic boundary conditions at the lower core barrel flange. Based on this theory the development of a computer code CYLDY1 is on the way.

#### Essential Results

- YAQUI is fully implemented. Plot output is available. Cross flow and abstract data structure plans of a new code FLUSTO1 have been established.
- The code CYLDY1 is ready for testing. The code will compute the transient behaviour of the core barrel with adequate representation of the lower flange.

#### Plans for the Near Future

Modifications of the fluid dynamic code YAQUI as well as programming and testing of the linear elastic structural dynamic code CYLDY1 will be completed. Methods of coupling between and structural dynamics are going to be tested. Furthermore some small scale experiments will be carried through.

4230 Emergency Core Cooling of LWR's

4231 Theoretical Investigations of the Fuel Rod Behavior during  
LOCA and ATWS  
(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE/Stuttgart)

Work Completed

The first version (SSYST-Mod-1) of the program system SSYST for the description of a single LWR rod during a LOCA has been completed and documented. The modul WQDEL for the calculation of heat source distribution in electrically heated fuel rod simulators has been developed and integrated in SSYST. In the modul WUEZ pressure-dependent heat transfer of solid-solid-contact between fuel and clad has been taken into account. Preliminary studies on statistical ballooning and treatment of rod bundles with SSYST have been carried out. Computer costs were reduced by an improved adaption of the SSYST kernel to IBM 370. The program WAK of KWU, calculating coolant conditions and water level in the core during the low-pressure phase of a LOCA has been improved and integrated as a modul for calculation of the reflood phase.

SSYST has been used to analyse the blowdown of a PWR primary system and the resulting fuel rod behavior (double ended cold leg break). The influence of heat transfer in the gap on the temperature of the rod has been investigated by a parametric study. Performing a fuel pin simulation for experiments (PNS 4238) the adiabatic heatup has been calculated, assuming a defined ballooning of the pin. Parametric studies on the expansion and ballooning of Zry-pins have been performed in order to obtain information on the influence of local temperature peaks and clad thickness tolerances.

The influence on the degree of efficiency for condensation, the heat transfer from the fuel pins by means of precooling, and the heat transfer from dry pins on the flood-procedure has been investigated by means of a sensitivity study. Calculations for the experimental program PNS 4237 have been continued.

The work on improved description of Zry properties was continued with the verification of tensile and burst tests for PNS 4235.2 resp. 4238 and in determining optimized constants in the equations for diffusion coefficients in  $ZrO_2$ ,  $\alpha$  and  $\beta$  Zircon according to the results of oxidation experiments of PNS 4235.2.

Several methods have been tested to describe the probability density function of temperature resp. strain of a cladding. The Monte Carlo and the "moment matching" methods turned out to be most promising.

### Essential Results

SSYST-Mod-1 is available on a CDC 6600 and IBM 370/168. The analysis of the primary system led to information on the most important parameters (gap heat transfer coefficient, pressure, flow- and leak rates, temperatures and deformation of the pins and reflood-times). A parametric study on the gap heat transfer e.g. led to a considerable dependence of the rod-temperature for values below  $7000 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}$ . The parametric study on the deformation and ballooning of Zry-pins as a function of wall thickness, temperature profiles with respect to time and position, mechanical properties of Zry at elevated temperatures etc. led to various interesting results. An analysis of the fuel pin behavior-dependence on burnup has led to conservative results for the reference reactor model.

### Plans for the Near Future

The description of the subchannel thermo- and hydrodynamics will be improved. Work on statistics and material properties will be continued. The investigation of propagation phenomena will be done using simplified models. To improve the knowledge of the whole core behavior the rods of a PWR will be divided in classes of estimated different damage probability. As a first step a single rod analysis will be performed for one rod in each class.

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

### Work Completed and Essential Results

The calorimeter and the transport mechanism for the fuel samples was designed and is under construction now. Calculations of the heat-source distributions for different  $^{235}\text{U}$ -contents led to an optimal enrichment of the  $\text{UO}_2$ -samples which minimizes the effects of the bad heat conductivity of the oxide on temperature measurement.

Monte-Carlo-calculations of the  $\gamma$ -leakage-spectra yielded data which allow, from the  $\gamma$ -energy-flow measurements, to calculate the total  $\gamma$ -energy loss as well as the portions of the  $\beta$ - and  $\gamma$ -heating.

#### Plans for the Near Future

The calorimeter and the  $\gamma$ -energy-flux monitor will be constructed, and a "rabbit" designed which shall provide good cooling of the samples during irradiation.

4235 Studies on Material Behaviour During LOCA and ATWS

4235.1 Investigations on the Mechanical Behavior of Zircaloy-4-Cladding Material at High Temperatures.

(M. Boček, IMF/II)

#### Work Completed

Investigations were performed on:

- The strain rate and temperature dependence of the strain rate exponent in the temperature range of 400 - 1100°C in air.
- The influence of heat treatments on the deformation behavior of the material.
- The metallography of the phase transformation  $\alpha \rightarrow (\alpha+\beta)$ .
- Isothermal burst tests at temperatures of 800°C and 900°C in vacuum.

#### Essential Results

- For normal plastic deformation the strain rate exponent is essentially independent upon strain rate and temperature. The apparent activation energy and the constant of Norton's creep equation in this range were determined for temperatures between 400°C and 840°C.

- Heat treated samples (1000°C/1h/vacuum) revealed a considerable grain growth and suppressing superplasticity.
- The phase change  $\alpha \rightarrow (\alpha+\beta)$  was investigated metallographically. Occasionally small  $\beta$ -phase precipitates are observed inside the  $\alpha$ -grains, however intensive precipitation occurs in the grain boundaries.
- Isothermal burst tests on Zircaloy-4-cladding were initiated at temperatures of 800°C and 900°C. At times of exposure of 30 sec, i.e. high deformation rates at 900°C and an internal pressure of 35 [kp/cm<sup>2</sup>], circumferential strains of 80 % were obtained.

#### Plans for the Near Future

The data obtained from tensile tests in air atmosphere and from creep tests in vacuum will be used in a deformation code.

Burst tests will continue, the apparatus will be improved to allow for continuous measurement of circumferential strain.

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

#### Work Completed and Essential Results

An inductive heating system for program-controlled LOCA-similar time-at-temperature steam exposure of tube sections and an experimental set-up for stress - rupture testing of internally pressurized tube capsules under steam oxidation were installed and successfully operated.

To start the induction heating system as tool for routine experiments, the former experimental oxidation kinetic results at 1-15 min. 900-1300 °C were reproduced and confirmed quantitatively the already known parabolic time/temperature relationships of total oxygen consumption and penetration. Then LOCA-similar runs were performed under program controlled time-at-

temperature conditions to obtain results of the oxygen take-up and its sensitivity to changing LOCA-conditions. They showed - compared to isothermal runs at maximum holding time - a reduction of oxygen consumption of about 25-30%. Furthermore stress-rupture experiments to check in the influence of stress upon oxidation rate and of oxidation upon the mechanical properties were started. Preliminary experiments to test the mechanical (creep) properties of unoxidized tube capsules in argon provided the necessary hoop stress/time-to-rupture relationships and elongations at rupture at 1000 °C and 1100 °C for internal pressure between 2 and 10 at, 20 min and 20 sec. These data will be compared with those being presently measured under oxidizing steam conditions. After rupture circumferential elongations of the capsules of 75 - 101% were measured.

After other runs the morphological evaluation of combined burst-creep experiments under steam oxidation showed that fast creep tends to open-up cracks in the  $ZrO_2$ -scale, making the flanks to parts of the quickly oxidizing surface, combined with local wall-thinning, while slow creep favors only local increase of oxide scale thickness.

A comparison between different oxidizing gases (steam, oxygen, air) showed that air is the most effective oxidizing medium (especially at temperatures above 1100 °C), while steam is the most moderate one. In consecutive runs a certain nitrogen content of the tube specimens stimulated, while hydrogen moderated oxygen consumption at 1000 °C.

#### Plans for the Near Future

Exposure of tube sections in metallic and preoxidized state to different LOCA-similar conditions.

Exposure of tube capsules to steam under superimposed creep and comparison with mechanical data evaluated by creep testing in argon.

Metallographic examination of reaction products to measure the extent of oxidation under superimposed creep.

4235.3 Studies on the Influence of Oxide Fuel on the Mechanical Properties of Zry-Tubes for LOCA and ATWS  
(P. Hofmann, C. Politis; IMF/I)

Work Completed

To determine the strain and rupture behavior of zircaloy cladding tubes out-of-pile annealing tests were performed with short Zry-4 tubes filled with oxide fuel and/or fission products (Cs, I, Te) and exposed to low differential pressures. The test parameters varied were temperature, the O/U ratio of the fuel, and the fission product concentration.

The test rig was completed which allows measurement of the pressures in the tube specimens. A pressure chamber used to apply an internal pressure to the tube specimens and for gas-tight sealing of the cladding tubes is being tested.

Essential Results

Previous results have shown that both in the presence of oxide fuel and of fission products substantially higher strains are produced at low differential pressures as compared to Argonfilled reference specimens. Part of the Zry tubes are superplastic in their behavior, with circumferential strains up to about 110%. The increases in circumferential strains depend on the O/U ratio and on the specific surface of  $UO_2$  as well as on the specimen temperature.

At low differential pressures, the fission products cause cladding tube bursting only if elemental cesium is present in the fuel rod simulator, since at the high temperatures elemental cesium contributes substantially to pressure buildup. However, free cesium occurs only in the presence of stoichiometric  $UO_2$ , while in the presence of overstoichiometric  $UO_2$  it reacts with  $UO_2$ , forming cesium uranate. Iodine and tellurium react with Zircaloy, which results in the embrittlement of the cladding material as compared to the fission-product free tube specimens filled with  $UO_2$ .



### Plans for the Near Future

Systematic investigation of the influence of the oxygen potential of  $UO_2$  and of the fission product concentration on the mechanical behavior of Zry at higher differential pressures. Temperature and pressure will be measured continuously during the experiment. The strain of the cladding tubes is to be measured continuously by means of an optical method.

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

### Work Completed and Essential Results

Construction of the test facility has progressed far enough to allow a first water pressure test of the high pressure system to be carried out. The first types of fuel rod simulator (750 W/cm max., design incorporating annular  $Al_2O_3$  pellets) and test rod to be used in measuring heat transfer coefficients either have been completed or are about to be completed in the very near future.

With the exception of a few units, the measurement and control components are being erected in situ. This includes special measuring techniques such as the true-mass-flow-meter and the optical measurement of the cladding temperature.

### Plans for the Near Future

All efforts are now being concentrated, on the one hand, on the completion and startup of the test facility together with the special measuring techniques and, on the other hand, on the completion of the evaluation computer programs.

The startup of preliminary experiments is expected for the end of the 1st quarter of 1976.

While work is going on to complete the experimental facility, possibilities

are being studied to use annular  $\text{ThO}_2$  pellets to improve the quality of the simulation of the fuel rod simulator.

4237.1 Investigations of Fuel Rod Failure in the Second Heatup Phase of a LOCA. In-pile Experiments with Single Rods in the DK Loop of the FR 2 Reactor

Work Completed and Essential Results

a) Beginning of the Main In-pile Tests

As already announced in the last semi-annual report, the tests with nuclear rods were started in the second half of 1975. Two fuel rods were exposed to internal pressures of 50 and 100 bar and subjected to the specific temperature transient in the DK-loop of FR 2. The first rod burst at 50 bar and about 800 °C of cladding temperature. This pair of values lies within the scattering band of out-of-pile results.

b) Temperature Measurement of the Rod Cladding

The concept of Zircaloy cladding temperature measurement has proved its worth. None of the thermocouples failed during the two tests. The test conditions and the successful attachment of the thermocouple sleeve by the supplier firm have essentially contributed to this positive result.

c) Data Acquisition and Processing

Connection with the CALAS data processing system was completed in time before the experiments were started. In addition to checking and logging measured data (in the course of testing) this system allows later evaluation from the magnetic tape.

d) Pre-irradiation of Fuel Rods in FR 2

After measurement of the flow and inlet pressure in the fuel element test rig the first of six pre-irradiation rigs were inserted in FR 2.

All pre-irradiation rigs are instrumented with

- thermocouples (inlet and outlet)
- flowmeters (Woltmann vane)
- neutron flux density meters (vanadium detectors).

The first pre-irradiation rig (target burnup 35000 MWd/t) exhibits a burnup of more than 5000 MWd/t at the end of the year while the second rig was inserted in December. With the introduction of the second rig all the fuel rods intended to attain the maximum target burnup have been placed into the reactor. The pre-irradiation period will extend over more than two years.

Part of the thermodynamics of pre irradiation was calculated with the CARO-C3 program of KWU Erlangen. The computations and the values obtained from the fuel element test rig have shown that under the safety point of view the pre-irradiation rig must be classified as an FR 2 fuel element.

#### Plans for the Near Future

Measurement and further post-examinations of the first two rods are to be performed in the Hot Cells at the beginning of 1976.

Particular attention will be paid in 1976 to the problem of thermocouple attachment to the irradiated fuel rod specimens. This is one of the activities which are necessary to prepare the first tests involving irradiated specimens.

Errors must be corrected in data acquisition. Among other errors variations of measured values caused by interferences from other electric equipment must be eliminated.

Pre-irradiation will be carried on to other stages of burnup.

The test involving electrically heated fuel rod simulators (BSS) will be continued which are related to PNS 4237.2 and have been described under that heading. The safety report must be set up for the experiments with pre-irradiated fuel specimens. Also it will be necessary to perform minor modifications at the test loop in 1976.

4237.2 Reference Tests for PNS 4237.1 In-pile Experiments Using  
Electrically Heated Fuel Rod Simulators (Single Rods)  
(B. Räßple, RBT)

Work Completed

Manufacturing was completed of a first series of 5 heater rods for preliminary in-pile tests. One of the rods with  $Al_2O_3$  ring pellets was installed in a test rig and subjected to about 30 steady-state and 3 transient in-pile tests.

Essential Results

The tests were essentially a success. Disturbances only occurred in the measurement of wall temperatures, which had a negative effect on axial temperature profile recording at the cladding tube. The other test targets have been reached. They allowed to gather experience relative to

- the gamma-dose rate of the irradiated specimen,
- the necessary setting times (electric heating, reactor, loop)
- possible sources of error at the specimen, the instrumentation, the electric and the measurement systems including data processing (CALAS),
- the application of methods to determine the thermal and electric power, respectively,
- processing of measured values in steady-state and transient operation.

Plans for the Near Future

It is intended to carry out further preliminary in-pile tests in the first half of 1976 with the following aims:

- Continued testing of the heater rod, the electric and measurement systems; error correction.
- Determination and comparison of the power generated in the heater zone (electric, thermal, nuclear).

- Determination of the gamma heat fraction of the thermal power.

It is intended to install further three test rigs for this purpose. The prerequisite of these preliminary in-pile tests is the installation of a new calibrated orifice in the test loop.

The design and testing of the specimen will be continued and evaluation will start of preliminary in-pile tests.

4238        Studies of the Interaction Between Ballooning Zircaloy Claddings  
              and Refloosing Emergency Core Cooling Water  
              (K. Wiehr, IRB)

#### Work Performed and Essential Results

The development of fuel rod simulators has been concluded, fabrication has been started. The instrumentation of the fuel rod simulators with sheathed thermocouples has been decided upon. The thermocouples of the fuel rod simulators capable of ballooning will be installed outside the ballooning zone and will be attached to the Zircaloy cladding tube by means of a platinum sleeve rolled onto the tip of the thermocouple; the thermocouples of the ambient rods will be imbedded in grooves in the inconel cladding and soldered in place.

Construction of the test rig has been completed. Assembly of the measuring and control system and the electrical safety system is due to be finished soon.

The radiographic facility installed to record the ballooning event in the Zircaloy cladding has been tested in several ballooning experiments. The brightness and contrast of the frames recorded from the radiographic image amplifier by means of a film camera were sufficient to allow the film to be evaluated by measuring the expansion of the cladding tube.

The development of the quotient pyrometer for contactless measurement of the cladding temperature in the region of ballooning was continued to improve the accuracy and reduce the initial temperature. Signals which could

be evaluated even below 500 °C were obtained as a result of additional chopping of the incident radiation and measurement of the dark currents.

The acquisition system for the measured data was completed after several defects had been repaired. A check list has been drafted for regular checking of the system; a corresponding test facility has been built.

The computer controlled data transmission system has been completed, test runs have been performed. The functional test of the whole acquisition and transmission system for the measured data including the CALAS process computer system will be carried out soon.

A two-dimensional non-steady state thermal conduction program, WAELP-2, for thermal design and verification of the fuel rod simulators has been completed. Calculations of the temperature transients showed good agreement with the results obtained from ZET-2D calculations.

The comparison of one-dimensional non-steady state thermal conduction calculations for the thermal behavior of the fuel rod and the fuel rod simulator showed good agreement. Two-dimensional calculations indicated that in the case of a sudden change of the boundary condition (e.g., a simulated bulge) the influence of axial heat conduction is felt only in the immediate vicinity of this jumping point and that the axial as well as the time dependent runs of cladding tubes temperatures of fuel rod and of fuel rod simulator show good agreement also in the region of the simulated bulge.

A sensitivity study carried out with the one-dimensional thermal conductivity program to assess the influences upon the cladding tube temperature of changes in the properties of the fuel rod simulator materials and of variations of the dimensions in the region of tolerances has been started.

Theoretical considerations describing the gas flow in the gap between pellets and cladding in the direction of the ballooning region indicated that a quasi-steady state and quasi-incompressible model can be used, that the Reynolds number is constant in axial direction provided that the flow is isothermal and, moreover, that in the laminar region eccentricities have a strong influence on mass flow.

In the first few experiments, the mass flow was measured in smooth and pellet-typed annular gaps. Comparison with theoretical considerations showed that fully-developed laminar flow occurs in the smooth annular gap, that the spots of contact of the pellets, however, impede the formation of a laminar flow and, moreover, that eccentricities in turbulent flow have no influence on mass flow.

Other experiments covered the transmission behavior of a capillary including the pressure measuring transducer to assess the local ballooning pressure. The measured data recorded indicated that this measuring system with a total volume of 70 mm<sup>3</sup> has a sufficiently fast transmission behavior and that the pressure development in the ballooning region can be calculated from the measured signal with sufficient accuracy.

Initial ballooning experiments on shortened, indirectly heated fuel rod simulators resulted in values of the strain rate and the temperature which were found to be in the region of normal plasticity in accordance with experience derived from metallurgical experiments.

#### Plans for the Near Future

Important work to be performed in the new few months includes:

- Commissioning of the test rig.
- Experiments on separate effects.
- Experiments with full length single rods in a steam atmosphere.
- Extrapolation and adaptation of SSYST modules.
- Theoretical studies accompanying the performance, verification calculation and evaluation of the experiments.

4239 Influence of the Size and Shape of Cooling Channel Blockages on the Emergency Core Cooling in the Reflood Phase of a LOCA (S. Malang, IRB)

#### Work Completed and Essential Results

The construction of the test loop, the test section, the power supply, the instrumentation and the data acquisition system have been completed. The shake down period was started in December 1975. The instrumentation

of 5 fuel rod simulators was also completed. One heater rod has been tested under realistic conditions. Starting at a heater temperature up to 950 °C a series of 40 flood cycles was carried out without remarkable damage of the rod and the thermocouples. Difficulties occurred in milling grooves into the cladding for the embedding of the thermocouples. Therefore a new manufacturing process was developed in cooperation with an industrial company. The success is a more precise method for the instrumentation at lower costs. During the swaging of an intermediate sleeve to the outer surface of the rod for the attachment of the artificial blockage the embedded thermocouples were partially damaged. Therefore the development of an other method was started to attach the blockage at the rod.

The software necessary for the data acquisition system has been specified and ordered.

Tests to avoid a too early wetting of the observation windows at the test section were not successful using a metal coating for heating. Due to the high temperatures the lifetime of the coating was too short. On the other hand it was found that the wetting problem can be reduced by heating up to test section to a high starting temperature. Films taken through these windows with a frequency of 4000 pictures/sec show that the exposure time was still too long to obtain sharp pictures of the water droplets in the mist flow. To reach shorter exposure times the used lamp for steady light has to be exchanged for a flash light equipment. Such an equipment with a flashtime of some Nano-seconds was defined and ordered.

#### Plans for the Near Future

After an extended shake down period the experiments will be started using a row of 5 fuel rod simulators without artificial blockages. In the following tests the influence of different blockages will be tested. In these tests all coolant subchannels will be blocked uniformly. A computer code for the calculation of the heat transfer coefficients will be adjusted to the test conditions and will be used for the data reduction.

Preparations to test bundles with 5 x 5 rods have just been started. The investigations with these bundles will be done about at the end of 1976.



4240 Core Meltdown of LWR

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

#### Work Completed

We have done experiments with single rods and single rods with spacers in inert gas, air and steam. To find out the development of the interaction between the  $UO_2$ -pellets, Zircaloy-can, Inconel-spacer and the oxidizing atmosphere, we have systematically heated to maximum temperatures from  $1600^\circ C$  to  $2200^\circ C$  for the single rods and from  $1000^\circ C$  to  $1600^\circ C$  for the single rods with spacers.

#### Essential Results

The main influence on the meltdown behavior is arising from the competitive interactions between  $UO_2$ -Pellets and Zircaloy-can on one side and the Zircaloy and the surrounding atmosphere on the other side. The spacers cause additional interaction of Inconel with Zircaloy and again this interaction is dependent from the oxidizing behavior of the surrounding atmosphere.

From the experiments in inert gas we find that at  $1850^\circ C$ , the melting-point of the Zircaloy, the interaction between can and pellets is getting so strong, that together with the Zircaloy also the  $UO_2$ -Pellets are molten down. The melt is running down and refreezes on the colder parts of the rod.

In air, during heat up, an oxidative skin is formed, which surrounds the inner parts of the rod, this is the rest-zircaloy and the  $UO_2$ , which is melting together again at  $1850^\circ C$ . The thickness of the oxid-layer is depending on the heating rate, being thicker if the heating rate is smaller. The surface is orange peel like and at nearly  $1800^\circ C$  little holes and cracks are formed and the melt comes out and runs down slowly on the skin. Experiments were done up to a surface temperature of the oxid-layer of  $2200^\circ C$  and still the skin stayed in a solid form.

In steam again an oxidative layer is formed. But now the surface is very smooth. The layer seems to be very strong, for no holes and cracks are formed as during heat-up in air. The skin stayed completely undisturbed up to 2000 °C, where it broke explosively in relative large pieces, presumably by the pressure of the inside formed melt.

Our first experiments with spacers again show the influence of the oxidizing atmosphere on the meltdown behavior. In inert gas already at ca. 1000 °C the Inconel of the spacers starts to interact with the Zircaloy and melts little holes into the can. With rising temperature larger regions of the can begin to melt, forming an alloy of Zircaloy with Inconel. Since the melt runs down the can, this process is not restricted to the region of the spacer.

In air and steam we could not find this interaction of the Inconel-spacer with the can. This is presumably connected with the formation of an oxide-layer between spacer and can. But in air and steam we have done experiments only up to 1300 °C and heating rates of 0,5 °C/sec.

#### Plans for the Near Future

The experiments with spacers in inert gas will be done with longer rods, to investigate how far the melt will run. In air and steam, experiments with spacers will be done at higher temperature and higher heating rates.

The investigations on single rods in steam will be done with different heating rates and different concentrations of steam.

Parallel to these experiments we are working on the development of a fuel rod simulator, in which we can avoid the central tungsten-heater.

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

Work completed

After conducting performance tests with the newly installed melting plant SASCHA first release experiments were carried out with Corium. A series of additional investigations was necessary to answer the following questions:

- a) How much Corium can be melted using the currently available 40 KW-HF-generator, and what generator power is needed for melting samples in the kilogram range?
- b) Do the vapors above the melt influence the temperature measurement by causing a selective absorption of the wavelengths detected by the two-color pyrometer?
- c) Will it be possible to use a spherical vessel and tubes of Duran glass for conducting the released products from the hot surroundings of the crucible to the filters? Thus a better observation of the accurances above the crucible is possible than if a system of ceramic or metallic material is used. In addition there are practical advantages in determination of the deposited material.
- d) What fraction of the released products is lost by deposition in the transport system before reaching the filters? How can this fraction be minimized? (The analysis of the filter deposits is much easier and more precise).
- e) Is the capacity of a 50 mm - diameter filter sufficient for collecting the released products from a 30 g melt of Corium?

In addition to these experiments the technique for analyzing inactive Corium and fission product deposits on the filters were tested and further improved. Inactive material is being used in all experiments for optimizing the performance of the system components.

From about the middle of 1976 the use of slightly active Fissium is planned to simulate various magnitudes of burn-up. The use of this Fissium will allow also systematic studies of the transport and deposition behavior.

Preparations for the production of fissium have been started by installation of five shielded boxes in which the fuel and the simulated fission products will be weighed, ground, mixed, sintered and finally sealed in Zircaloy capsules.

### Essential Results

- a) In melting experiments with Corium samples of 500 g under air, temperatures of about 2300 °C could be reached whereas 500 g samples of Ni could be heated in argon up to only 1400 °C. Obviously, the exothermic oxidation reaction of the Zircaloy and steel is the reason for that considerable rise of the Corium temperature in air.

Using smaller Ni samples (30 g) the maximum HF-power being coupled to the melt material has been determined by measuring the time of constant temperature at the melting point with the generator at full power.

The thermal power effectively transmitted to the specimen was only 1.2 KW. Thus, for melting kg - amounts of Corium, a higher generator power is needed as well as a more effective HF - coupling. The rented generator now in use will be replaced therefore by a device with a nominal power of 120 KW, and the power transmission to the induction coil will be improved.

The first series of release experiments with 30 - 60 g of Corium will not be affected by these changes.

- b) Melting experiments with various steel components (Fe, Cr, Ni) in an argon atmosphere and with Corium under air did not show any selective influence of the vapors on the intensities of the wavelengths used for the temperature measurement.
- c) The behavior of a spherical glass vessel above the crucible was quite satisfactory. After melting tests with temperatures of more than 2700 °C it was not broken nor did it show any appearance of softening.
- d) Three release experiments have been carried out with 30 g Corium under various atmospheres, with pressures in the range of 1.5 - 2.0 bar and

maximum temperatures  $> 2500^{\circ}\text{C}$ . The quantitative evaluation is not yet completed, but from the visual inspection of the glass system and the filters it seems that in the case of argon and steam atmosphere the total amount of released material as well as the transport losses were relatively low. The glass system remained almost optically clear. After the experiments in air, however, the glass was covered by a dense brown layer which became less dense with increasing distance from the crucible. Hot molten particles which were thrown out from the melt during the oxidation phase had penetrated into the glass surface at several spots.

- e) The filter capacity was sufficient in these experiments. In each case two filter systems have been used, the first for the heat-up phase ( $T \leq 2200^{\circ}\text{C}$ ) and the second for the high-temperature and cool-down phase. The largest amount of deposits was found for the second phase of the release experiment in air. The weight was 63,3 mg which is about 0,2% of the Corium at the beginning of the experiment.

#### Plans for the Near Future

The most important work to be done in the next months will be:

- quantitative evaluation of the release experiments described above
- continuation of these experiments by varying the pressure, the maximum temperature and the atmosphere
- application of a condensation nuclei counter for determination of the aerosol concentration during the release experiments
- completion of the installations for the Fissionium production.

4244 Constitution and Reaction Behaviour of LWR Materials at  
Core-Melting Conditions  
(P. Hofmann, H. Holleck, C. Politis, A. Skokan, IMF I)

#### Work Completed

The general aims of the whole program are theoretical and experimental investigations

- a) of the chemical interactions between core components during melting,
- b) of the constitution of the melt in dependence on the time after melting, oxidation state and temperature as well as on the content of concrete,
- c) reaction behaviour of the fission product in the melt.

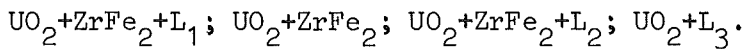
In particular that means

- Phase equilibria in multicomponent systems with core components
  - Reaction studies in complex systems and different arrangements to investigate the miscibility of melts, the oxidation and vaporization behaviour and the distribution of fission products.
  - Compositions of phases occurring during the melting process.
- a) The phase equilibrium studies in the ternary systems U-Zr-O, U-Fe-O and Zr-Fe-O are completed. Section of the quaternary system U-Zr-Fe-O are investigated in the moment.
  - b) The reaction studies are carried out with Corium A and with a mixture of Corium A and E in inert atmosphere; with Corium E in inert, lightly an strongly oxidizing atmosphere.
  - c) Simulated fuel rods, molten down in inert and oxidizing atmosphere were examined metallographically, by x ray diffraction and by microprobe analysis.

#### Essential Results

- a) The previously in many parts estimated isothermal sections of the ternary systems U-Zr-O, U-Fe-O and Zr-Fe-O were confirmed experimentally. Isothermal section of these systems were established at 1000 °C, 1500 °C and 2000 °C. In the quaternary system U-Zr-Fe-O the section  $UO_2$ -Zr-Fe -

representing the compositions of a core melt in inert atmosphere - shows at 1500 °C the following mean phase fields:



The phase relations determined in the phase equilibrium studies are in good agreement with the phases observed in the more complex reaction studies.

- b) Reaction studies with Corium A in inert atmosphere show that only small amounts of especially Fe vaporize and that in the molten state one metallic (melting region  $\sim 1750-2180^\circ\text{C}$ ) and one oxidic melt (melting p.  $\sim 2240^\circ\text{C}$ ) occurs. With increasing steel content one observes at compositions of Corium A/Corium E 1/1 up to Corium E one metallic melt. In lightly oxidizing atmosphere once more a phase separation occurs in one oxidic (melting p.  $\sim 2400^\circ\text{C}$ ) and one metallic (melting p.  $\sim 1650^\circ\text{C}$ ) melt. If all the phases of Corium E are oxidized only one oxidic melt occurs (melting p.  $\sim 1900^\circ\text{C}$ ).
- c) The metallurgical examination of simulated molten rods shows at a section of a fuel rod heated up in inert atmosphere up to  $1670^\circ\text{C}$ , that melting can occur below the melting point of Zry at the contact  $\text{UO}_2$ -Zry. Zr penetrates with preference into  $\text{UO}_2$ . In oxidizing atmosphere the cladding oxidizes and the melting points are shifted to higher temperatures. Here however the concept of heating must be changed as low melting U, W-oxide phases influence the melting process.

#### Plans for the Near Future

- a) Phase equilibrium studies in sections of the quaternary system U-Zr-Fe-O:  $\text{UO}_2 - \alpha(\text{Zr}, \text{O}) - \text{Fe}$ ;  $\text{UO}_2 - \text{ZrO}_2 - \text{Fe}$  (representing lightly oxidizing atmosphere),  $\text{UO}_2 - \text{ZrO}_2 - \text{Fe}_3\text{O}_4$  (representing strongly oxidizing atmosphere).
- b) Reaction studies of different compositions in the system  $\text{UO}_2$ -Zry-steel, simulating different atmospheres and including concrete.
- c) Metallurgical examination of simulated fuel rods molten down in bundles.

4245 Properties of Corium melts

(S.Nazaré, G.Ondracek, B.Schulz, IMF I)

Work Completed and Essential Results

In order to describe the behaviour of the molten core as a consequence of a LOCA, data on properties of such melts are required. The properties are however dependent on the chemical composition and structural characteristics of the melts which in turn depend on the oxidation potential of the environment. Available experimental evidence was used to define 4 types of melts based on interaction products between varying compositions of UO<sub>2</sub>-Zry-Steel in either inert, partially or totally oxidizing conditions.

A critical review of theoretical and experimental results on properties such as viscosity, heat capacity and thermal conductivity (in the liquid state) was used as a basis to estimate these properties for the various types of Corium melts. The essential results are summarized below.

Type of Corium	Melting pt. (K)	Heat capacity (cal/g K)	Viscosity (cP)	Therm. Conductivity (cal/cm K sec)
AX1 <u>Metall.-Phase</u>	~ 2275	0.085	5,4	
Oxid-Phase	~ 2675	0.071	5.7	
EX1	~ 2275	0.129	5.4	0.049
EX2 <u>Metall.-Phase</u>	~ 1825	0.146	5.4	0.044
Oxid-Phase	~ 2675	0.080	5.7	0.008
EX3	~ 2075	0.202	4.3	

Plans for the Near Future

Future work includes experiments to check the validity of the approach used thus far. It encompasses the preparation and characterization of Corium EX1 and EX3 and measurements of properties such as thermal conductivity and thermal expansion.



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

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

4311 Investigations on the Interactions of Fission Products and Aerosols in LWR-Containments.

Description of the Code NAUA-Mod1 and of the Experimental Planning.

(G. Haury, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

#### Work Completed

The code version NAUA-Mod1 of the post accident atmosphere model has been completed. It contains steam condensation on the particles and the removal processes coagulation, diffusion, sedimentation and thermophoresis. The subcode NAUCON describing the steam condensation has been improved numerically and adopted to the requirements of Mod1.

A concept of the experimental vessel and the instrumentation has been elaborated, the construction of the optical droplet size spectrometer has been completed.

#### Essential Results

The generation of a bimodal size distribution by steam condensation was found in all runs of Mod1, it was also found in preliminary experiments. As a consequence of the great difference in diameter the coagulation between dry particles and droplets is enhanced, resulting in a rapid removal of the dry particle peak. Thus the long term behaviour of the radioactive aerosol in the containment will be dominated by the removal of the droplets.

Some details of the experimental planning could be derived from preliminary experiments. It is necessary, e.g. to carry out the experiments at real temperature and real pressure, because of the great sensitivity of steam condensation to both parameters. The resulting problems concerning the instrumentation have been solved.

Experiments on droplet size spectrometry have shown that an in situ operating instrument will be needed. This spectrometer has been constructed and will be adapted to the vessel.

#### Plans for the Near Future

A sensitivity study with Mod1 will be carried out to aid in the final specification of the experimental facility and the definition of the experimental program. After installation of the facility the experiments for improving the Mod1 will be started.

- 4312      Theoretical and Experimental Investigations of the Atmospheric Diffusion of Radioactive Gases and Aerosols and of the Probabilistic Radiation Doses around Nuclear Plants due to Accidental Activity Releases  
(H. Dilger, W. Hübschmann, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

#### Work Completed

Three diffusion experiments were carried out using chemical tracers. The tracers were emitted at heights of 60 and 100 m. During one of these experiments, the tracers were emitted at both heights simultaneously. The automatic sampling technique could be tested successfully by employing two automatic sampling stations in each experiment.

#### Essential Results

The evaluation of the experiments supports the result gained in previous experiments and puts them on a broader statistical base. The evaluation

method has been applied also to a French meso-scale diffusion experiment in the Rhone valley.

The investigation of the dynamic behaviour of the atmospheric diffusion has resulted in the Karlsruhe Prognostic Model: depending on daytime, diffusion category and estimated release duration, the area is defined, in which the maximum activity concentrations may be expected.

The analysis of the "Reactor Safety Study" has been concluded by a checking calculation. As a result, the contributions from the three radiation damage pathways, i.e. inhalation, irradiation by deposition and irradiation from the passing cloud, to the total dose has been analysed. Further details of the model used in the "Rasmussen Study" have been clarified.

The investigation of wind- and vector vane data was continued. The result is a proposal to modify the  $\sigma_y$ - values for stable diffusion categories (E and F).

#### Plans for the Near Future

The tracer experiments will be continued. In 1976, automatic sampling stations will be used. This allows diffusion experiments during stable diffusion categories at night or with greater emission heights in the daytime.

4400 CONFINEMENT AND ELIMINATION OF THE CONSEQUENCES OF INSIDENTS

4410 Isolation and Removal of Contamination

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

#### Work Completed

Experiments and classification of flooring materials and paints have been finished. The cleansing pastes and molten salts are tested in laboratory experiments.

#### Essential Results

##### Floorings

PVC Floorings, fabricated by mixing of the basic components, showed no relation between content of fillers and decontamination results. Decontamination results are partly poorer, if the flooring contains a high concentration of the filler, especially if the latter consists mainly of hydrophilic materials. The coloring of the floorings seems to have no influence on the decontamination.

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

##### Cleansing Pastes

The decontamination effectiveness and the homogeneity of cleansing pastes based on hydrochloric acid, nitric acid, titanium oxide and polyethelene powders is strongly depended on the content of hydrochloric acid. Reduction of the content of this component to less than 2 w/O remains the effectiveness unchanged only if the titanium oxide-polyethelene powder mixture is substituted by a high density, highly surface active powder material. This type of paste containing no hydrochloric acid shows nearly the same decontamination effectiveness as standard pickling pastes containing about 30%

hydrochlorid acid.

#### Molten salts

Properly prepared salt powder turn out to be easily and sucessfully aplied to metall surfaces by a flame spray technique. The thin layer of molten salts is a very effective decontamination to samples contaminated in the primary loop of a PWR.

#### Plans for the Near Future

Equipment for paste and molten salts coating will be developed and constructed. These tools have to work reliably, automatically and under remote controll.

4412 Migration of Longlived Transuranium Isotopes (i.e. Pu-239, Am 241) in the Soil and Geological Formations  
(A. Jakubick, Th. Dippel)

#### Work Completed

Due to a series of fundamental research activities on the interaction of transuranium elements with different parts of the environment a general views was attained in this field. They deal in detail with plutonium-sources-, effect of environmental conditions-, transportation mechanisms in the nature and plutonium reservoirs in the enviroment.

#### Essential Results

An evaluation of these problems from the point of view of geo-sciences leads to the following statements:

- plutonium in soil possess the longest residence time;
- the knowledge of potential migration mechanisms in humid climatic ranges deserve a first order priority in siting of  $\alpha$ -waste final depositories (case of Maxey Flats),
- the normally used relationships may be applied for the evaluation of plutonium transfer in terrestrial ecosystems.

#### Plans for the Near Future

In connection with the topic of the symposium there are still some important questions open:

- the applicability of tracer studies on real situations;
- the influence of soil chemistry on the mobility of transuramium elements;
- the behaviour of extremely low plutonium concentrations in natural waters.

Until no scientifically precise answers on questions like this are available, there is only an effective box-model kind of approach (and not a scientifically analytical one) possible for the evaluation of migration.

4420      Technique of Clearing and Dismantling

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

Work Completed

Because of the greater urgency involved, studies were begun on the project design of a plant for decontamination and processing fit for ultimate storage of radioactive, heavy reactor components (conditioning plant); work on decommissioning of nuclear facilities and especial on clearance of a reactor core damaged by a major incident has been suspended for the time being.

The most important sub-areas investigated were these:

- Operating experience in large hot cell facilities in dismantling work and treatment of radioactive wastes.
- Analysis of the process flow diagrams of six treatment techniques applicable to heavy radioactive reactor components and determination of most important process steps and their sequences.
- Estimation of the importance and the probability of the different kinds of treatment.
- Basic design of the plant and design of the cells to fit different purposes.
- Introduction of a reactor component without causing any contamination.
- Method of separation and disassembly for different materials and combinations of materials and wall thicknesses and dimensions of components.

- Packing and fixing wastes without causing any contamination.
- Remotely controlled transport and handling, respectively, of reactor components, tools, waste parts and waste containers in the plant.
- Visibility in remotely controlled operations.
- Maintenance of mechanical equipment in the disassembly cell.
- Building design features of a facility built of concrete bricks and prefabricated components so as to be capable of dismantling in most of its parts.

### Essential Results

Design drafts of the medium active part of a conditioning plant have been elaborated for a central facility, one facility each to be built up in the close vicinity, e.g., of a nuclear power station with vertical and horizontal loading, and one standby solution. The underlying design component covers all the components of a nuclear power station of the category of Biblis A.

A description of the building design features and the sequences of operational steps and the data and cost estimates are included in PNS Report 61/75.

In view of the length of the cuts and the sometimes excessive material thicknesses, the disassembly of large components can be carried out within reasonable periods of time and under both practically and economically tolerable conditions only by thermal cutting techniques. Depending upon the material or the combinations of materials concerned, autogenous flame cutting or plasma fusion cutting or a combination of the two techniques must be applied in preference to any of the numerous other techniques. The results of the studies carried out so far are summarized in PNS Working Report 60/75.

### Plans for the Near Future

For a conditioning plant to be set up in the immediate vicinity of the nuclear power station, the part designed for the treatment of low level components and the whole facility, including the auxiliary systems, will



be designed and the problem of transferring a large component from the reactor building into the conditioning plant will be clarified. The suitability of different plant concept should be investigated with respect to the safety of the personnel. Because of the results to be expected from parallel studies carried out elsewhere. (e.g., on transport, activities, amounts of material), the design drafts must be modified.

Underwater flame cutting techniques will be thoroughly investigated with respect to their suitability, capability and limits of applicability and also with a view to the further development necessary.

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

#### Work Completed and Essential Results

The chassis of the lightweight MF3 manipulator vehicle for the Nuclear Emergency Brigade was completely assembled and subjected to works trial runs and acceptance tests.

All functions of the MF3 chassis with its variable geometry chassis were verified in accordance with specifications.

Two electric MasterSlave EMSM II manipulators and the action control system for the whole MF3 system including command transmission, transmission of information and power supply were subject of a tendering procedure after the end of the project design phase and following completion of the design. Fixed price bids have now been submitted by industries on the EMSM II manipulators and the action control system.

The possibilities of employing "MF3" have been studied in depth and covered in an internal report.

The Expert Committee on "Equipment for Emergencies and for Removing the Consequences of Incidents" of the Federal Ministry of Research and Technology has not been able to recommend the application for funding the development project of electric MasterSlave manipulators, "EMSM II"

and of the action control system for "MF3". This is due to the responsibilities for the Nuclear Emergency Brigade, which presently are in need of clarification.

The addition for test rigs to the electric EMSM I MasterSlave prototype manipulator have been finished.

The "EMSM I" manipulator has been tested in detail. In the light of the experience accumulated, the load carrying capability and the cooling system were improved upon and the elasticity of the system was reduced.

#### Plans for the Near Future

The "EMSM II" project and the action control system will again be submitted to the responsible body of experts as soon as the responsibility for the Nuclear Emergency Brigade has been clarified.

4500 SAFETY ASSESSMENT OF NUCLEAR PLANTS

4530 Risk and Reliability Analysis of Nuclear Power Stations  
(L. Caldarola, IRE)

Work Completed and Essential Results

A computer program has been written and tested. Main features of the program are the following

- Four different types (classes) of components can be handled
  - a) Irreparable components
  - b) Repairable components, with failures which are immediately detected (revealed faults)
  - c) Repairable components, with failures which are detected upon inspection (unrevealed faults)
  - d) Components characterized by a constant unavailability
- Capability to identify all minimal cut sets in order of importance
- Capability to analyse systems characterized by two phases on following the other in time
- Compatibility test allows one to find out if the two fault trees are logically compatible.
- The following quantities can be calculated as function of time
  - a) System point unavailability
  - b) System average unavailability (unavailability averaged over the time)
  - c) System failure intensity
  - d) System average failure intensity (failure intensity averaged over the time)
  - e) System integral of failure intensity (in the present form of the program this quantity is used as system unreliability).
- The system average failure rate ( $1/MTTF$ ) can also be calculated with all components intact at the initial state.

The computer program needs 480 K in CPU. This allows to analyse fault trees either with a maximum of 256 elements and 200 points on each time axis or with a maximum of 2000 elements and no calculation on the time axis (average and maximum values only).

A new and more sophisticated theory to calculate the unreliability of complex repairable systems has been developed. The method is based on a set of integral equations each on referring to a specific minimal cut set of the system. Each integral equation links the unavailability of a minimal cut set to its failure probability density distribution and to the probability that the minimal cut set is down at time "t" under the conditions that it was down at time "t'" ( $t' \leq t$ ).

Three test problems of the "BMFT Leistungsprüfung" were solved with the Karlsruhe computer program.

#### Plans for the Near Future

- A fifth class of components will be included in the computer program. This will include components which are inspected when they are demanded to operate (unrevealed faults).
- The theory under section 4 will be incorporated in the computer program
- The feature to handle systems characterized by many operating states will be built in the program.
- The feature to handle correlated faults (among various components) will be also built in the program.

## DETAILLIERTE BERICHTE

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen  
(H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer, R. Kaempfer, A. Weinert,  
J.G. Wilhelm, LAF)

4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der  
Sicherheitsbehälter-Atmosphäre  
(H.-G. Dillmann, H. Pasler)

Untersuchung an einem Prototyp eines Störfall-Umluftfilters

Die Prüfung an Prototypfiltern wurde unter GaU-Bedingungen fortgesetzt.  
Nach technischen Umrüstungen werden die ersten Versuche unter Druck durch-  
geführt.

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

Prüfmedium : ca. 150 mg  $\text{CH}_3^{127}\text{J}$  + ca. 1 mCi  $\text{CH}_3^{131}\text{J}$   
Jod-Sorptionsmaterial: AC 6120 mit ca. 8 g Ag/100 g Träger  
Schichtdicke : 5 cm  $\hat{=}$  0,2 s Verweilzeit  
Durchsatz : ca. 800 m<sup>3</sup>/h

Betriebsbedingungen			Beaufschlagungs- zeit des Einzel- versuches [h]	Betriebszeit insgesamt [h]	Abscheidegrad [%]	Fördermedium
Temperatur [°C]	Druck [bar]	relative Gasfeuchte [%]				
150	1,1	22	48	48	99,9984	Heißdampf
158	4,85	82	30	122	99,15	"
155	4	72	4	145	99,81	"
155	4	72	26	171	99,75	"
155	4	72	69	240	99,58	"

Die Versuche werden fortgesetzt. Dabei soll der Druck bis zu den Auslegungsdrukken moderner Sicherheitsbehälter weiter erhöht und Dampf-Luftgemische unter Druck als Fördermedium eingesetzt werden.

### Strahlenbelastung des Sorptionsmaterials im Störfall

Zur Störfallfilteranlage wurden Rechnungen zur Strahlenbelastung des Jod-Sorptionsteiles von Störfall-Umluftfiltern bei hypothetischen Reaktorstörfällen durchgeführt, die zur Festlegung der Bedingungen von Bestrahlungsversuchen benötigt werden.

Es wurde eine Jodfreisetzung von 1 bis 5 % vom Coreinventar angenommen. Für die Halbwertszeit der Jodabscheidung durch Filterung wurden 1,4 h angenommen. Der Strahlenbelastung des Jod-Sorptionsmaterials wird eine Absorption von 100 % der  $\beta$ - und 10 % der  $\gamma$ -Strahlung zugrundegelegt. Die Beladung des Adsorbers wurde in der hier angegebenen ersten Näherung als linear über die Betttiefe abfallend angenommen.

In der Abb. 4111-1 wird der Zeitverlauf der Dosisleistung und in Abb. 4111-2 der Gesamtdosis der am höchsten belasteten Schicht für drei Freisetzungswerte 1, 3 und 5 % Jod angegeben.

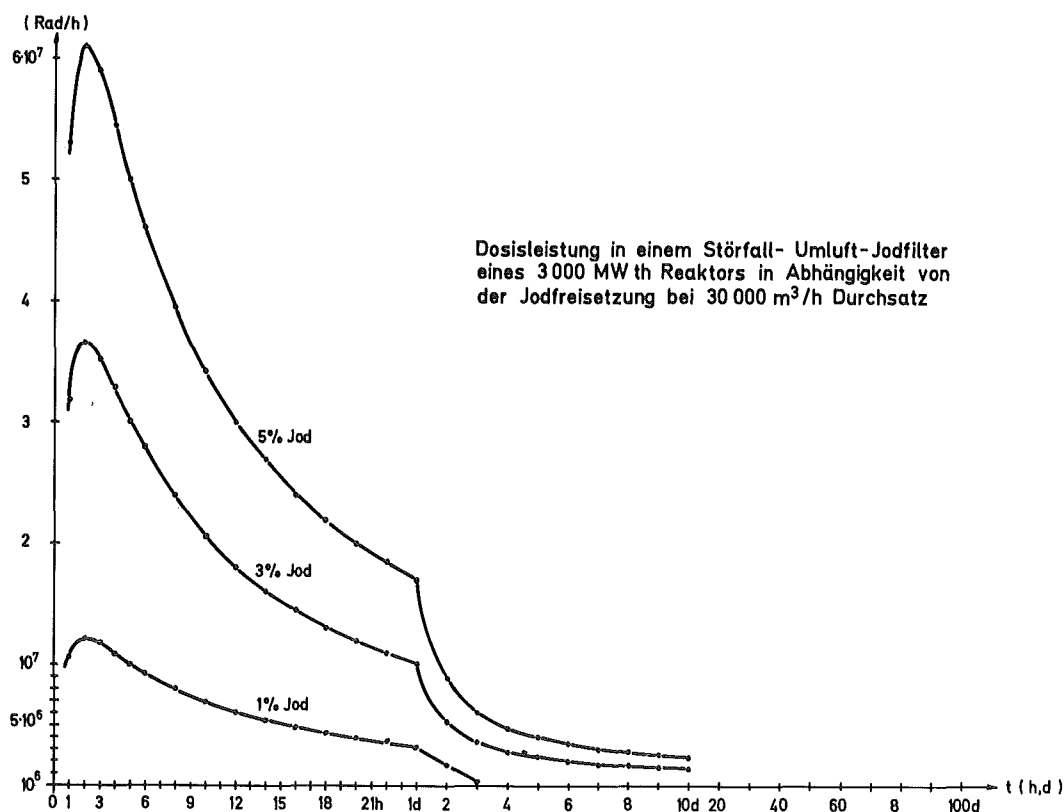


Abb. 4111-1

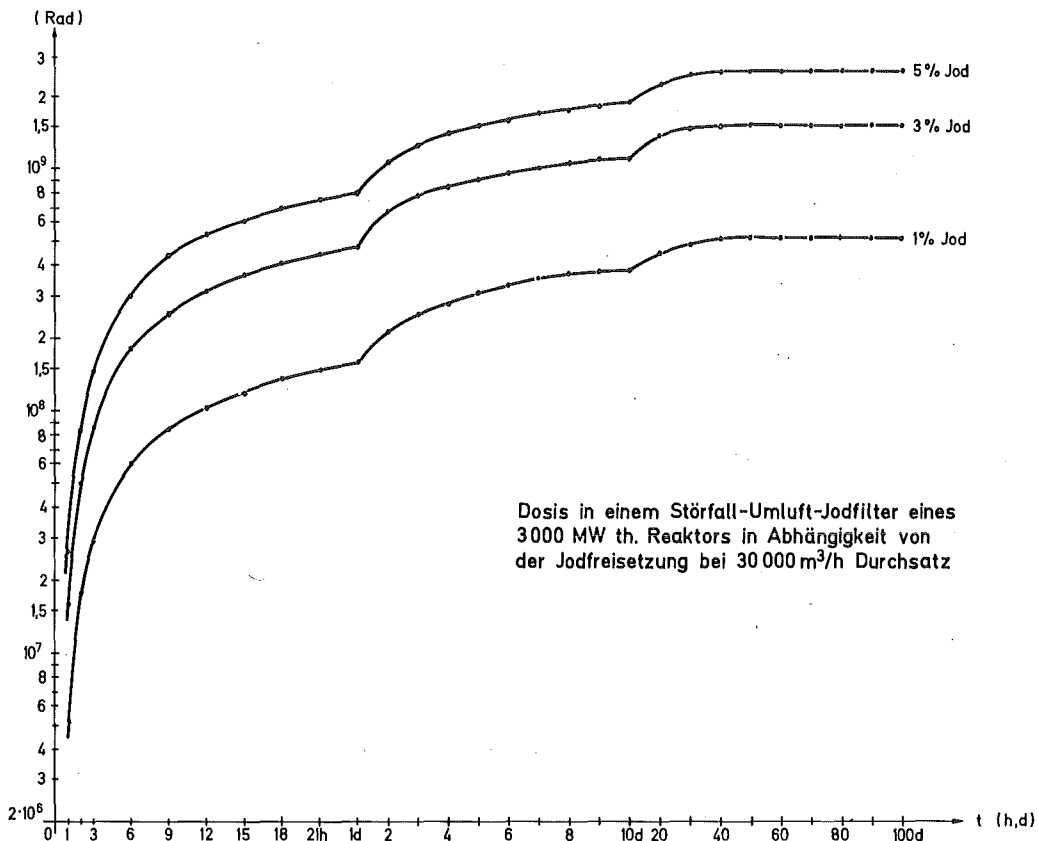


Abb. 4111-2

### Materialuntersuchungen unter Störfall-Bedingungen

Für das Jod-Sorptionsteil eines Störfall-Umluftfilters werden Beständigkeitsuntersuchungen unter verschärften Bedingungen durchgeführt, da durch die Zerfallswärme der im Sorptionsteil abgeschiedenen Jodisotope bei reduziertem Durchsatz bzw. ausgefallenem Ventilator wesentlich erhöhte Temperaturen auftreten können.

Aufgrund der temperaturstabileren Silberform in Molekularsieben wurden alternativ zum Sorptionsmaterial AC 6120 auch spezielle binderfreie Molekularsiebe geprüft, die eine im Gegensatz zu bisher untersuchten Molekularsieben erhöhte Heißdampf-Beständigkeit der Formkörper erwarten lassen.

Die Abscheideleistung unter verschiedenen Bedingungen wird in Tab. 4111-2 verglichen.

Langzeitversuche bei höheren Temperaturen zur Beständigkeit der Trägermaterialien bzw. der Imprägnierung werden im nächsten Berichtszeitraum durchgeführt.



Tab. 4111-2 Materialvergleich AC 6120 und Ag-Molsiebe unter Temperatur- und Druckeinwirkung

Prüfmedium : ca. 1,5 mg/g CH<sub>3</sub><sup>127</sup>J + 1 mCi CH<sub>3</sub><sup>131</sup>J  
 Jod-Sorptionsmaterial: AC 6120 mit ca. 8 g Ag/100 g Träger  
 Molsieb mit ca. 30 g Ag/100 g Träger  
 Bettiefe : ca. 10 cm  
 Trägergas : Heißdampf  
 Verweilzeit : ca. 0,4 s  
 Durchsatz : ca. 440 l/h

Druck [bar]	Testbett- Temperatur [°C]	Taupunkt- Temperatur [°C]	Abscheidegrad in %		Versuchsdauer bei hoher Temperatur [h]
			AC 6120	Molsiebe	
1	110	102-105	99,993		
1	130	103-105	99,998	99,996	
1	150	105	99,999	99,993	
5	160	150	99,984	99,921	
5	200	150	99,979	99,977	7
5	300	150	99,75	98,6	7

Prüfverfahren für Schwebstofffilter unter Normal- und Reaktorstörfallbedingungen

(A. Weinert)

Um die geforderte Abscheideleistung von Schwebstofffiltern unter den Bedingungen eines LWR-Störfalls zu gewährleisten, ist es notwendig, das Verhalten dieser Filter unter erhöhtem Druck, großer Gasfeuchte und hoher Temperatur zu untersuchen.

Für die Herstellung der zu verwendenden Prüfaerosole wurde das Flammenverdampfungsverfahren ausgewählt.

Ein Aerosolgenerator muß nach Anpassung an die genannten Bedingungen in einem Bypass des LAF II-Filterprüfstandes eingebaut werden. Die Verhandlungen mit einer Ingenieur-Firma für die Auslegung und Konstruktion des Aerosolgenerators wurden abgeschlossen.

Das Flammenverdampfungsverfahren war zunächst mit der Modellsubstanz Natriumchlorid entwickelt worden, da NaCl eine Reihe günstiger Eigenschaften aufweist. Es ist unzersetzt verdampfbar, mit kommerziellen Flammenfotometern mit großer Empfindlichkeit nachzuweisen und gut zu handhaben.

Im Hinblick auf den Einsatz von NaCl im technischen Filterprüfstand war das Problem möglicher Korrosionsgefahr durch Chloridionen in der aus Edelstahl bestehenden Teststrecke zu berücksichtigen. Aus der Literatur können für die Bedeutung der Korrosion in diesem speziellen Fall keine verlässlichen Aussagen gewonnen werden. In der Stellungnahme eines Fachinstituts für Korrosionsfragen wurde auf die Gefahr der Spannungsrißkorrosion verwiesen, so daß aus Sicherheitsgründen nach einer Alternative zu NaCl als Prüfmedium gesucht wurde. Die Auswahl an Substanzen ist aufgrund der Bedingungen:

1. nicht korrosiv,
  2. in der Flamme unzersetzt verdampfbar,
  3. gut nachweisbar
- stark eingeschränkt.

Zu Chloriden vergleichsweise geringerer Korrosionsangriff ist von Jodiden zu erwarten. Eine Reihe von Jodiden ist sofort auszuscheiden, da sie stark hygroskopisch sind oder sich bei höherer Temperatur zersetzen. Für die Prüfanforderungen geeignet zeigte sich Silberjodid. Schmelz- und Siedepunkt ( $556^{\circ}\text{C}$  bzw.  $1506^{\circ}\text{C}$ ) liegen so, daß eine Verdampfung in der Flamme erreicht werden kann. Die Vorbehandlung des AgJ zur Einbringung in die Brennflamme erfolgt in ähnlicher Weise wie bei NaCl durch Mahlen in einer Kugelmühle und Zumischen eines Fließmittels. Da der vorhandene Szintillationsteilchenzähler z. Z. noch nicht in der Lage ist, Silberverbindungen zu analysieren, wurden Membranfilter mit dem erzeugten Aerosol beaufschlagt, um mit Hilfe eines Rasterelektronenmikroskopes eine grobe Teilchengrößenbe-

stimmung durchzuführen. Die Abb. 4111-3 zeigt eine solche Aufnahme vom Maßstab 14000 : 1.

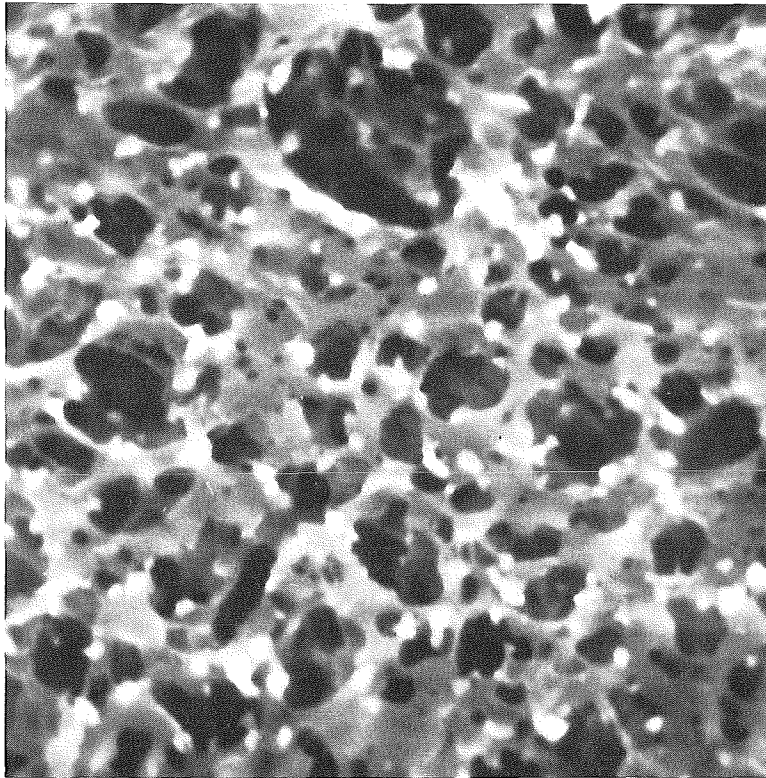


Abb. 4111-3: Zellulosenitrat-Membranfilter mit AgJ-Teilchen, Maßstab 14.000 : 1

Die Auswertung mehrerer Aufnahmen ergab Teilchendurchmesser zwischen 0,07 und 0,14  $\mu\text{m}$ , d. h. in der zur Filterprüfung gewünschten Größenordnung. Zusätzlich dazu wurden Massenkonzentrationsmessungen durchgeführt. Die dabei in einem Luftstrom von  $850 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  erreichten Werte entsprachen Aerosolerzeugungsraten, die ausreichen, um im technischen Filterprüfstand die erforderlichen Aerosolkonzentrationen herzustellen. Mit Hilfe eines Halogendetektors wurde untersucht, ob beim Verdampfen des AgJ eine Zersetzung stattfindet. Trotz hoher Empfindlichkeit des Gerätes (ca.  $35 \mu\text{g m}^{-3}$ ) war keine meßbare Jodkonzentration in der Abluft des Aerosolgenerators festzustellen.

4112.1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen  
(J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm)

Prüfung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120 in Stickstoff als Trägergas  
unter Zumischung der Stickoxide NO und NO<sub>2</sub>

Nach dem vorliegenden Konzept für eine große Wiederaufarbeitungsanlage wird als Spülgas für Brennelementschere und Auflöser u. U. Stickstoff vorgesehen. Die Brennbarkeit von Zircaloy-Spänen und das Verfahren zur Kr-Abscheidung mittels Tieftemperatur-Rektifikation könnten bei Verwendung von N<sub>2</sub> als Spülgas einfacher beherrscht werden. Es wurden Laboruntersuchungen durchgeführt, um das Verhalten von AC 6120/H<sub>1</sub> in N<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>-Gemischen zu ermitteln.

Zur Simulation von Spülgas verschiedener Zusammensetzung wurde im Labor ein Mischsystem aufgebaut und geeicht. Als Trägergas werden Luft und Stickstoff bzw. ein Luft/Stickstoff-Gemisch eingeleitet. Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid können bis zu 10 Vol. % hinzugefügt werden.

Die ersten Versuchsergebnisse zum Abscheidungsverhalten des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H<sub>1</sub> gegen radioaktiv markiertes Methyljodid als Prüfmittel im Trägergas N<sub>2</sub> bzw. Luft unter Zumischung von Stickoxiden werden in Tab. 4112-1 wiedergegeben.

Bisherige Ergebnisse:

Eine Zumischung von NO in reinem N<sub>2</sub> erniedrigt den Abscheidegrad des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H<sub>1</sub> durch Reduktion des AgNO<sub>3</sub> der Imprägnierung bis zum metallischen Silber erheblich. Bereits die Anwesenheit von NO<sub>2</sub> neben NO im Verhältnis 1 : 20 bewirkt eine wesentliche Verbesserung der Abscheideleistung. Anzunehmen ist eine kontinuierliche Regeneration der Imprägnierung durch Rückreaktion nach:  $\text{Ag} + 2 \text{NO}_2 \rightleftharpoons \text{AgNO}_3 + \text{NO}$ . Diese Reaktion führt fortlaufend zur Bildung neuer reaktionsfähiger Stellen. Nach den bisherigen Versuchen muß sichergestellt werden, daß im Gasgemisch in der Zuluft des Jod-Sorptionsfilters ein Verhältnis von NO<sub>2</sub> zu NO von ca. 1 : 5 nicht unterschritten wird. Allerdings zeigen die Versuchsergebnisse noch Variationen, die nicht erklärbar sind. Zur Absicherung der Ergebnisse werden Versuche mit längerer Laufzeit und einem verbesserten Versuchsaufbau im kommenden Berichtszeitraum durchgeführt.

Tab. 4112-1: Einfluß von NO<sub>x</sub>-Gemischen auf die Abscheideleistung von AC 6120/H<sub>1</sub> in Stickstoff als Trägergas

Bedingungen: Trägergas Vorström-Einleit-Nachströmzeit	NO [Vol. %]	NO <sub>2</sub> [Vol. %]	Bett-Tiefe [cm]				Sichtbare Veränderungen der Testbetten
			Abscheidegrad [%]				
			2,5	5,0	7,5	10,0	
N <sub>2</sub>	0	0	99,92	99,998	99,9989	99,9991	keine Ag-Metallbildung
N <sub>2</sub> 1; 1; 0,25	1	0	12,8	28,0	87,3	95,4	Ag-Metall in allen Betten
N <sub>2</sub> 3; 1; 1	5	0,25	82,5	97,8	99,94	99,998	Ag-Metall bis zum 4. Testbett
N <sub>2</sub> 3; 1; 1	5	0,5	94,3	99,6	99,998	99,9996	Ag-Metall bis zum 4. Testbett
N <sub>2</sub> 3; 1; 1	2,5	0,5	99,94	99,9998	99,99994	99,99995	wenig Ag-Metall im 4. Testbett
N <sub>2</sub> 2; 1; 2	1	0,5	- <sup>+) </sup>	99,96 <sup>+) </sup>	99,9990 <sup>+) </sup>	99,9998 <sup>+) </sup>	keine Ag-Metallbildung
Luft + NO 1; 2; 2	1	0	96,3	99,96	99,996	99,996	keine Ag-Metallbildung

<sup>+)</sup>  Leck im ersten Testbett

### Untersuchung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H<sub>1</sub> in den Auflöserabgasen der Wiederaufarbeitungsanlage SAP Marcoule

Im 1. PNS-Halbjahresbericht 1975 (KFK 2195, S. 110) wurde der Aufbau der Prüfeinrichtung für Aerosole und Spaltjod aus Auflöserabgasen in Wiederaufarbeitungsanlagen beschrieben. Mit Hilfe dieser Prüfeinrichtungen wurden im Berichtszeitraum mehrere Abscheidungsversuche in der Auflöserabgasstrecke des SAP Marcoule durchgeführt.

Wegen der hohen <sup>131</sup>J-Aktivität auf dem Jod-Sorptionsmaterial und der benötigten Abklingzeit sowie der hohen Dosisleistung der Aerosolfilter liegen bisher nur die Ergebnisse von zwei Versuchen vor; insgesamt wurden 8 Abscheidungsversuche im Berichtszeitraum durchgeführt.

### Versuchsdurchführung:

Im SAP Marcoule wurden während der Auflösung von KNK-Brennelementen unter Zusatz von kurzgekühltem EL-4-Brennstoff, der hohe  $^{131}\text{J}$ -Anteile enthielt, Proben der Zu- und Abluft eines im Abgas des Auflöser liegenden AC 6120/H<sub>1</sub>-Testbettes gezogen. Die Filterbox mit den Testbetten und den Aerosolfilter-Prüfronden wurde wechselseitig hinter dem Auflöser bzw. hinter der Rekombinationskolonne des Auflöser-Abgasstranges angeschlossen. Während der Abscheidungsversuche wurde das gesamte Auflöserabgas über die Aerosolfilter und über das Jod-Sorptionsmaterial geleitet.

Während des ersten Abscheidungsversuches erfolgte die Beaufschlagung der Testbetten hinter dem Kondensator des Auflöser nach 7stündiger Auflösung mit Destillation. Es wurden ca.  $3 \text{ m}^3$  Abgas ( $1,5 \text{ m}^3/\text{h}$ ) über das Filtersystem geleitet.

Der integral über die Probenahmedauer gemessene Abscheidegrad gegenüber Spaltjod bei  $150^\circ\text{C}$  und einer Bett-Tiefe, die der Hälfte der vorgesehenen Bett-Tiefe einer Filtertrommel in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage (GWA) mit 1500 jato entspricht, betrug bei einer Verweilzeit von 1,8 s 99,998 %.

Der zweite Abscheidungsversuch erfolgte unter Einsatz des Testbettes hinter der Rekombinationskolonne. Beaufschlagt wurde im Zeitraum vom Beginn des Siedens der  $\text{HNO}_3$  bis zum Ende der Auflösung. Das schon im Versuch 1 eingesetzte Sorptionsmaterial wurde bei diesem Abscheidungsversuch weiter mit Jod beladen. Es wurden über einen Zeitraum von 5 Stunden  $1,5 \text{ m}^3/\text{h}$  Auflöserabgas über die Filterstrecke geleitet.

Der integral gemessene Abscheidegrad bei  $150^\circ\text{C}$  und der oben angegebenen Bett-Tiefe und Verweilzeit betrug 99,9992 % für das insgesamt im Auflöserabgas auftretende Spaltjod.

Der Unterschied in der Durchlässigkeit,  $2 \cdot 10^{-3}$  gegenüber  $8 \cdot 10^{-4}$  %, liegt im Bereich der Versuchsgenauigkeit und gestattet keine Rückschlüsse auf Unterschiede in der Abscheideleistung des AC 6120/H<sub>1</sub>-Testbettes in Abhängigkeit von den Vorbehandlungen der Auflöserabgase.

## 4112.2 Entwicklung und Bau einer Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen

(K. Jannakos, W. Apenberg, W. Lange, W. Mendel, G. Potgeter,  
G. Zabel, RBT/IT)

(J. Furrer, J.G. Wilhelm, LAF II)

Im 1. Halbjahresbericht 1975 des PNS (KFK 2195) wurde die Konzeption der Abgasfilteranlage beschrieben.

Im Berichtszeitraum wurden zur Entwicklung und Bau der erwähnten Abgasfilteranlage die folgenden Arbeiten durchgeführt.

### 1. Konzeption und Bau eines Versuchsstandes zur Entwicklung von Filterkomponenten

Für die Entwicklung von Filterkomponenten der Prototyp-Abgasfilteranlage wurde der in Abb. 4112-1 dargestellte Versuchsstand konzipiert. Durch diesen können zur Erprobung der Komponenten Druck- und Temperaturwerte vorgegeben werden, wie sie in den Anlagen zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen auftreten.

Das Jodfilter soll mit Hilfe dieses Versuchsstandes soweit entwickelt und erprobt werden, daß es in der Prototyp-Abgasfilteranlage eingesetzt werden kann. Außerdem sollen mit dem Versuchsstand genaue Druckverlustmessungen an den Filtertrommeln und anderen Komponenten der Filteranlage vorgenommen werden.

### 2. Konzeption der Geräteanordnung für die Abgasfilteranlage

Die Geräteanordnung ist aus der Abb. 4112-2 ersichtlich. Es ist eine Teilung in Geräteraum, Filterraum, Bedienungsraum und Umlade- und Interventionsraum vorgesehen. Es wurde als zweckmäßig erachtet, die Hilfseinrichtungen wie Kühler, Gaserhitzer, Ventile, Meßwertgeber usw. in einem separaten Geräteraum zu installieren. Da die Schwebstoffe im Naßabscheider und ersten Schwebstofffilter abgeschieden werden, ist anzunehmen, daß im Geräteraum eine niedrige Strahlendosis und eine geringe Kontamination zu erwarten ist, so daß für Reparatur- und Kontrollarbeiten der Geräteraum jederzeit betreten werden kann.

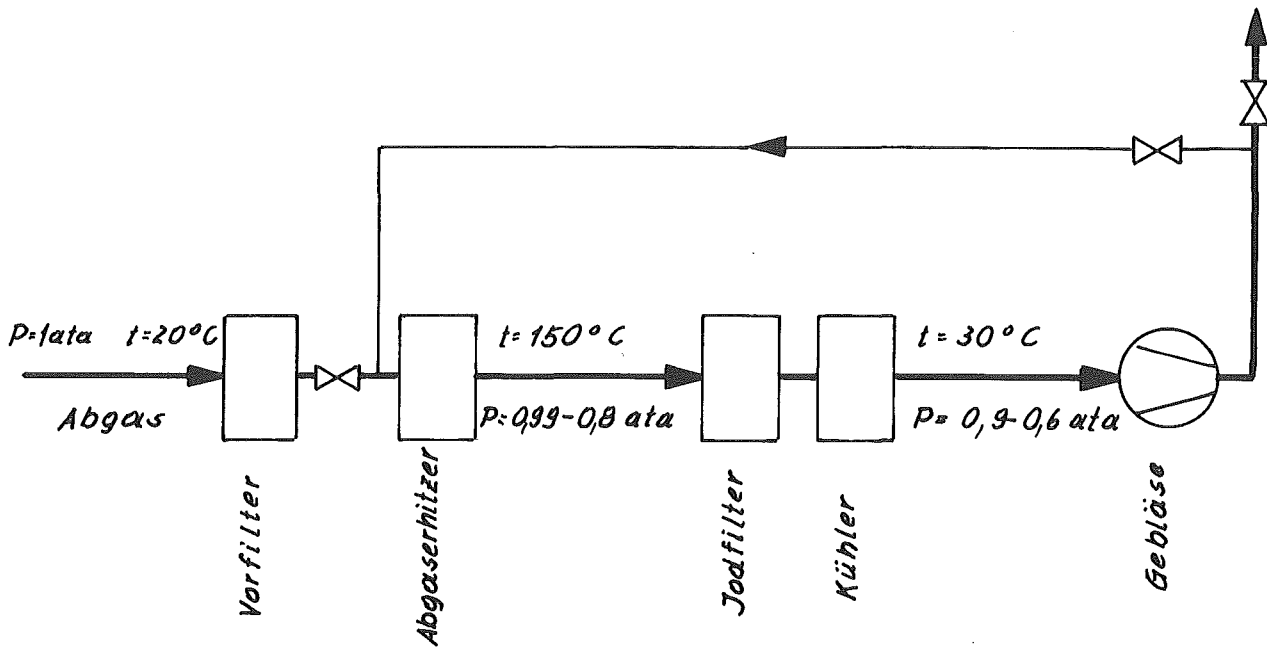


Abb. 4112-1 RBT Versuchsstand

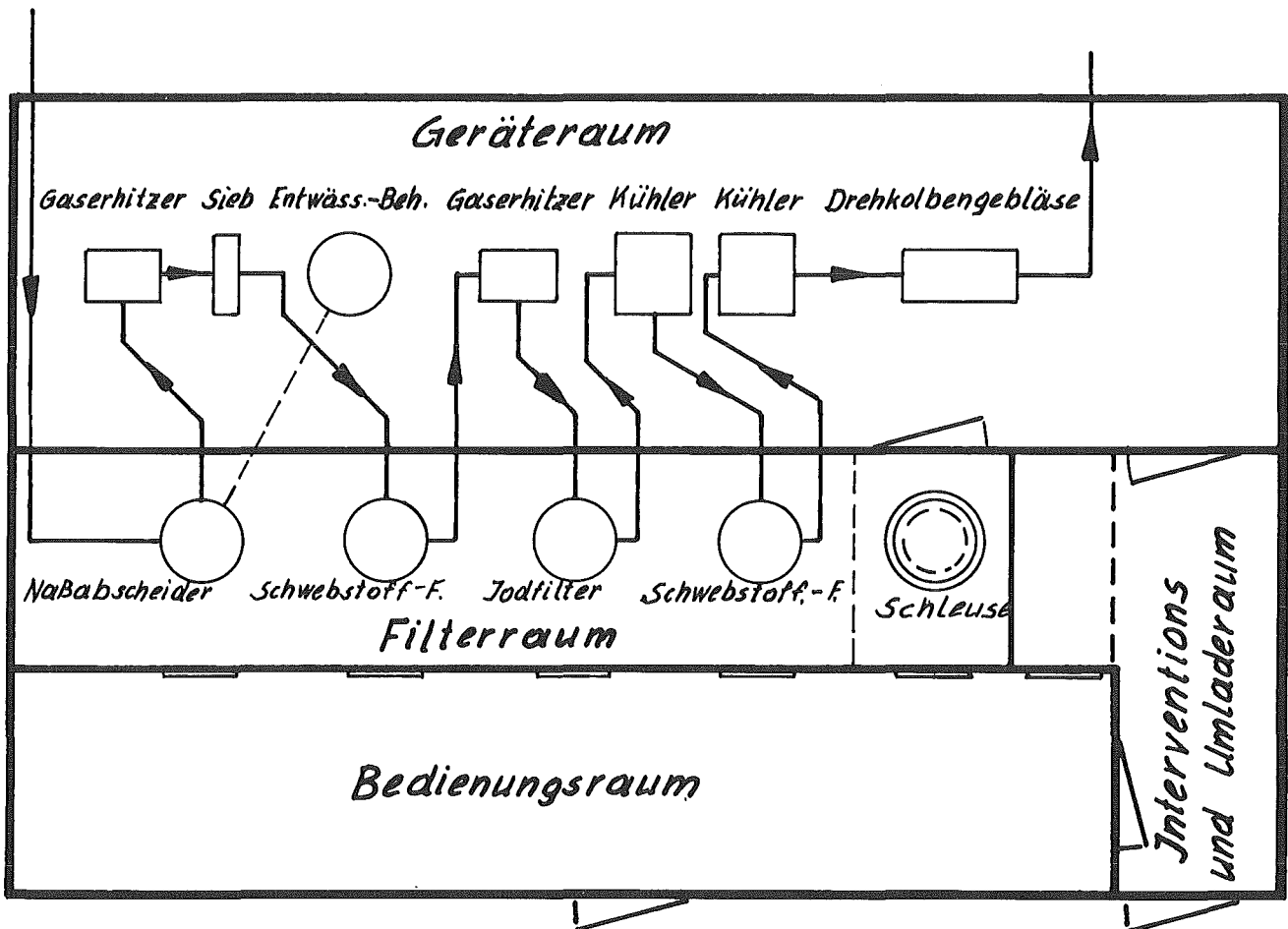


Abb. 4112-2 Geräteanordnung für die Filteranlage



Zum Auswechseln der beaufschlagten Filter - ohne Kontamination der Umgebung - ist an der Filterzelle eine Schleuse vorgesehen. Das Auswechseln und Ausschleusen wird fernbedient durchgeführt.

### 3. Konzeption und Entwurf des Ausschleus- und Abtransportvorganges für die beladenen (verbrauchten) Filter

Abb. 4112-3

Die Filtergehäuse, in denen die Filter zur Reinigung des Abgases von Schwebstoffen und Jod eingesetzt werden, sind in einer dichten Filterzelle eingebaut (Abb. 4112-2). Die verbrauchten Filter werden fernbedient aus den Filtergehäusen herausgenommen, aus der Filterzelle ausgeschleust und in abgeschirmte Behälter zur Endlagerung abtransportiert. Die neuen Filter werden ebenfalls fernbedient in die Filterzelle eingeschleust und in die Filtergehäuse eingesetzt (Wechselvorgang). Während der Einschleus-, Ausschleus- und Transportarbeiten muß eine Kontamination der Umgebung vermieden und eine Gefährdung des Bedienungspersonals verhindert werden. Eines der Hauptprobleme bei dem Wechselvorgang ist das Ein- und Ausschleusen der Filter. Hierfür wurde eine einfache Doppeldeckelschleuse konzipiert, die das Ein- und Ausschleusen der Filter mit Hilfe des Rollreifenfasses ermöglicht.

Das System zum Ein-, Ausschleusen und Abtransport von Filtern kann auch für andere stark strahlende und kontaminierte Teile verwendet werden. Die bisherigen ersten kalten Versuche mit der Zellen-schleuse im Maßstab 1 : 1 sind zufriedenstellend verlaufen. Da der Versuchsbetrieb der Prototypfilteranlage für einen längeren Zeitraum vorgesehen ist, können mit der Zellen-schleuse ausreichende Erfahrungen gewonnen und evtl. Verbesserungen an dem System vorgenommen werden.

### 4. Konzeption des Jodfilters

Zur Festlegung der Konzeption des zu entwickelnden Jodfilters für die Prototyp-Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen wurden fünf Alternativlösungen ausgearbeitet. In einer Studie wurden die Alternativlösungen und das Verfahren zur Wahl der geeigneten Alternative beschrieben.

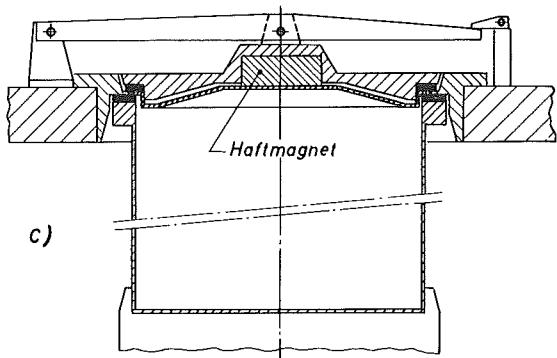
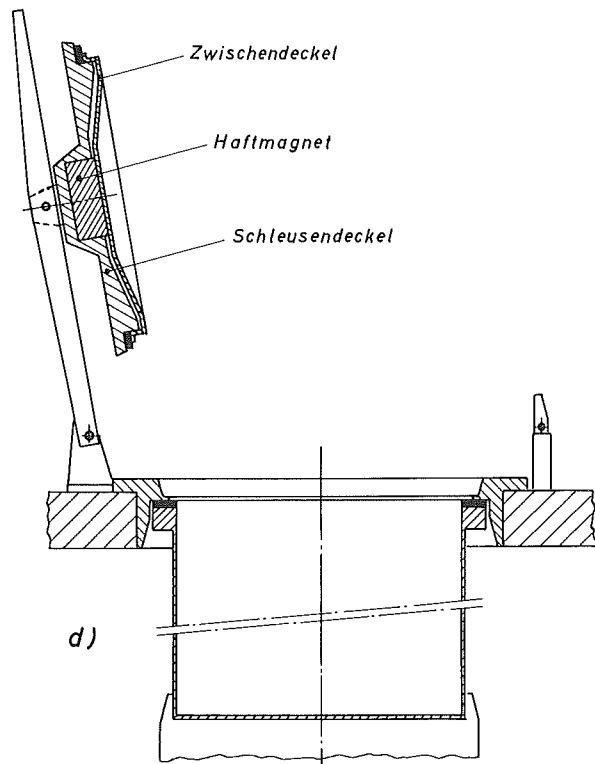
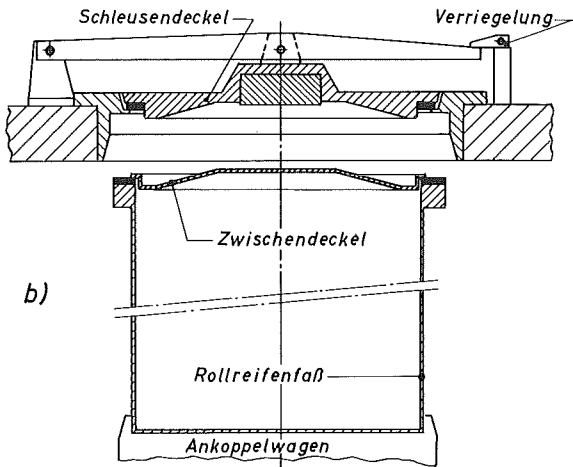
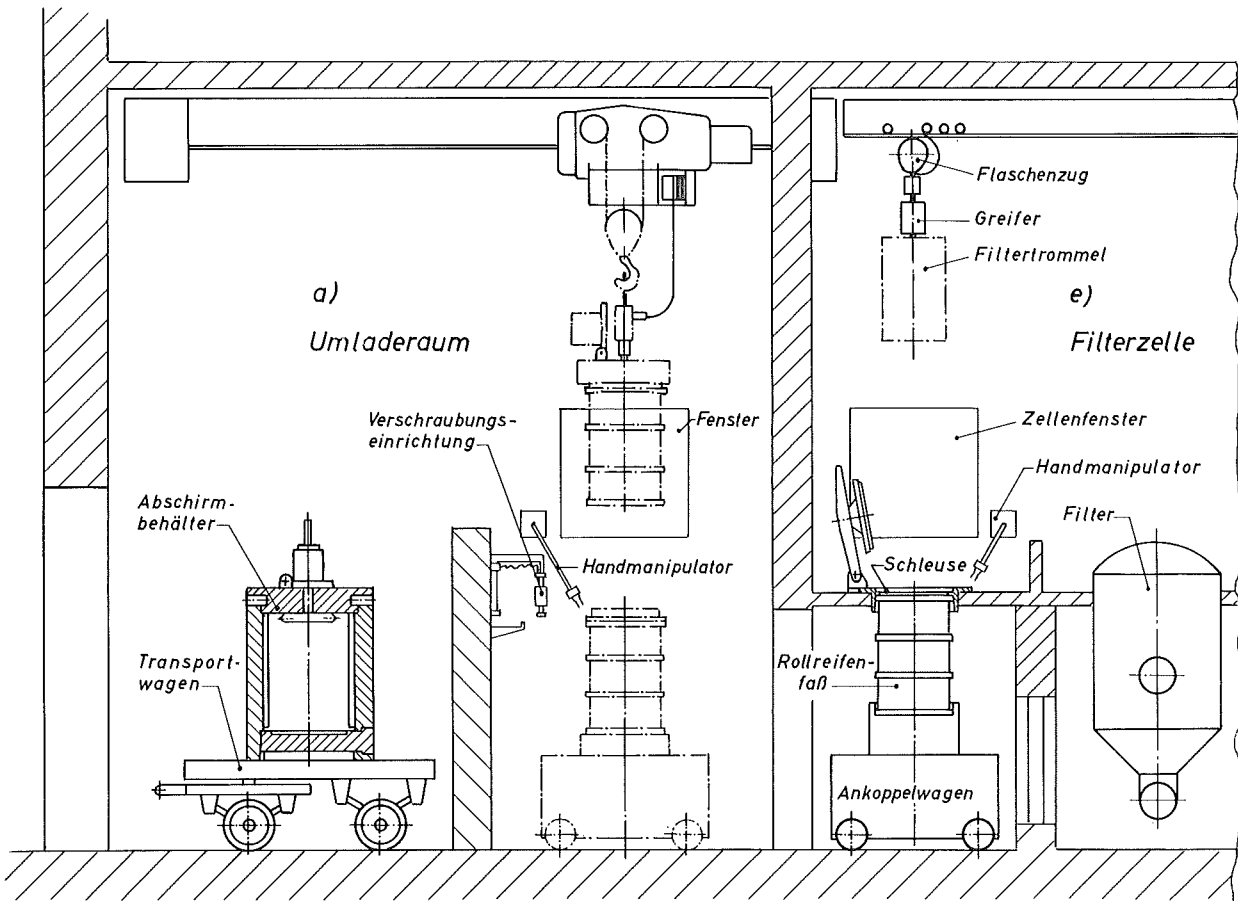


Abb. 4112-3 Ausschleus- und Abtransportsystem der Filteranlage

## 5. Auslegung und Entwurf der Filtertrommel

Die Filtertrommel sollte die folgenden Bedingungen erfüllen:

- möglichst großer Volumeninhalt,
- einfacher Aufbau,
- gleichmäßige Belegung des gesamten Sorptionsmaterials mit Jod,
- möglichst kleine Druckverluste,
- Verpackung der verbrauchten Filtertrommeln im Standard-Rollreifenfaß.

Es wurden zwei Alternativlösungen ausgearbeitet (Abb. 4112-4); die Filtertrommel und die Ringschichtfiltertrommel.

Die Strömungsrichtung in der Filtertrommel ist von oben nach unten. Die Filtertrommel wird nach dem Einsetzen im Filtergehäuse durch zwei an den Stirnseiten angebrachte Dichtungen nach außen (Reinluftseite) abgedichtet. Hauptnachteil der Filtertrommel ist der hohe Druckverlust. Er beträgt bei einem Volumenstrom von  $250 \text{ Nm}^3/\text{h}$  ca. 1200 mmWS. Durch Parallelanordnung von zwei Filtertrommeln kann jedoch der Druckverlust stark herabgesetzt werden. Er beträgt dann bei dem gleichen Volumenstrom nur ca. 500 mmWS. Die Strömungsrichtung in der Ringschichtfiltertrommel ist von innen nach außen. Der obere Rand der Zylinderwände ist nicht gelocht, um zu vermeiden, daß Rohluft aus der Innenseite über die Oberkante des Sorptionsmaterials ungefiltert in die Reinluft gelangt. An der unteren Stirnseite wird die Ringschichtfiltertrommel nach außen (Reinluftseite) mit einer Dichtung abgedichtet. Die Hauptnachteile der Ringschichtfiltertrommel sind der Verlust des Sorptionsmaterials (ca. 20 %) - das für Dichtungszwecke an der oberen Stirnseite der Ringschichtfiltertrommel verwendet wird - und der kleinere Inhalt gegenüber der Filtertrommel, wodurch ca. 25 % kürzere Wechselzeiten entstehen.

Zum Einsatz in der Prototyp-Filteranlage wurde die Filtertrommel gewählt.

Die ersten Dichtheits- und Belastungsversuche mit der Filtertrommel bei Raumtemperatur sind zufriedenstellend verlaufen. Die Filtertrommel soll vor dem Einsatz in der Prototyp-Filteranlage mit dem unter 1. aufgeführten Versuchsstand unter annähernd gleichen Bedingungen wie bei der Wiederaufarbeitung weiter erprobt und evtl. verbessert werden.

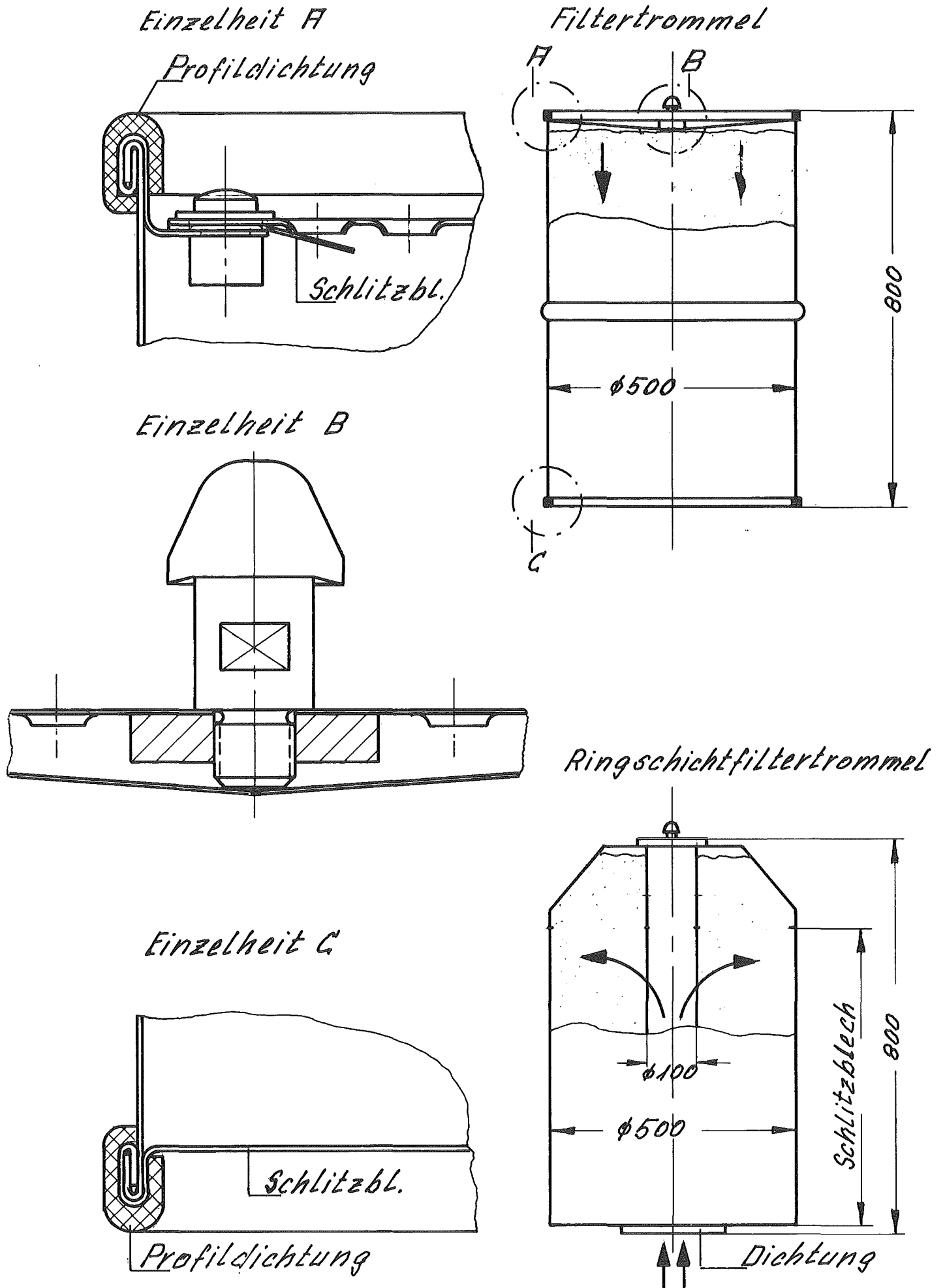


Abb. 4412-4 Filtertrommelalternativen für das Jodfilter

### 4112.3 Abgasstrecke am Auflöserteststand des IHCh

(K. Jannakos, G. Potgeter, RBT/IT)

(J. Furrer, C. Pfauter, G. Poetsch, LAF II)

Es wurde vom IHCh ein Abgasbehandlungsversuchsstand konzipiert, der zur Erarbeitung von Auslegungsdaten für Verfahren und Apparate von großen Wiederaufarbeitungsanlagen dient. Ziel ist, Hinweise zur Jodbehandlung im Auflöserabgas zu erhalten. Für das Abgas dieses Versuchsstandes ist eine Abgasfilteranlage erforderlich.

Zu diesem Vorhaben wurde vom LAF II und RBT/IT die Abgasstrecke mit den Einzelkomponenten Naßabscheider, Schwebstofffilter und Jod-Sorptionsfilter sowie den dazu benötigten Meßstrecken und Geräten ausgelegt und bestellt, bzw. das Jodfilter konzipiert und gebaut.

Mit Hilfe des an dieser Abgasstrecke durchzuführenden Versuchsprogrammes sollen Daten über die Abgaszusammensetzung bzw. Abscheidegrade spezifischer Aerosole an den verschiedenen Filterkomponenten und der Einsatz von Meßinstrumenten ermittelt werden. Die Funktionsweise der gesamten Filterstrecke in einem Auflöserabgas mit etwa gleicher Zusammensetzung wie bei der Wiederaufarbeitung ist hierbei zu überprüfen, um Informationen zur optimalen Auslegung der Filterkomponenten der KEWA-Prototyp-Filteranlage zu erhalten.

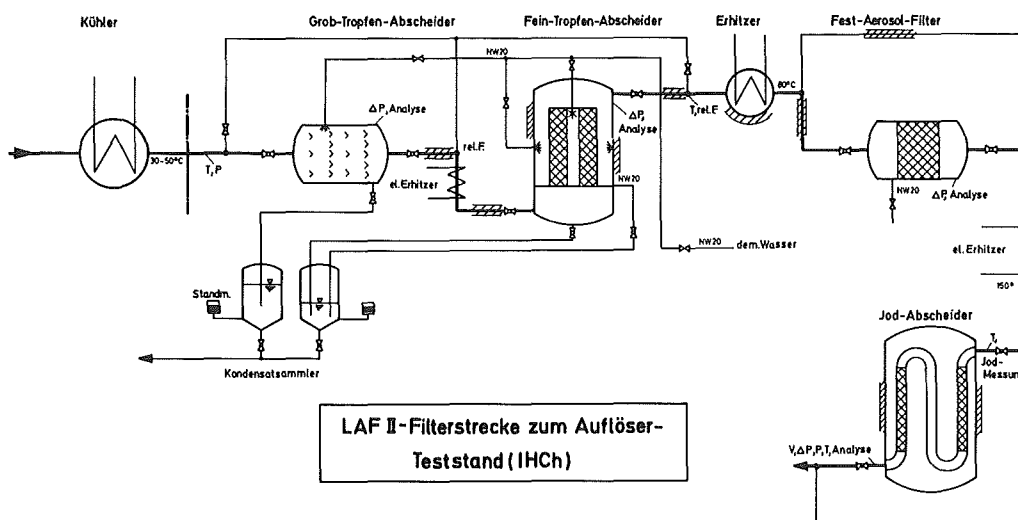


Abb. 4112-3

4114 Abluftfilterung an Reaktoren (Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien, Identifizierung von Jodverbindungen in den Abgasen kerntechnischer Installationen)

#### Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

K. Bitter, J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm

Die Untersuchungen zur Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien wurden weitergeführt. Da die in den Kernkraftwerken eingesetzten Jodfilteraktivkohlen durch Lösungsmitteladsorption eine erhebliche Beeinträchtigung der Abscheideleistung gegenüber Spaltjod erfahren (KFK 2195) wurden Aktivkohlen zur Lösungsmitteladsorption auf ihre Verwendbarkeit als Vorfilterkohlen untersucht.

#### Versuchsbeschreibung

Bei diesen Untersuchungen müssen die im tatsächlichen Betriebsfall einer Adsorptionsstrecke vorliegenden Bedingungen eingehalten werden. Wesentliche Parameter sind die Konzentration der Sorbate sowie Temperatur und Druck des Trägergases und seine Verweilzeit im Aktivkohlebett. Es wurden Adsorberexperimente im Labor und vor Ort durchgeführt. Die Ergebnisse aus Vor-Ort-Versuchen sollen die Laboruntersuchungen unterstützen und gleichzeitig quantitative Erkenntnisse über die auftretenden Lösungsmittel während der Betriebsphase eines Kernkraftwerkes ermöglichen. Die Labormessungen wurden in zwei Arbeitsabschnitte gegliedert. Der erste Versuchsabschnitt brachte Aussagen über die Beladekapazität verschiedener Aktivkohlesorten. Im darauffolgenden Versuchsabschnitt sollten die Durchbruchzeiten von Lösungsmitteln an Testbetten ausgewählter Aktivkohlen gemessen werden. Die Beaufschlagung im Labor erfolgte vorerst mit n-Pentan. Die Mischadsorption mehrerer Lösungsmittel wurde zunächst nicht untersucht. Der Lösungsmittelnachweis im Trägergas erfolgte kontinuierlich mit einem Flammenionisationsdetektor. Als Trägergas in der Prüfstrecke wurde gereinigte und befeuchtete Laborluft verwendet.

Zur Versuchsdurchführung wurden folgende Bedingungen festgelegt:

- Zudosierung des Lösungsmittels über eine Dosiereinrichtung und Verdünnung mit Stickstoff.

- Einstellung des Trägergasstromes auf  $3,5 \text{ m}^3/\text{h}$ . Bei 10 cm Bett-Tiefe der Aktivkohle und einem Bettdurchmesser von 5 cm entspricht dies einer Verweilzeit von 0,2 s.

Zur Überprüfung der Lösungsmitteladsorption an verschiedenen Aktivkohlen wurde der in Abb. 4114-1 dargestellte Versuchsaufbau benutzt. In Tab. 4114-1 sind die wesentlichen Ergebnisse der bisher durchgeführten Untersuchungen aufgeführt.

Anschließend an die Messung der Beladepazität und Durchbruchzeit wurde im Labor ein Desorptionsversuch mit der Degussa-Aktivkohle F16 und n-Pentan als Prüfmedium gefahren. Dazu wurde die 10 cm hohe Aktivkohlestrecke bis zum Durchbruch mit n-Pentan beaufschlagt. Die Lösungsmittelzufuhr wurde anschließend gesperrt und mit Reinluft gespült. Innerhalb von 24 Stunden desorbierten 92,8 % des beaufschlagten Pentans. Aus dem Prüfstand im Kernkraftwerk Biblis wurde das Filter mit dem Vorfilter F16 nach zwei Monaten Betrieb ausgebaut. Die vier 2,5 cm hohen Aktivkohlebetten wurden in je 50 ml Tetrachlorkohlenstoff extrahiert und gaschromatographisch untersucht.

Im ersten Bett wurden nicht näher identifizierte, hochsiedende Lösungsmittel gefunden (Petroleum-Benzin-Fraktion). Im zweiten, dritten und vierten Bett wurde Xylol in unterschiedlichen Mengen gefunden. Das letzte Vorfilterbett war neben dem zweiten mit der höchsten Lösungsmittelmenge beladen.

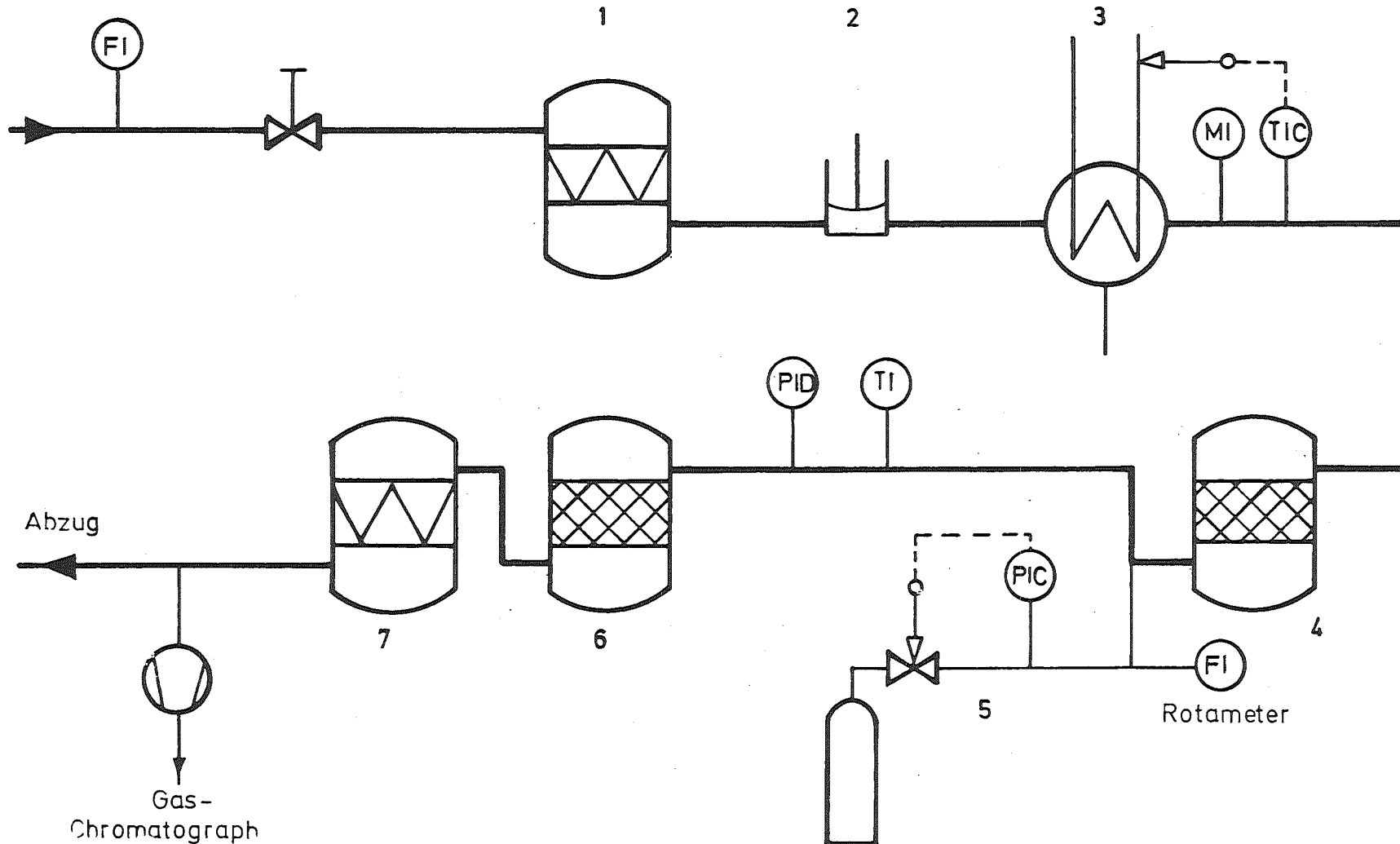
Aus den Messungen geht hervor, daß die Jod-Sorptionsfilter hauptsächlich durch Anstrichlösungsmittel geschädigt werden. Das Vorschalten eines gesonderten Filters erweist sich nur zur Rückhaltung hochsiedender Verbindungen wie z. B. der Petroleum-Benzin-Fraktion vorteilhaft.

Lösungsmittel wie Xylol und Toluol werden durch Aktivkohlebetten so schnell transportiert, daß eine Rückhaltung mit Vorfiltern von Dimensionen, die in Filteranlagen von Kernkraftwerken eingesetzt werden können, nicht möglich ist.

ABB :4114-1

LABORANLAGE ZUR ÜBERPRÜFUNG DER LÖSUNGSMITTELADSORPTION  
VON VERSCHIEDENEN AKTIVKOHLEN

- 1 Schwebstofffilter
- 2 Membranpumpe
- 3 Kühler
- 4 Aktivkohlefilter
- 5 Lösungsmitteldosierstrecke
- 6 Aktivkohleprobefilter
- 7 Schwebstofffilter





Tab. 4114-1: Beladepazität und Durchbruchzeiten verschiedener Aktivkohlebetten für n-Pentan

Kohlesorte	Einwaage Schüttdichte [g/cm <sup>3</sup> ]	Korngröße [mm]	Druck- abfall in der Kohle [mmWS]	Lösungs- mittel- beauf- schlagung [g/h]	relative Feuchte [%]	Temperatur des Gas- stromes [°C]	Verweil- zeit [s]	Durchbruchs- zeit [min]	Beladung bis zum Durchbruch (Gew.%) bezogen auf Einwaage
CG 2 im- prägniert	90 g 0,460	2	55	2,1	43,4	22,4	0,2	192	7,47
SS 207 B Sutcliff	95 g 0,484	1,8-2	70	2,03	38,9	20,4	0,2	84	5,15
F16/470 Degussa	96 g 0,490	1,8	59	1,91	43,4	20,0	0,2	212	7,03
F16/430 Degussa	90 g 0,460	1,8	59	2,21	32,6	20,4	0,2	172	7,04
F15 Degussa	79,5 g 0,400	1,8	73	1,91	38,4	20,0	0,2	184	7,37
F30 Degussa	81 g 0,410	3	35	2,21	38,4	20,2	0,2	100	4,38
LM-Kohle CEAG-Dominit Sorborit	84 g 0,427	3	40	1,91	46,7	20,0	0,2	118	4,47
LM-Kohle F30/470	106 g 0,540	3	35	2,22	46,1	19,8	0,2	120	4,19

### Entwicklung von diskriminierenden Jodsammlern

(H. Deuber)

Die physikalische Form und chemische Zusammensetzung des Spaltjods in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken bestimmen entscheidend das Ausmaß der Strahlenbelastung (Schilddrüsendosis) in der Umgebung von Kernkraftwerken über den Weide-Kuh-Milchpfad. Die Anteile der Jodkomponenten in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken sollen mit diskriminierenden Jodsammlern gemessen werden. In diesen werden die Jodkomponenten an Schwebstofffiltern bzw. selektiven Sorptionsmaterialien abgeschieden und somit getrennt. Vorerst ist die Bestimmung von Aerosoljod, elementarem Jod und organischen Jodverbindungen beabsichtigt. Diese Jodkomponenten sollen in dem in Entwicklung befindlichen diskriminierenden Jodsammler in der genannten Reihenfolge abgeschieden werden.

In den vorhergehenden Versuchen (1. PNS-Halbjahresbericht 1975, S. 117-120) hatte sich gezeigt, daß AC 6111, imprägniert mit 8,5 % KJ, unter bestimmten Bedingungen als selektives J<sub>2</sub>-Sorptionsmaterial angesehen werden kann (hoher Abscheidegrad für J<sub>2</sub>, sehr niedriger Abscheidegrad für CH<sub>3</sub>J). Im Berichtszeitraum wurde die Prüfung der Selektivität von AC 6111-KJ im Parameterbereich, der für die Untersuchung der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken von Bedeutung ist, fortgesetzt.

Die mit trägerfreiem  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{CH}_3\text{J}$  erzielten Ergebnisse sind in Tab. 4114-2 wiedergegeben. Wie ersichtlich, lag der integrale Abscheidegrad bei der für den diskriminierenden Jodsammler vorgesehenen Bett-Tiefe von 7,5 cm meistens weit unter 1 %, nur bei hoher Temperatur und Feuchte ( $70^\circ\text{C}$ , 80 % r. F.) war der integrale Abscheidegrad etwas höher. Die Abscheidung von  $\text{CH}_3\text{J}$  stellt in dem untersuchten Parameterbereich also keine wesentliche Beeinträchtigung der Selektivität von AC 6111-KJ dar.

Die Versuche mit trägerfreiem  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{J}_2$  lieferten unbefriedigende Ergebnisse. Wie aus dem in Tab. 4114-2 aufgeführten Versuch hervorgeht, ergeben sich niedrige integrale Abscheidegrade. Ein Konzentrationseffekt ist auszuschließen. Es muß vielmehr angenommen werden, daß teilweise nichtelementares Jod vorlag.  $\text{CH}_3\text{J}$  kann jedoch nicht ausschließlich für die niedrigen integralen Abscheidegrade verantwortlich gewesen sein. Es muß mindestens eine weitere, an AC 6111-KJ leichter abscheidbare Jodkomponente vorgelegen haben. In dem angeführten Versuch wurde  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{J}_2$  durch Oxidation (Schmelzen) von thiosulfatfreiem  $\text{K}^{131}\text{J}$  mit  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  hergestellt. Bei Verwendung von thiosulfathaltigem  $\text{K}^{131}\text{J}$  traten besonders große Anteile unbekannter Jodkomponenten auf.

Die Versuche werden z. Z. mit trägerhaltigem  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{J}_2$  fortgesetzt. Vor dem Einsatz des diskriminierenden Jodsammlers vor Ort ist noch das Ausmaß der  $\text{J}_2$ -Desorption von AC 6111-KJ bei langer Versuchsdauer festzustellen.

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

AC 6111-KJ

Trägerkonzentration:  $10^{-4} \text{ mg/m}^3$

Luftgeschwindigkeit: 25 cm/s

Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm

Beaufschlagungszeit: 1 h

Vorströmzeit :  $\geq 20$  h

Nachströmzeit : 2 h

Jodform	Bett-Temperatur [ $^{\circ}\text{C}$ ]	Luft-Feuchte [%]	Bett-Tiefe [cm]	Abscheidegrad integral [%]	Abscheidegrad differentiell [%] <sup>+) </sup>	
$\text{CH}_3\text{J}$	30	70	2,5	0,045	0,045	
			5,0	0,087	0,043	
			7,5	0,130	0,043	
	10	15	70	2,5	0,026	0,026
				5,0	0,044	0,018
				7,5	0,074	0,030
		80	70	2,5	0,006	0,006
				5,0	0,013	0,006
				7,5	0,019	0,008
	70	20	70	2,5	0,25	0,25
				5,0	0,49	0,24
		80	70	2,5	0,53	0,53
5,0				1,06	0,52	
7,5	1,59	0,54				
$\text{J}_2$	30	70	2,5	70,0	70,0	
			5,0	76,8	22,7	
			7,5	80,5	16,1	

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

## Versuche zur Verflüchtigung und Abscheidung von hypoiodiger Säure

Die Versuche zur Verflüchtigung und Abscheidung von hypoiodiger Säure, einer nach unbestätigten Literaturangaben penetrierenden Spaltjodverbindung, wurden fortgesetzt. In den vorhergehenden Versuchsreihen (1. PNS-Halbjahresbericht 1975, S. 120 - 123) war ein neueres Verfahren zur angeblichen Herstellung von gasförmiger hypoiodiger Säure (HJO) überprüft worden. Dabei hatte sich ergeben, daß aus alkalischen Lösungen von trägerfreiem Jodid eine durch AC 6120 schwer abscheidbare Jodkomponente (Anteil im Trägergas unter den vorliegenden Bedingungen etwa 10 %) verflüchtigt werden kann. Im Berichtszeitraum wurden Versuche sowohl mit  $^{131}\text{J}^-$ -Lösungen als auch mit  $^{131}\text{J}_2$ -Lösungen durchgeführt mit dem Ziel, einen möglichst großen Anteil an schwer abscheidbarer Komponente im Trägergas zu erhalten und Hinweise auf die Identität derselben zu gewinnen.

Hinsichtlich der Identifizierung der schwer abscheidbaren Jodkomponente sind Temperatur, pH-Wert und  $\text{J}^-$ - bzw.  $\text{J}_2$ -Konzentration der Lösung von Bedeutung. Aufgrund der Bildung von HJO nach



und der amphoteren Eigenschaften von HJO ist folgender Zusammenhang zwischen den genannten Parametern und dem Anteil der schwer abscheidbaren Komponente zu erwarten, falls diese aus HJO besteht:

Der Anteil sollte groß sein bei

- a) hohen Temperaturen;
- b) mittleren pH-Werten;
- c) niedrigen Trägerkonzentrationen.

Der Einfluß der Temperatur ist allerdings wegen des wahrscheinlich schnelleren Zerfalls von HJO bei hoher Temperatur nicht eindeutig.

Die Versuche wurden wie beschrieben durchgeführt (1. PNS-Halbjahresbericht 1975, S. 121). Als Trägergas diente Luft. Die  $^{131}\text{J}_2$ -Lösungen wurden durch Mischen von  $^{131}\text{J}^-$  und überschüssigem  $\text{JO}_3^-$  bei pH0 und spätere Zugabe von  $\text{OH}^-$  entsprechend dem gewünschten pH-Wert hergestellt.

Die gefundenen Abscheidegrade und Durchlaßgrade gehen aus den Tab. 4114-3 bis 4114-5 bzw. den Abb. 4114-2 bis 4114-8 hervor. Einen Überblick über die in den Versuchen insgesamt abgeschiedenen Aktivitäten gibt die Tab. 4114-6.

Die bei Variation der Temperatur, des pH-Wertes und der Trägerkonzentration erhaltenen Durchlaßgrade (Abb. 4114-2 bis 4114-7) entsprechen qualitativ weitgehend den früher gefundenen (1. PNS-Halbjahresbericht 1975, S. 123). Die Analyse dieser Durchlaßprofile ergibt, daß mindestens drei Jodkomponenten im Trägergas vorhanden waren: Eine schwer (Komponente X), eine leicht ( $\text{CH}_3\text{J}$ ) und eine sehr leicht abscheidbare Komponente ( $\text{J}_2$ ). Der Anteil der Komponente X lag in allen Versuchen unter 10 %. In den Versuchen mit  $\text{J}_2$ -Lösungen war er meistens kleiner als in den Versuchen mit  $\text{J}^-$ -Lösungen. Mit fallendem pH-Wert verringerte sich dieser Anteil bei Verwendung von  $\text{J}^-$ -Lösungen, während er bei Einsatz von  $\text{J}_2$ -Lösungen praktisch konstant blieb. Dieses wurde bei 20 und 90°C festgestellt. Die Temperatur hatte einen geringen Einfluß. In beiden Versuchsreihen sank der Anteil der Komponente X geringfügig bei Temperaturerhöhung. Die Erhöhung der Trägerkonzentration hatte bei  $\text{J}^-$ - und  $\text{J}_2$ -Lösungen eine Erniedrigung des Anteils der Komponente X im Trägergas zur Folge.

Die Abhängigkeit des Anteils der Komponente X von den genannten Parametern entspricht also nur teilweise der anfangs genannten, bei Vorliegen von  $\text{HJO}$  erwarteten Abhängigkeit. Eine Identifizierung der Komponente X mit  $\text{HJO}$  ist aufgrund der vorliegenden Versuche also nicht möglich.

Der Anteil von  $\text{CH}_3\text{J}$  im Trägergas war bei hohen pH-Werten am größten. Wie aus den Durchlaßprofilen, die bei einer relativen Feuchte von 90 % gewonnen wurden (Abb. 4114-6 und 4114-7), hervorgeht, lag der Anteil von  $\text{CH}_3\text{J}$  bei pH 12 unter den angegebenen Bedingungen im Falle der  $\text{J}^-$ -Lösung bei etwa 90 %, im Falle der  $\text{J}_2$ -Lösung bei rund 30 %. (In diesen Durchlaßprofilen wird  $\text{CH}_3\text{J}$  durch den geradlinigen Teil repräsentiert). Die Ergebnisse der Versuche mit dem  $\text{J}_2$ -Sorptionmaterial AC 6111-KJ (Tab. 4114-5 und Abb. 4114-8) stehen mit diesen Werten in Einklang (80 %  $\text{CH}_3\text{J}$  bei der  $\text{J}^-$ -Lösung, 20 %  $\text{CH}_3\text{J}$  bei der  $\text{J}_2$ -Lösung). - Der Anteil an  $\text{J}_2$  war, wie erwartet, am größten bei niedrigen pH-Werten.

Tab. 4114-3: Abscheidung der aus  $^{131}\text{J}^-$ -Lösungen verflüchtigten Aktivität an AC 6120

Konzentration des  $\text{J}^-$  in der Lösung :  $10^{-9}$  mol/l  
 Luftfeuchte : 50 % r. F.  
 Luftstrom durch die Lösung : 10 l/h  
 Luftstrom durch das Sorptionsmaterial: 441 l/h  
 Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm  
 Temperatur des Sorptionsmaterials :  $20^\circ\text{C}$   
 Beaufschlagungszeit : 1 h  
 Vorströmzeit :  $\geq 15$  h  
 Nachströmzeit : 0 h

Zustand der Lösung		Abscheidegrad [%]					
		Bett-Tiefe [cm]					
T [ $^\circ\text{C}$ ]	pH	1,25	2,5	5,0	7,5	10,0	12,5
20	0	99,26	99,911	99,958	99,972	99,981	99,989
	6	93,9	98,3	99,64	99,76	99,82	99,89
	8	81,6	94,5	98,5	99,24	99,44	99,58
	12	79,9	92,3	97,1	98,0	98,7	99,12
	14	82,3	93,3	96,8	97,5	98,2	98,5
90	0	99,04	99,931	99,974	99,984	99,989	99,9925
	8	96,8	99,34	99,71	99,79	99,83	99,88
	12	85,7	95,6	99,18	99,53	99,59	99,65
	14	75,8	92,5	98,6	99,14	99,36	99,47
20	12 +)	88,3	97,0	99,55	99,79	99,84	99,87
	12 ++)	33,1	49,0	71,3	83,5	90,9	95,6

+) Konzentration des  $\text{J}^-$   $10^{-5}$  mol/l  
 ++) Luftfeuchte 90 % r. F.

Tab. 4114-4: Abscheidung der aus  $^{131}\text{J}_2$ -Lösungen verflüchtigten  
Aktivität an AC 6120

Konzentration des  $\text{J}_2$  in der Lösung :  $10^{-9}$  mol/l  
 Luftfeuchte : 50 % r. F.  
 Luftstrom durch die Lösung : 10 l/h  
 Luftstrom durch das Sorptionsmaterial: 441 l/h  
 Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm  
 Temperatur des Sorptionsmaterials :  $20^\circ\text{C}$   
 Beaufschlagungszeit : 1 h  
 Vorströmzeit :  $\geq 15$  h  
 Nachströmzeit : 0 h

Zustand der Lösung		Abscheidegrad [%]						
		Bett-Tiefe [cm]						
T [ $^\circ\text{C}$ ]	pH	1,25	2,5	3,75	5,0	7,5	10,0	12,5
20	0	98,9	99,64	99,74	99,79	99,86	99,911	99,953
	6	98,6	99,50	99,66	99,74	99,83	99,88	99,942
	8	96,9	99,16	99,54	99,70	99,86	99,907	99,928
	12	96,0	98,7	99,31	99,56	99,82	99,907	99,940
	14	95,7	98,7	99,34	99,59	99,83	99,906	99,939
90	0	98,7	99,70	99,81	99,87	99,923	99,947	99,960
	8	98,6	99,75	99,85	99,87	99,904	99,119	99,929
	12	98,1	99,40	99,63	99,75	99,87	99,911	99,927
	14	94,7	98,99	99,68	99,85	99,945	99,970	99,981
20	12 +)	98,9	99,945	99,982	99,989	99,9923	99,9939	99,9967
	12++)	78,8	86,5	90,7	93,5	96,4	97,2	97,5

+) Konzentration des  $\text{J}_2$   $10^{-5}$  mol/l

++) Luftfeuchte 90 % r. F.

Tab. 4114-5: Abscheidung der aus  $^{131}\text{J}^-$ - bzw.  $^{131}\text{J}_2$ -Lösungen verflüchtigten Aktivität an verschiedenen Sorptionsmaterialien

Temperatur der Lösung	: 20°C
pH-Wert der Lösung	: 12
Konzentration des $\text{J}^-$ - bzw. $\text{J}_2$ in der Lösung:	$10^{-9}$ mol/l
Luftfeuchte	: 50 % r. F.
Luftstrom durch die Lösung	: 10 l/h
Luftstrom durch das Sorptionsmaterial	: 441 l/h
Verweilzeit	: 0,1 s/2,5 cm
Temperatur des Sorptionsmaterials	: 20°C
Beaufschlagungszeit	: 1 h
Vorströmzeit	: $\geq 15$ h
Nachströmzeit	: 0 h

Art der Lösung und des Sorptionsmaterials		Abscheidegrad [%]					
		Bett-Tiefe [cm]					
		1,25	2,5	5,0	7,5	10,0	12,5
$\text{J}^-$	AC 6111-KJ <sup>+) </sup>	15,7	17,1	18,1	18,6	19,0	21,1
$\text{J}_2$	AC 6111-KJ <sup>+) </sup>	38,7	50,1	64,7	73,3	77,6	79,6
	< 1,25 cm AC 6111-KJ <sup>+) </sup> > 1,25 cm AC 6120	26,8	94,9	99,18	99,76	99,89	99,948
	CG 0,8 <sup>++) </sup>	99,917	99,984	99,9904	99,9923	99,9933	99,9944
	< 1,25 cm CG 0,8 <sup>++) </sup> > 1,25 cm AC 6120	99,925	99,986	99,9937	99,9953	99,9967	99,9985

<sup>+)</sup>  AC 6111, Korngröße 0,4 - 2 mm, imprägniert mit 8,5 % KJ

<sup>++)</sup>  Aktivkohle CG 0,8, Stäbchendurchmesser 0,8 mm, imprägniert mit 1 % KJ



Tab. 4114-6: Am Sorptionsmaterial insgesamt abgeschiedene Aktivität

Versuche der Tab. 4114-3 und 4114-4

Art und Zustand der Lösung			abgeschiedene Aktivität [%] <sup>+) </sup>
Art	T [°C]	pH	
J <sup>-</sup>	20	0	10 <sup>-2</sup>
		14	10 <sup>-4</sup>
J <sup>-</sup>	90	0	10 <sup>0</sup>
		14	10 <sup>-4</sup>
J <sub>2</sub>	20	0	10 <sup>0</sup>
		14	10 <sup>-1</sup>
J <sub>2</sub>	90	0	10 <sup>+1</sup>
		14	10 <sup>-1</sup>

<sup>+)</sup>  bezogen auf die in der Lösung vorgelegte Aktivität

Wie besonders aus Abb. 4114-4 ersichtlich, ändert sich bei kleinen Bett-Tiefen das Durchlaßprofil geringfügig, aber deutlich erkennbar, bei Variation des pH-Wertes. Durch alleinige Änderung der Anteile der Komponente X, von CH<sub>3</sub>J und J<sub>2</sub> läßt sich diese Änderung nicht erklären. Man muß vielmehr annehmen, daß bei hohen pH-Werten eine weitere, relativ schwer abscheidbare Jodkomponente auftritt.

In keinem der untersuchten Fälle ergaben sich Hinweise auf das Vorliegen von HJ in der Gasphase.

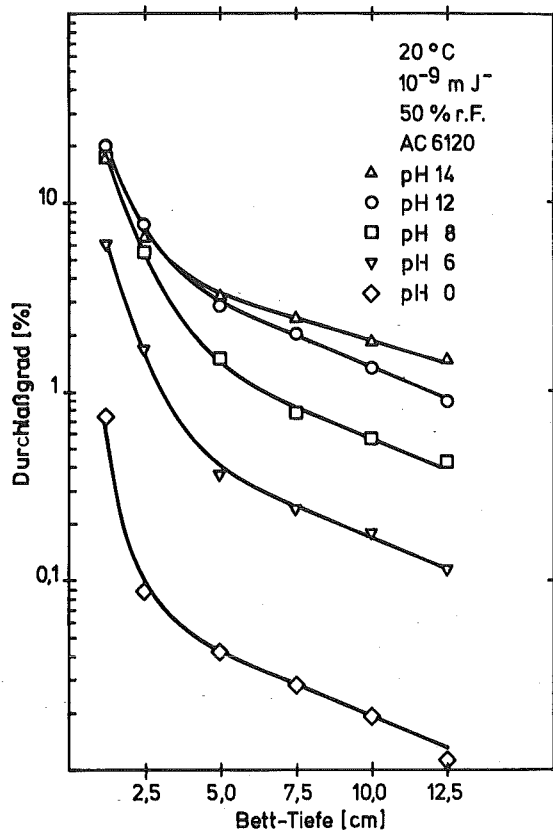


Abb. 4114-2

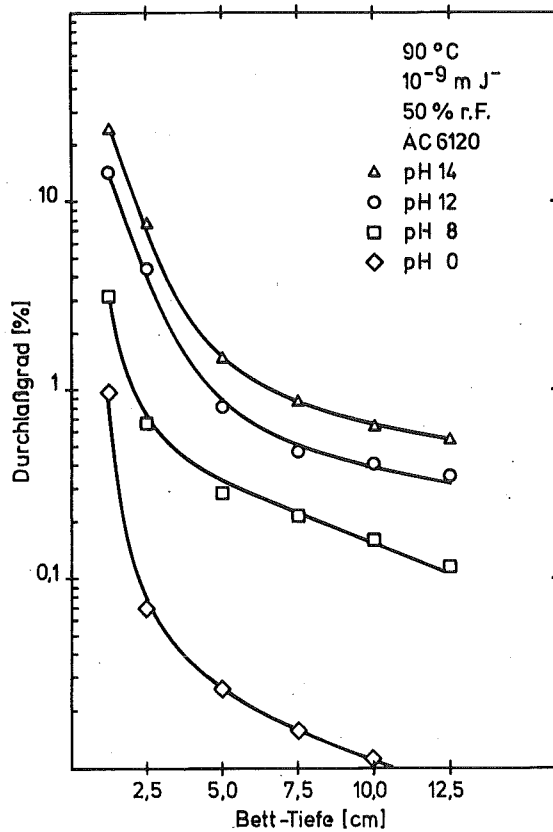


Abb. 4114-3

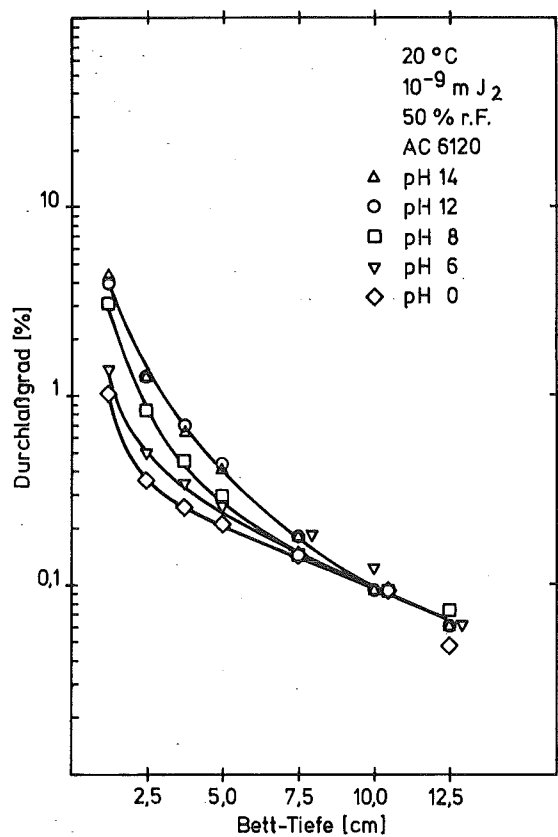


Abb. 4114-4

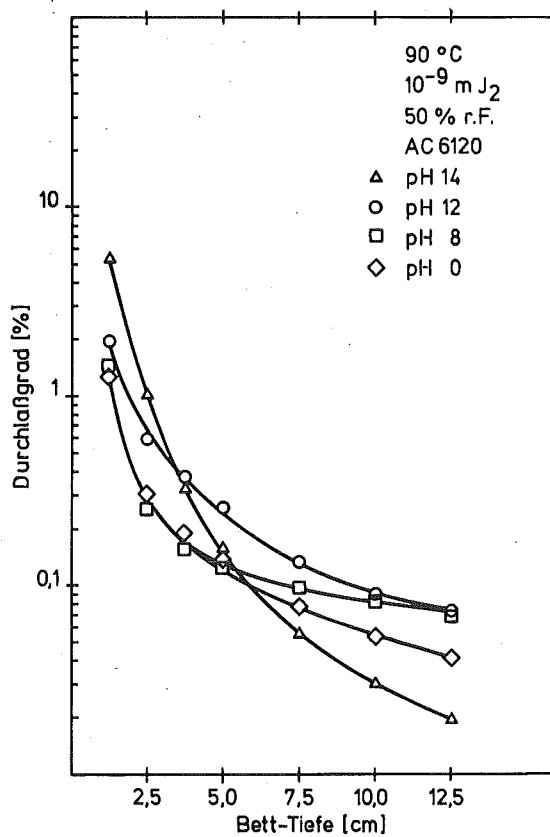


Abb. 4114-5

Durchlaßgrad von AC 6120 für die aus <sup>131</sup>J<sup>-</sup>- bzw. <sup>131</sup>J<sub>2</sub>-Lösungen verflüchtigte Aktivität bei verschiedenen Temperaturen und pH-Werten

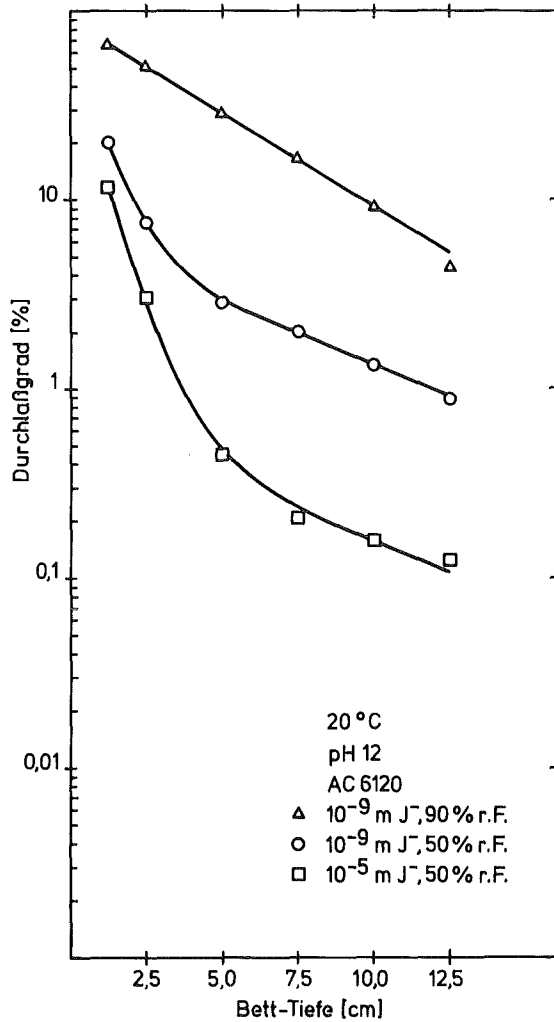


Abb. 4114-6

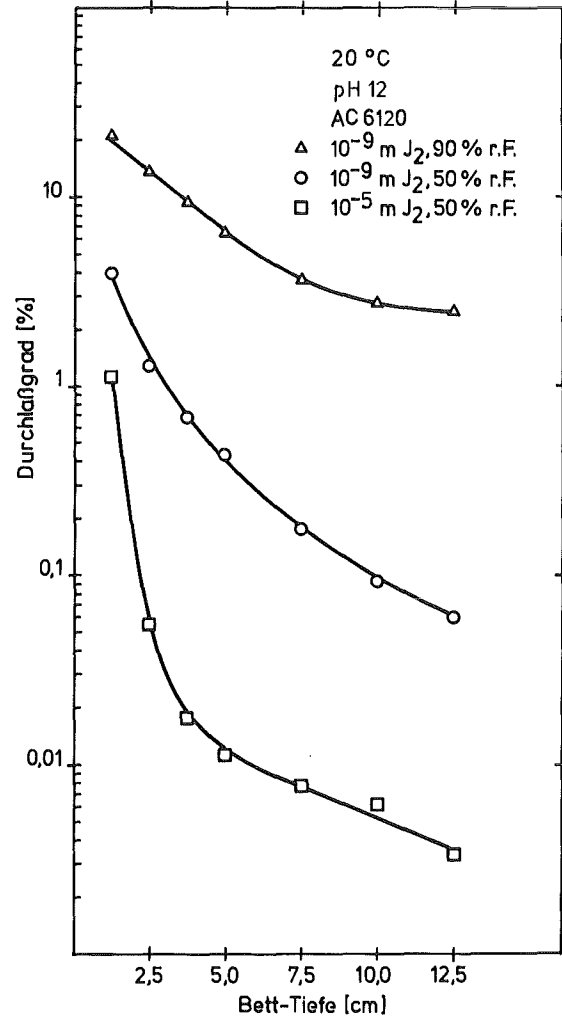


Abb. 4114-7

Durchlaßgrad von AC 6120 für die aus <sup>131</sup>J<sup>-</sup>- bzw. <sup>131</sup>J<sub>2</sub>-Lösungen verflüchtigte Aktivität bei verschiedenen Trägerkonzentrationen und relativen Feuchten

Der Durchlaßgrad der KJ-imprägnierten Aktivkohle CG 0,8 für die aus J<sub>2</sub>-Lösungen verflüchtigte Aktivität war gering (Abb. 4114-8). Ebenso gering war die Durchlässigkeit von AC 6120, wenn diese Aktivkohle vorgeschaltet wurde. Durch Vorschalten von AC 6111-KJ ließ sich der Durchlaßgrad von AC 6120 nicht erniedrigen.

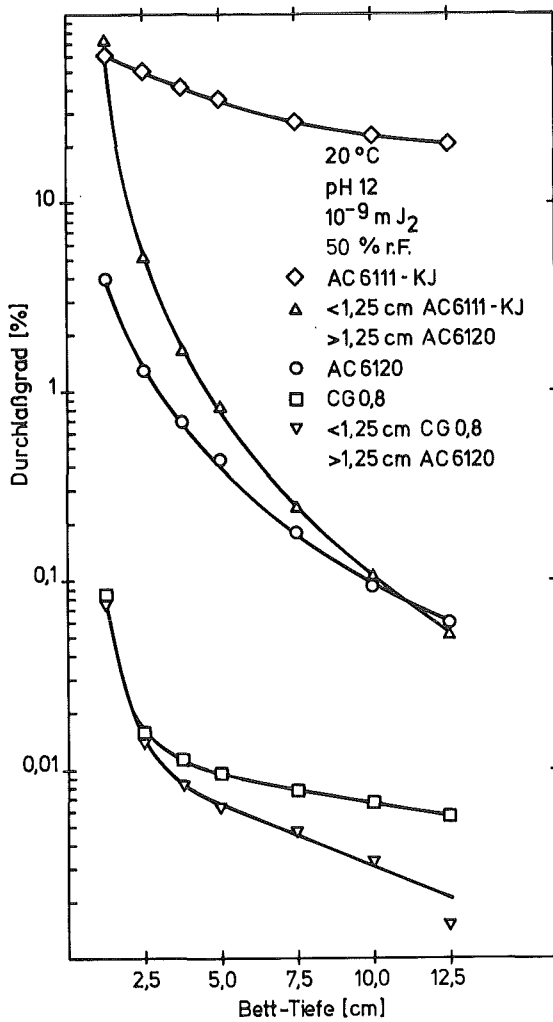


Abb. 4114-8

Durchlaßgrad verschiedener Sorptionsmaterialien für die aus <sup>131</sup>J<sub>2</sub>-Lösungen verflüchtigte Aktivität

### Vor-Ort-Test von Aerosolfiltern

A. Weinert

Mit Hilfe des Flammenverdampfungsverfahrens soll der Nachweis der Funktionsfähigkeit bzw. Leckfreiheit von in Kernkraftwerken installierten Schwebstofffiltern zur Abluftreinigung erbracht werden. Problematisch sind dabei die hohen Aerosolerzeugungsraten, die notwendig sind, um bei dem hohen Abscheidegrad der Filter und den großen Volumenströmen auf der Reinfluftseite noch meßbare Konzentrationen zu erhalten. Derartige Prüfungen sollen mit

Der relativ große Anteil an J<sub>2</sub> im Trägergas in den Versuchen mit J<sub>2</sub>-Lösungen legt eine Änderung des Versuchsaufbaus nahe: Zwischenschalten von schwach alkalischen Wäschern zur verstärkten Hydrolyse des J<sub>2</sub>. Die Versuche werden mit dieser Änderung fortgesetzt.

Natriumchlorid als Prüfmedium durchgeführt werden.

Durch Optimierung der Salzaufbereitung ist es gelungen, Aerosolerzeugungsraten von mehr als  $10 \text{ g min}^{-1}$  zu erreichen. Nach den Laborversuchen bei kleinen Volumenströmen (max.  $850 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ ) konnte in der Filteranlage eines Kernkraftwerkes die Eignung des Verfahrens zur Festaerosolerzeugung bei einem Volumenstrom von  $90.000 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  mit Erfolg getestet werden.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen.

4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktor - Kühlmitteln.  
(I. Michael, G. Bechtold, IRB)

Zur Minderung der Primärkreiskontamination von Druckwasserreaktoren werden Untersuchungen der Metallabgabe von Werkstoffen des Primärkreises durchgeführt. Zur Zeit steht die Untersuchung des Dampferzeugerwerkstoffes INCOLOY 800 im Vordergrund.

Im Berichtszeitraum wurden im 4-Liter-Autoklaven bei 342°C und 150 bar in 500-Studentests die Versuche zur Absenkung der Metallabgabe der Hauptlegierungskomponenten von INCOLOY 800 im Druckwasser fortgeführt. Dabei war der Sauerstoffgehalt des entionisierten Wassers vom Ausgangswert von 5 mg/kg mittels Entgasung, mittels Argonspülung und durch Zugabe von Hydrazien um etwa eine Zehnerpotenz verringert worden.

Abb. 4123-1 zeigt den Verlauf der Metallgehalte der Hauptlegierungskomponenten von Eisen, Chrom und Nickel von INCOLOY 800 im Zeitraum von 500 Stunden. Für diese Legierungskomponenten sind innerhalb der ersten dreißig Stunden hohe Werte des Metallgehaltes feststellbar.

Vom Eisen - Wasser - System ist bekannt, daß sich anfangs und vorwiegend unterhalb von 200°C Eisenhydroxid bildet, das eine hohe Löslichkeit im Druckwasser <sup>1)</sup> besitzt und daher in ionaler Form vorliegen wird. Später und oberhalb von 200°C bildet sich entsprechend der Schickorr-Reaktion Magnetit mit einer geringeren Löslichkeit <sup>1)</sup>.

Dabei geht bei Überschreitung der Löslichkeit Magnetit als Ablagerung an die vergoldete Autoklavenwand, die dabei als Substanzsenke wirkt.

1) Das Löslichkeitsprodukt bei Raumtemperatur für Eisenhydroxid liegt bei  $10^{-16}$ , das vom Magnetit bei  $10^{-38}$  (MOL/Liter)<sup>2</sup>

Ch. Ribon, J.Ph. Berge

Proc. Amer. Power Conf. V 32 (1970) p 721

Auf diese Weise ist der nahezu horizontale Verlauf der Konzentrationskurven von Eisen, Chrom und Nickel nach 150 Stunden erklärlich. Dieser Transport vorwiegend von Eisenoxid von INCOLOY zur Autoklavenwand hat Modellcharakter für den vermuteten Transport der Korrosionsprodukte des Dampferzeugerrohrwerkstoffes zum Brennelementrohrwerkstoff hin im Primärkreislauf, wengleich in diesem Fall der Einfluß der Druckwasserströmung hinzukommt.

Die Metallkonzentration im Druckwasser mindert sich bei Absenkung des Sauerstoffgehaltes des Deionats auf 1/10 nach 450 Stunden für Eisen um 33% und für Nickel um 40%, während der Verlauf des Chromgehaltes infolge der Nachweisgrenze der zur Analyse verwendeten Atom-Absorptions-Spektroskopie (im IRCH wurden Kontrollanalysen gemacht) nicht eindeutig charakterisiert werden konnte.

Die nach 500 Stunden im Druckwasser auf den INCOLOY 800 - Proben (Fläche 32 dm<sup>2</sup>) gebildeten Deckschichten wurden mit den Festkörperoberflächen - Verfahren SIMS und AES analysiert (Fa.Dornier System).

Es zeigte sich, daß die Deckschicht sowohl der INCOLOY 800 Proben mit erhöhtem und mit abgesenktem Sauerstoffgehalt, wie auch die Ablagerungen auf der vergoldeten Autoklavenwand von den Elementen her etwa die gleiche Zusammensetzung haben, daß bei den Ablagerungen aber Eisen überwiegt, während in den Deckschichten Chrom angereichert vorliegt. Diesen Befund bestätigt das Ergebnis der Abb. 4123-1, daß Eisen in relativ hohem, Chrom dagegen in geringerem Maße an das Druckwasser abgegeben wird.

Die Deckschichten enthalten neben Oxid auch Hydroxid und Hydrid.

In der zweiten Hälfte des Berichtszeitraumes zeigte sich, daß nach ca. 4500 Betriebsstunden des Autoklaven über einen Gesamtzeitraum von etwa einem Jahr die innen aufgebrachte Goldschicht abzublättern begann. Es handelte sich dabei um einen Anteil von etwa 10% der Innenoberfläche. Da mit dieser Freilegung der Autoklavenwand sich auch deren erhöhte Metallabgabe an das Druckwasser störend und verfälschend bemerkbar machte, mußten die letzten Untersuchungen unterbrochen werden. Der Autoklav wurde zur galvanischen Neuvergoldung gegeben und mit dieser inzwischen erneuerten Schutzbeschichtung wird das Versuchsprogramm im 1. Quartal 1976 fortgesetzt. Es werden die letzten 500-Studentests wiederholt und danach unter Zugabe von Lithiumhydroxid die Alkalisierung vorgenommen. Das besondere Interesse gilt bei den nächsten Untersuchungen der Analyse des Festkörpergehaltes im

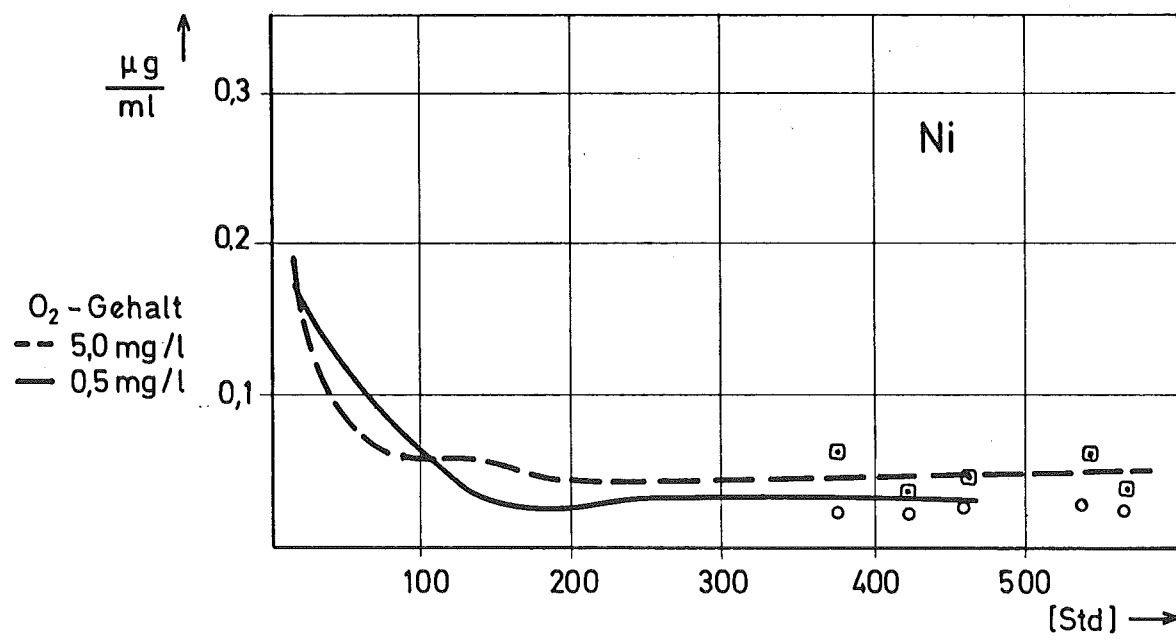
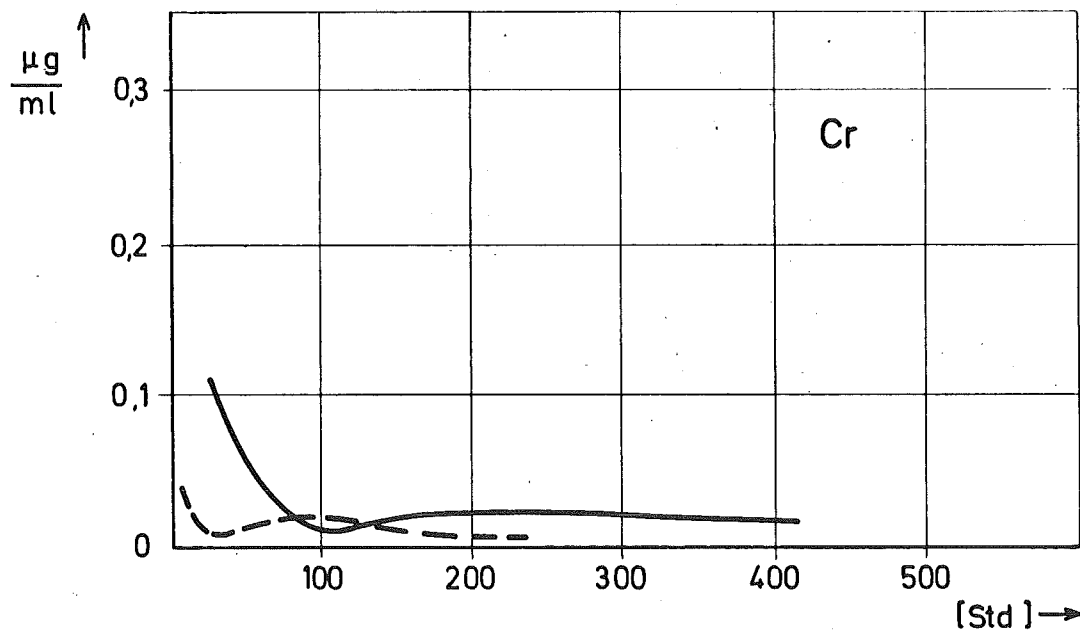
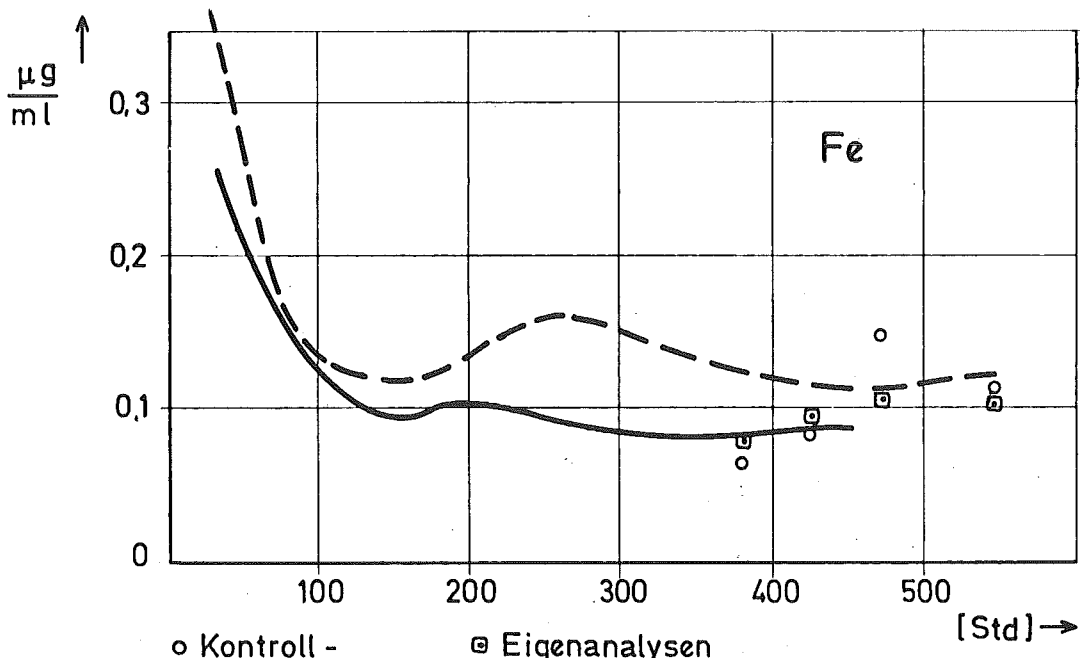


ABB. 4123-1: ZEITLICHER VERLAUF DER KONZENTRATION DER HAUPTLEGIERUNGSBESTANDTEILE VON INCOLOY 800 IN DRUCKWASSER (DEIONAT)



4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung kern-  
technischer Anlagen

(A. Bayer, R. Kalckbrenner, M. Schückler, INR)

Das Programmsystem zur Berechnung der radiologischen Belastung wurde mit der Berücksichtigung einiger zusätzlicher atmosphärischer und hydro-sphärischer Transporteffekte nahezu fertiggestellt. Die Eingabedaten, insbesondere die Standortcharakteristiken, wurden auf der Grundlage der in letzter Zeit veröffentlichten Berichte und persönlicher Kontakte auf den neuesten Stand gebracht.

Bei der Sammlung und Auswertung von Produktions- und Freisetzungsraten wurde der Schwerpunkt auf C-14 und die Aktivierungsprodukte gelegt. Besonders bei C-14 müssen bei der Abschätzung der Belastung die global aus allen kern-technischen Anlagen freigesetzten Mengen berücksichtigt werden, um sie mit der natürlichen C-14-Belastung zu vergleichen. Bei den schweren Isotopen wurde das Studium der Freisetzung aus Wiederaufarbeitungsanlagen in Abhängigkeit von der Art des eingebrachten Brennstoffs und der daraus resultierenden radiologischen Belastung begonnen.

Bei der Durchführung der Oberrheinstudie wurden bereits einige Teilergebnisse erzielt. So zeigt z.B. Abb. 4134-1 die im Jahr 1985 zu erwartenden Cs-137-Konzentrationen im Wasser und an Schwebstoffen. Tab. 4134-1 zeigt die für einige Organe abgeschätzten Dosisraten, die über die Pfade Trinkwasser, Fischkonsum und landwirtschaftliche Produkte, die mit Flußwasser bewässert wurden, zu erwarten sind.

Nach Verbesserung einiger Unterprogramme, die vor allem den Radionuklidtransport im Boden und die Aufnahme in Pflanzen beschreiben, ist in Bälde mit den Endergebnissen (Referenzergebnisse) zu rechnen. Auf der Basis dieser Referenzergebnisse werden dazu Sensitivitätsstudien durchgeführt, um den Einfluß der Ungenauigkeiten von Daten und Modellen abzuschätzen.

Begonnen wurde innerhalb des Berichtszeitraums mit der Analyse der Teile der Rasmussen-Studie, die für das kommende Vorhaben PNS 4330 "Untersuchung der radiologischen Folgen nach Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten" von Bedeutung sind.

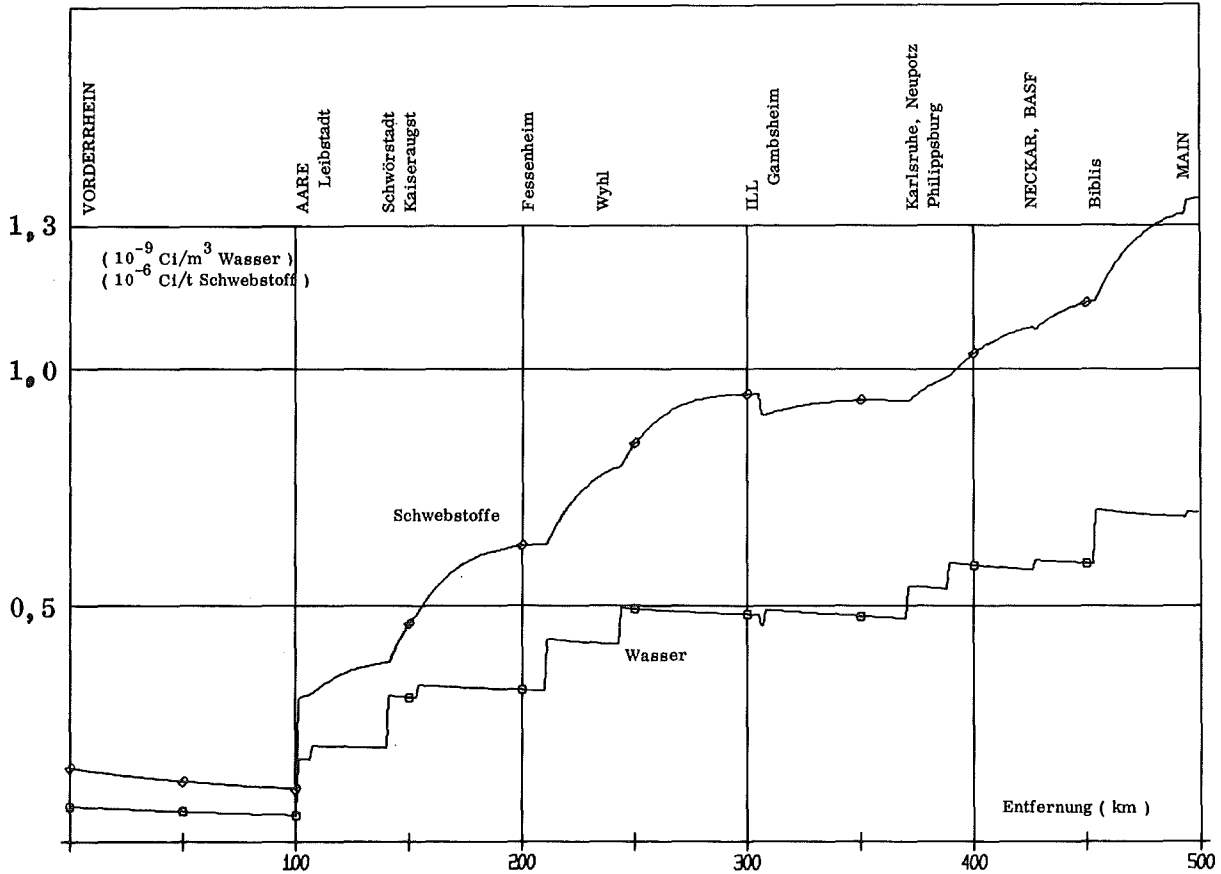


Abb. 4134-1:  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration im Wasser und in den Schwebstoffen des Rheins bei mittlerer Abflußrate im Jahr "1985"

Tab. 4134-1: Maximale und mittlere Ingestionsdosisraten über verschiedene Expositionspfade im Jahr "1985"

Pfad	Dosisraten ( mrem/a )							
	Ganzkörper		MDT		Knochen		Schilddrüse	
	max.	mittl.	max.	mittl.	max.	mittl.	max.	mittl.
1) Trinkwasser	0,041	0,010	0,043	0,010	0,008	0,002	0,132	0,012
2) Bewässerung	0,109	0,007	0,059	0,008	0,132	0,006	0,101	0,004
3) Fisch	5,471	0,023	0,285	0,001	4,730	0,020	0,487	0,002
Summe	5,621	0,040	0,387	0,019	4,870	0,028	0,720	0,018

1) max.: Konsum 1,2 l/d; 100 % Rheinwasser am Ort der höchsten berechneten Aktivitätskonzentration  
mittl.: 1,2 l/d; 25 % Rheinwasser, 75 % Grundwasser

2) max.: 800 g/d Obst/Gemüse, bewässert mit Rheinwasser  
mittl.: 800 g/d Obst/Gemüse, davon ca. 0,5 % bewässert mit Rheinwasser

3) max.: 200 g/d  $\hat{=}$  73 kg/a  
mittl.: 0,5 kg/a

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

(R. v. Ammon, E. Hutter, H. Leichsenring, G. Neffe, W. Weinländer)

1. Versuchsanlage (Fließbild Abb. 4140-1)

Die geplante Versuchsanlage besteht aus der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage zur Krypton- und Xenon-Entfernung (KRETA) und der Adsorptionsanlage mit Molekularsieb (ADAMO) zur  $\text{CO}_2$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Entfernung. Letztere wird im Reinigungsprozeß der Edelgasabtrennung vorgeschaltet um Ausfrieren der Gaskomponenten  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  und damit Verstopfen der Tieftemperaturanlage zu verhindern.

Wesentliche Daten von KRETA wurden in den vorgehenden PNS-Halbjahresberichten KFK 2130 und KFK 2195 genannt.

Die Gesamtanlage ist für folgende Daten ausgelegt:

Prozeßgasmenge:	50 $\text{Nm}^2/\text{h}$
Gaszusammensetzung:	variabel entspr. WA-Abgas
Adsorption bei	5 bis 6 bar abs. Raumtemperatur
1. Kolonne (Edelgasabtrennung)	5 bar abs.
Dekontaminationsfaktor	$10^3$ bis $10^4$
2. Kolonne (Kr-Xe-Trennung)	2,0 bar abs.
Krypton-Anreicherung	80 %

Das Prozeßgas entspricht der erwarteten Zusammensetzung des Abgases einer WA-Anlage beim Spülen der Brennelementschere mit Luft. Der Gasstrom wird aus den reinen Komponenten in einer Gasmischstation zusammengesetzt, wobei das Trägergas  $\text{N}_2$  als Hauptanteil aus dem Flüssigstickstoff-Tank entnommen wird, der auch das Kältemittel der Tieftemperaturanlage liefert.

Das Gas wird von einem Kompressor auf 6 bar abs. verdichtet. Es ist ein Wasserringkompressor mit Abscheidung und Rückführung des Betriebswassers vorgesehen. Diesem ist ein Gaskühler nachgeschaltet, in dem das Prozeßgas auf einen Taupunkt von  $5^{\circ}\text{C}$  abgekühlt wird.

Dieses Gas strömt der ersten Versuchsanlage (ADAMO) zu, in der im halbtechnischen Maßstab folgende Probleme untersucht werden:

1. Rückhaltevermögen der Adsorber für die einzelnen Stoffe
2. Kapazität des Molsiebes (Alterung)
3. Rückspülung der koadsorbierten Kr- und Xe-Anteile
4. Chem. Reaktionen der Komponenten auf dem Mol-Sieb insbesondere von  $\text{NO}_x$  und  $\text{NH}_3$

Das von Verunreinigungen befreite Prozeßgas ( $\text{N}_2$ , Kr, Xe) tritt in die zweite Versuchsanlage (KRETA) ein. In einem Wärmeaustauscher wird das Gas auf 114 K vorgekühlt, wobei als Kühlmittel das Abgas aus der ersten Tieftemperatur-Trennsäule (Kopfprodukt und Kondensatorabgas) verwendet wird. Das nunmehr kalte Gas wird in die erste Trennsäule eingespeist, wo der Stickstoff über Kopf ausgetrieben wird und die Edelgase sich im Sumpf flüssig anreichern. Diese Rektifikationskolonne ist mit Siebböden ausgerüstet und wurde für einen Dekontaminationsfaktor für Krypton von  $10^3$  bis  $10^4$  im Kopfprodukt ausgelegt.

Abb. 4140-2 zeigt die erwartete Konzentrationsverteilung und den Temperaturverlauf über die Kolonnenhöhe.

Neben der Reinigung des  $\text{N}_2$  von den Edelgasen wird hier untersucht:

1. Mögliche Anreicherung noch vorhandener Verunreinigungen im Sumpf und auf den Böden, insbesondere  $\text{NO}_x$  und Kohlenwasserstoffe,
2. Anreicherung noch vorhandenen Sauerstoffs und dessen Entfernung. Durch Strahlung von Kr-85 in einer WA-Anlage ist die Bildung von Ozon zu erwarten, das sich bei tiefen Temperaturen anreichern und explosionsartig zerfallen könnte.

Das Sumpfprodukt wird in eine zweite Trennsäule überführt, wo das Krypton über Kopf abgezogen wird und das Xenon sich flüssig im Sumpf anreichert. Diese Rektifikationskolonne ist mit Füllkörpern ausgerüstet. Beide Edelgase werden in gekühlten Behältern flüssig gesammelt und nach Bedarf durch Kryopumpwirkung bzw. mit einem Membrankompressor abgezogen.

Die gesamte Tieftemperaturanlage ist in einem Vakuumtank als Isolierbox untergebracht. Ein Notablaßsystem mit gekühltem Abblaßtank nimmt bei einem Störfall den flüssigen Inhalt der Kolonnen und Sammelbehälter auf, so daß bei Erwärmung der Anlage der Druckabbau und die abzublasende Gasmenge gering bleiben.

ADAMO und KRETA sind für Kreislaufbetrieb vorgesehen und können einzeln oder im Verbund gefahren werden.

Folgender Stand der Arbeiten wurde erreicht:

Die Komponenten KRETA wurden konstruiert und die Fertigung begonnen. Bei der Ausführung der Siebböden in der ersten Kolonne wurde bereits berücksichtigt, daß evtl. in einer späteren Versuchsphase der Einfluß der Wärmeentwicklung durch Kr-85 simuliert werden soll. Bei der Überarbeitung des Verfahrensschemas wurde das Notablaßsystem ergänzt. Dieses System wird gleichzeitig als mögliches Auffangsystem für die Gase beim Störfall in einer mit Radioaktivität beaufschlagten Abgasreinigung einer Wiederaufarbeitungsanlage getestet.

Die Versorgungseinrichtungen für den Betrieb der Anlage wurden weitgehend bestellt. Mit der Erstellung von Programmen für die Berechnung des Kolonnenverhaltens bei Parameteränderung und von Stoffdaten wurden begonnen.

Die Versuchsanlage ADAMO wurde spezifiziert und ausgeschrieben. Der Lieferauftrag an eine Industriefirma wird zum Jahreswechsel erteilt.

Es wurde entschieden, den Reinigungsschritt der  $\text{NO}_x$ -Entfernung nicht der hier beschriebenen Versuchsanlage vor- sondern dem an anderer Stelle aufzubauenden Auflöserteststand nachzuschalten. Gründe der Versuchsdurchführung und der Wirtschaftlichkeit sprechen dafür. Weiter

wurde beschlossen, nur die  $\text{NO}_x$ -Entfernung durch katalytische Reduktion im halbtechnischen Maßstab zu untersuchen. Das Verfahren der thermischen Zersetzung wird als back-up-Lösung betrachtet.

## 2. Laboruntersuchungen zur Vorreinigung

### 2.1 Adsorption an Molekularsieben

Eine Laboranlage zur Untersuchung der Koadsorption von  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NO}_x$  und den Edelgasen in Gegenwart großer  $\text{H}_2\text{O}$ -Mengen (siehe KFK-Bericht 2195) wurde erstellt. Die Untersuchungen sollen Anfang 1976 beginnen.

### 2.2 Katalytische Reduktion von $\text{O}_2$ und $\text{NO}_x$ mit $\text{H}_2$

In einer dynamischen Laborversuchsapparatur (Durchsatz  $1 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ) wurde eine Reihe von 11 Edelmetallkatalysatoren auf ihre Aktivität hinsichtlich der Reduktion von  $\text{O}_2$  und  $\text{NO}$  mit  $\text{H}_2$  sowie der  $\text{NH}_3$ -Bildung untersucht. Die Eingangskonzentrationen waren jeweils 0,5 %  $\text{NO}$ , 0,75 %  $\text{O}_2$  und 2,75 %  $\text{H}_2$  in  $\text{N}_2$  als Trägergas. Die Temperatur wurde dabei in Schritten von  $100^\circ\text{C}$  bis auf  $500^\circ\text{C}$ , in einigen Fällen bis  $900^\circ\text{C}$  erhöht.

Der Gasdurchsatz wurde zwischen 5, 10 und  $15 \text{ Nm}^3/1 \cdot \text{h}$  Katalysatormaterial variiert. Die Bestimmung der Gaszusammensetzung vor und hinter dem Katalysatorbett erfolgte für  $\text{NO}$  mit dem kontinuierlich messenden Chemolumineszenzgerät Modell 951 der Fa. Beckmann, für  $\text{O}_2$  und  $\text{H}_2$  mittels Gaschromatographie, und für  $\text{NH}_3$  mit Dräger-Röhrchen.

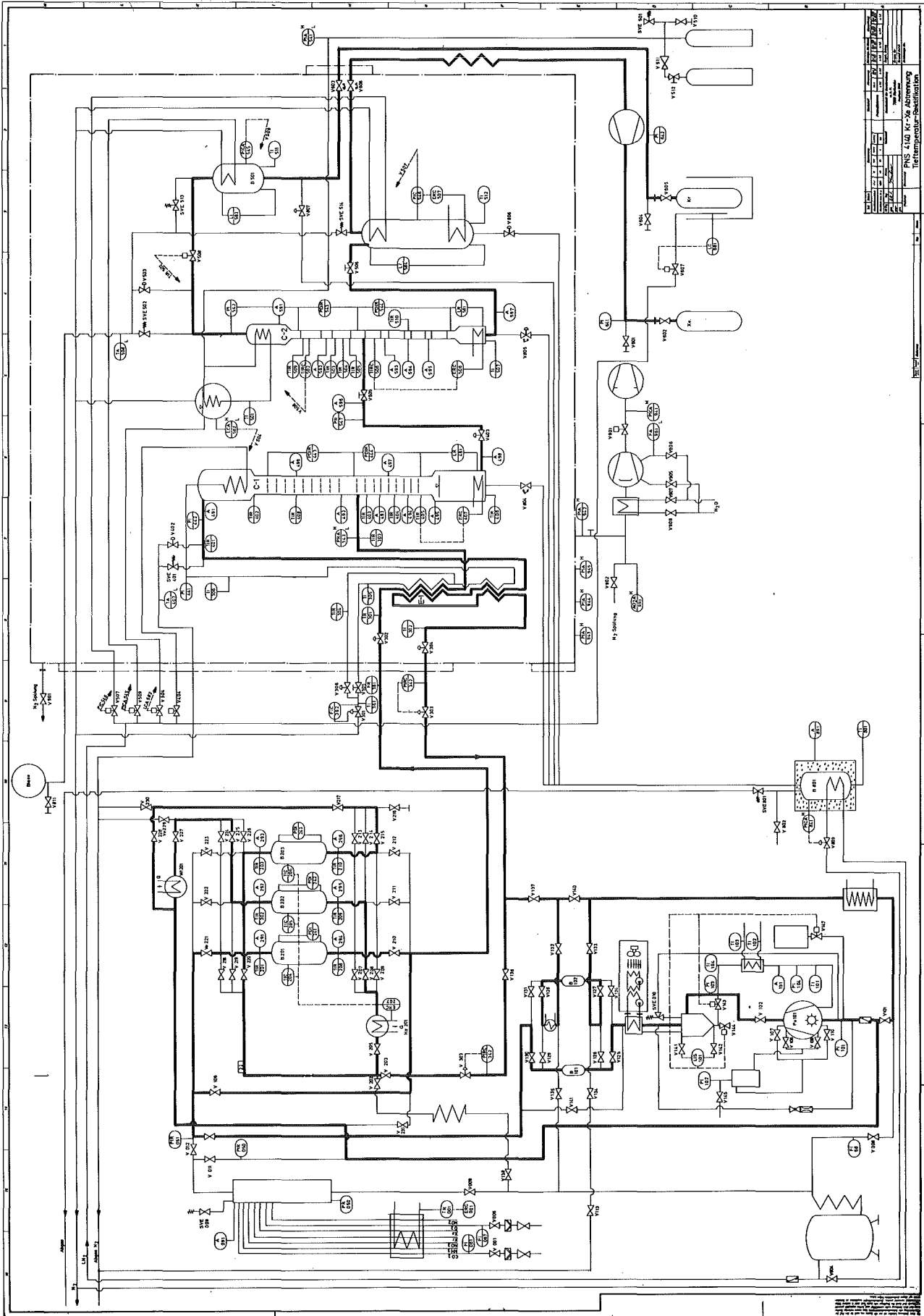
Die Ergebnisse sind übersichtlich in der Abb. 4140-3 dargestellt. Es sind nur die Daten für eine Katalysatorbelastung von  $5 \text{ Nm}^3/1 \cdot \text{h}$  dargestellt, da dieser Durchsatz für alle Katalysatoren ausreichend niedrig war, um bei  $100^\circ\text{C}$  vollständigen Umsatz zu erreichen.

Zwei Ergebnisse fallen ins Auge:

- a) Die meisten Pd- bzw. Pt-haltigen Katalysatoren besitzen besonders niedrige Reaktionstemperaturen: Während die  $O_2$ -Reduktion meist schon bei Raumtemperatur oder wenig darüber abläuft, ist die NO-Reduktion bei  $T > 200^\circ C$  vollständig (rechte Ordinate, gestrichelte Balken). Ru ohne Zusätze bewirkt erst oberhalb  $300^\circ C$  vollständigen Umsatz.
- b) Pd und Pt katalysieren auch die  $NH_3$ -Bildung besonders stark (linke Ordinate, ausgezogene Balken). Das kann bei tiefen Temperaturen dazu führen, daß fast der gesamte angebotene  $H_2$  mit dem Trägergas  $N_2$  reagiert, bevor noch die NO-Reduktion eingesetzt hat. Infolge der Temperaturabhängigkeit des  $NH_3$ -Gleichgewichts sind diese Katalysatoren für unsere Zwecke (Minimierung der  $NH_3$ -Bildung) erst bei Temperaturen  $> 500^\circ C$  brauchbar. Reine Ru-Kontakte zeigen dagegen auch bei  $400^\circ C$   $NH_3$ -Werte von nur 20 - 30 ppm.

Für die weiteren Untersuchungen wurden infolge dieser Befunde die Proben der Fa. Doduco (linker Teil der Abb. 4140-2) ausgewählt.

Erste Versuche an Katalysatorproben, die mit steigenden Mengen Tributylphosphat (TBP) beaufschlagt worden waren, entsprechend einer Menge an  $P_2O_5$ , die 1, 2 und 4 Molekülschichten entspricht, ergaben eine Erhöhung der Reaktionstemperatur um bis zu  $120^\circ$  und eine Zunahme der  $NH_3$ -Bildung von 20 bis auf 200 ppm. Die NO- und  $O_2$ -Umsetzung verlief jedoch auch dann noch bei  $T > 400^\circ C$  vollständig.



PNS 1100 (K) - Air Conditioning Refrigeration System	
Project No.	1100
Revision	1
Date	11/11/11
Drawn by	J. Smith
Checked by	M. Jones
Approved by	D. Brown



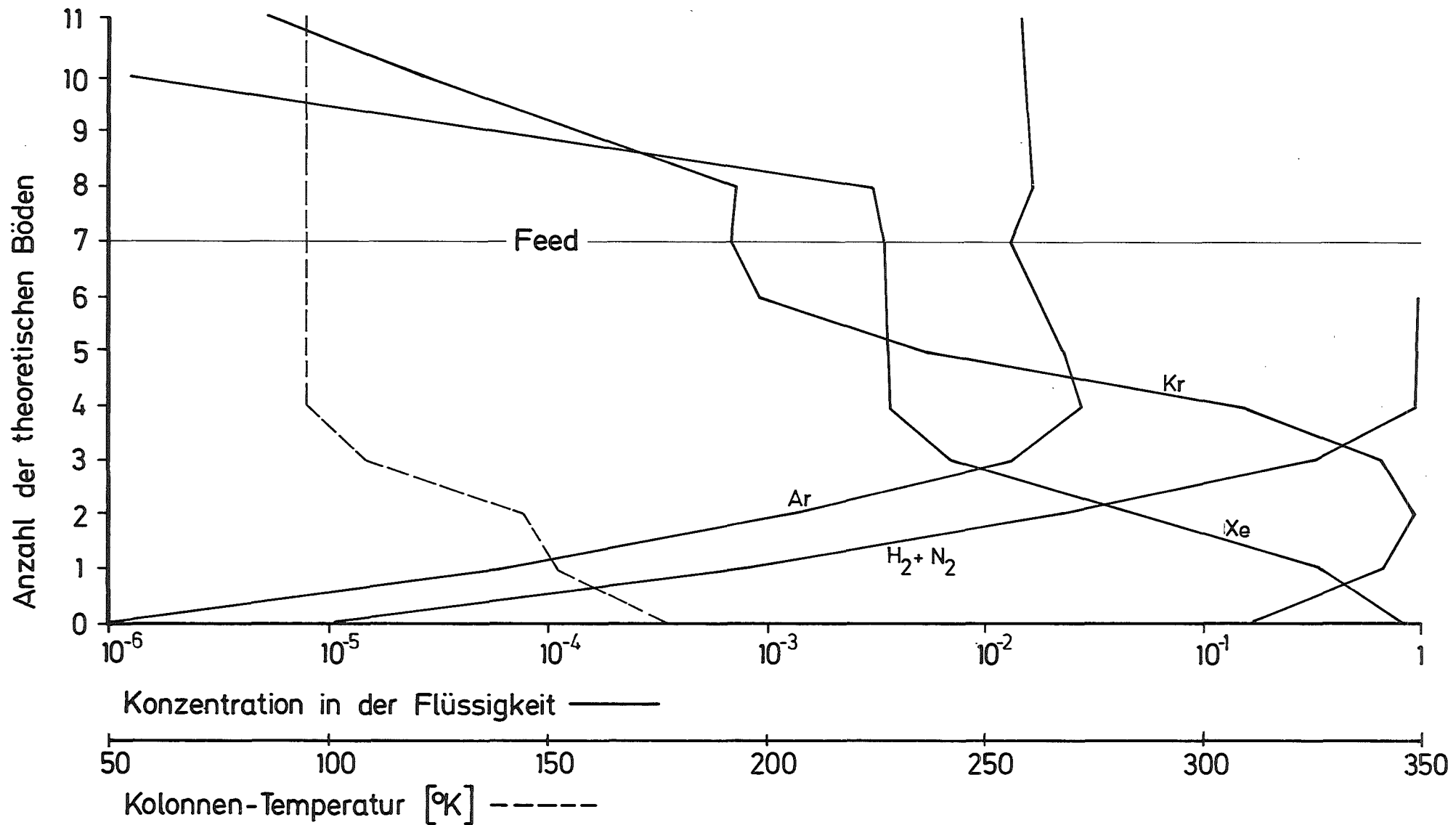
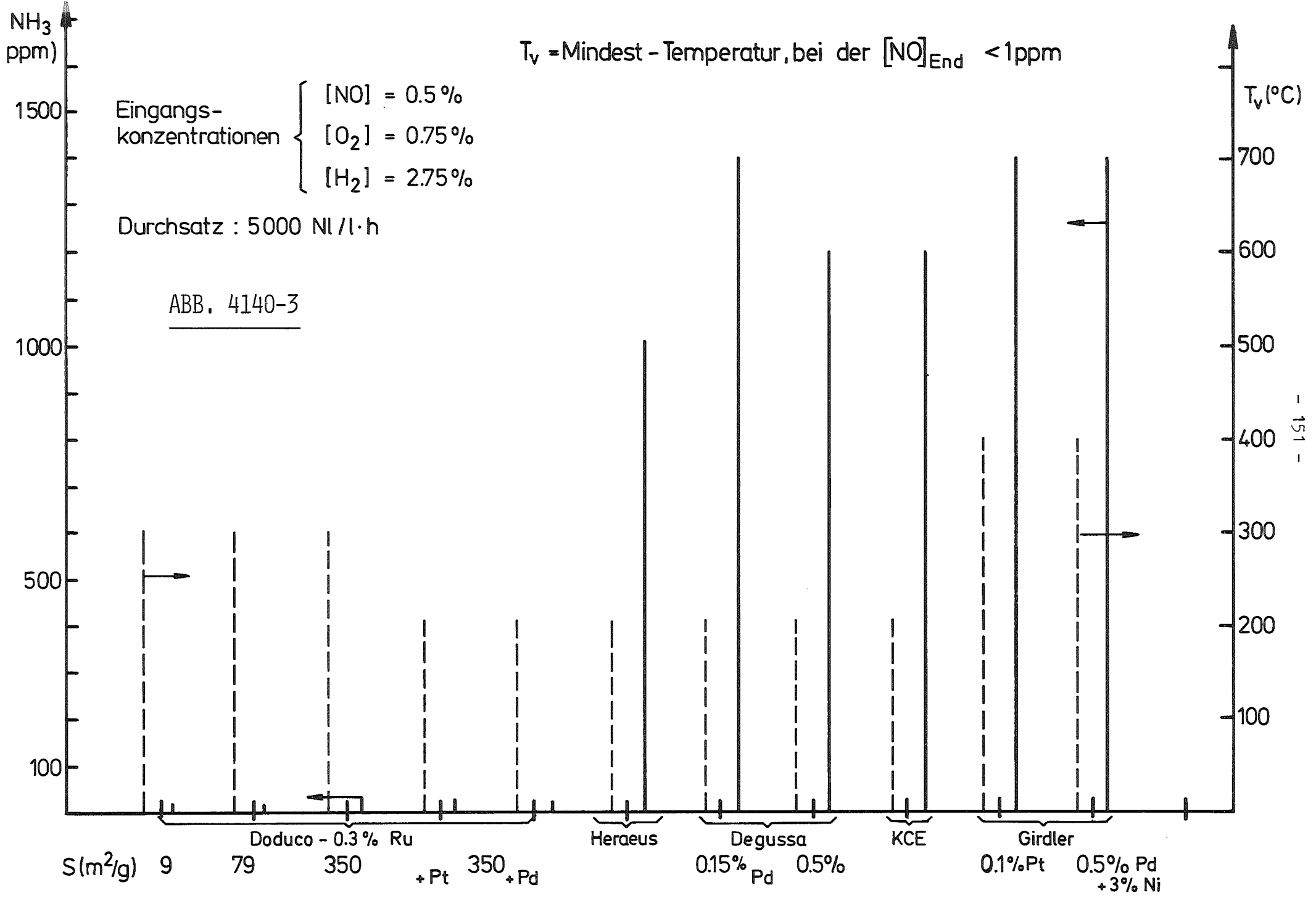


ABB. 4140-2: KONZENTRATIONSVERTEILUNG UND KOLONNENTEMPERATUR IN ABHÄNGIGKEIT VON BODENZAHL



4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

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

1. Stand der Programmentwicklung

Das bereits vorhandene 3-dimensionale Modell zur Berechnung des Aufstiegs und der Ausbreitung von Kühlturmmissionen wurde erweitert. Es ist jetzt möglich, die Doppelwirbelstruktur der Kühlturmfahne zu simulieren. Diese Erweiterung war notwendig, um realistische Verteilungen der Vertikalgeschwindigkeit und des Regentröpfchengehalts zu erzielen. Die mathematischen Grundlagen des Modells WALKÖRE (Simulation der Wirbelstruktur der Abluftströmung aus Kühltürmen mit einem Rechenprogramm) und die Ergebnisse von ersten Testrechnungen sind in einem Bericht /1/ zusammengefaßt.

2. Ergebnisse erster Testrechnungen

Einige Ergebnisse der Testrechnungen sind in den Abbildungen 4152-1 bis 4152-4 dargestellt. Sie sollen einen Eindruck von der Struktur der Kühlturmfahne vermitteln.

Die Verteilung der Übertemperatur in der Fahne (Abb. 4152-1) zeichnet sich durch das Entstehen zweier getrennter Bereiche mit höherer Temperatur aus, hervorgerufen durch das Einströmen von Umgebungsluft an der Unterseite der Fahne. Dieser Prozess kann zur Ausbildung zweier getrennter Maxima führen. Die Temperaturgradienten im oberen Teil der Fahne sind weitaus stärker ausgeprägt als im unteren Teil.

Die Verteilung der zusätzlichen spezifischen Feuchte in der Fahne (Abb. 4152-2) ähnelt stark derjenigen der Temperatur. Der sichtbare Teil der Fahne (in der Abbildung gestrichelt eingetragen) befindet sich meist im oberen Teil der Fahne und kann sich in zwei getrennte Fahnen aufspalten, was an bestehenden Kühltürmen schon beobachtet wurde.

Die Vertikalgeschwindigkeit ist in der Fahne anders verteilt als Temperatur und Feuchte (Abb. 4152-3). Das Maximum auf der Symmetrieachse befindet sich unterhalb desjenigen der Feuchte. Außerdem ist die Vertikalgeschwindigkeit annähernd symmetrisch um eine horizontale Linie in Höhe des Maximums. Im

Gegensatz zu den Temperatur- und Feuchtedifferenzen, die am unteren Rand der Fahne kaum noch feststellbar sind, ist dort noch eine ausgeprägte Vertikalgeschwindigkeit vorhanden.

In der Höhe des Maximums der Vertikalgeschwindigkeit treten an den Flanken der Fahne ausgeprägte Abwindzonen auf. Hierin spiegelt sich der Aufstieg der Fahne in Form eines Doppelwirbels wider. Im oberen und unteren Teil der Fahne sind diese Abwindzonen allerdings stark abgeschwächt. Auffällig ist außerdem die große Ausdehnung der Abwindzonen zu beiden Seiten der Fahne. Jede ist annähernd so breit wie die Fahne selbst.

Bei der Beurteilung der Auswirkungen von Kühlturmfahnen spielt der Niederschlag aus der Fahne eine wesentliche Rolle. Die Verteilung (Abb. 4152-4) des spezifischen Regentröpfchengehaltes ist dafür maßgebend. Aufgrund der Sinkgeschwindigkeit der Tröpfchen fallen diese aus der Fahne aus. Die Tröpfchen verdunsten in dem dargestellten Beispiel allerdings vor Erreichen des Erdbodens. Es kommt deshalb zu keinem Niederschlag. Entscheidend für Niederschlag aus der Kühlturmfahne ist der Gehalt der Regentröpfchen an der Kühlturmöffnung. Der Beitrag zum Regentröpfchengehalt aufgrund der Umwandlung von Wolken in Regentröpfchen ist im allgemeinen nur sehr klein und kann deshalb nur in Fällen mit sehr hoher relativer Feuchte zu merklichem Niederschlag führen.

### 3. Vergleich mit Messungen

Da es sich bei den gezeigten Verteilungen nur um ein willkürlich herausgegriffenes Beispiel handelt, kann ein Vergleich mit Messungen vorerst nur qualitativ erfolgen. Die Messungen, die dafür geeignet sind, wurden unter der Leitung von Prof. Fortak von der DFVLR im Rahmen des HHT-Projekts der Kernforschungsanlage Jülich in den Kühlturmfahnen von Neurath und Meppen durchgeführt /2/. Besonders die Messungen in Meppen (nur ein Kühlturm) sind für einen Vergleich geeignet. Dabei zeigt sich, daß die Verteilungen der relevanten Parameter in der Kühlturmfahne durch das Modell bereits gut beschrieben werden. Sowohl die Form der Fahne bei Temperatur und Feuchte als auch die Vertikalgeschwindigkeitsverteilung mit den Abwindzonen entsprechen den Meßergebnissen. Es ist somit anzunehmen, daß durch Anpassung der Modellparameter auch eine quantitative Übereinstimmung zu erzielen ist. Hierfür sind jedoch die detaillierten Meßdaten erforderlich, die demnächst zur Verfügung stehen werden.

Literatur

- /1/ K. Nester;  
Simulation der Wirbelstruktur der Abluftströmung aus Kühltürmen mit  
einem Rechenprogramm (WALKÜRE)  
KFK-Bericht Nr. 2249, 1976
- /2/ H. Fortak;  
Meßprogramm an Kühltürmen, III. Teil  
JÜL-1250, 1975

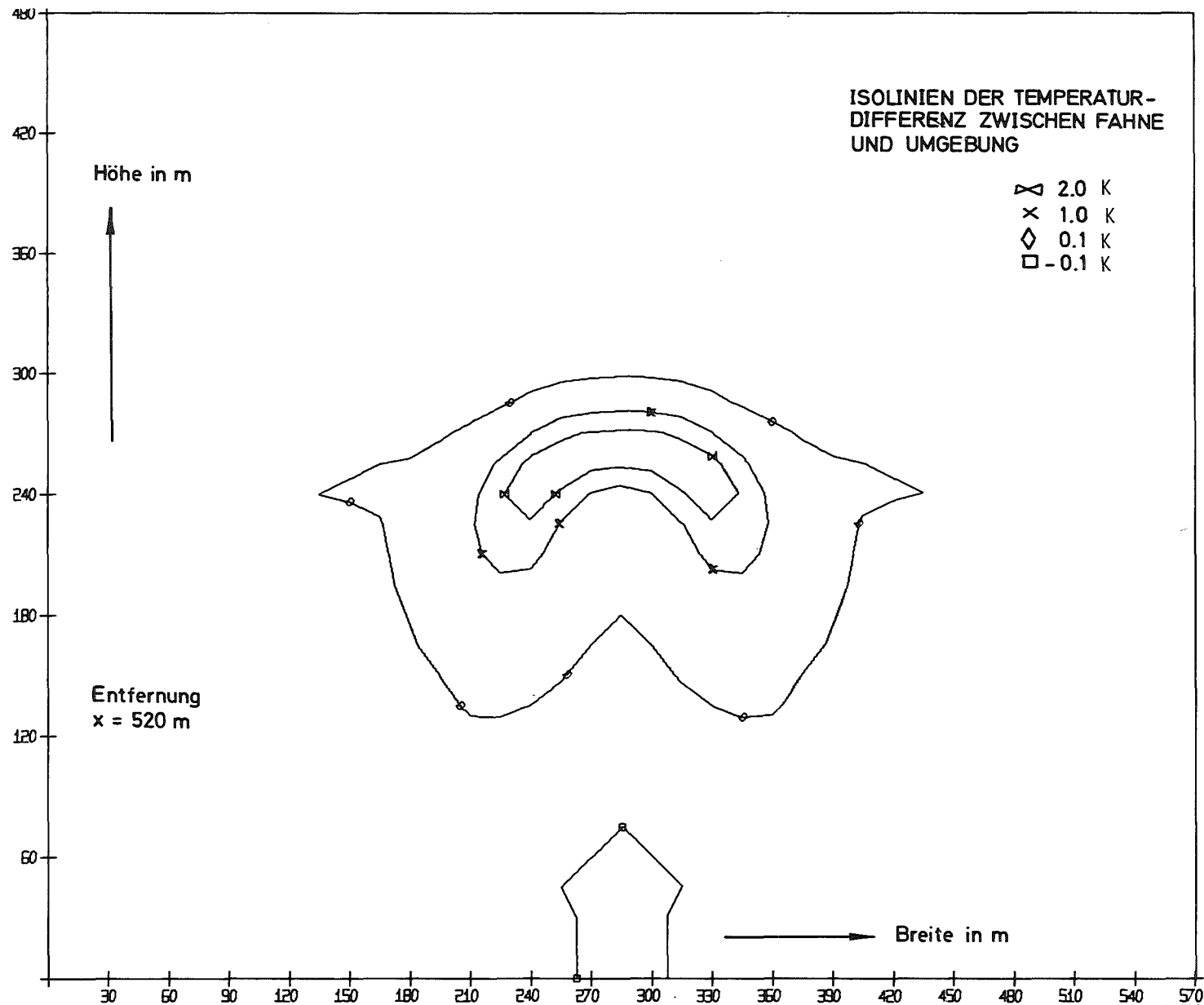


ABB. 4152-1: ISOLINIEN DER TEMPERATURDIFFERENZ ZWISCHEN KÜHLTURMFAHNE UND UMGEBUNG IN EINEM SCHNITT SENKRECHT ZUR TRANSPORTRICHTUNG; ENTFERNUNG 520 M

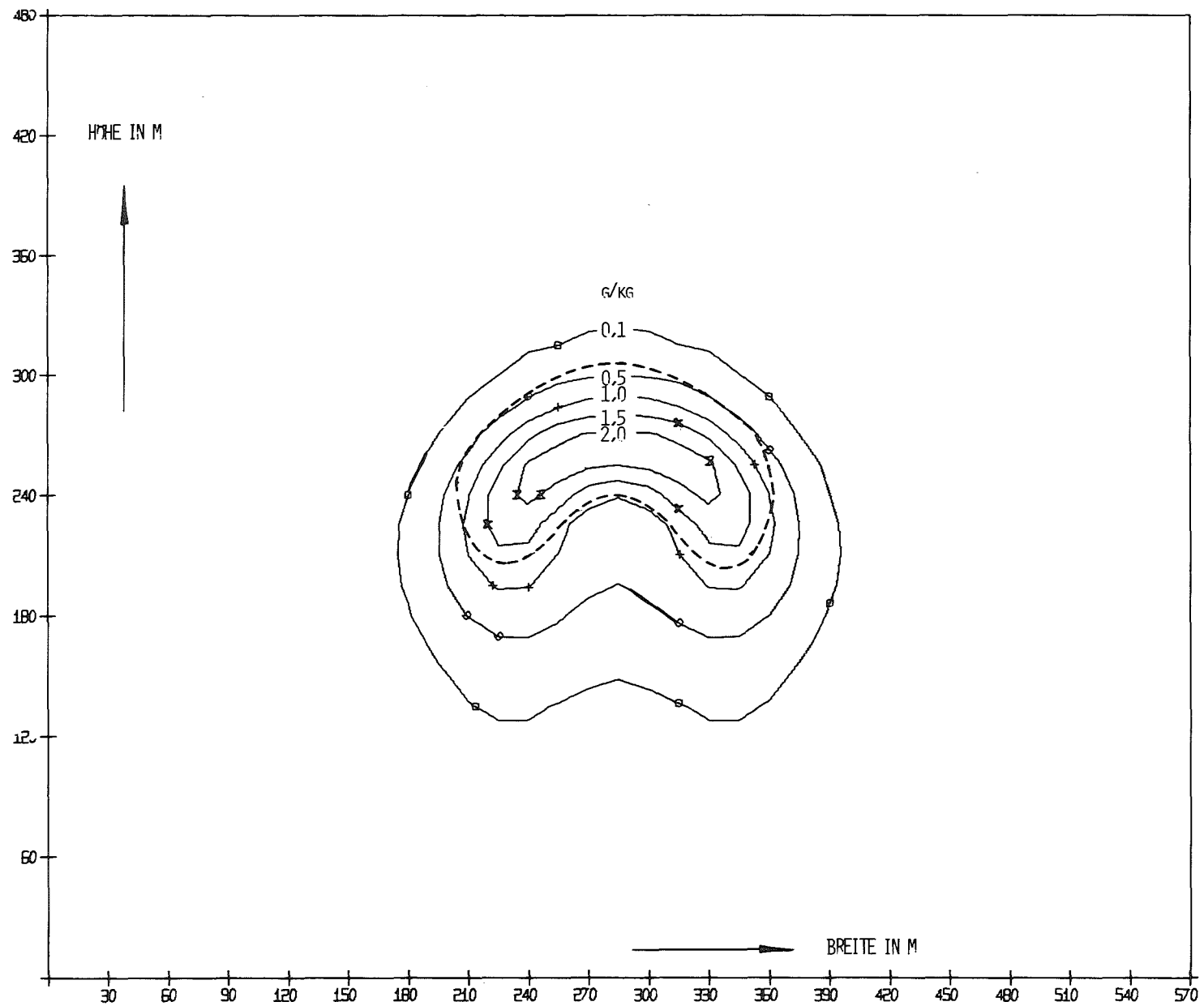


ABB. 4152-2 ISOLINIEN DER SPEZIFISCHEN FEUCHTEDIFFERENZ ZWISCHEN KÜHLTUNNELFAHNE UND UMGEBUNG IN EINEM SCHNITT SENKRECHT ZUR TRANSPORTRICHTUNG;  
ENTFERNUNG 520 M

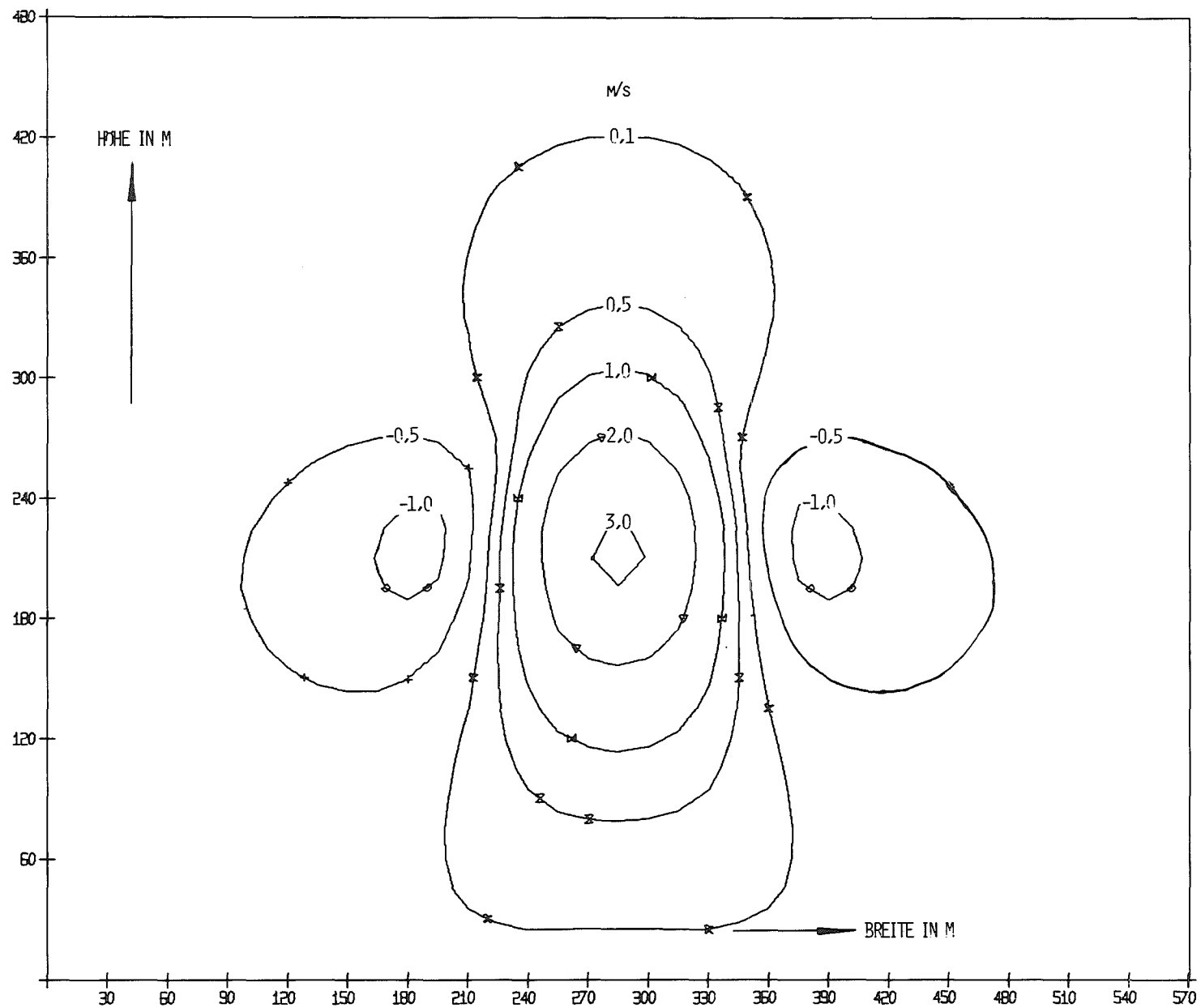


ABB. 4152-3 ISOLINIEN DER VERTIKALGESCHWINDIGKEIT IN EINEM SCHNITT SENKRECHT ZUR TRANSPORTRICHTUNG; ENTFERNUNG 520 M



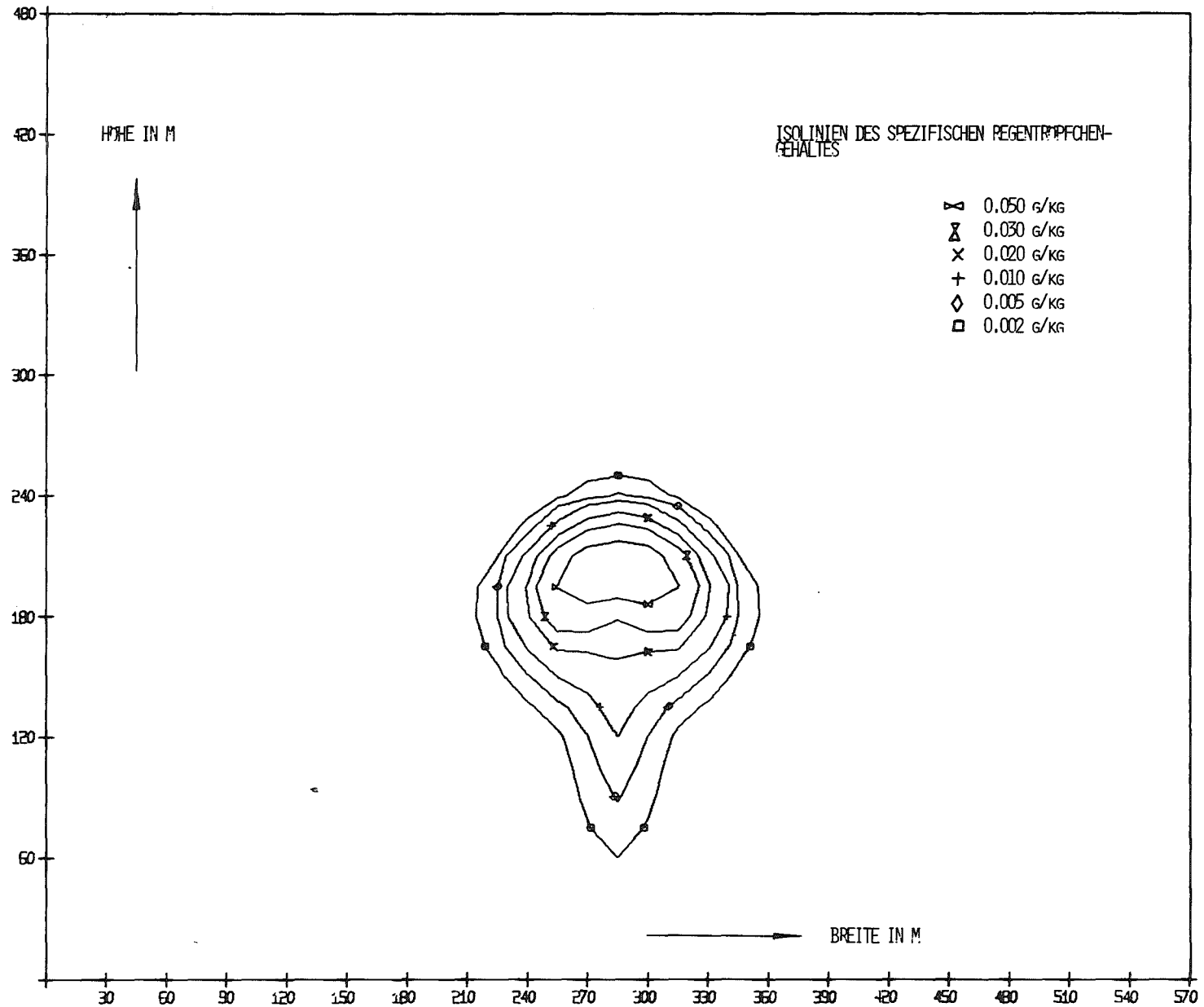


ABB. 4152-4 ISOLINIEN DES SPEZIFISCHEN REGENTRÖPFCHENGEHALTES IN EINEM SCHNITT SENKRECHT ZUR TRANSPORTRICHTUNG,  $N_0 = 10^{10}$  ENTFERNUNG 280 M

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

1. MARVIKEN-Blowdown-Experimente

1.1 Auswertung der MARVIKEN I-Meßergebnisse

(F.Eberle, J.Kadlec, E.Wolf, IRE)

Die Berechnung der akustischen Resonanzfrequenzen des MARVIKEN-Druckunterdrückungssystems wurde mit einem ersten einfachen mathematischen Modell des Gesamtsystems fortgesetzt (Abb. 4211-1). Das Modell berücksichtigt die Kopplung der drei Einzelsysteme: Überströmkanäle, Dampfverteilungskammer und Kondensationsrohre. Die Druckkammer und das Blasenvolumen in der Kondensationskammer sind als Speicher betrachtet und an den äußeren Enden dieses Systems angeschlossen. Das gesamte System wird durch die Erhaltungssätze und die entsprechenden Randbedingungen mathematisch beschrieben (s. Abb. 4211-1). Die entsprechenden Gleichungen für den Massendurchsatz  $G_j(x_j, t)$  und den Druck  $p_j(x_j, t)$  sind auf der linken Seite der Abbildung angegeben. Die Symbole  $p_d$  und  $V_d$  bzw.  $p_w$  und  $V_w$  bezeichnen den quasistationären Druck und das Volumen in der Druckkammer bzw. im Blasenvolumen der Kondensationskammer;  $j$  bezieht sich auf den  $j$ -ten Strömungskanal,  $x_j$  ist die entsprechende Längskoordinate,  $t$  die Zeit. Die Erhaltungssätze führen auf die Wellengleichung (oben Mitte) mit der allgemein bekannten Lösung (oben rechts) für jeden  $j$ -ten Strömungskanal.  $A_j$  bezeichnet die Amplitude und  $\omega$  die Kreisfrequenz der harmonischen Oszillationen des Durchsatzes im Dampfzuführungssystem,  $\varphi_j$  ist die Phasenverschiebung die an den Grenzen zwischen den einzelnen Strömungskanälen entsteht. Die Phasenverschiebung wird durch das entsprechend umgeschriebene System der Randbedingungen (rechts in der Abbildung) bestimmt (die Amplituden  $A_j$  wurden eliminiert). Die Eigenwerte  $\omega_k$  dieses Gleichungssystems bestimmen die gesuchten Eigenfrequenzen  $\nu_k = \omega_k / 2\pi$ . Das entsprechende Rechenprogramm wurde aufgestellt und eine Reihe von Berechnungen für verschiedene Werte von  $c_j$ ,  $p_d$ ,  $V_d$ ,  $p_w$  und  $V_w$  durchgeführt. Die bisher gewonnenen Resultate zeigen, daß die Abhängigkeit der berechneten Eigenfrequenzen von der Schall-

geschwindigkeit zwar etwas schwächer ist (für die niedrigen Frequenzen) als bei den früheren Berechnungen, aber ihr fundamentaler Einfluß erhalten bleibt. Für den Versuch 13 sind die Ergebnisse auf Abb. 4211-2 dargestellt (für  $c_1 = c_2 = c_3 = c$ ). Auf dem Diagramm kann man erkennen, daß die drei ersten berechneten Eigenfrequenzen den gemessenen Werten  $\overline{1}$  recht nahe kommen.

## 1.2 Experimentelle Arbeiten

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

Die Laborversuche zur Entwicklung eines Infrarot-Absorptionsmeßverfahrens wurden erfolgreich abgeschlossen  $\overline{7}$ . Das Beschlagen der Fenster bei großem Flüssigwasseranteil kann durch eine elektrische Beheizung der Fenster und zusätzliches Einblasen eines geringen Stromes vorgewärmter, trockener Luft vermieden werden.

Dem MARVIKEN II-Projekt wurden daraufhin entsprechende Meßgeräte für die kontinuierliche Bestimmung der Gemischzusammensetzung einer  $H_2O$ -Zweiphasenströmung mit Luft als zusätzlicher Komponente und zur Bestimmung der Geschwindigkeit der flüssigen Phase angeboten. Für einen der vier vorhandenen Überströmkanäle hat die MARVIKEN-Projektleitung eine derartige Meßeinrichtung in Auftrag gegeben. Sie besteht aus zwei im Abstand von 500 mm angeordneten Meßebenen (Abb. 4211-3). Die Sende- und Empfangsteile sind an einem starren, den Blowdown-Kanal umschließenden Stützrahmen befestigt, um die vom Blowdown-Kanal ausgehenden mechanischen und thermischen Störeinflüsse von der eigentlichen Meßtechnik so weit wie möglich fern zu halten. Alle elektrischen und optischen Ausrüstungsteile sind von wasserdichten, gekühlten Gehäusen umschlossen. Abb. 4211-4 zeigt ein Sende- und Abb. 4211-5 ein Empfangsteil während der Probemontage.

Im Berichtszeitraum wurde die gesamte, für das MARVIKEN II-Projekt zu liefernde Meßeinrichtung entworfen, konstruiert und gefertigt. Der Stützrahmen und die erforderlichen Versorgungsleitungen wurden in MARVIKEN montiert, die Sende- und Empfangsteile sowie die elektrischen und elektronischen Versorgungseinheiten in der Werkstatt vormontiert und getestet. Die Montage in MARVIKEN wird im Januar 1976 und die Inbetriebnahme im Februar 1976 er-

---

x Dr.-Ing. D.Barschdorff ist Wissenschaftlicher Rat und Professor am Institut für Thermische Strömungsmaschinen der Universität Karlsruhe (TH)

folgen.

## 2. VERSUCHE IM KERNKRAFTWERK BRUNSBÜTTEL

(M.Cramer, F.Eberle, J.Kadlec, P.Klima, G.Lang)

Die im Kernkraftwerk BRUNSBÜTTEL im Juni 1975 mit einem Kondensationsrohr 600 mm  $\emptyset$  durchgeführte zweite Serie von Abblaseversuchen wurde ausgewertet. Die Ergebnisse zeigen, daß es ähnlich wie bei der ersten Versuchsserie auch bei diesen Versuchen zusätzlich zum lokalen Geschehen zur Ausbildung von stehenden Druckwellen mit geringer Amplitude im ringförmigen Wasserraum kam. Die stehenden Druckwellen werden durch die Überlagerung der beim Kondensationsprozeß örtlich entstehenden und sich in beiden Umfangsrichtungen ausbreitenden Druckstörungen erzeugt. Ihre charakteristischen Frequenzen (10,5; 13,5; 22 Hz) sind im wesentlichen durch die Geometrie des Wasserraumes bestimmt.

Beim gleichzeitigen Abblasen vieler Kondensationsrohre wird ein entsprechend komplizierteres Druckpulsationsfeld auftreten, Es kann jedoch erwartet werden, daß die lokal eingebrachten Druckstörungen auch in diesem Fall zusätzlich zum lokalen Geschehen stehende Druckwellen mit ähnlichen Frequenzen anregen werden. Bei der theoretischen Betrachtung des Zusammenwirkens vieler Kondensationsrohre wird deshalb ggf. zu berücksichtigen sein, daß die einzelnen Kondensationsrohre nicht in ein "isobares" Medium, sondern in einen Wasserraum mit einer bestimmten räumlichen, harmonisch oszillierenden Druckverteilung einblasen.

## 3. BERECHNUNG DYNAMISCHER CONTAINMENT-BEANSPRUCHUNGEN

(B.Göller, E.G.Schlechtendahl)

Im Berichtszeitraum wurde die Berechnung der Eigenfrequenzen des BRUNSBÜTTEL-Containments abgeschlossen und eine transiente Rechnungen durchgeführt, um die Auslenkungen der Containment-Wandungen beim Abblasen von Dampf in die Kondensationskammer zu bestimmen. Die Belastung für diese Analyse stammt aus einem Freiblaseversuch mit einer blasenden Druckentlastungsdüse. Der Druck im Reaktordruckbehälter betrug 70 bar, die Wassertemperatur 34 °C, die Öffnungszeit des Ventils ca. 200 ms. Die erste Sekunde dieses Tests wurde analysiert.

Bild 4211-6 zeigt die gemessenen Druckzeitverläufe in verschiedenen Punkten eines Meridianschnittes durch die Wasserkammer mit  $90^{\circ}$  Abstand von der benutzten Entlastungsdüse. Die Signale sind gleichphasig, ihre Amplituden liegen etwa in der gleichen Größenordnung. Für die Rechnung konnte daher vereinfachend angenommen werden, daß alle Punkte eines Meridianschnittes die gleiche Belastungsfunktion erfahren.

Bild 4211-7 zeigt die gemessenen Drücke für äquidistante Punkte am Kugelumfang mit einem Abstand von jeweils  $45^{\circ}$ ; die Meßpunkte liegen auf der Kugelschale in der Höhe der Freiblastdüsen. An dem verspäteten ersten Anstieg bei den entfernteren Meßstellen können deutlich Laufzeiteffekte erkannt werden. Da die Ausbreitungsvorgänge der Druckpulsationen aber nicht hinreichend genau bekannt sind, ist es schwierig das Druckfeld für Zwischenpunkte korrekt zu interpolieren. Für die Rechnung wurde daher angenommen, daß alle Punkte innerhalb eines Segmentes von  $45^{\circ}$  in Umfangsrichtung die gleiche Belastung erfahren.

Mit der so bestimmten Belastung wurde die transiente Rechnung durchgeführt. Die ersten 36 Modes des Containments wurden bei der modalen Superposition berücksichtigt. Die Strukturdämpfung wurde angenähert durch eine konstante modale Dämpfung von 5 bzw. 10 %. Die Zeitschrittweite betrug 2 ms. Der Zeitverlauf der Verschiebungen von einigen interessierenden Punkten des Containments wurde bestimmt und kann so mit gemessenen Daten verglichen werden.

Als Meßdaten zur Beschreibung des Containment-Verhaltens stehen lediglich Beschleunigungen zur Verfügung, die zweimal integriert werden müssen, um die zum Vergleich benötigten Auslenkungen zu erhalten. Bei der Integration müssen niederfrequente Störanteile unterdrückt werden, die sonst das Ergebnis durch starke Drifts verfälschen würden. Am Meßsignal selbst können aber Störungen nicht mehr erkannt werden. Hier wurde angenommen, daß alle Signalanteile mit Frequenzen unterhalb von 5 Hz Störungen sind, und daher zu unterdrücken sind.

Bild 4211-8 zeigt einen Vergleich einer so gewonnenen Auslenkung mit dem Rechenergebnis (radiale Auslenkungen eines Punktes der Kugelschale direkt gegenüber dem benutzten Entlastungsrohr in Höhe der Ausblasedüse). Die Übereinstimmung ist nicht voll befriedigend. Der Vergleich der Auslenkungen

am Scheitel der Sicherheitskugel fällt noch ungünstiger aus; das bedeutet, daß das globale Verhalten des Containment vom Rechenmodell noch nicht richtig wiedergegeben wird.

Die bisher durchgeführten Untersuchungen zur Erklärung dieser Abweichungen deuten drauf hin, daß der Einfluß der Betoneinbauten (vor allem des Splitterschutzbetons) nicht vernachlässigt werden darf, und daß die Diskretisierung im Wasserbereich der Kugelschale noch zu grob ist. Durch die Auswertung weiterer Versuchsergebnisse wird versucht, diese Vermutungen zu erhärten um dann ggf. das Rechenmodell weiter zu verbessern. [ 5; 6 ]

#### 4. KONDENSATIONSVERSUCHE BEI KWU IN KARLSTEIN (BISHER GROSSWELZHEIM) (M.Cramer, H.Schnauder)

Im Rahmen der von der Fa. KWU in Karlstein (bisher Großwelzheim) durchgeführten Kondensationsversuche wurden bei 11 Versuchen eigene Messungen vorgenommen. Gemessen wurde jeweils der zeitliche Druckverlauf an 15 Meßstellen, die auf einer senkrechten und zwei horizontalen Meßblanzen angeordnet waren. Gemeinsamer Koordinatenursprungspunkt der drei Meßblanzen war das vermutete Blasenzentrum (Abb. 4211-9).

Die Auswertung bezog sich bevorzugt auf die sieben Versuche mit einer Massenstromdichte von  $16 \text{ kg/m}^2\text{s}$ , da mit diesem Wert alle Rohrkonfigurationen (Rohrdurchmesser, Rohrzahl) untersucht worden waren. Von den auf Analogbändern registrierten Drucksignalen wurde zunächst für jeden Versuch mit dem Lumiscrypt ein Übersichtsplot des gesamten Versuchsablaufes angefertigt. Das Signal des Druckaufnehmers 4 (D4) war dabei zusätzlich auf ein Spannungsmeßgerät mit Speicherung des Maximalwertes geschaltet, so daß die zeitliche Lage von Spannungs- bzw. Druckspitzen während des Ablaufens der Bänder protokolliert werden konnte. Für die genauere Auswertung und eine gute graphische Darstellung mit starker Zeitdehnung war eine Digitalisierung der Meßdaten der interessierenden Zeitintervalle erforderlich. Hierfür mußten neue, auf die spezielle Aufgabenstellung zugeschnittene Programme zum Konvertieren der Daten und zum Plotten der Kurven geschrieben werden, da diese Arbeiten mit der vorhandenen SOFTWARE unvertretbar hohe Rechenzeiten verursacht hätten.

Die Temperatur im Wasserraum entsprach zu Beginn der Versuche stets etwa der Umgebungstemperatur (ca. 14 °C). Nach Erreichen einer Wassertemperatur von ca. 80 °C (was nach etwa 1 - 2 h der Fall war), wurden die Versuche abgebrochen. Der nach den KWU-Meßprotokollen aufgetragene zeitliche Temperaturverlauf eines Versuches ist auf Abb. 4211-10 als Beispiel gezeigt. Die Temperaturmeßfühler waren am Boden des Behälters und an der Kondensationsrohrhalterung angebracht. Aus der Abbildung ist zu erkennen, daß am Behälterboden eine verhältnismäßig stabile kalte Wasserschicht erhalten bleibt.

Die höchsten, für luftfreie Kondensation charakteristischen nadelförmigen Druckspitzen wurden bei allen ausgewerteten Versuchen im unteren Temperaturbereich gefunden. Zusätzlich wurden bei den Versuchen harmonische Druckschwingungen mit einer Frequenz von ca. 5 Hz beobachtet. Abb. 4211-11 zeigt zeitlich stark gedehnt die von den Durckaufnehmern D1 bis 6 gemessenen Druckverläufe für einen typischen Druckpuls in dem in Abb. 4211-10 markierten Temperaturbereich. Man erkennt aus der Abbildung, daß die Basisbreite dieser Druckspitzen sehr klein ist. Die gemessenen Amplituden erreichen hingegen in der Nähe der kollabierenden Dampfblase Werte bis ca. + 7 bar (D7). Die erwähnten harmonischen 5 Hz-Druckschwingungen stellen offenbar eine Eigenresonanz der Versuchseinrichtung dar. Die Druckamplituden betragen bei den bisher ausgewerteten Versuchen hier etwa  $\pm 0,1$  bar.

Der Vergleich der einzelnen Druckverläufe erlaubt auch Rückschlüsse auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit und die räumliche Abschwächung der Druckpulse. So gilt für die auf Abb. 4211-11 dargestellte Druckstörung etwa das Ausbreitungsgesetz

$$p = p_0 \left( \frac{r_0}{r} \right)^{1,555}$$

Die detaillierte Auswertung wird fortgesetzt.

Literatur

- [1] Appelt, K.D., Kadlec, J., Wolf, E.:  
Investigations of the Fluctuating Pressure Field in the Suppression Pool of the MARVIKEN Containment during Blowdown.  
3. Internat. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, London, September 1-5, 1975
- [2] Appelt, K.D., Cramer, M., Eberle, F., Goeller, B., Kadlec, J., Laursen, B.M., Schlechtendahl, E.G.:  
Experimental and Theoretical Investigations on the Dynamic Response of the Containment at the BRUNSBUETTEL BWR during Blowdown.  
3. Internat. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, London, September 1-5, 1975
- [3] Müller, R.A., Schlechtendahl, E.G.:  
Dynamische Belastungen und Strukturverhalten von Reaktorsicherheitsbehältern mit Druckabbausystemen.  
KFK-Nachrichten, 7 (1975) Nr. 3, S.12-21
- [4] Kadlec, J., Müller, R.A.:  
Dynamic Loading of Containment during Blow-Down. Review of Experimental Data from MARVIKEN and BRUNSBUETTEL.  
Extreme Load Conditions and Limit Analysis Procedures for Structural Reactor Safeguards and Containment Structures, Berlin, September 8-11, 1975
- [5] Goeller, B., Laursen, B.M., Schlechtendahl, E.G.:  
Computation of Dynamic Behavior of a Nuclear Reactor Containment with Topology and STRUDL-DYNAL.  
15. Worldwide ICES Users Group Conference, London, September 25-26, 1975
- [6] Goeller, B., Laursen, B.M., Schlechtendahl, E.G.:  
Results of Calculation of the Dynamic Behavior of Pressure Suppression System during Blowdown. Extreme Load Conditions and Limit Analysis Procedures for Structural Reactor Safeguards and Containment Structures, Berlin, September 8-11, 1975



[7] Löffel,R., Barschdorff,D., Wolf,E., Class,G., Reimann,J., John,H.:  
Entwicklung von Verfahren zur Massenstrommessung instationärer  
Zweiphasenströmungen.  
KFK-Nachrichten, 7 (1975), Nr.3, S.22-30

$$-\frac{\partial p_j}{\partial x_j} = \frac{1}{F_j} \frac{\partial G_j}{\partial t}, \quad -\frac{\partial p_j}{\partial t} = \frac{c_j^2}{F_j} \frac{\partial G_j}{\partial x_j}, \Rightarrow \frac{\partial^2 G_j}{\partial x_j^2} = \frac{1}{c_j^2} \frac{\partial^2 G_j}{\partial t^2}, \quad G_j(x_j, t) = A_j \sin\left(\frac{\omega x_j}{c_j} + \varphi_j\right) e^{i\omega t}$$

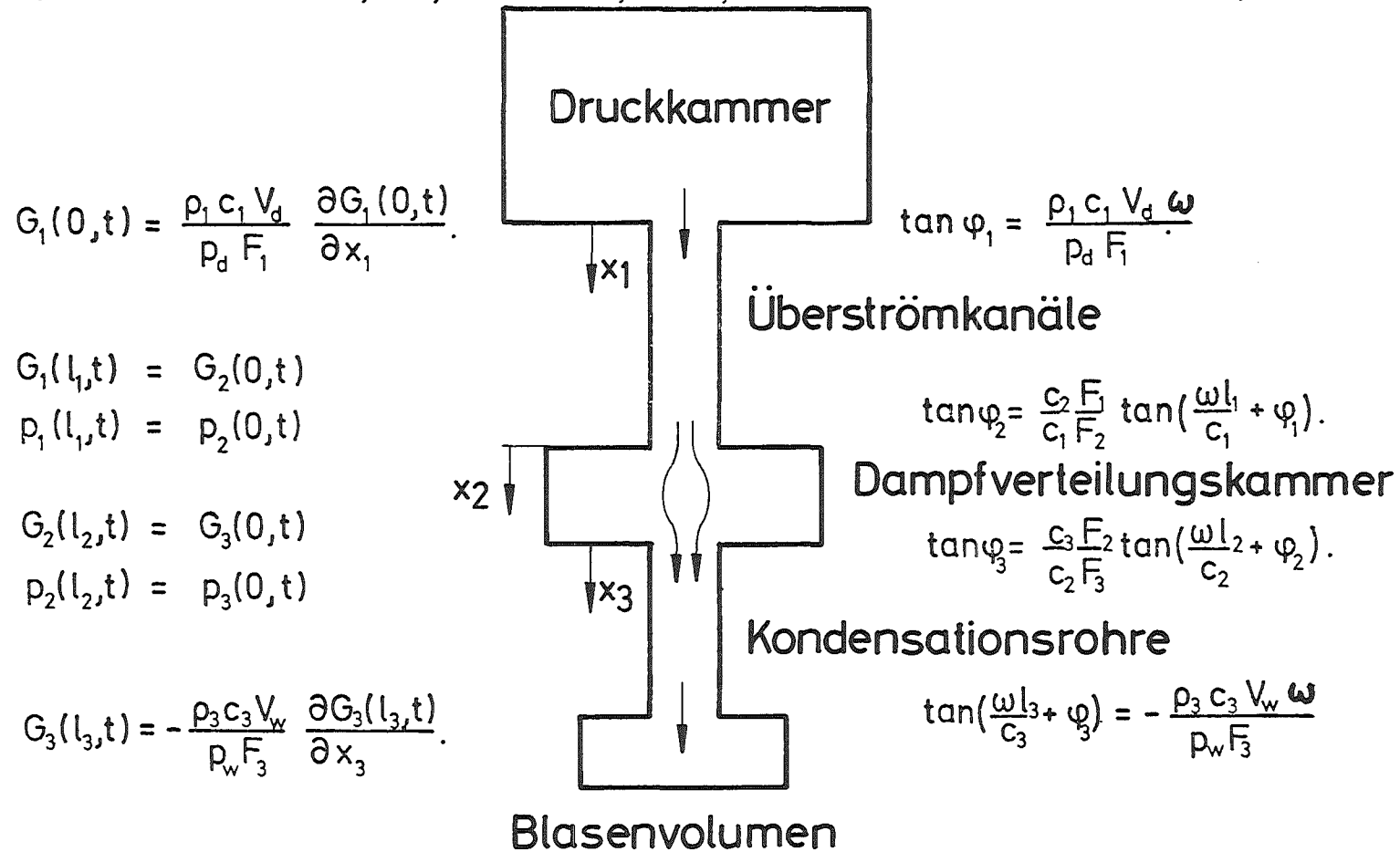


Abb. 4211-1: Mathematisches Modell für die Eigenfrequenzberechnung des Marviken Druckunterdrückungssystems

## Daten der Anlage Marviken und des Versuchs 13

$$V_d = 470 \text{ m}^3$$

$$p_d = 2,78 \text{ bar}$$

$$\rho_1 = 1,46 \text{ kg/m}^3$$

$$F_1 = 4 \times 1,15 \text{ m}^2$$

$$l_1 = 13,1 \text{ m}$$

$$F_2 = 101 \text{ m}^2$$

$$l_2 = 1,5 \text{ m}$$

$$F_3 = 26 \times 0,071 \text{ m}^2$$

$$l_3 = 5,30 \text{ m}$$

$$V_w = 20 \text{ m}^3$$

$$p_w = 2,28 \text{ bar}$$

$$\rho_3 = 1,46 \text{ kg/m}^3$$

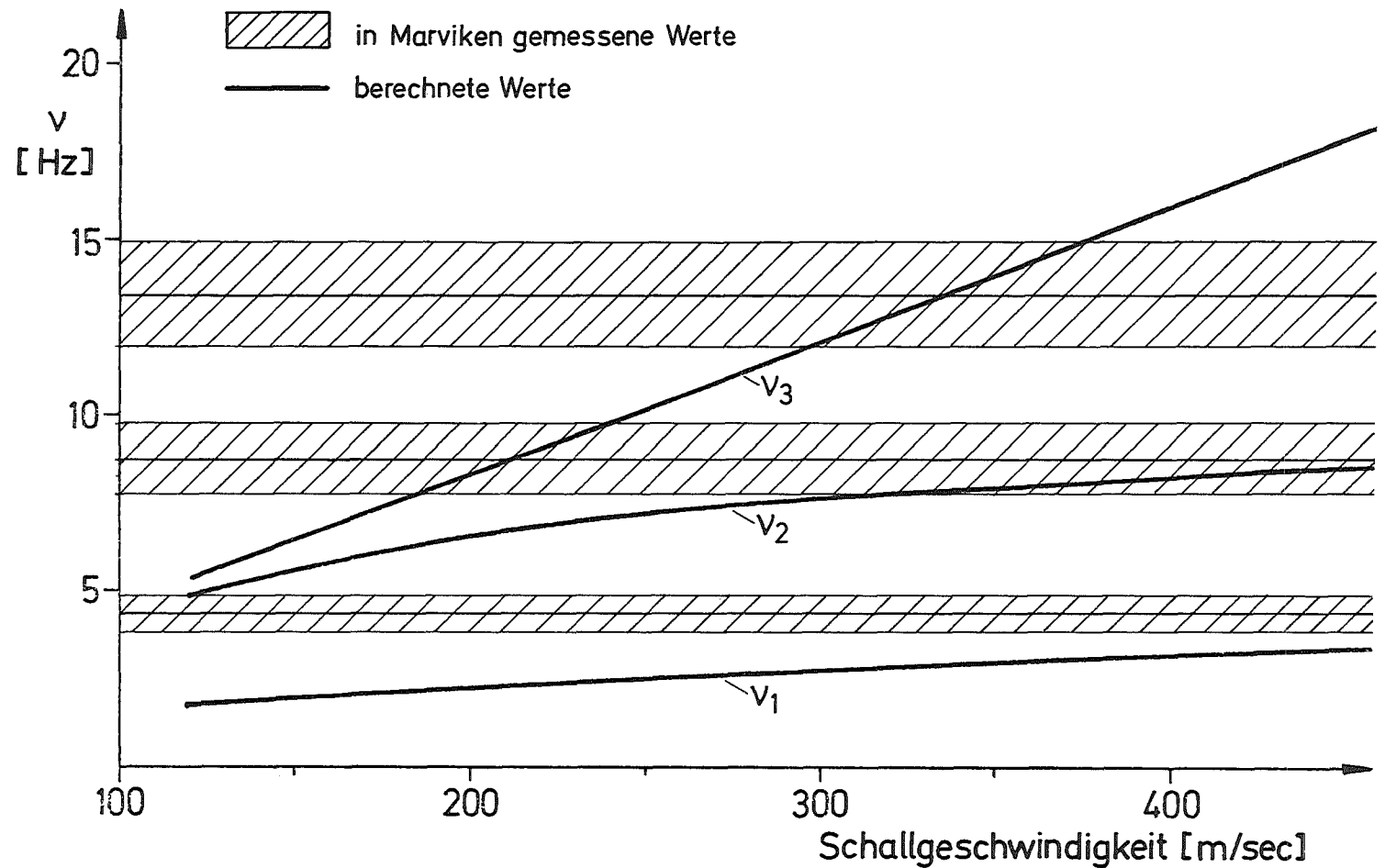


Abb. 4211-2: Berechnete und gemessene Eigenfrequenzen der Anlage Marviken für Blowdown-Versuch 13

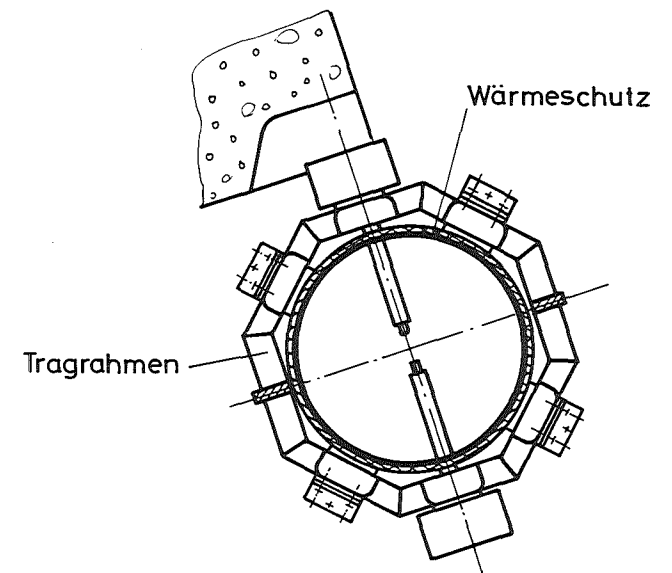
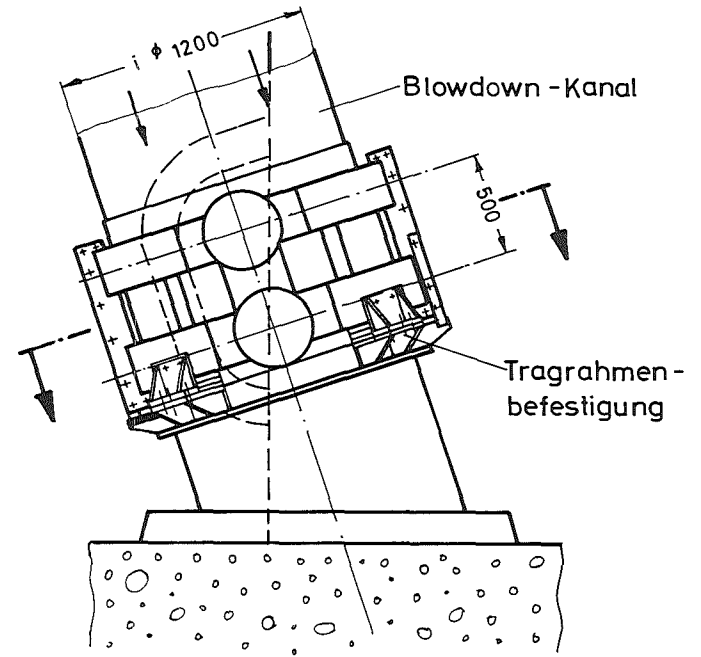
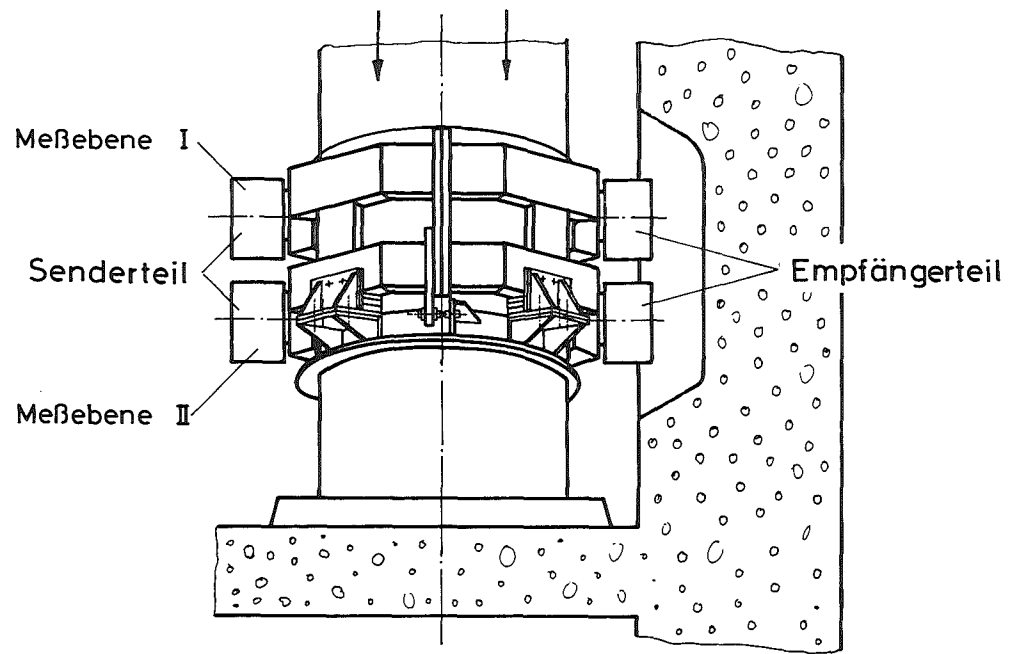


Abb. 4211-3

Einbauanordnung der Infrarot-  
Meßeinrichtung Marviken II

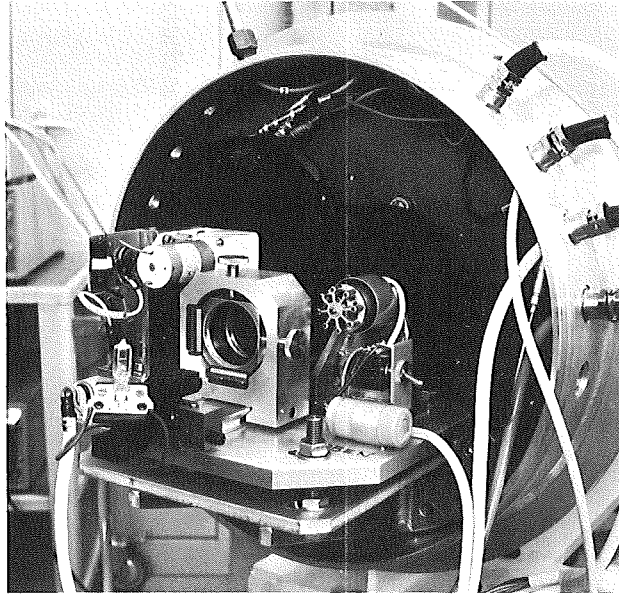


Abb.4211-4 Sendeteil der MARVIKEN II  
Infrarot-Meßeinrichtung wäh-  
rend der Probemontage

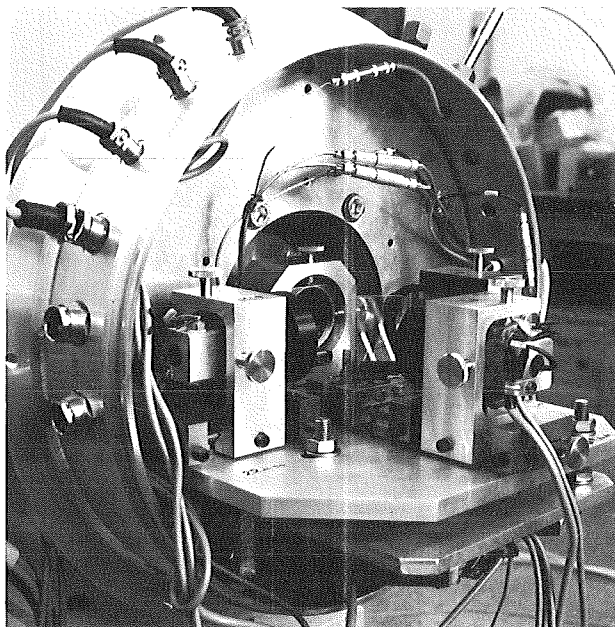


Abb. 4211-5 Empfangsteil der MARVIKEN II  
Infrarot-Meßeinrichtung wäh-  
rend der Probemontage

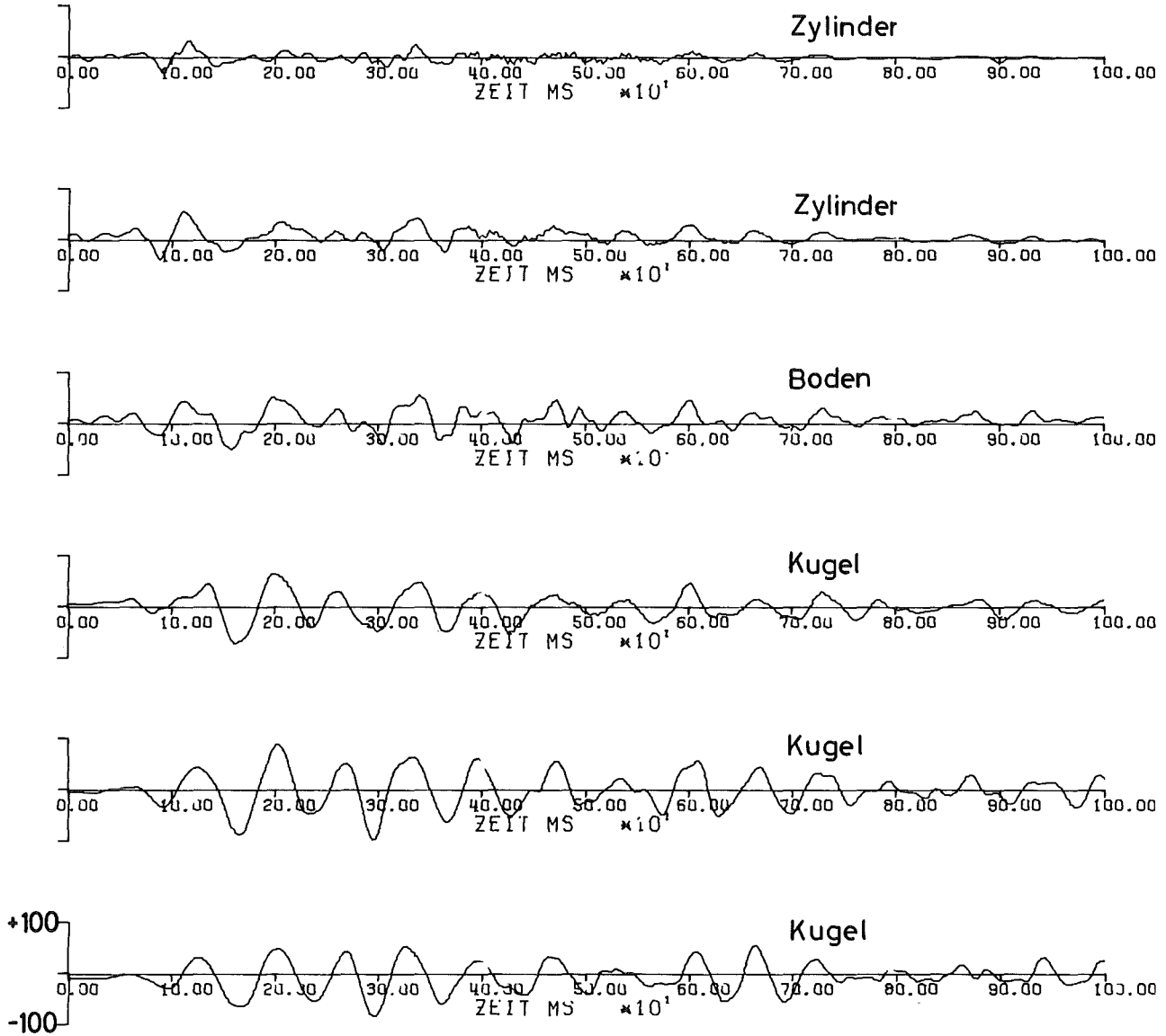


Abb. 4211-6 Gemessene Drücke in Punkten eines Meridianschnittes der Kondensationskammer (in mbar)

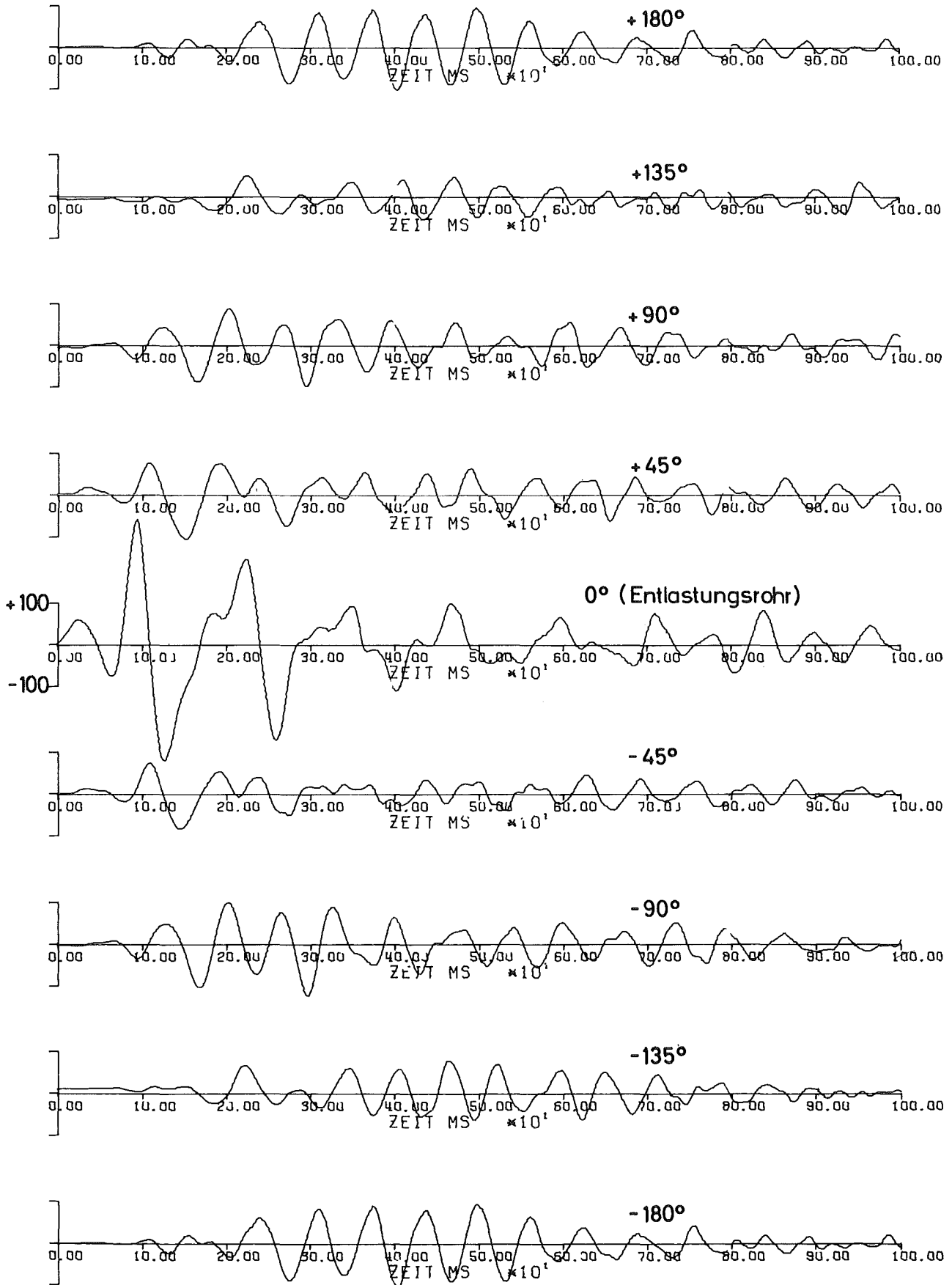


Abb. 4211-7 Gemessene Drücke in Punkten am Umfang der Kondensationskammer (in mbar)

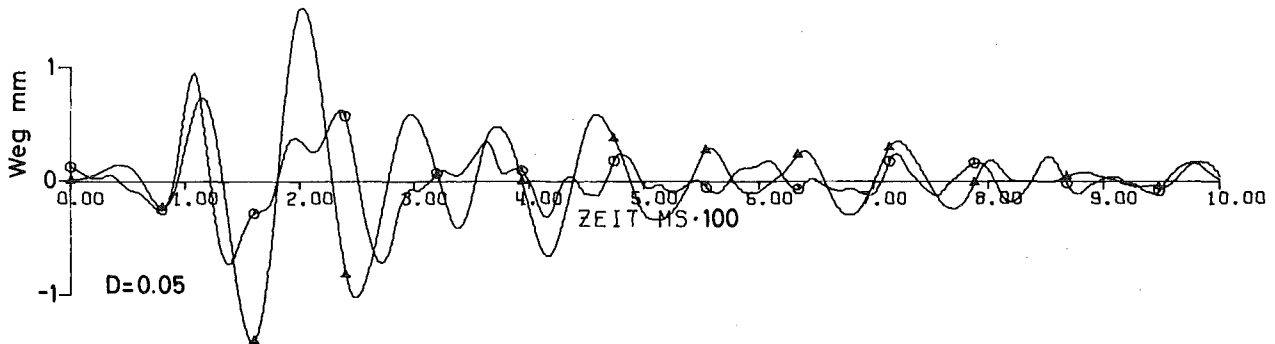
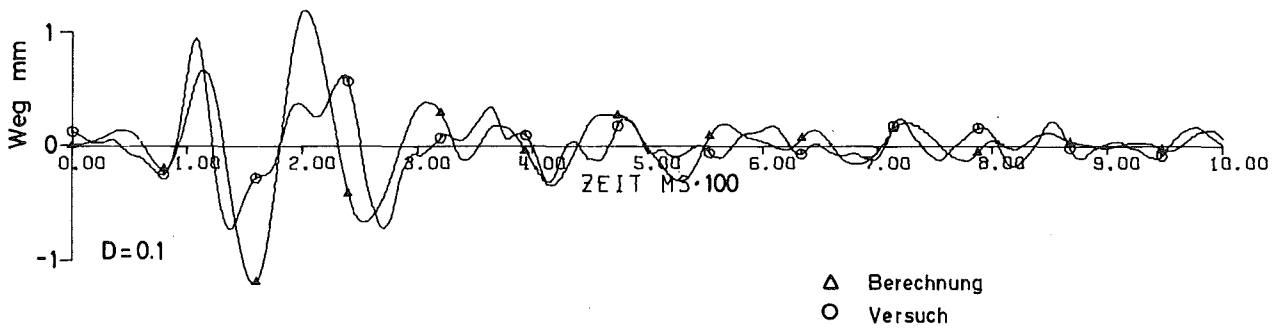


Abb. 4211-8 Vergleich von gemessenen (o) und berechneten ( $\Delta$ ) Radialauslenkungen eines Punktes der Kugelschale (Strukturdämpfung  $D = 5$  bzw.  $10\%$ )





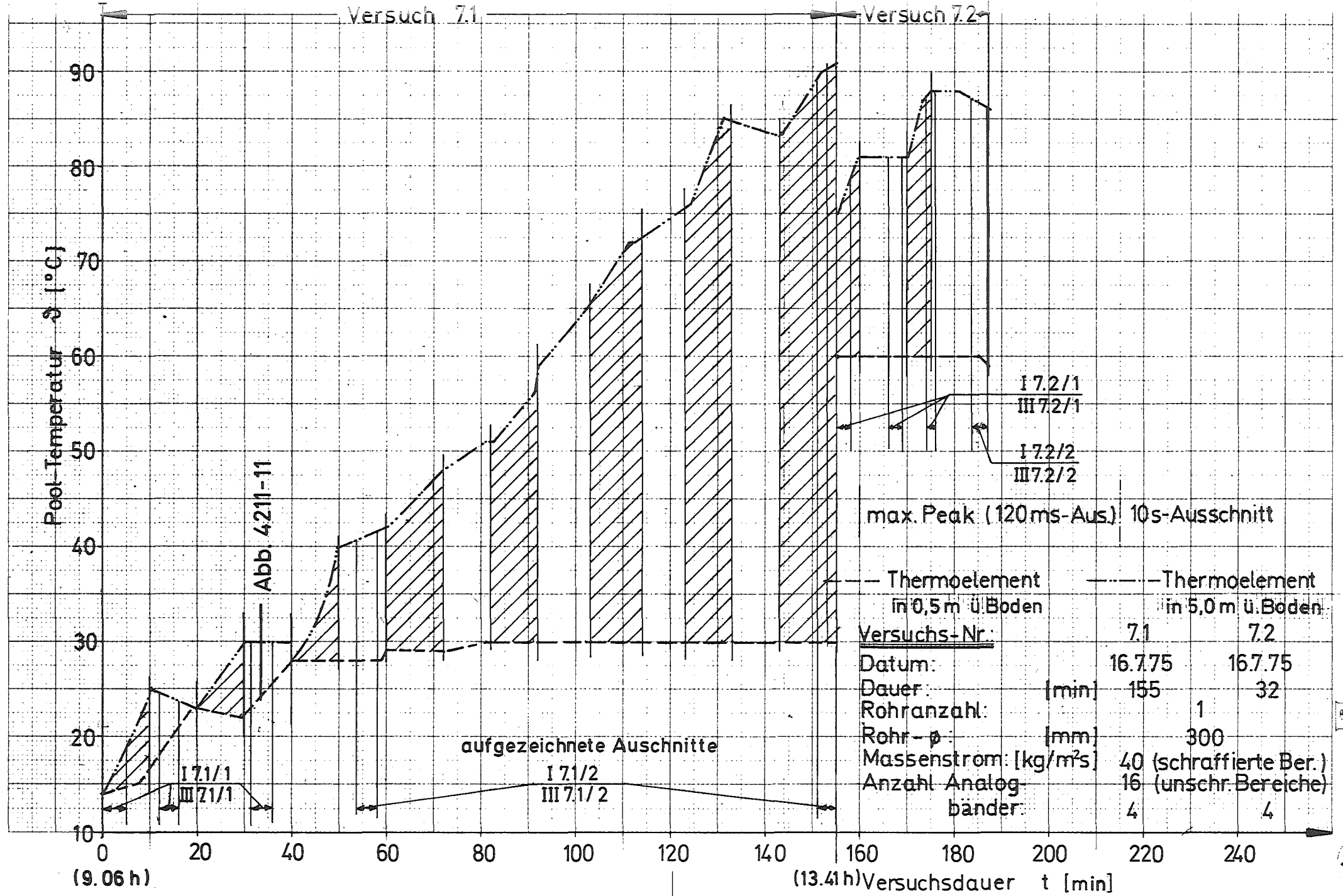


Abb. 4211 - 10 Zeitlicher Temperaturverlauf für Versuch - Nr. 7

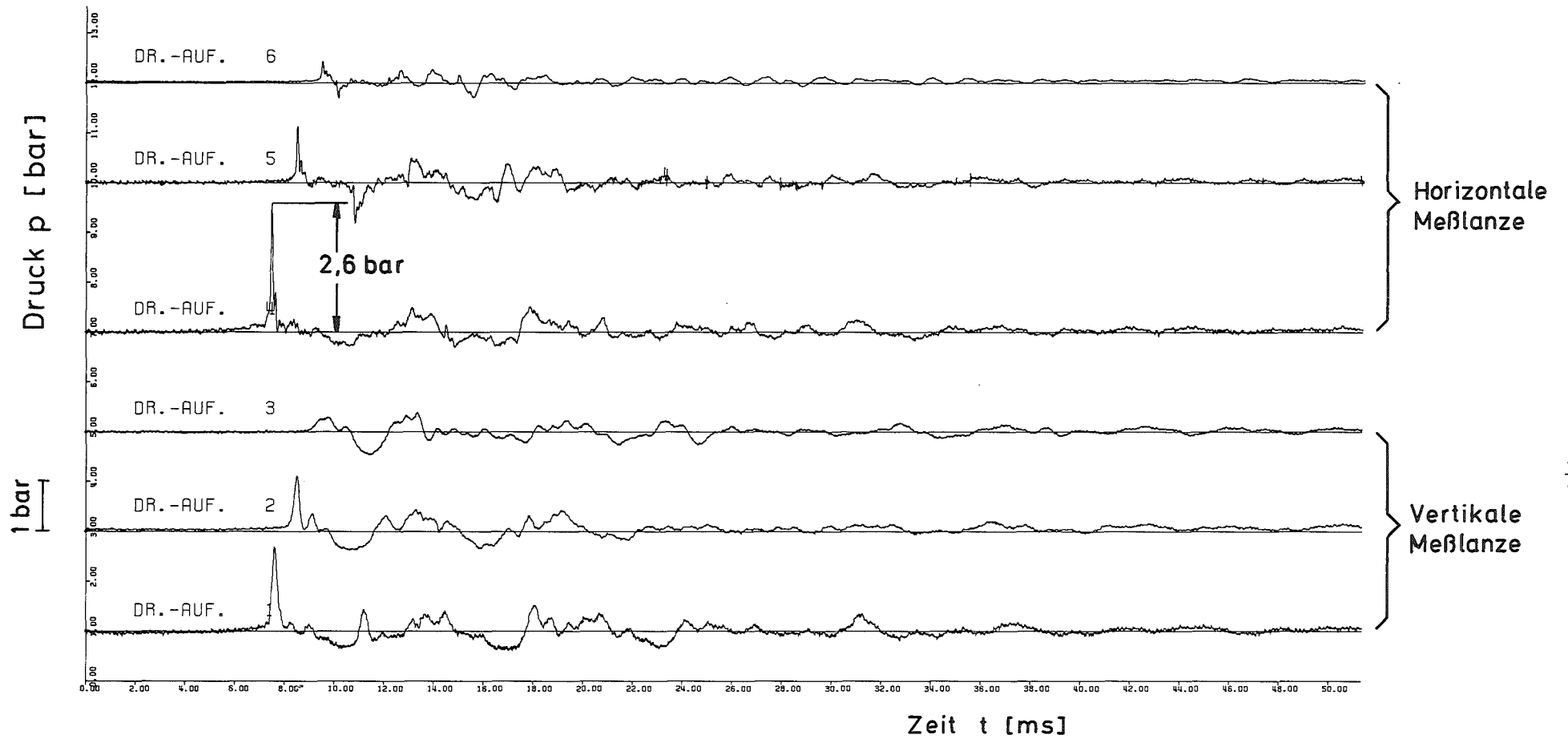


Abb. 4211-11 Typischer Druckverlauf

4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen

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

1. Markierungs- und Injektionstechnik

Die wesentlichen Ergebnisse des 1. Halbjahres 1975 waren die erfolgreiche Erprobung der Markierungs- und Injektionstechnik für die Flüssig- und Gasphase im Bereich hoher Drücke und Temperaturen.

Das 2. Halbjahr 1975 erbrachte erste praktische Erfahrungen an der Wasser-Luft-Teststrecke (Bereich niedriger Drücke und Temperaturen). In den bisher durchgeführten Versuchen konnten gute Ergebnisse erzielt werden. Es wurden erstmals Zweiphasenmarkierungen ausgeführt durch Injektion von Flüssig- und Gastracern in eine Wasser-Luft-Strömung. Wie auch bei den Versuchen an der Autoklavenanlage des IRB und an der Containmentanlage des Battelle-Instituts konnte auch hier die Injektionsfrequenz auf bis zu 50 Hz gesteigert werden. Dabei wurden kurze und lange Injektionsdüsen eingesetzt. Die neu entwickelten Injektionsventile haben sich auch bei diesen Versuchen gut bewährt und wurden deshalb für die Marviken-Experimente übernommen, wobei lediglich noch die Ventilgehäuse verstärkt und mit einer Wasserkühlung versehen werden mußten. Die Herstellung des Flüssigtracers Mn-56 und des Gastracers Ar-41 verläuft inzwischen routinemäßig ebenso wie deren Transport und deren Eingabe in die Versuchsanlage. Dabei konnte demonstriert werden, daß das von uns angewandte Radiotracerverfahren auch bei Verwendung größerer Aktivitätsmengen (Ci-Bereich) keine besonderen Strahlenschutzprobleme mit sich bringt und sich damit auch für externe Einsätze gut eignet.

## 2. Meß- und Auswertetechnik

Als Ursache für die Instabilität der Meßelektronik wurden Peakverschiebungen und Pile-up-Effekte festgestellt und untersucht, um schließlich durch deren Beseitigung oder Verringerung eine Verbesserung der Meßkette zu erzielen. Die in Zusammenarbeit mit den Firmen Canberra und Ortec durchgeführten Untersuchungen ergaben, daß der Photomultiplier das mit Abstand schwächste Glied der Meßkette ist. Dabei wirken sich bei den in Frage kommenden Zählratenbereichen die Peakverschiebungen stärker aus als die Pile-up-Effekte. Durch spezielle Auswahl des Photomultipliers und Verbesserung von Verstärker und Diskriminator wird nunmehr eine Reduzierung der Peakverschiebungen von  $\pm 15\%$  auf  $3\%$  und damit eine wesentliche Verbesserung erreicht.

Ein weiterer Fortschritt in der Meßtechnik wurde durch die Entwicklung eines neuen Frequenz-Spannungs-Konverters erzielt, mit dem die Zeitauflösung und die Empfindlichkeit auf das Vierfache gesteigert werden konnte.

Eine Auswertung der Meßergebnisse von Marviken I und der Versuche an der Wasser-Luft-Teststrecke mittels Korrelationsanalyse erbrachte gute Ergebnisse. Zusätzliche Verbesserungen dieses Auswerteverfahrens werden erwartet durch Modifikation des Auswerteprogramms und Erweiterung der Speicherkapazität der Anlage. Außerdem wurden zwei eigene Auswerteprogramme unter Verwendung der SEDAP-Programme des IRE erstellt, mit denen die Laufzeit einmal aus dem zeitlichen Abstand der Schwerpunkte der Peaks und zum anderen aus dem Abstand der Wendepunkte in den Peakflanken bestimmt wird. Beide Methoden sollen im 1. Halbjahr 1976 getestet und mit den Möglichkeiten der Korrelationsanalyse verglichen werden.

### 3. Praktische Versuche an der Wasser-Luft-Teststrecke

Es wurden bisher 20 Versuche durchgeführt, wobei von Versuch zu Versuch die Anlaufstrecken von Anfang 1 m bis herunter auf 0,1 m und die Meßstrecken von 1 m bis auf 0,25 m verkürzt wurden. Außerdem wurden die Injektionsfrequenzen und die Injektionsimpulsbreiten variiert, um die für die jeweiligen Versuchsbedingungen optimalen Einstellwerte zu finden. Es zeigte sich, daß Injektionsfrequenzen von bis zu 50 Hz gewählt werden können und die damit erzeugten Tracersignale noch unterscheidbar und damit erkennbar sind. Die optimalen Injektionsimpulsbreiten lagen für diese Versuchsbedingungen bei 6 - 8 ms.

In den ersten Versuchen wurde eine einphasige Wasserströmung erzeugt, in die erst nur der Flüssigtracer Mn-56 und später auch der Gastracer Ar-41 eingespritzt wurde. Eine Auswertung der Meßergebnisse erbrachte Geschwindigkeiten von 12 m/sec in der Anfangsphase (0 - 10 sec) kontinuierlich ansteigend bis zu 14 m/sec in der Endphase (40 - 60 sec) des simulierten Blowdowns. Dabei waren die Flüssig- und Gastracer gleich schnell. Dies bedeutet, daß kein Schlupf zwischen dem Wasser und den injizierten radioaktiven Luftblasen vorhanden war, was ja auch zu erwarten war.

Überraschender und besonders interessant waren die Ergebnisse der Versuche mit intensiver Lufteinspeisung. Denn auch dort wurde kein Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase gefunden. Durch die Lufteinspeisung wurde eine Zweiphasenströmung Wasser/Luft (bis zu 50 Vol% Luftanteil) erzeugt. Die Strömungsgeschwindigkeit stieg entsprechend dem Luftanteil an, so daß bei 50 Vol% Luft die doppelte Geschwindigkeit (25 m/sec) für beide Phasen gemessen wurde. Aus den gemessenen Tracersignalen ist abzuleiten, daß nahezu ebene Strömungsprofile vorlagen und die axiale Vermischung bezogen auf die Transportgeschwindigkeit klein war. Außerdem kann auf eine quasihomogene Phasenverteilung geschlossen werden.

#### 4. Vorbereitung für die Marviken-II-Experimente

Bei den Marviken-II-Experimenten werden 1976 zwei verschiedene Messungen durchgeführt:

1. Gasgeschwindigkeitsmessungen im Blowdown-Channel mit 3 Injektionsventilen und 4 Detektoren (Finanzierung durch das Marviken-II-Projekt)
2. Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen im Bruchstutzen mit 4 Injektionsventilen und 8 Detektoren (Finanzierung durch das HDR-Projekt)

Die dazu erforderlichen Versuchseinrichtungen wurden im 2. Halbjahr 1975 fertiggestellt und Anfang Dezember 1975 nach Marviken transportiert. Die Installation der beiden Meßeinrichtungen wurde Ende Januar 1976 abgeschlossen. In den Abbildungen 4214-1 und 2 sind die am Blowdown-Channel und am Bruchstutzen installierten Radiotracergeschwindigkeitsmeßeinrichtungen gezeigt.

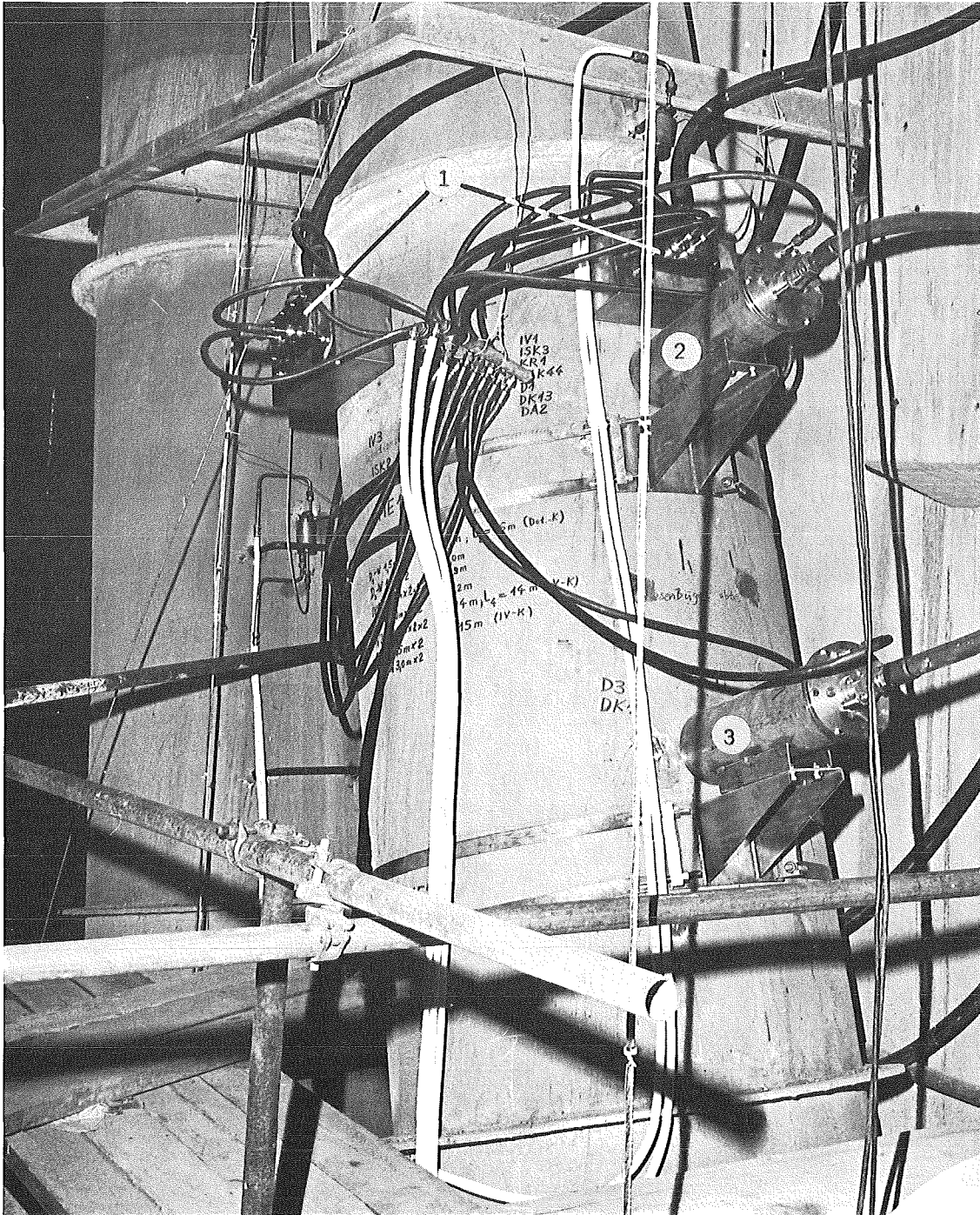


Abb. 4214-1: Radiotracergeschwindigkeitsmeßeinrichtung  
am Blowdown-Channel des Marviken-Reaktors

- 1 Injektionsventil
- 2  $\gamma$ -Detektor in Meßebeine I
- 3  $\gamma$ -Detektor in Meßebeine II



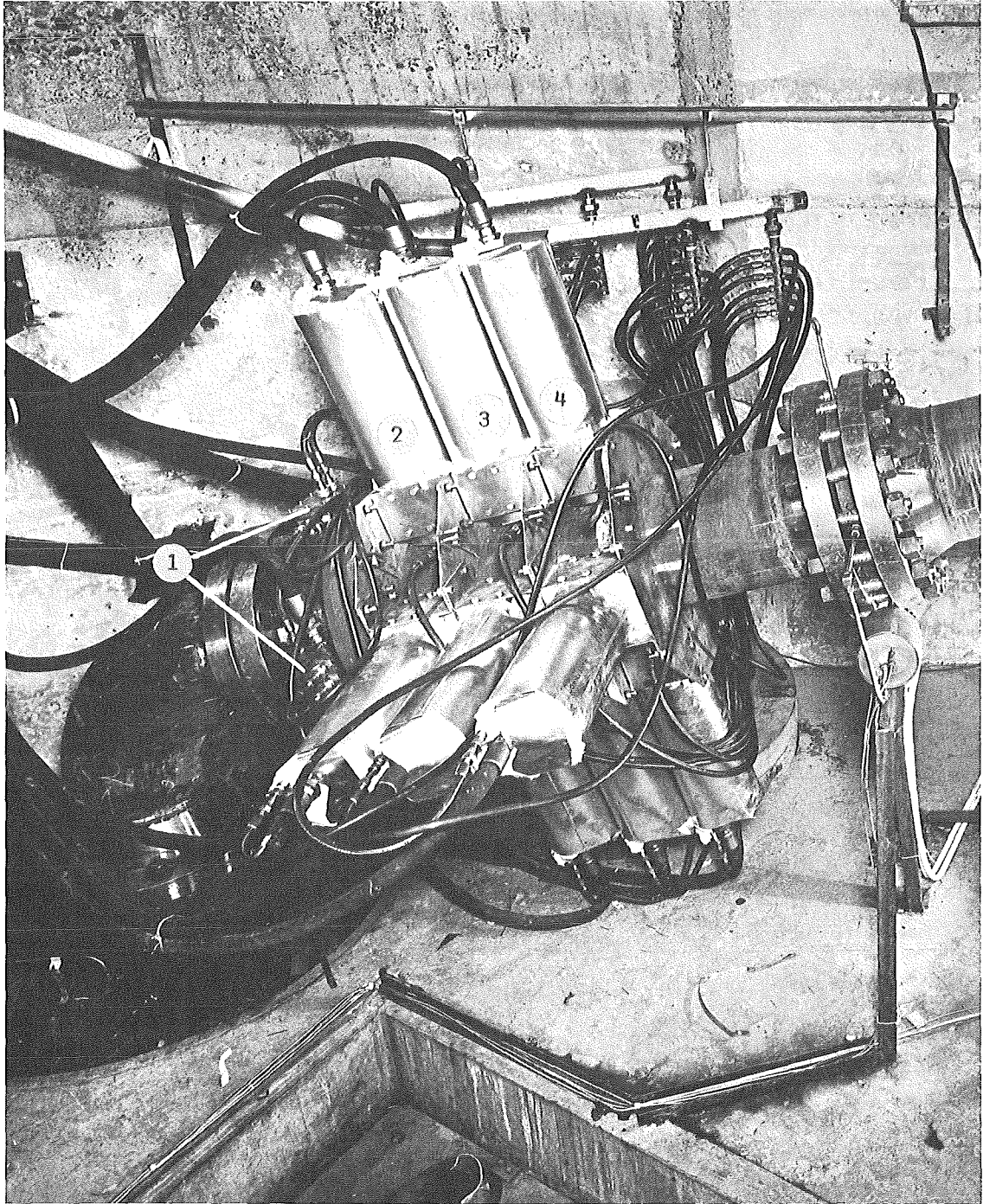


Abb. 4214-2: Radiotracergeschwindigkeitsmeßeinrichtung  
am Bruchstutzen des Marviken-Reaktors

- 1 Injektionsventil
- 2  $\gamma$ -Detektor in Meßebene I
- 3  $\gamma$ -Detektor in Meßebene II
- 4  $\gamma$ -Detektor in Meßebene III

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

Im Berichtszeitraum konzentrierten sich die Arbeiten im wesentlichen auf den Aufbau des Versuchsstandes und auf die Entwicklung einer Methode zur Bestimmung der Strömungsform in einer Zweiphasenströmung.

#### 1. Aufbau des Versuchsstandes

Es wurde folgender Fertigungsstand erreicht:

- Alle Armaturen, einschließlich der Druckhalteventile wurden ausgeliefert.
- Die Rohrleitungsmontage wurde im November begonnen und zum größten Teil fertiggestellt.
- Die meß- und regelungstechnischen Komponenten wurden ausgeliefert. Mit der Montage wurde begonnen.
- Bei der Fertigung der Mischkammer traten schweißtechnische Probleme auf. Die Fertigstellung wird in Kürze erwartet.
- Die Meß- und Regeltechnik des Bensonkessels wurde überholt und den Erfordernissen des Zweiphasen-Versuchsstandes angepaßt.

Außerdem wurde eine Konzeption zur Erweiterung des Versuchsstandes erarbeitet, die in Gesprächen mit den Experimentatoren, deren Meßverfahren getestet werden sollen, ausdrücklich begrüßt wurde. Diese Konzeption beinhaltet:

##### a) Bau einer Gammastrahl - Absorptions - Meßeinrichtung.

Zur Berechnung des Massenstroms ist - bis auf eine Ausnahme - bei allen zu testenden Meßverfahren die Kenntnis der Gemischdichte erforderlich. Diese Dichte wird über die Messung des Dampfvolumenthaltes mit einer Absorptions-Methode bestimmt. Mit der bisher vorgesehenen Kreislaufinstrumentierung kann jedoch nur der Dampfmassenstromgehalt bestimmt werden. Die beiden Dampfgehalte sind ohne Kenntnis des Schlupfes nicht ineinander umrechenbar.

Die Genauigkeit aber auch der Aufwand einer Absorptions-Meßeinrichtung steigt mit der Anzahl der verwendeten Strahlen. Bei stationärer Strömung gibt es eine Lösung, um mit geringem Aufwand die Genauigkeit einer Vielstrahl-Anordnung zu erreichen.

#### b) Instationäre Versuche

Nach Erprobung und Eichung der Meßverfahren bei stationärer Strömung sollen die Geräte auch bei transienten Versuchsbedingungen getestet werden. Es wird zur Zeit untersucht, ob ein Einbau eines Blow-down-Behälters in den Kreislauf möglich ist, derart daß nahezu ohne zeitliche Verschiebung sowohl stationäre als auch instationäre Versuche möglich sind ohne Änderung der Position der Teststrecke und der darin eingebauten Meßgeräte.

#### Voruntersuchungen zur Bestimmung der Strömungsform

Zur Bestimmung der Strömungsform sollen zwei Verfahren eingesetzt werden:

##### a) Sichtbarmachung der Strömung

Hierbei wird die Strömung mit einer Hochgeschwindigkeitskamera gefilmt. Der Vorteil dieser Methode ist die konventionelle Versuchstechnik, besondere Sorgfalt ist allerdings der konstruktiven Gestaltung der Durchsichtstrecke zu widmen (Abb.4215-1). Nachteilig ist die schlechte Interpretierbarkeit der Filmaufnahmen bei hohen Massendurchsätzen und mittleren Dampfvolumentgehalten. Ein weiterer Nachteil in unserem Fall ist, daß aufgrund der Kanalfenster nur ein kleiner Bereich des Strömungsquerschnittes erfaßt werden kann.

##### b) Lokale Messung der zeitlichen Phasenverteilung

Der zeitliche Verlauf des Phasenzustandes an einer geeigneten Stelle in der Strömung ist charakteristisch für die Strömungsform. Zur Messung der jeweils vorhandenen Phase wird eine Sonde verwendet die aus einem dünnen Draht besteht, der von einem elektrisch isolierten Röhrchen umgeben ist. Der Meßort ist die Sondenspitze. Zwischen Draht und Röhrchen wird eine Spannung angelegt. Je nach Frequenz dieser Spannung wird bei Phasenwechsel die Änderung der elektrischen Leitfähigkeit, des Dielektrikums oder beider Größen ausgenutzt. Dementsprechend spricht man von Leitfähigkeits-, kapazitiven-oder Impedanz-Sonden.

Vorteil einer solchen Sonde ist, daß neben der Bestimmung der Strömungsform zusätzliche Aussagen über den lokalen Dampfvolumengehalt und über statistische Größen der Zweiphasenströmung möglich sind. Durch Verfahren der Sonde bzw. Anordnung mehrerer Sonden über dem Strömungsquerschnitt können radiale Abhängigkeiten und Mittelwerte bestimmt werden.

Um eine derartige Sonde und die dazugehörige Meßtechnik entwickeln und testen zu können wurde ein kleiner Luft-Wasser-Versuchsstand errichtet. Die Teststrecke (Abb.4215-2) hatte quadratischen Querschnitt (25x25 mm), was für Filmaufnahmen günstig ist, da keine Reflexe wegen gekrümmter Kanalwände auftreten. Der Abstand des Einsatzortes der Sonde von der Mischkammer betrug weniger als 1 m, eine ausgebildete Zweiphasen-Strömung ist daher an der Meßstelle noch nicht vorhanden. Die Strömungsrichtung ist vertikal von unten nach oben. Abb. 4215-3 zeigt einige Sonden. Die im folgenden besprochenen ersten Ergebnisse wurden mit der 0,5 mm Sonde gewonnen; die Sonde mit dem Durchmesser 0,25 mm wurde noch nicht getestet; es ist zu erwarten, daß die Ansprechzeiten dieser Sonde noch kleiner werden.

Abb. 4215-4 zeigt Hochgeschwindigkeitsaufnahmen verschiedener Strömungsformen, in der unteren Bildfolge eine Ringströmung.

Aufgrund des Rechteckkanals ist die Flüssigkeitsschicht an der Wand sehr gut sichtbar. Die mittlere Bildserie stellt den Übergang von der Blasen- zur Kolbenströmung bei kleinen Massendurchsätzen dar. Die Interpretation der oberen Bildserie ist sehr viel schwieriger. Aber gerade dieser Bereich hoher Massendurchsätze und mittlerer Dampfvolumengehalte ist für die späteren Experimente von großem Interesse.

Sondensignale von verschiedenen Strömungsformen sind in Abb.4215-5 dargestellt. Die mittleren Signale gehören zu der in Abb.4215-4 oben dargestellten Strömung. Man kann deutlich das Vorhandensein von großen und kleinen "Blasen" erkennen.

Die statistische Auswertung dieser Signale zeigt Abb.4215-6. Dargestellt ist die Verteilung der Durchlauflänge der Gasphase  $N_{L_i} / N_L$  (senkrechte Balken). Diese Durchlauflängen entsprechen bei der Blasen bzw. Kolbenströmung entsprechenden "Blasenlängen", bei der Ringströmung den Abständen zwischen den in der Kernströmung vorhandenen Tröpfchen.

Die Durchlauf­länge ergibt sich in erster Näherung durch Multiplikation der Durchlaufzeit mit der homogenen Geschwindigkeit. Diese Darstellung zeigt bei allen Strömungsformen ein Maximum bei sehr kleinen Werten, wenn auch mit zunehmendem Gasdurchsatz die Ereignisse bei größeren Längen häufiger werden. Physikalisch sinnvoller ist die Auftragung  $\alpha_i / \alpha$  über der Durchlauf­länge (schraffierter Bereich). Diese Darstellung zeigt, welchen Anteil die einzelnen "Blasenlängen" am gesamten Dampf­volumengehalt besitzen. Hierdurch erfolgt eine Wichtung der einzelnen Blasenlängen, denn eine einzelne Blase von 20 mm Länge trägt ebensoviel zum Dampf­volumengehalt bei wie 20 Blasen von je 1 mm Länge. Hier zeigt sich nun deutlich der für jede Strömungsform charakteristische Kurvenverlauf: die Blasen­strömung besitzt ein ausgeprägtes Maximum bei kleinen Längen, die Kolben­strömung zwei Maxima, die Ringströmung ein Maximum bei sehr großen Längen. Der durch Sichtbarmachung schwer interpretierbare Strömungs­zustand erweist sich mit Hilfe der statistischen Auswertung als Kolben­strömung, die allerdings am Meßort noch nicht voll ausgebildet ist: Gas­längen von der Größenordnung des Rohrdurchmessers haben schon wesentlichen Einfluß, diese Blasen haben sich jedoch noch nicht zu großen Kolben zusammen­geschlossen.

Anhand der Abb.4215-6 wurde der eingeschlagene Weg demonstriert.

Bei zukünftigen Versuchen erfolgt die statistische Auswertung bei Speicherung der Signale auf Band auf dem Rechner bzw. während des Versuchs mit Hilfe eines Vielkanalanalysators.

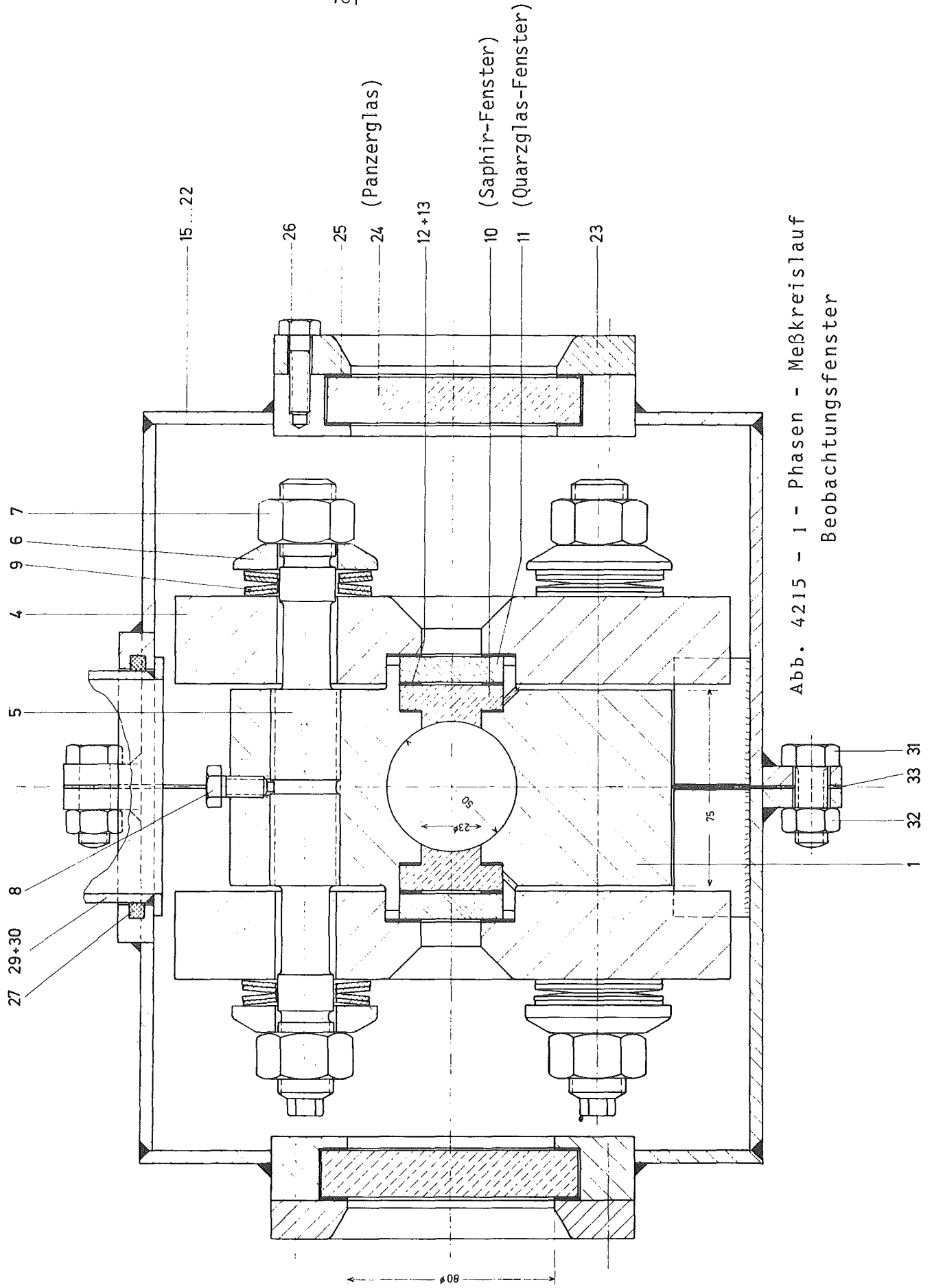


Abb. 4215 - 1 - Phasen - Meßkreislauf  
Beobachtungsfenster

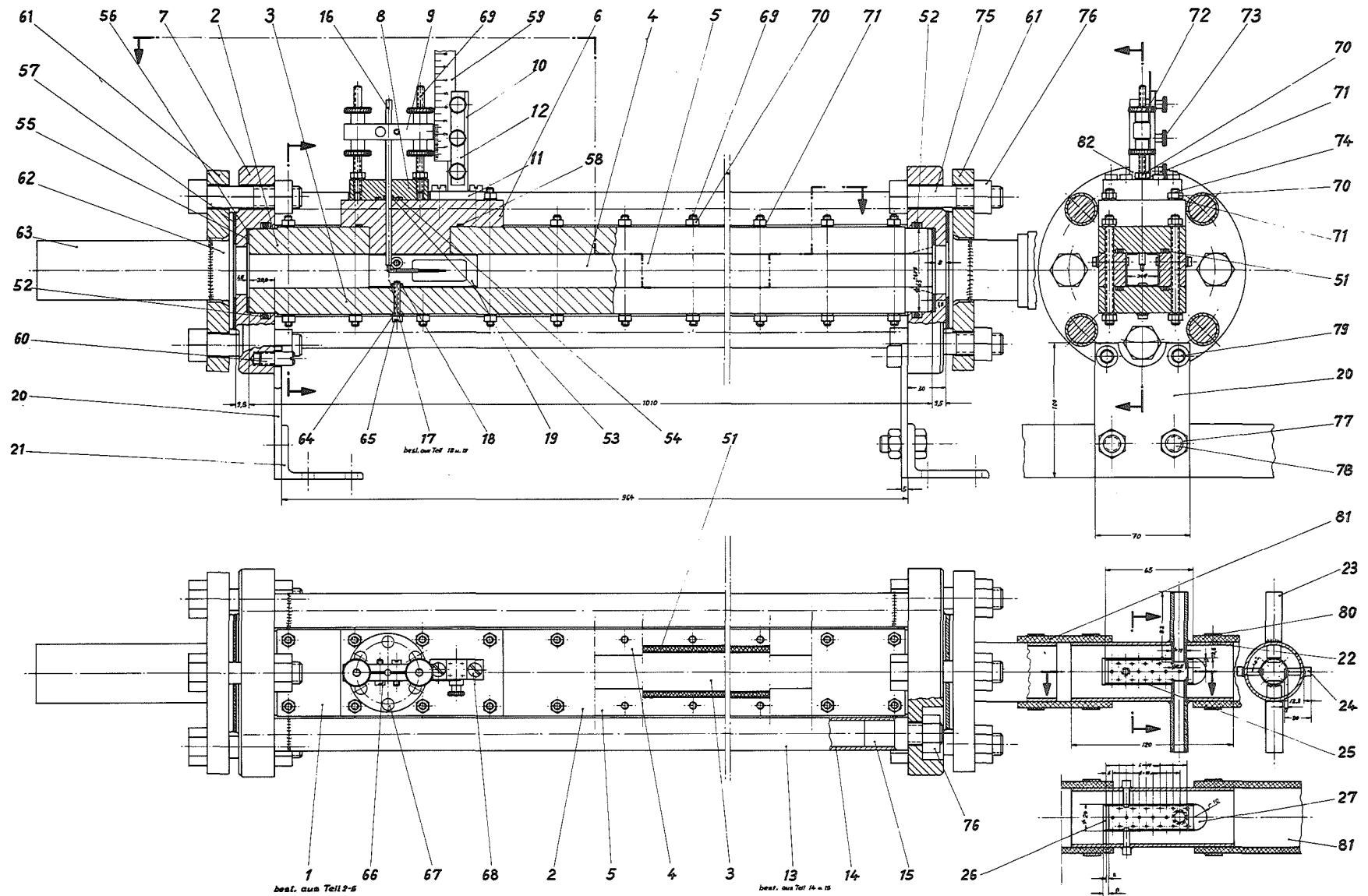


Abb. 4215 - 2 Wasser - Luft - Versuchsstand

<b>Technische Zeichnung</b> Blatt 1 von 1 Maßstab: 1:1 Datum: 1958		Gezeichnet von: J. Schmidt Geprüft von: K. Müller
<b>Technische Zeichnung</b> Blatt 1 von 1 Maßstab: 1:1 Datum: 1958		Gezeichnet von: J. Schmidt Geprüft von: K. Müller
<b>Technische Zeichnung</b> Blatt 1 von 1 Maßstab: 1:1 Datum: 1958		Gezeichnet von: J. Schmidt Geprüft von: K. Müller

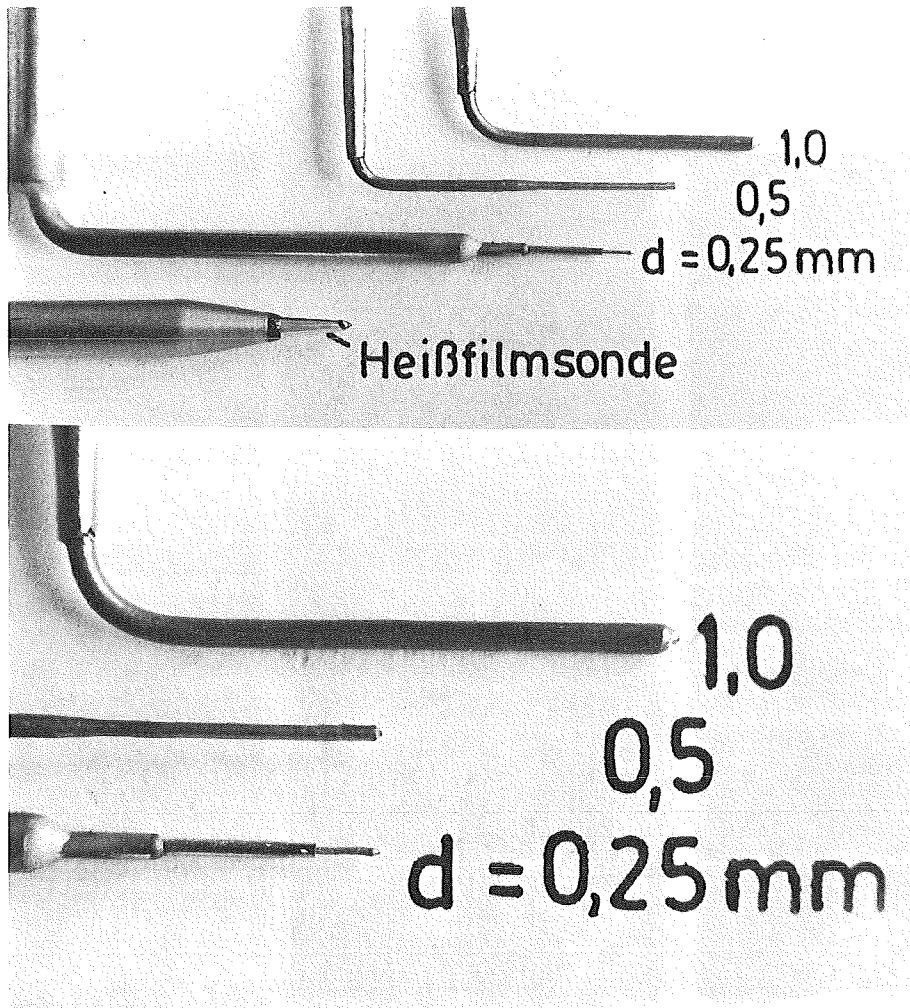
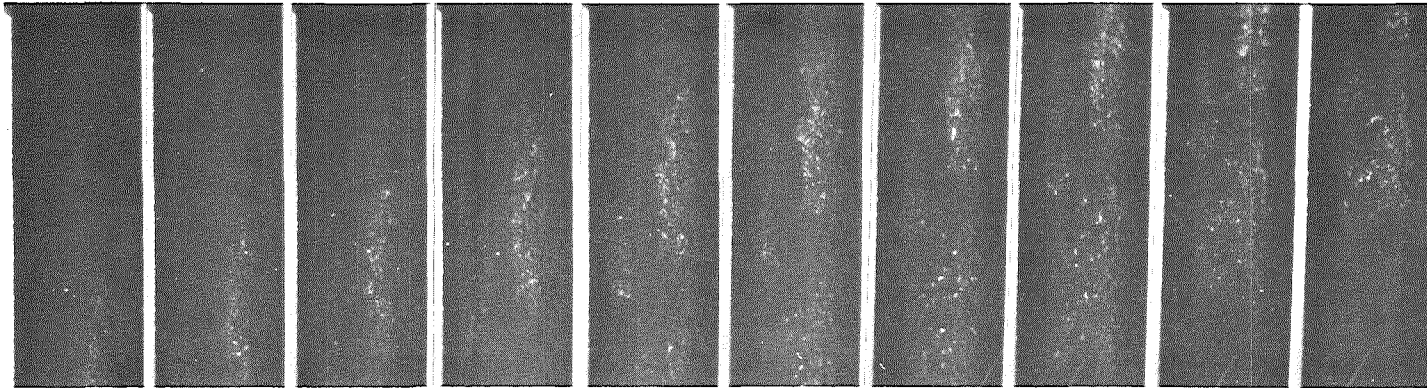


Abb. 4215 - 3 Sonden für Wasser - Luft - Versuche





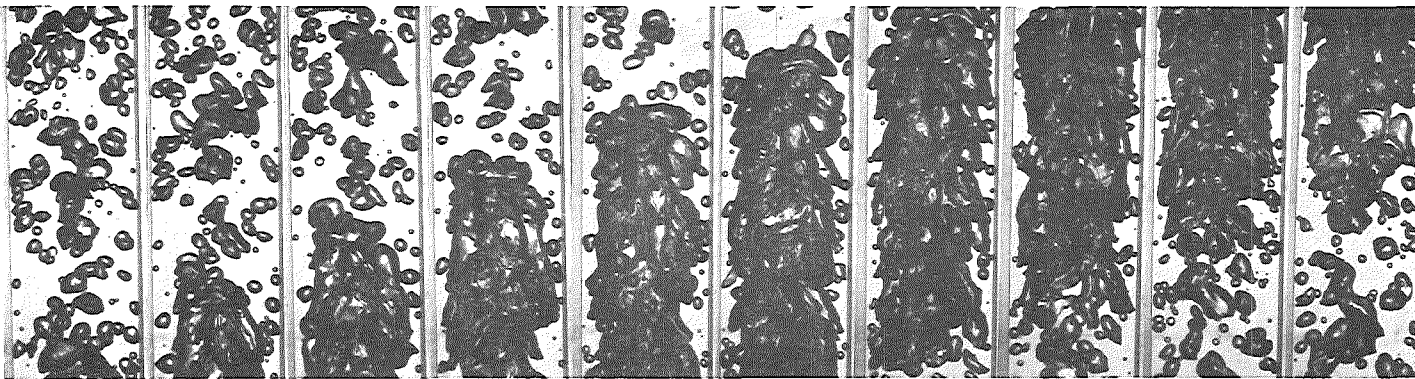
Kolbenströmung

$$C_w = 4,5 \text{ m/s}$$

$$C_L = 5,2 \text{ m/s}$$

Bildabstand = 0,8 ms

Bel.Zeit: 6,6  $\mu$ s



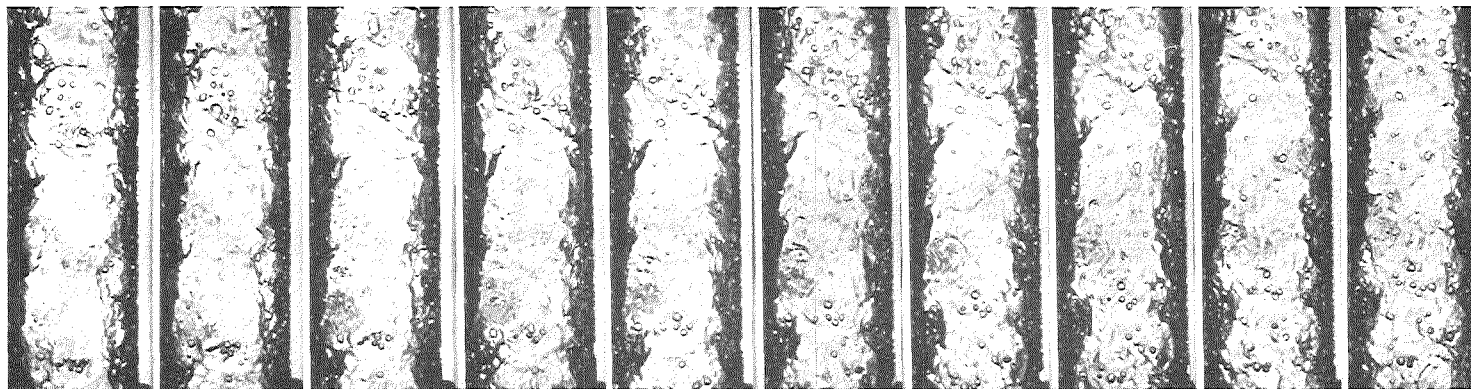
Blasenstr.- Kolbenstr.

$$C_w = 0,3 \text{ m/s}$$

$$C_L = 0,4 \text{ m/s}$$

Bildabstand: 10 ms

Bel.Zeit: 0,4 ms



Ringströmung

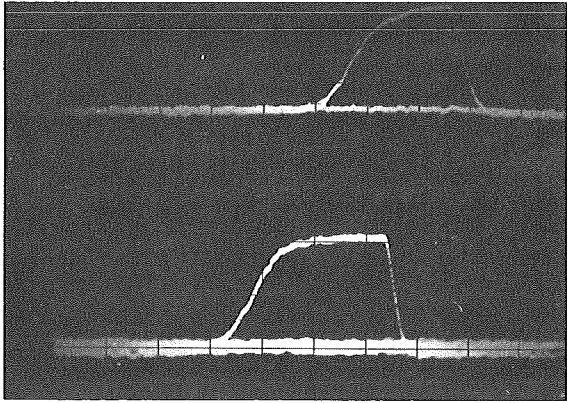
$$C_w = 0,2 \text{ m/s}$$

$$C_L = 7,2 \text{ m/s}$$

Bildabstand: 0,5 ms

Bel.Zeit 6,6  $\mu$ s

Abb. 4215 - 4 Filmaufnahmen verschiedener Strömungsformen

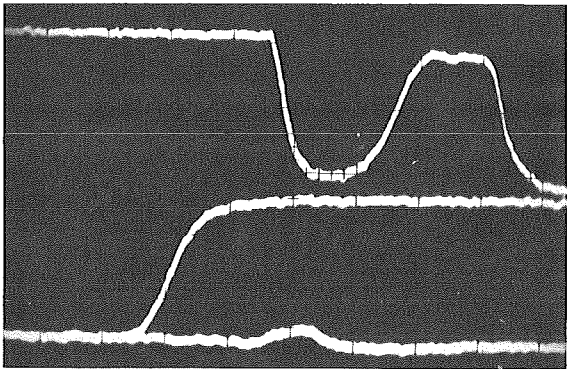


Blasenströmung

$$C_W = 4,6 \text{ m/s}$$

$$C_L = 0,15 \text{ m/s}$$

0,1 ms/Div

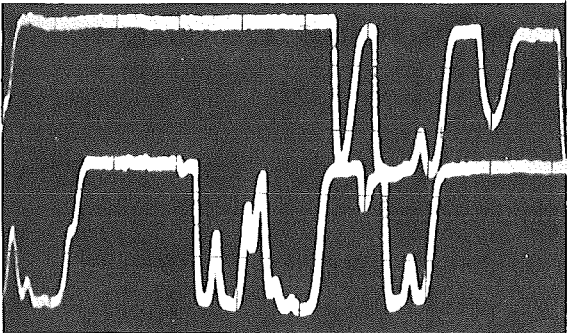


0,1 ms/Div

"Kolbenströmung"

$$C_W = 4,5 \text{ m/s}$$

$$C_L = 5,2 \text{ m/s}$$

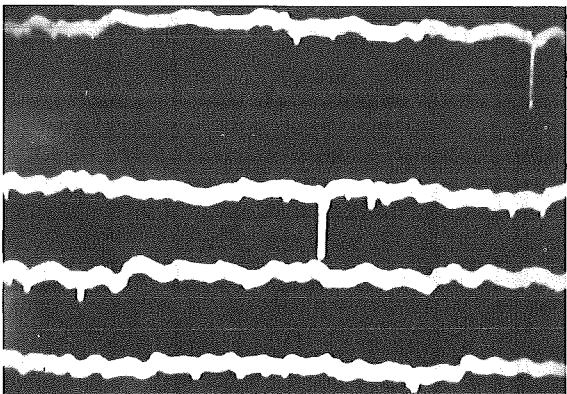


0,5 ms/Div

Ringströmung

$$C_W = 0,2 \text{ m/s}$$

$$C_L = 7,2 \text{ m/s}$$



0,1 ms/Div

Abb. 4215-5 Sondensignal bei verschiedenen Strömungsformen (Sondendurchmesser 0,5 mm, Sonde in Kanalmitte).

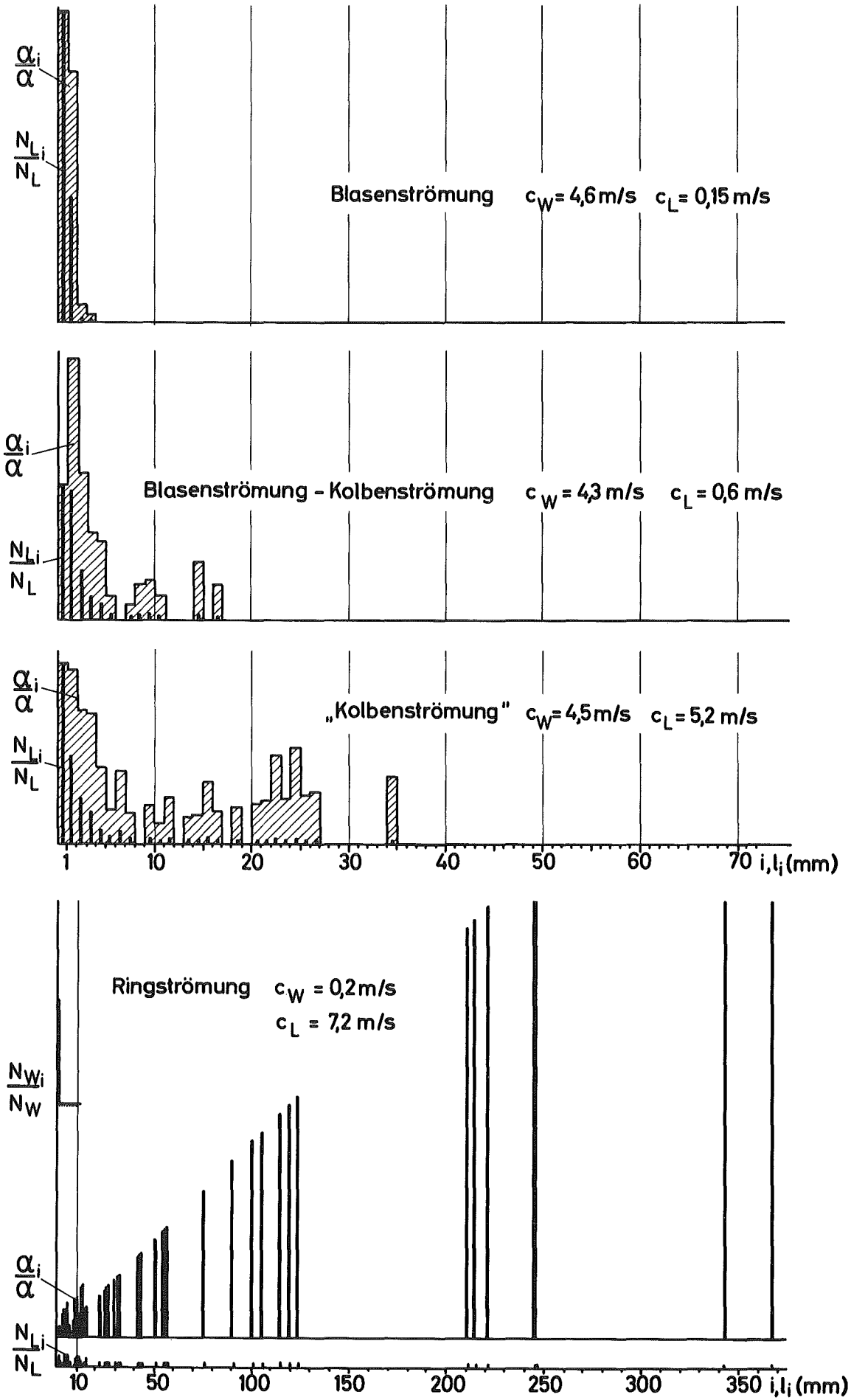


Abb. 4215-6 Verteilung der Durchlauf­längen der Gasphase sowie entsprechender Anteil am Dampf­volumengehalt (Sonde in Kanalmitte).

4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen

4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten (R. Krieg, E.G.Schlechtendahl)

Zentraler Punkt der Aktivitäten war die Definition der Forschungsziele, die mit den HDR-Blowdownversuchen erreicht werden sollen. Unter Beachtung des gegenwärtigen Wissensstandes ergab sich, daß die Verifizierung gekoppelter Fluid-Strukturdynamik-Codes zur Berechnung der maximalen Beanspruchung der Reaktordruckbehälter-Einbauten bei einem Blowdown im kalten Strang eines Druckwasserreaktors das Hauptziel darstellt. Bei der Auslegung der Versuche, insbesondere bei der Bemessung des Kernmantels war darauf zu achten, daß die Versuchsergebnisse - was die Fluid-Struktur-Kopplung betrifft - möglichst gut interpretierbar werden, auf der anderen Seite aber auch die Ähnlichkeit gegenüber den wirklichen Reaktorverhältnissen weitgehend gewahrt wird.

Eine erste Folgerung hieraus war der Entwurf eines sehr steifen Einspannflansches für den Kernmantel, der einer festen Kernmantel-einspannung, wie sie für die Codeverifizierung in den theoretischen Modellen zugrunde gelegt wird, möglichst nahe kommt. Erschwerend kam hinzu, daß auf der anderen Seite die sichere Abdichtung zwischen Reaktordruckbehälter und Deckel eine gewisse Nachgiebigkeit des Flanschquerschnittes erforderte. Neben Rechnungen zur Stülpe-StEIFheit des Flansches waren deswegen mehrere Finite-Element-Analysen zur Ermittlung eines geeigneten Flanschquerschnitts erforderlich.

Eine weitere Folgerung war, den Kernmantel möglichst so dünnwandig auszuführen, daß an der am höchsten beanspruchten Stelle das elastische Verformungspotential gerade ausgeschöpft wird. Hierzu war eine sehr detaillierte transiente Finite-Element-Analyse des Kernmantels erforderlich. Sie unterschied sich dadurch von einer früheren Finite-Element-Analyse des Kernmantels, daß die Element-Einteilung und die Diskretisierung der aufgegebenen äußeren Belastung feiner waren, und daß sowohl der Einspannflansch als auch

der untere Flansch des Kernmantels mit berücksichtigt wurden. Trotz der relativ kleinen Wandstärke von nur 23 mm ergab sich, daß auch beim geplanten schärfsten Blowdown (abgesehen von Versuchen mit extremen, unrealistischen Bedingungen) die Fließgrenze im Kernmantel an keiner Stelle nennenswert überschritten wird. Die bei dieser Analyse verwendeten Kernmantelbelastungen wurden vom LRA und IRS mit entsprechenden Fluidodynamik-Codes ermittelt. Da hierbei die mildernde Rückwirkung der Strukturverformung nicht berücksichtigt werden konnte - gekoppelte Fluid-Strukturdynamik-Codes sind noch nicht verfügbar, sondern Ziel der Forschungsarbeiten - ist zu erwarten, daß in Wirklichkeit das elastische Verformungspotential nicht voll ausgewertet wird. Es wird deswegen zur Zeit überprüft, welche zusätzlichen Verschärfungsmöglichkeiten für die Blowdown-Beanspruchung zur Verfügung gestellt werden können.

Aus der Forderung nach gut interpretierbaren Versuchsergebnissen und den Erfahrungen der RS16-2-Versuche ergab sich eine dritte wichtige Forderung nach einer eindeutig einstellbaren Enthalpischichtung zu Beginn der Blowdown-Versuche. Genauere Untersuchungen hierzu erbrachten folgende Ergebnisse:

- Bei der vorgesehenen Einspeisung von Kaltwasser in den Ringraum stellt sich eine Temperaturschichtung ein, die hochgradig instabil ist und in wenigen Sekunden (die Einspeisung dauert mehrere Minuten) zu unvorhersagbaren Naturkonvektionsströmungen führt.
- Eine Änderung des Kreislaufes (Absaugung im Ringraum, Kalteinspeisung in den Behälterboden) erlaubt dagegen eine stabile und damit zuverlässig wiederholbare Enthalpischichtung. Die angestrebte Temperaturdifferenz von mindestens 48°C zwischen Innenraum und Ringraum ist wegen der sich einstellenden turbulenten Naturkonvektion nur knapp zu erreichen.

Aufgrund dieser Untersuchungen wird eine Änderung der Versuchskreislaufführung vorgeschlagen.

4222 Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche  
(M.Cramer, F.Eberle, J.Kadlec, R.A.Müller, G.Lang, IRE)

Im Berichtszeitraum wurde die Aufgabenstellung weiter präzisiert und mit den anderen im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche laufenden Vorhaben und beteiligten Partnern abgestimmt. Es wurde vereinbart, daß die benötigte Instrumentierung teilweise durch die Fa. Battelle (Temperatur, Druck- und Differenzdruckaufnehmer) und teilweise durch das IRE (Weg-, Beschleunigungs- und Dehnungsaufnehmer) bereitgestellt werden wird.

Die Erfahrung bei anderen, ähnlichen Versuchsvorhaben hat gezeigt, daß bei einer derartigen Aufgabe höchste Qualitätsanforderungen erfüllt werden müssen, wenn während der Versuchsdurchführung übermäßige Instrumentierungsausfälle vermieden werden sollen. Diese Anforderungen ergeben sich einerseits aus den Umgebungsbedingungen (stationäre, instationäre und zyklische Druck- und Temperaturbelastungen) und andererseits aus den hohen mechanischen Schockbelastungen. Um die gestellten Anforderungen zu erfüllen ist es deshalb notwendig, vor der Auswahl und Bestellung der für die eigentlichen Versuche vorgesehenen Instrumentierung ein geeignetes Testprogramm mit einer ausgewählten Anzahl der am Markt verfügbaren Fabrikate durchzuführen. Das Testprogramm muß dabei zwei Ziele verfolgen:

1. Ermittlung der mechanischen und elektrischen Betriebszuverlässigkeit der einzelnen Aufnehmertypen unter den gegebenen Versuchsbedingungen.
2. Ermittlung der Meßgenauigkeit unter den gegebenen Versuchsbedingungen.

In vielen Fällen werden sich beide Ziele mit der gleichen Testeinrichtung und den gleichen Testläufen erreichen lassen; in anderen Fällen wird es jedoch auch notwendig sein, gezielte Versuche für das genannte erste und zweite Ziel auszuführen. So wird es bezüglich der Betriebszuverlässigkeit sinnvoll sein, Tests auch unter verschärften Bedingungen, sowohl als Kurzzeit als auch als Langzeitversuche auszuführen (insbesondere im Zusammenhang mit den Isolationsproblemen an Aufnehmern, Kabeln und Verbindungsteilen). Für die Meßgenauigkeit wird demgegenüber der Einfluß der realen Temperaturänderungen, denen die Meßfühler und Meßleitungen während des Versuchs-

ablaufes ausgesetzt sind, die überragende Rolle spielen.

Im Rahmen dieses Vorhabens sind demnach die folgenden Arbeiten auszuführen:

- Planung, Konstruktion, Beschaffung und Inbetriebnahme einer Testapparatur für Instrumentierungsversuche einschließlich der für diese Versuche erforderlichen elektronischen und meßtechnischen Ausrüstung.
- Auswahl und Beschaffung der zu testenden Meßaufnehmer, Kabel und Meßverstärker und Durchführung entsprechender Tests bei Raumtemperatur und unter realistischen Einsatzbedingungen.
- Auswertung der Testergebnisse und Entwicklung einer sinnvollen, auf die spätere Meßdatenerfassung und Auswertung abgestimmten Beschreibung der Meßwertkorrektur und Meßgenauigkeit einschließlich einer Unsicherheits- und Fehleranalyse.
- Spezifizierung der Anforderungen an die zentrale Meßwert erfassungsanlage (Genauigkeit, Dynamik, Zeitsynchronisation) und der Schnittstelle zwischen IRE-Instrumentierung und Meßdatenerfassungsanlage unter möglichst weitgehender Berücksichtigung der für die Meßdatenerfassungsanlage bereits vorliegenden Spezifikation (Spannungspegel, Verstärker aussteuerbarkeit durch Prozeßrechner usw.).
- Spezifikation und Beschaffung der für die Verwendung bei den HDR-Blow-down-Versuchen vorgesehenen Meßaufnehmer, Meßverstärker, Kabel, Kabel durchführungen und der sonstigen Halteteile, sowie Überprüfung und Eichung dieser Bauteile nach Anlieferung.
- Einbau der Instrumentierung vor Ort und Eichung der einzelnen Meßketten im Zusammenwirken mit der von Battelle erstellten Datenerfassungsanlage.
- Vorbereitung der für die Aufbereitung und Auswertung der Meßdaten erforderlichen Programme.
- Während der Versuchsdurchführung regelmäßige Überprüfung der Aufnehmer und Meßketten und Ausführung erforderlich werdender Reparaturen, Änderungen, Ergänzungen und Kalibrierungen.

- Während und nach der Versuchsdurchführung Meßdatenaufbereitung und Auswertung ( u.a. Zeitverläufe für Vergleich mit Vorausberechnungen, Bestimmung des Schwingungszustandes).

Die Arbeiten orientieren sich zur Zeit an dem auf Abb. 4222-1 dargestellten vorläufigen Meßstellenplan. Die räumliche Anordnung der Meßfühler wird auf der Basis der Ergebnisse der dynamischen Vorausberechnungen für den Versuchskernmantel (PNS 4221) noch einmal überprüft und ggf. so geändert werden, daß Signale in der maximal möglichen Stärke erwartet werden können.

Mit der Untersuchung der für den vorliegenden Anwendungsfall geeignetsten Meßtechniken und Meßaufnehmer wurde begonnen, ein Testprogramm dafür vorbereitet. Für die durchzuführenden Instrumentierungsversuche wurde eine Autoklaven-Testvorrichtung konzipiert. Zwei erste Muster-Wegaufnehmer werden in Kürze ausgeliefert.



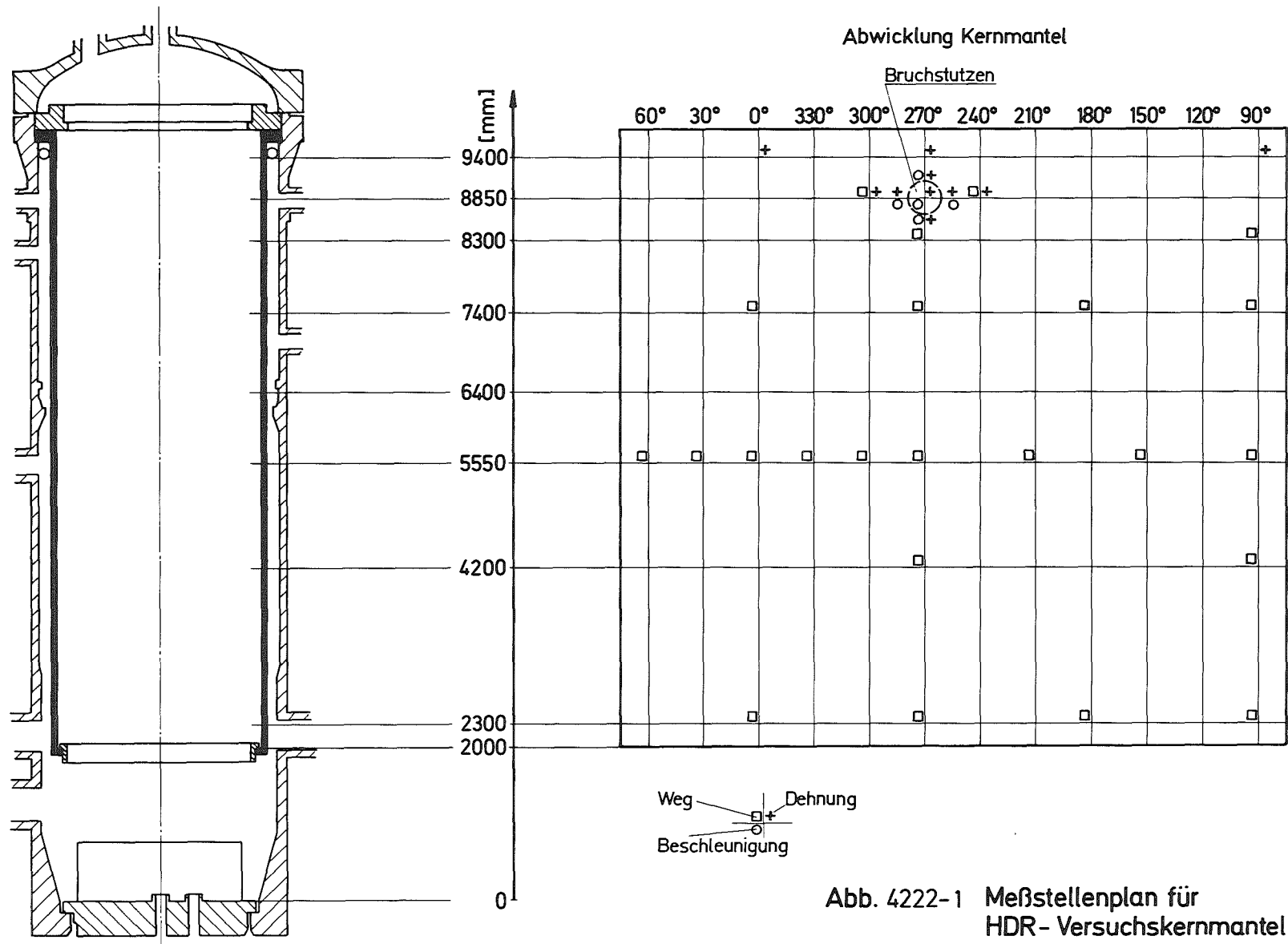


Abb. 4222-1 Meßstellenplan für  
HDR- Versuchskernmantel  
(IRE-TEIL)

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

Das Vorhaben umfaßt die begleitenden theoretischen Arbeiten zu den HDR-Blowdown-Versuchen (PNS 4221, PNS 4222), insbesondere die Entwicklung fluid-struktur-dynamischer Codes zur Berechnung der Blowdownvorgänge insoweit, als sie zur Bestimmung der maximalen Beanspruchung des Kernmantels von Bedeutung sind. Einfache Abschätzungen lassen vermuten, daß bei einer hinreichend realistischen Analyse die Rückwirkung der Strukturbewegung auf die fluid-dynamischen Vorgänge auf keinen Fall vernachlässigt werden darf.

Auf dem Gebiet der Fluidodynamik wurden zwei Arbeitsrichtungen verfolgt:

- die Bereitstellung und Anpassung des zweidimensionalen Codes YAQUI an die geometrischen Gegebenheiten,
- die Planung eines neuen Codes FLUST01, der langfristig für verschiedenartige, auch geometrisch komplexe Probleme gekoppelter Struktur- und Fluidodynamik eingesetzt werden soll.

Mit dem inzwischen stark modifizierten Code YAQUI wurden verschiedene Testrechnungen ausgeführt. Die Eingabe zur Berechnung des Blowdownvorgangs im Ringraum wurde vorbereitet. Die Gleichungen für ein auf YAQUI aufbauendes 2 1/2-dimensionales Modell mit variabler Ringraumdicke wurde aufgestellt. Es wurden mehrere Verfahren der Koppelung eines Strukturmodells mit YAQUI untersucht. Die Verfahren reichen von lose gekoppelter und zeitlich asynchroner Integration bis zur völligen Ausiterierung bei jedem Zeitschritt.

Für den neuen Code FLUST01 wurde mit einer top-down-Planung begonnen, deren erstes Ergebnis (ein Grobstrukturplan und der Plan einer abstrakten Datenstruktur für die Speicherung aller Zustandsvariablen) inzwischen vorliegt.

Ergänzend hierzu wurden auch die Arbeiten zur Beschreibung der Fluidodynamik mit Hilfe geeignet erscheinender Singularitätenverfahren vorangetrieben. Da diese Verfahren bei der Behandlung dreidimensionaler Probleme gewisse Vorteile versprechen, wird erwogen, den Fluidbereich im Innern des Kernmantels unter Verwendung von Singularitätenverfahren zu untersuchen.

Das halbanalytische Modell zur (biegesteifen) Schalendynamik, das auf den Arbeiten von L.H.Donnell und L.S.D.Morley basiert, wurde verbessert. Neben den Trägheitskräften, herrührend aus der Radialbeschleunigung, wurden auch die Trägheitskräfte herrührend aus der Tangentialbeschleunigung in einer ersten Näherung berücksichtigt. Die Eigenfrequenzen der Schwingungsmodes, die einer Balkenschwingung entsprechen (wobei die Schalenachse als Balkenachse anzusehen ist), erfuhren hierdurch eine keinesfalls vernachlässigbare Erniedrigung. Auch die Eigenfrequenzen der Schwingungsmodes mit zwei und drei Wellen am Umfang änderten sich merklich. Auf Schwingungsmodes mit vielen Wellen am Umfang hatte die Verbesserung dagegen keinen nennenswerten Einfluß.

Eine weitere Modelländerung hatte zum Ziel, die Randbedingungen am freien Ende der Schale realistischer zu gestalten. Das jetzt vorliegende Modell läßt keine Verformungen der unteren Schalenstirnfläche zu, wohl aber Verschiebungen und Verdrehungen dieser Schalenstirnfläche als Ganzes. Außerdem kann eine beliebige Punktmasse angekoppelt werden. Damit wird berücksichtigt, daß das untere Ende des Kernmantels mit einem schweren, sehr steifen Flansch verbunden ist, auf dem die Coremasse ruht.

Auf dieser Basis wurde die Erstellung eines Rechenprogramms CYLDY1 in Angriff genommen. Es soll demnächst mit YAQUI und später mit FLUST01 gekoppelt werden.

- 4230 Notkühlung von LWR  
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum  
Brennstabverhalten und zur Auswirkung von Brennstab-  
schäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung
- 4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten  
bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnell-  
abschaltung  
(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE-Stuttgart)

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

Im Berichtszeitraum wurden neue SSYST-Moduln erstellt und die  
Dokumentation der ersten Version (SSYST-Mod-1) des Programmsystems  
vorgenommen. Es wurden damit Testrechnungen, Parameterstudien und  
Nachrechnungen von Versuchen durchgeführt.

1. Fertigstellung und Dokumentation von SSYST-Mod-1  
(W.Gulden)

Eine erste Version des Programmsystems SSYST wurde fertiggestellt  
und in /1/ als SSYST-Mod-1 dokumentiert. Sie steht sowohl auf ei-  
ner CDC 6600 als auch auf einer IBM 370/168 zur Verfügung. Die  
in Fortran IV programmierten Moduln dieses Systems ermöglichen  
die genaue Analyse eines LWR-Brennstabs während eines postulier-  
ten Kühlmittelverluststörfalls. Mit ihnen steht ein Werkzeug zur  
Verfügung, welches gestattet, die Wechselwirkung von Wärmeleitung  
im Brennstab, Wärmeübergang im Spalt, Verformung von Brennstoff  
und Hüllrohr, Druck im Kühlmittel sowie Thermo- und Fluidodynamik  
im Kühlkanal zu untersuchen und gegebenenfalls Zeitpunkt und Ort  
der Entstehung einer Beule bzw. das Versagen des Hüllrohrs zu be-  
rechnen.

Die Moduln können sowohl zur Vorausberechnung von Störfällen am LWR als auch zur Unterstützung bei der Auslegung von Experimenten herangezogen werden.

Problemabhängiges Kombinieren der einzelnen Moduln ist auf einfache Weise möglich.

Aus folgenden Problembereichen sind Moduln verfügbar (Abb. 4231-1):

- Manipulation und Darstellung von Daten
- Realisierung von Sprachelementen
- Thermohydraulik des Primärkreises (Blowdown)
- Thermohydraulik im Kern (Wiederauffüll- und Flutphase)
- Thermische Analyse von Brennstäben
- Genaue Analyse eines einzelnen Brennstabs

Wärmetransport, Druckaufbau, Deformation im Brennstab, Thermo- und Fluidodynamik im angrenzenden Kühlkanal für

Stationären Zustand

Blowdown

Wiederauffüllen

Fluten

## 2. Verbesserungen am Programmsystem SSYST

### 2.1 Der SSYST-Modul WQDEL zur Berechnung von Wärmequellichten in elektrisch beheizten Brennstäben

(L. Ehnis)

Zur Simulation der Experimente mit elektrisch beheizten Brennstäben wurde der Modul WQDEL entwickelt. Er dient der Berechnung der produzierten Wärmemenge als Funktion der elektrischen Spannung und des temperatur- und ortsabhängigen ohm'schen Widerstandes des Heizleiters. Dabei wird der Leiter in axiale und radiale Segmente unterteilt. Der Modul liefert die in jedem Knoten produzierte Leistung.

## 2.2 Änderungen am Model WUEZ

(L. Ehnis)

In den Modul WUEZ, der den Wärmeübergang im Gasspalt berechnet, wurde ein Formalismus zur Bestimmung der Wärmedurchgangszahl bei Festkörperkontakt Hülle-Brennstoff abhängig vom Anpreßdruck eingebaut. Grundlage ist die Beziehung nach Ross und Stoute /2/.

## 2.3 Einbau eines Modells zur Berechnung der Benetzungsfreigeschwindigkeit in WAK

(D. Bernhardt, R. Schützle)

Das Programm WAK der KWU /3/ nimmt an, daß Benetzungsfreigang und Wasserspiegel stets auf gleicher Höhe liegen. Diese Annahme führt zu einem früheren Benetzen des Brennstabs und damit zu günstigeren Temperaturverläufen als in der Realität. Deshalb wurde ein Modell zur Bestimmung der Benetzungsfreigang in WAK eingebaut. Dabei wurde der Benetzungsbereich axial in folgende drei Teilbereiche unterteilt:

- Unbenetzt oberhalb des Wasserspiegels
- Unbenetzt unterhalb des Wasserspiegels
- Benetzt unterhalb des Wasserspiegels

Für jeden Bereich wurden die entsprechenden Wärmeübergangs- und Bilanzgleichungen formuliert. Zur Ermittlung der Geschwindigkeit der Benetzungsfreigang wurde die Gleichung nach Yamanouchi /4/ herangezogen.

## 2.4 Erweiterung von SSYST zur Berücksichtigung der Spaltgasplena

(R. Meyder)

Die in SSYST enthaltenen Moduln wurden so abgeändert, daß das untere bzw. obere Plenum abgebildet werden kann. Dies war notwendig für die Bestimmung der zeitabhängigen Plenumtemperaturen und Plenumsvolumina.

### 3. Test und Anwendung des Programmsystems SSYST

#### 3.1 DWR-Primärsystemanalyse und Berechnung eines mittleren Brennstabs mit SSYST

(R. Schützle)

An einem Druckwasserreaktor mit 1200 MWe wurde mit Hilfe von SSYST-Mod-1 /1/ unter Anwendung aller Moduln eine Untersuchung über das Verhalten der Brennstäbe bei Bruch der Primärkühlmittel-leitung (2F-Bruch im kalten Strang) durchgeführt. Die Ergebnisse sind in /6, 7/ dargestellt. Betrachtet wird ein Stab mittlerer Leistung.

#### 3.2 Testrechnungen mit Modulfolgen zum Einfluß der Wärmedurchgangszahl im Gasspalt

(L. Ehnis)

Um den Einfluß des Spaltwärmedurchgangs zu erfassen, wurden stationäre und transiente Temperaturberechnungen mit SSYST durchgeführt. Es zeigte sich, daß sich, ausgehend von  $7000 \text{ W/m}^2\text{K}$  für  $\alpha_{\text{spalt}}$ , ein Überschätzen ( $35000 \text{ W/m}^2\text{K}$ ) weit weniger stark auswirkt als ein Unterschätzen ( $1400 \text{ W/m}^2\text{K}$ ). Der Modul WUEZ liefert Werte zwischen  $1900 \text{ W/m}^2\text{K}$  und  $3000 \text{ W/m}^2\text{K}$ .

#### 3.3 Wärmeleitrechnungen mit SSYST

(W. Gulden, H.J. Neitzel)

Für den Brennstabsimulator (PNS 4238) wurde die adiabate Aufheizung unter Annahme einer Beule in Stabmitte berechnet. Es wurde so vorgegangen, daß im Bereich der Beule der Wärmedurchgang Null gesetzt wurde. Es zeigte sich, daß ohne Beule die axiale Wärmeleitung bei stufenförmiger Leistung vernachlässigt werden kann. Bei Auftreten der Beule ergab sich ein verzögertes Aufheizen der Hülle im Beulenbereich. Die Ergebnisse werden in /8/ dargestellt.

### 3.4 Parameterstudie zum Dehnungsverhalten von Zirkaloy-Hüllrohren

(M. Schindler)

Um den Einfluß von lokalen Überhitzungen und Wandstärkeschwächungen auf das Hüllrohrblähen zu untersuchen, wurden mit dem Modul STADEF Testrechnungen durchgeführt, wobei die Aufheizung durch einen linearen Temperaturanstieg simuliert wurde. Dabei zeigt sich ab einer bestimmten Temperatur ein sehr steiler Dehnungsanstieg infolge des dort einsetzenden Materialkriechens. Bei den in Druckwasserreaktoren üblichen Hüllrohren und einer Differenzdruckbelastung von 70 bar beträgt diese kritische Temperatur etwa 1000 K. Bereits bei lokalen Temperaturspitzen von wenigen K ist die Dehnung gegenüber dem Referenzfall merklich größer, so daß von einer Beulentriggerung gesprochen werden kann (Abb. 4231-2).

Einen ähnlichen Effekt haben Wandstärkenschwächungen. Dabei erweist sich die maximale Schwächung innerhalb der Herstellungstoleranz einer Temperaturspitze von etwa 5 K äquivalent.

### 3.5 Einfluß einiger Parameter auf den Wiederauffüllvorgang

(R. Schützle)

Im Modul WAK wurden einige Parameter, die wesentlich für das Wiederauffüllen sind, variiert. Die Ergebnisse zeigten, daß die Faktoren, die die Dampfmasse im oberen Plenum beeinflussen (Kondensationswirkungsgrad, Entspeicherung durch Vorkühlung, Wärmeübergang im nichtbenetzten Bereich) genau erfaßt werden müssen.

### 3.6 Anwendung von SSYST auf den Blowdown Versuchsstand PNS 4236

(S. Raff, W. Sengpiel)

Nach Festlegung der Ventil-Steuerkurve für einen mittleren Stab (Blowdown, 2F, kalter Strang) wurde die mechanische Analyse des Brennstabes durchgeführt. Dabei konnte festgestellt werden, daß für den Modellstab bei einem Betriebsdruck von 70 bar zwei Pha-



sen zu unterscheiden sind, nämlich die Phase der Außendruckbelastung für das Hüllrohr, in die die Temperaturspitze fällt, und in die Phase der Innendruckbelastung, die bei wesentlich tieferen Temperaturen erreicht wird.

Der Einfluß der Oxidation bezüglich der freigesetzten Reaktionsenthalpie (zusätzliche Wärmequelle) sowie der Wandstärkeschwächung durch Bilden der als spröde anzusehenden Oxid- und  $\alpha$ -Schicht des Zirkaloys ist während der Blowdownphase vernachlässigbar. Offen bleibt eine mögliche Beeinflussung der mechanischen Eigenschaften der  $\beta$ -Phase infolge Sauerstoffaufnahme (Die Zeitkonstante der Sauerstoffauffüllung der  $\beta$ -Phase liegt wesentlich unter der der  $\beta$ -Schichtabtragung).

#### 4. Vorarbeiten zur Weiterentwicklung von SSYST

##### 4.1 Stoffwerte für Zirkaloy (S. Raff)

##### 4.1.1 Auswertung von oxidationskinetischen Messungen des IMF an spannungslosen, in Dampfatmosphäre beidseitig oxidierten Zirkaloy-Hüllrohrproben

Vom IMF lagen Messungen über das zeitabhängige Wachstum der Oxid- und  $\alpha$ -Schicht bei isothermer Versuchsführung im Temperaturbereich von 1200 - 1600 K vor. Von H. Malang/IRB wurde ein Programm (SIMTRAN1) angefertigt, mit dem unter Eingabe von Diffusionskonstanten und des Phasenzustandsdiagramms Zirkon-Sauerstoff bzw. Zirkaloy-Sauerstoff das Schichtenwachstum und die Sauerstoffverteilung in den Schichten während der Oxidation berechnet werden kann.

Mit dem Ziel einer Verbesserung der Diffusionskonstanten der drei Phasen Oxid,  $\alpha$  und  $\beta$  wurde ein Algorithmus (OPAL) programmiert, der durch Veränderungen der Diffusionskonstanten eine Annäherung der durch die Rechnung ermittelten Schichtstärken an die gemessenen ermöglicht.

Bisher erzielte Ergebnisse:

- a) Eine bessere Übereinstimmung der Schichtstärken zwischen Messungen und Rechnung konnte erreicht werden. Während die Übereinstimmung bei der Oxidschicht gut gelungen ist,

treten bei der  $\alpha$ -Schicht bei Berücksichtigung der volumetrisch gemittelten  $\alpha$ -Einwachsungen in die  $\beta$ -Schicht noch größere Abweichungen auf.

- b) Die aus den Rechnungen ermittelten angepaßten Diffusionskoeffizienten der Oxid- und der  $\alpha$ -Schicht zeigen vor allem eine Veränderung der Temperaturabhängigkeit (geringere Werte bei 1200 K, höhere Werte bei 1600 K) verglichen mit den Ausgangswerten.

Eine Verbesserung des  $\beta$ -Diffusionskoeffizienten ist nicht möglich, da der Einfluß auf das Schichtenwachstum von Oxid- und  $\alpha$  zu gering ist.

- c) Ein Vergleich der ebenfalls gemessenen sehr verlässlichen Werte der Gewichtszunahme infolge Sauerstoffaufnahme ergab noch keine bessere Annäherung mit den neu ermittelten Diffusionskonstanten.

Die Arbeit soll mit weiteren Meßdaten fortgeführt werden.

#### 4.1.2 Auswerten von Zugversuchen

Im Sinne einer Approximation wurde begonnen, aus isothermen Zugversuchen unterhalb der Phasenumwandlungstemperatur (normalplastischer Bereich) ( $T < 1120\text{K}$ ) Norton-Koeffizienten zu bestimmen und diese durch Nachrechnen der Zugversuche zu verifizieren.

#### 4.1.3 Modellentwicklung für ein Stoffgesetz

Nach bisher am IMF gewonnenen Erkenntnissen sind die Nortonkonstanten für unterschiedliche Dehnungsgeschwindigkeiten und Temperaturen (LOCA-Temperaturbereich 600 - 1600 K) nicht konstant. Es erscheint zunächst lediglich eine bereichsweise integrale Koeffizientenanpassung möglich.

Ein Stoffgesetz, das Dehnverläufe in den einzelnen Verformungsphasen und Temperaturbereichen beschreiben soll, muß neben rein geometrischen Größen "innere Variable" enthalten, die physika-

lisch interpretierbar sind und für Prozesse charakteristisch sind, die während der Verformungen stattfinden (z.B. diffusionsgesteuerte Kriechvorgänge, Kerngröße bzw. Korngrenzfläche, Sauerstoffdiffusion).

#### 4.2.2 Statistik des Hüllrohrblähens

(W. Sengpiel)

Die Untersuchungen zur Statistik des Hüllrohrblähens konzentrierte sich zunächst auf die Anzahl geeigneter mathematischer Verfahren (Monte-Carlo, "moment-matching") und auf die Anwendung beider Verfahren zur Berechnung der statistischen Verteilung der cladding - Temperaturen während des Blowdown. Als aussichtsreiches Verfahren im Rahmen der geplanten statistischen Schadensumfangsanalyse hat sich das "moment-matching"-Verfahren (Berechnung von Momenten der gewählten statistischen Variablen (Cladding-Spannung und Cladding-Dehnung) angeboten.

#### 4.3 Berechnung des "Standardproblems 2" mit RELAP4

(W. Sengpiel)

Im Hinblick auf die Implementierung von RELAP4 als SSYST-Modul ist das von der ehemaligen USAEC definierte Standardproblem 2 /9/ zum Zweck einer Code-Verifizierung berechnet worden. Die Übereinstimmung von experimentellen Ergebnissen und von RELAP4-Ergebnissen ist (mit wenigen Ausnahmen) befriedigend. Ein Bericht /10/ mit einer Analyse der Rechenergebnisse im Vergleich mit den experimentell ermittelten Daten ist in Vorbereitung.

#### 4.4 Vorarbeiten für ein Programm zur Behandlung von Stabbündeln

(M. Schindler)

Als Ergebnis eines Literaturstudiums wird folgendes Vorgehen bei der rechnerischen Behandlung von Brennstabbündeln beim Kühlmittelverluststörfall vorgeschlagen:

Das thermische und mechanische Verhalten der Brennstäbe soll so weit wie möglich mit den in SSYST-Mod-1 entwickelten Modellen berechnet werden. Eine Weiterentwicklung dieser Modelle, z.B. Aufgabe der Forderung der Rotationssymmetrie, kann parallel dazu erfolgen.

Die wesentliche Erweiterung vom Einzelstabmodell weg in Richtung Stabbündel erfolgt dadurch, daß die Kühlbedingungen an der Brennstaboberfläche unter den realistischen Randbedingungen eines Bündels berechnet werden. Dazu ist die Entwicklung eines Programmes für die thermohydraulische Berechnung der Kühlmittelzustände erforderlich, das folgende Effekte berücksichtigen soll:

- Querströmung zwischen benachbarten Kühlkanälen
- Teilweise Blockagen
- Zeitlich variable Kühlkanalgeometrie
- Transientes Strömungsverhalten

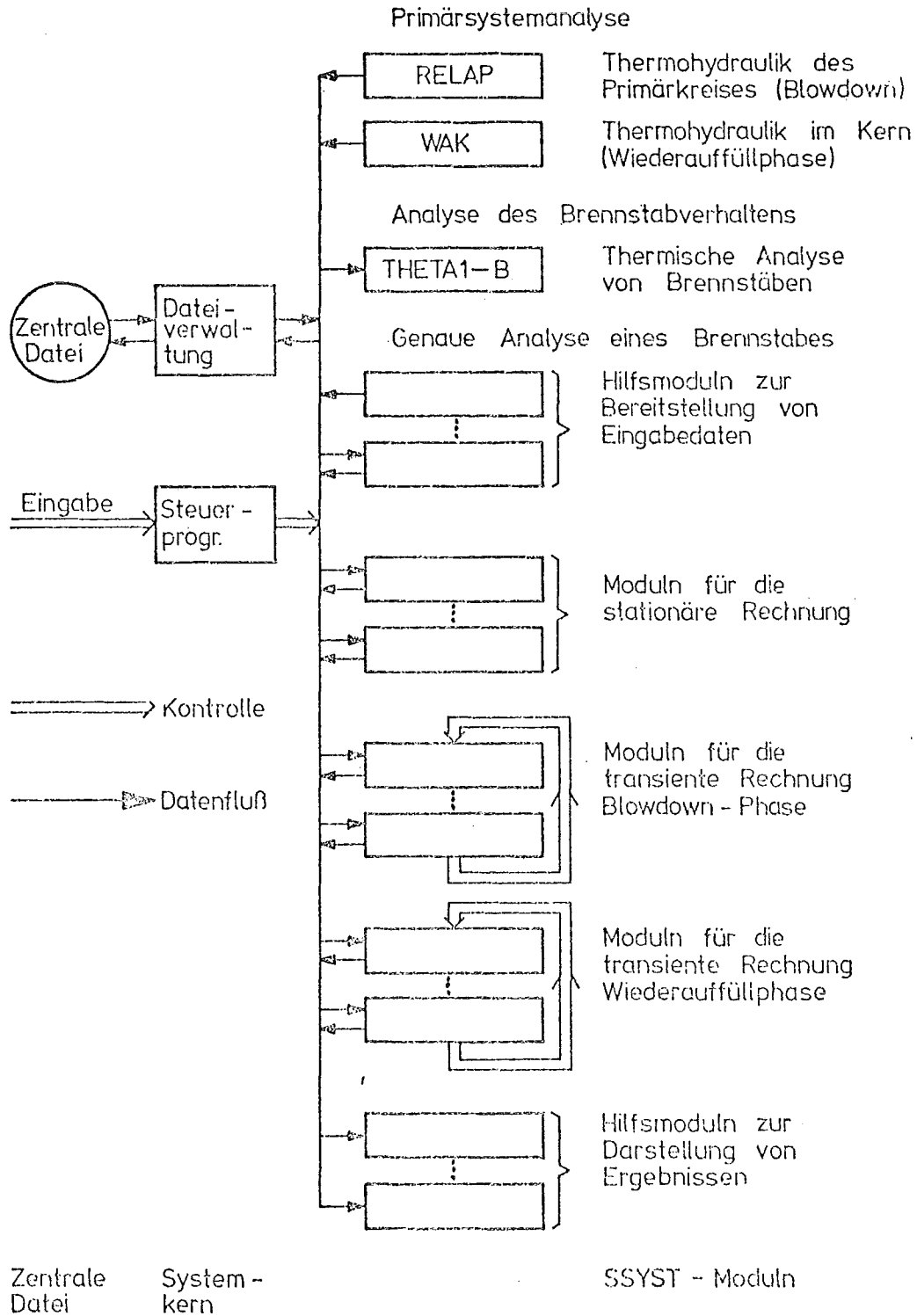
Als Basis für einen solchen Code werden die in dem Programm COBRA III /5/ enthaltenen Modelle empfohlen. Dabei soll in einem ersten Schritt dieses Programm lose an SSYST angekoppelt werden, um weitgehende Erfahrungen über die Brauchbarkeit und die Erfordernis von Verbesserungen zu sammeln.

In einem zweiten Schritt, der eine weitgehende Neuprogrammierung bedeutet, können dann alle notwendigen Erweiterungen, die für ein reibungsloses Zusammenwirken mit den übrigen SSYST-Moduln erforderlich sind sowie die sich für LOCA-Bedingungen als notwendig erweisenden Modellerweiterungen berücksichtigt werden.

### Literatur

- /1/ Gulden, W.:  
Dokumentation von SSYST-Mod-1. Ein Programmsystem zur Berechnung des Brennstabverhaltens bei einem Kühlmittelverlustunfall (1975)unveröffentlicht

- /2/ Ross, A.M., R.L. Stoute:  
Heat Transfer Coefficient Between UO<sub>2</sub> and Zirkaloy-2.  
AECL 1552 (1962)
- /3/ Seidelberger, E.:  
Beschreibung des digitalen Rechenprogrammes WAK  
(1973) unveröffentlicht.
- /4/ Yamanouchi, A.:  
Effect of Core Spray Cooling in Transient State  
After Loss of Coolant Accident  
7. Nucl.Sci.Techn. 5 (1968) 11, pp. 547-558
- /5/ Rowe, D.S.:  
A Mathematical Model for Transient Subchannel Analysis  
of Rod-Bundle Nuclear Fuel-Elements  
7. Heat Transfer, 1973, S. 211
- /6/ Unger, H. et.al.:  
Bericht über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit  
der GfK für den Zeitraum Juli - September 1975  
(1975) unveröffentlicht.
- /7/ Unger, H. et.al.:  
Bericht über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit  
der GfK für den Zeitraum Oktober - Dezember 1975  
(unveröffentlicht)
- /8/ Neitzel, H.J.:  
Bericht in Vorbereitung
- /9/ Alder, R.S., Feldman, E.M., Pinson, P.A.:  
Experimental Data Report for 1-1/2-Loop Semiscale System  
Isothermal Test 1011  
ANCR-1146 (March 1974)
- /10/ Sengpiel, W.:  
Nachrechnung des Semiscale Blowdown-Experimentes 1011  
(Standardproblem 2) mit RELAP4 (1976) unveröffentlicht.



**Abb. 4231-1:** Überblick über die Moduln des Programmsystems SSYST zur Berechnung von LWR-Brennstäben beim Kühlmittelverlustunfall

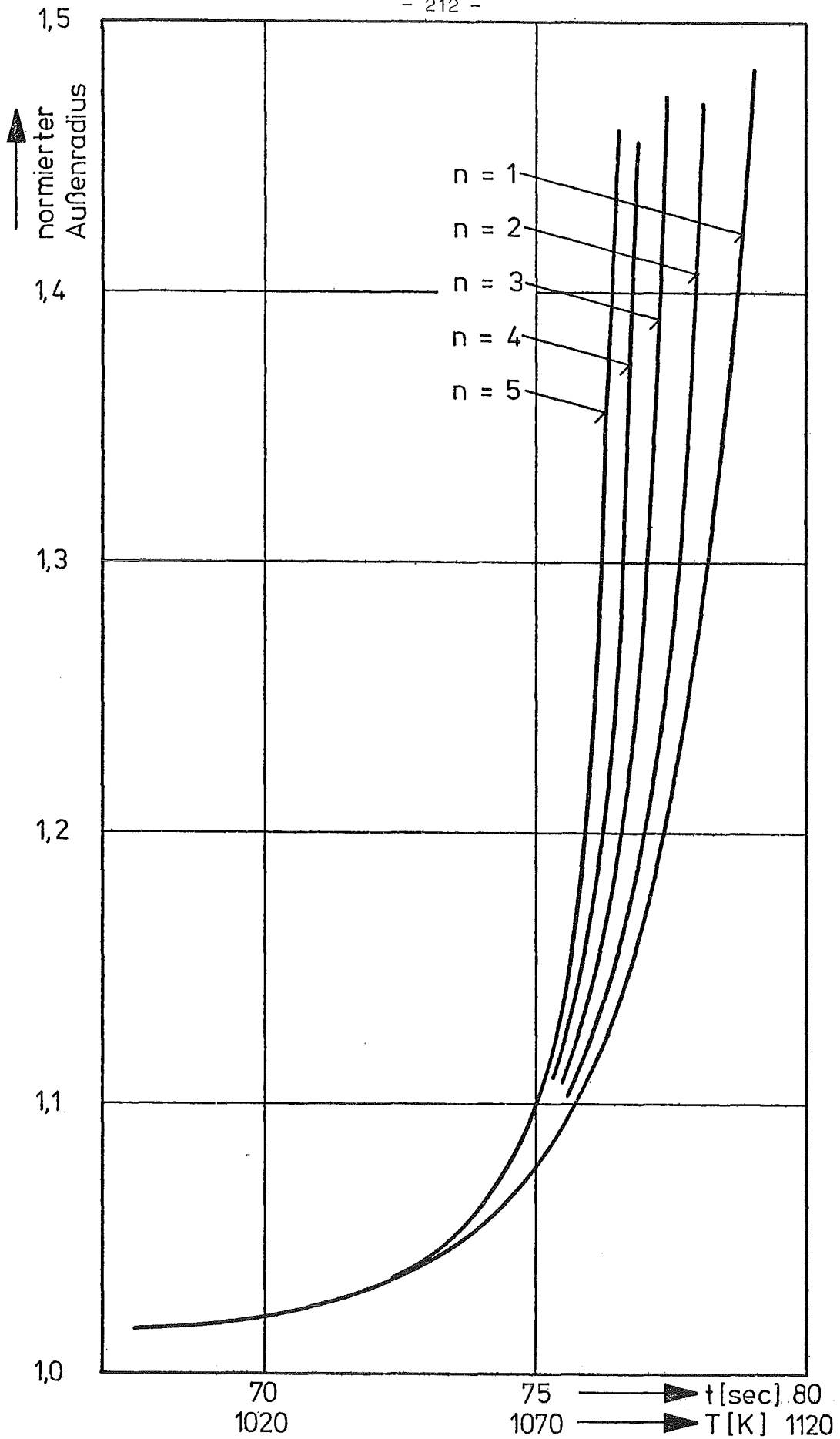


ABB. 4231-2; Dehnungsverlauf für verschiedene Spannungsexponenten

4234 Messung der Nachzerfallswärme von  $^{235}\text{U}$  im  
Zeitbereich 10 - 1000 sek

(K. Baumung, INR)

Ziel des Vorhabens ist die kalorimetrische Messung der Nachzerfallswärme von  $^{235}\text{U}$ . Im Berichtszeitraum wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

#### Zum Versuchsaufbau

Der Aufbau des Kalorimeters sowie der Transportmechanik für die Proben wurde festgelegt. Teile der Apparatur sind bereits fertiggestellt, andere sind in der Herstellung oder Konstruktion. Von den Rohrposttransportfahrzeugen wurden verschiedene Prototypen hergestellt, an denen die Wirksamkeit der Kühlung in der Bestrahlungsposition am FR 2 getestet werden soll, da von der Meßtechnik her eine zu hohe Probertemperatur beim Einbringen in das Kalorimeter unerwünscht ist.

#### Rechnungen

##### 1) Spezifikation der $\text{UO}_2$ -Proben

Im Gegensatz zu den Metallproben führt die geringe Wärmeleitfähigkeit von  $\text{UO}_2$  in Proben von 8 - 15 mm Durchmesser zu Relaxationszeiten von Temperatúrausgleichsprozessen von etwa 15 - 30 sek. Da die Temperatur in einer Sackbohrung in der Probenmitte gemessen werden soll, muß man dafür sorgen, daß dieser Meßwert möglichst gut dem räumlichen Mittelwert entspricht und damit von Wärmetransportprozessen weitgehend unbeeinflusst bleibt. Dazu muß man die Wärmequellendichteverteilung aufgrund der  $\beta$ - und  $\gamma$ -Heizung der Spaltprodukte kennen.



Diese Verteilung hängt vom Aktivierungsprofil, dieses aber von der Selbstabschirmung der Probe gegen thermische Neutronen und damit letztlich von der  $^{235}\text{U}$ -Anreicherung des Brennstoffs ab.

Zur Spezifikation der  $^{235}\text{U}$ -Anreicherung wurden daher für den Fall der 12 mm  $\phi$ -Proben folgende Rechnungen durchgeführt:

Mittels eines 2-dimensionalen Monte-Carlo-Programms wurde die Spaltproduktverteilung für verschiedene Anreicherungen berechnet.

Die  $\beta$ -Heizung wurde für 15 Energiegruppen zwischen 0,2 - 10,0 MeV mit  $\beta$ -Spektren von Kutcher und Wyman /1/ in einer Energie-Reichweite-Näherung ebenfalls 2-dimensional berechnet. Der Verlauf der  $\beta$ -Heizdichte folgt im Inneren der Probe dem Aktivierungsprofil, steigt also zunächst mit dem Radius an und sinkt dann zum Rand hin steil ab.

Die  $\gamma$ -Heizung wurde mit einem 2-dimensionalen Programm für 12 Energiegruppen zwischen 0,2 - 6,0 MeV unter Anwendung des einfachen Absorptionsgesetzes berechnet. Die Normierung dieser Verteilung auf die pro Gruppe absorbierte Energie erfolgte mit den Ergebnissen eines Monte-Carlo-Programms, in dem der Energieverlust eines  $\gamma$ -Quants durch Photo-, Compton- und Paarbildungsprozesse detailliert verfolgt wird. Dieses Programm liefert außerdem die  $\gamma$ -Ausflußspektren in den ganzen Raum sowie in die Äquatorebene der Probe und gestattet die Berechnung der Korrekturfaktoren, die in Abs. 2 beschrieben werden.

Wegen der vergleichsweise großen Reichweite der  $\gamma$ -Strahlen ist die  $\gamma$ -Heizdichte, unabhängig vom Aktivierungsprofil, immer in der Probenmitte am höchsten und fällt zum Rand steil ab. Es zeigt sich, daß es eine optimale Anreicherung von rund 6 %  $^{235}\text{U}$  für Proben mit 12 mm Durchmesser gibt, bei der die Wärmequellendichte in der Probenmitte dem Mittelwert entspricht.

## 2) Korrekturfaktoren für die $\gamma$ -Energieflußmessung

Da rund 65 % der  $\gamma$ -Energie aus der Probe entweichen, muß dieser Anteil zur Bestimmung der gesamten Nachzerfallswärme gemessen werden. Dies kann nur in einem kleinen Raumwinkel erfolgen; vorgesehen ist die Messung in der Äquatorebene. Wegen der Unsymmetrie der Proben (schlanke Zylinder) ist der austretende  $\gamma$ -Energiestrom nicht ganz isotrop. Rechnungen mit dem oben erwähnten Monte-Carlo-Programm haben gezeigt, daß die Messungen in der Äquatorebene Werte liefern, die bis zu 8 % zu hoch liegen.

Diese Rechnungen wurden mit  $\gamma$ -Spektren durchgeführt, die aus Meßwerten von Peelle et.al. /2/ für die speziellen Versuchsbedingungen konstruiert wurden. Dabei zeigt sich auch, daß der Anteil der absorbierten  $\gamma$ -Energie im vorgesehenen Meßzeitraum (10 - 1000 sek) um bis zu 10 % ansteigt, weil das  $\gamma$ -Spektrum weicher wird. Diese Ergebnisse gestatten es, die Kalorimetermeßergebnisse zusammen mit den  $\gamma$ -Energieflußmessungen in  $\beta$ - und  $\gamma$ -Anteile aufzutrennen.

Für die nahe Zukunft sind der Bau der Meßapparatur sowie eines  $\gamma$ -Energiefluß-Monitors und die Konstruktion der Rohrpost/Kühl-einrichtung geplant.

### Literatur

- /1/ J.W. Kutcher u. M.E. Wyman  
Nucl. Sci.Eng. 26 (1966) 435
- /2/ R.W. Peelle,  
IAEA Symp. on Pile Neutron Res. Phys. 1962

- 4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten
- 4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial  
(M. Boček<sup>V</sup>, C. Petersen, W. Schweiger, IMF/II)

1. Das plastische Verhalten von Zircaloy-4 in Luftatmosphäre bei höheren Temperaturen.

1.1 Die Abhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten  $m_a$  von der Temperatur und der Verformungsgeschwindigkeit.

Die Temperaturabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten  $m_a$  wurde im Temperaturbereich von  $400 \div 960^\circ\text{C}$  in Luftatmosphäre untersucht. Das Ergebnis ist in Abb. 4235.1 dargestellt. Im Temperaturbereich von  $400^\circ\text{C}$  bis  $820^\circ\text{C}$  steigt  $m_a$  von 0,02 auf 0,2 an. In diesem Bereich erfolgt die Verformung "normalplastisch". Im Zweiphasenbereich ( $860 \div 960^\circ\text{C}$ ) werden  $m_a$ -Werte von  $0,3 \div 0,8$  erreicht. Die Verformung verläuft "superplastisch".

In Abb. 4235.2 ist die Abhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten von der Temperatur und von der Verformungsgeschwindigkeit in einer dreidimensionalen Darstellung wiedergegeben. Die Form und Lage des "Riffs" ist abhängig, z.B. von der Korngröße (mit wachsendem Korndurchmesser sollte das "Riff" zu kleineren  $\dot{\epsilon}$ -Werten verschoben werden), ferner von der Textur und soweit die Verformung in Luftatmosphäre erfolgt, auch von der Verformung. Die letzteren beeinflussen in entscheidender Weise die Form des "Riffs".

1.2 Die Ermittlung der scheinbaren Aktivierungsenergie

Da beabsichtigt ist, das Verformungsverhalten von Zircaloy-4 im "normalplastischen" Bereich zunächst durch die Beziehung

$$\sigma = C \cdot \dot{\epsilon}_0^m \cdot \exp(Q/kT) \quad (1)$$

zu beschreiben, war es notwendig, neben  $m_a$  auch die Größen  $C$  und  $Q$  im betreffenden Temperaturbereich zu bestimmen. Die scheinbare Aktivierungsenergie  $Q$  kann aus  $\sigma_y(T)_{\dot{\epsilon}_o}$  - bzw.  $\dot{\epsilon}_o(T)_{\sigma_y}$  - Abhängigkeiten berechnet werden (Abb. 4235.3 und 4235.4)

Aus (1) folgt:

$$Q = m_a k \left( - \frac{\delta \ln \dot{\epsilon}_o}{\delta 1/T} \right)_{\sigma_y} = m_a Q_{\sigma_y}$$

bzw.

$$Q = k \left( - \frac{\delta \ln \sigma_y}{\delta 1/T} \right)_{\dot{\epsilon}_o} = Q_{\dot{\epsilon}_o}$$

In Abb. 4235.5 sind die berechneten Werte der scheinbaren Aktivierungsenergie  $Q$  gegen die Temperatur aufgetragen.

Im Temperaturbereich bis  $800^\circ\text{C}$  steigen die Werte nur sehr langsam an. Im Bereich der Phasenumwandlung  $820 - 960^\circ\text{C}$  erfolgt, vermutlich aufgrund der Änderung des Verformungsverhaltens, eine starke Zunahme der Aktivierungsenergie. Bis ca.  $820^\circ\text{C}$  wird die Verformung überwiegend durch die Versetzungsbewegung bewerkstelligt. Oberhalb dieser Temperatur tritt in zunehmendem Maße das für Superplastizität charakteristische Korngrenzgleiten in Einheit mit Akkommodationsprozessen auf.

Bei der Bestimmung der scheinbaren Aktivierungsenergie  $Q$  aus Versuchen in Luftatmosphäre waren zwei Gesichtspunkte zu berücksichtigen. Durch die starke Oxidation der Probe bei höheren Temperaturen und den dadurch verminderten metallischen Querschnitt der Probenfläche, werden zu niedrige Spannungen zur Berechnung von  $Q$  verwendet, wenn die Spannung auf die Ausgangsfläche bezogen wird.

Damit wird die scheinbare Aktivierungsenergie zu niedrig bestimmt. Zum zweiten ist nicht bekannt, inwieweit der gelöste Sauerstoff die  $Q$ -Werte beeinflusst. Deshalb sind Versuche in Vakuum geplant, um diese Unsicherheiten auszuschalten.

### 1.3 Die Verformungsabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten.

Erfolgt die Verformung in Luftatmosphäre superplastisch, so nimmt  $m_a$  mit der Dehnung zu (Abb. 4235.6). Die hierfür notwendige Sauerstoffeinwirkung in situ wird deutlich aus Vergleichsversuchen an sauerstoffhaltigen Zircaloy-4 Proben (H.M. Chung et al<sup>1)</sup>), die einen vergleichbaren Effekt nicht zeigen. Die für diesen Effekt maßgebende Ursache steht möglicherweise in Verbindung mit der  $ZrO_2/Zry$ -Grenzschicht-Spannung, die im Bereich der Superplastizität den Verformungsprozeß beschleunigen kann.

Der Abfall des  $m_a$ -Wertes unter den entsprechenden Wert der Probe, die nur in Vakuum verformt wurde (Punkt 1, Ende der Verformung in Luftatmosphäre, zu Punkt 2, Beginn der Weiterverformung in Vakuum) ist bedingt durch Gefügeänderungen.

Der Wechsel der Versuchsatmosphäre erforderte eine Probenabkühlung von  $900^{\circ}C$  auf Raumtemperatur. Dabei wurde die  $\beta$ -Phase in die  $\alpha$ -Phase umgewandelt. Diese unterscheidet sich im Gefüeaufbau (Lamellen-Struktur) von der ursprünglichen  $\alpha$ -Phase. Beim erneuten Aufheizen dieser Probe auf  $900^{\circ}C$  (Vakuumverformung) bleibt die Lamellen-Struktur auch in der  $\beta$ -Phase erhalten. Wie Untersuchungen ergaben, verhalten sich Proben mit Lamellen-Struktur unter gleichen Bedingungen normalplastisch.

### 1.4 Der Einfluß von Wärmebehandlungen auf das Verformungsverhalten.

Bekanntlich hängt die Fähigkeit zur Superplastizität ganz empfindlich von der Korngröße ab.

Zur Überprüfung dieses Sachverhaltes wurden Proben im Vakuum geglüht und anschließend in Luft verformt. Die Glühtemperaturen wurden so festgelegt, daß Proben im  $\alpha$ -Bereich ( $840^{\circ}C$ ) geglüht wurden. Eine Zunahme der Korngröße konnte nicht beobachtet werden. Bei Glühungen im  $\beta$ -Bereich ( $1050^{\circ}C$ ) konnten schon bei kurzen Glühzeiten eine lamellare Konstruktur mit Korngrößen von ca. 200 - 300  $\mu m$  eingestellt werden. Diese Ergebnisse stimmen gut überein mit

den Korngrößenbestimmungen an geglühten Proben von H.M. Chung et al<sup>1)</sup>.

Die der Wärmebehandlung nachfolgende Verformung erfolgte bei Versuchsparametern, die superplastisches Verhalten ermöglichen ( $T = 900^{\circ}\text{C}$ ,  $\dot{\epsilon}_0 = 3,3 \times 10^{-4} \text{ [s}^{-1}\text{]}$ ).

In Abb. 4235.7 ist das Gefüge des verformten und des unverformten Bereiches der ungeglühten Vergleichsprobe dargestellt.

Bei gleichbleibender Korngröße ist eine Kornreckung nicht festzustellen. Zu beobachten war lediglich eine Aufweitung der Korngrenzenbereiche, die möglicherweise mit einer verformungsbedingten Kornrotation in Zusammenhang steht. Denn im verformten Bereich der Probe stehen wesentlich weniger Körner im direkten Kontakt miteinander, als im unverformten Bereich.

In Abb. 4235.8 sind die  $m_a$ -Werte in Abhängigkeit von der Temperatur für geglühte Proben ( $840^{\circ}\text{C}$  oberes Diagramm;  $1050^{\circ}\text{C}$ , unteres Diagramm) im Vergleich mit Werten der ungeglühten Probe dargestellt. Proben, die bei  $840^{\circ}\text{C}$  geglüht wurden, zeigen eine ähnliche Abhängigkeit des  $m_a$ -Wertes von der Temperatur wie die ungeglühte Vergleichsprobe. Die  $m_a$ -Werte der bei  $1050^{\circ}\text{C}$  geglühten Proben, die, wie aus Abb. 4235.10 (unverformter Bereich) zu sehen ist, ein um 50-fach vergrößertes Korn mit lamellarer Struktur besitzen, liegen im verfolgten Temperaturbereich unterhalb 0,3 und verhalten sich also normalplastisch.

Betrachtet man die Abhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten von der Dehnung (Abb. 4235.9), ist zu sehen, daß mit zunehmenden Dehnbeträgen  $m_a$  wieder ansteigt und Werte über 0,3 erreicht.

Der verformungsbedingte Anstieg der  $m_a$ -Werte für die bei  $1050^{\circ}\text{C}$  geglühten Proben ist, wie aus der Abb. 4235.10 ersichtlich, mit einer Fragmentation des lamellaren Korngefüges verbunden. Die zunächst im normalplastischen Zustand ablaufende Polygonisation ermöglicht im Laufe der Dehnung Korngrenzgleiten bzw. zunehmend Kornrotation der fragmentierten Lamellen,

was wiederum die superplastische Verformung begünstigt.

## 2. Die Phasenverteilung beim $\alpha \rightarrow (\alpha+\beta)$ Phasenübergang.

Aus den in Abb. 4235.11 dargestellten Schlibfbildern ist zu erkennen, daß die Ausscheidung der  $\beta$ -Phase oberhalb  $840^{\circ}\text{C}$  zunächst überwiegend an den Korngrenzen erfolgt. Besonders die Tripelpunkte sind bevorzugte Stellen. Bei  $880^{\circ}\text{C}$  sind bereits größere Bereiche umgewandelt, wie sich aus der lamellenartigen Struktur des bei der Abkühlung rückgewandelten Gefüges ( $\alpha'$ -Phase) erkennen läßt. Dies ist von zweifacher Bedeutung. Einmal hemmt offensichtlich die  $\beta$ -Phase an den Korngrenzen das Wachstum der  $\alpha$ -Körner, zum anderen erniedrigt die  $\beta$ -Phase wahrscheinlich die  $\alpha$ -Korngrenzenenergie. Beide Effekte sind förderlich im Hinblick auf superplastisches Verhalten.

## 3. Die Zeitstandfestigkeit von Zircaloy-4 Hüllrohren in isothermen Innendruckversuchen bei höheren Temperaturen.

Isotherme Innendruckversuche an Zircaloy-4 Hüllrohren bei Temperaturen von  $800^{\circ}\text{C}$  und  $900^{\circ}\text{C}$  wurden im Vakuum durchgeführt. Als Druckmedium wurde inertes Gas verwendet. In Abb. 4235.12 ist der Berstdruck gegen die Standzeit aufgetragen. Es besteht gute Übereinstimmung mit den Messungen anderer Autoren<sup>2:6)</sup>

Bei dem höchsten bisher von uns aufgebrachten Innendruck von  $35 \text{ [kp/cm}^2\text{]}$  wurden bei kleinen Standzeiten, d. h. großen Verformungsgeschwindigkeiten, Umfangsdehnungen von über 80 % erreicht.

Die Innendruckversuche an Zircaloy-4 Hüllrohren werden verstärkt durchgeführt. Das Ziel ist es, apparative Möglichkeiten zur kontinuierlichen Messung der Umfangsdehnung zu schaffen.

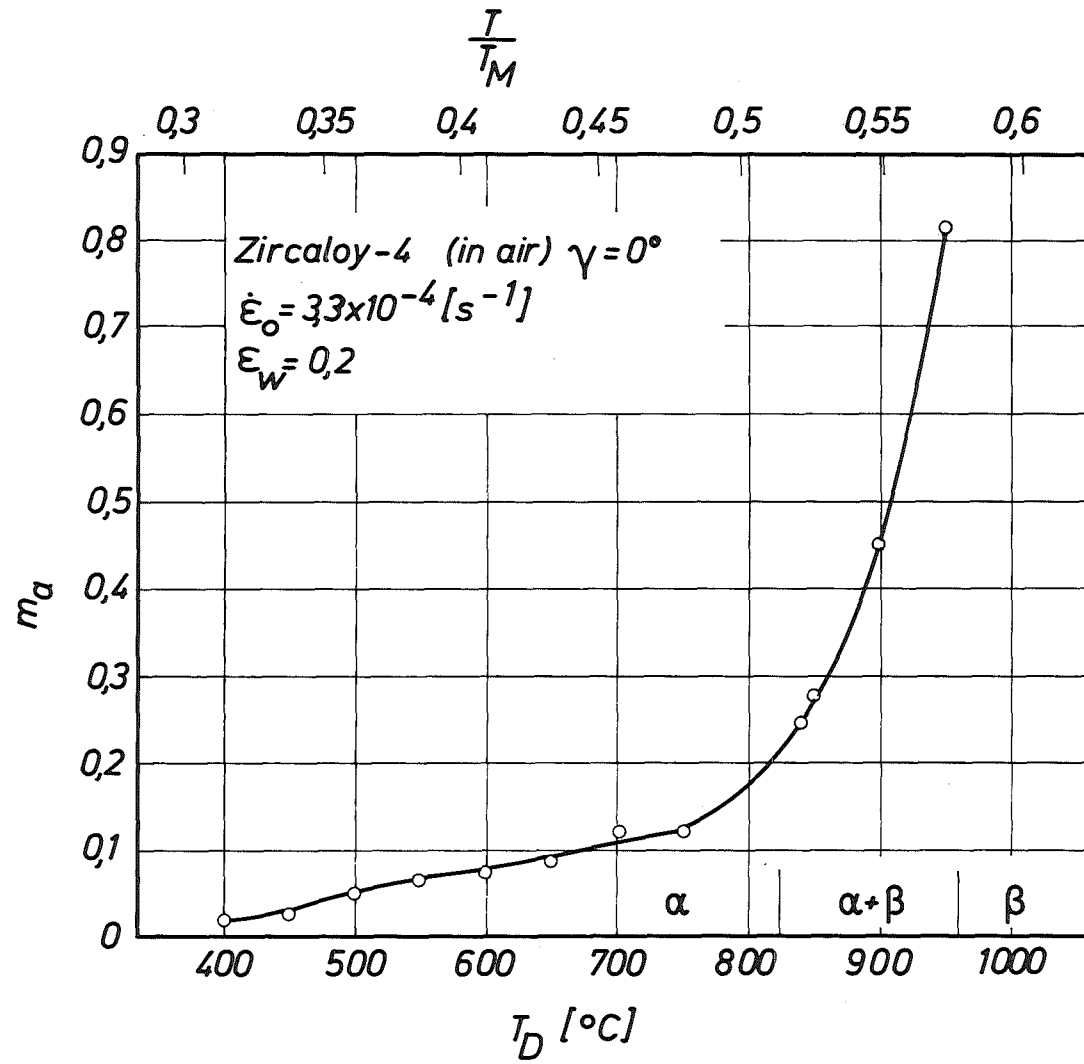


Abb. 4235.1 Die Abhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten  $m_a$  von der Temperatur.



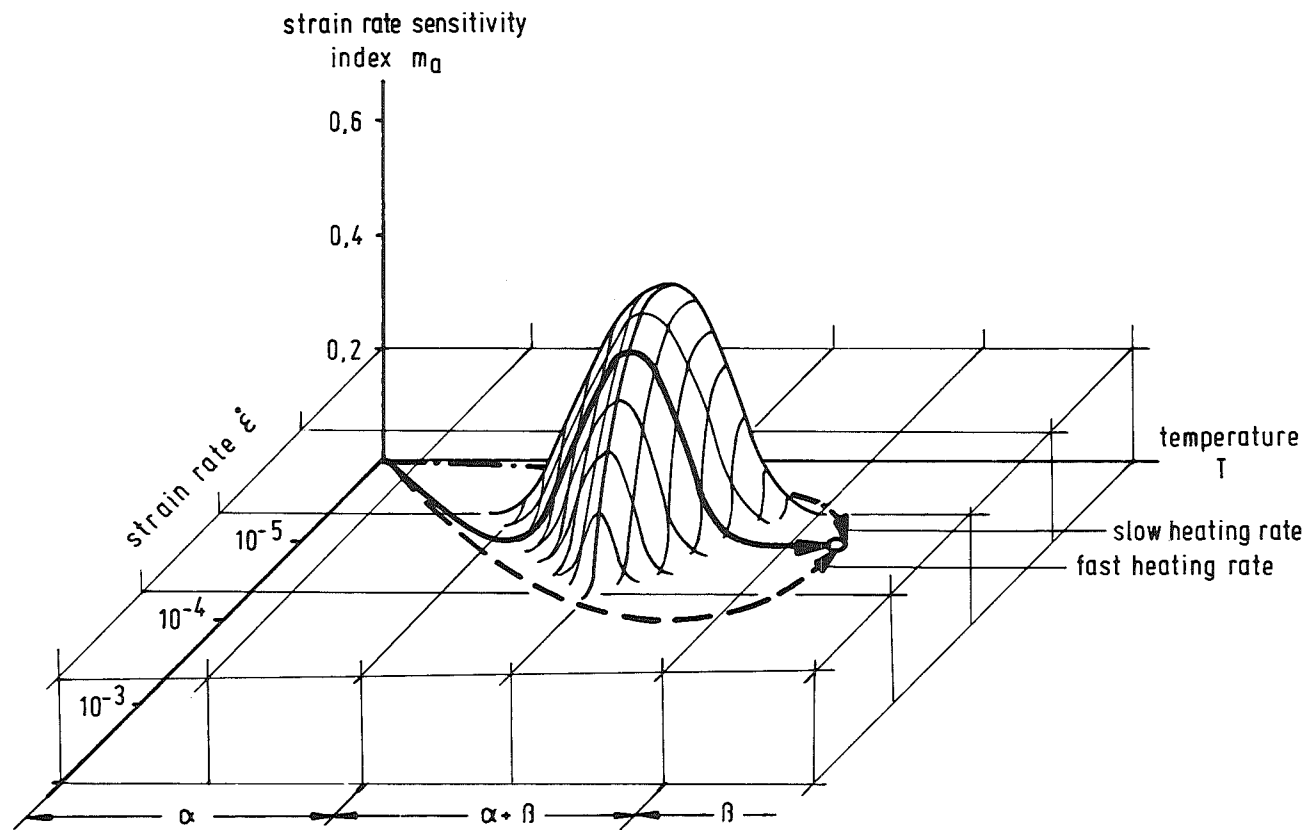


Abb. 4235.2 Dreidimensionale Darstellung der Abhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten von der Verformungstemperatur und der Verformungsgeschwindigkeit.

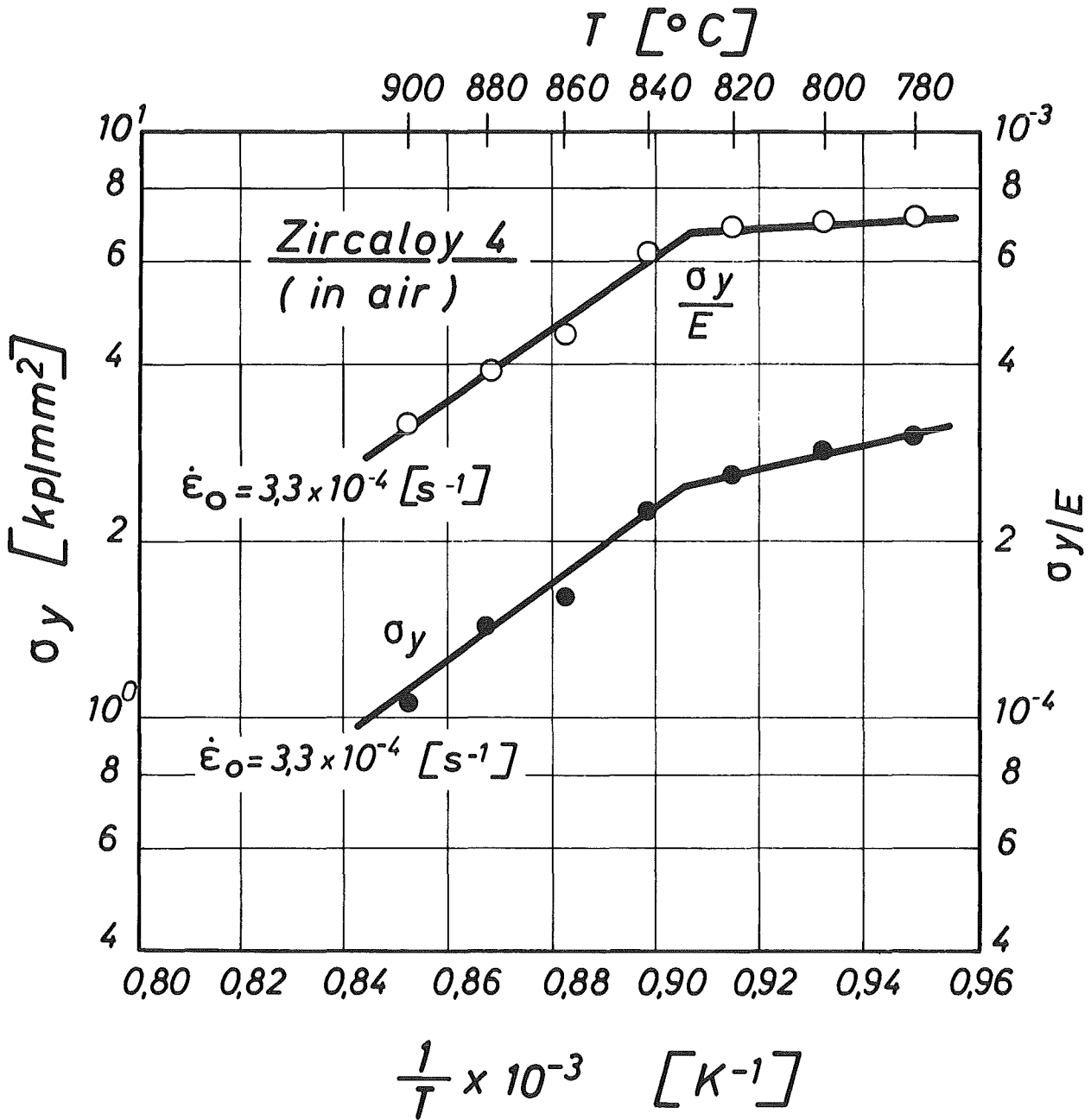


Abb. 4235.3 Die Abhängigkeit der Spannung von der Temperatur für konstante Verformungsgeschwindigkeit.

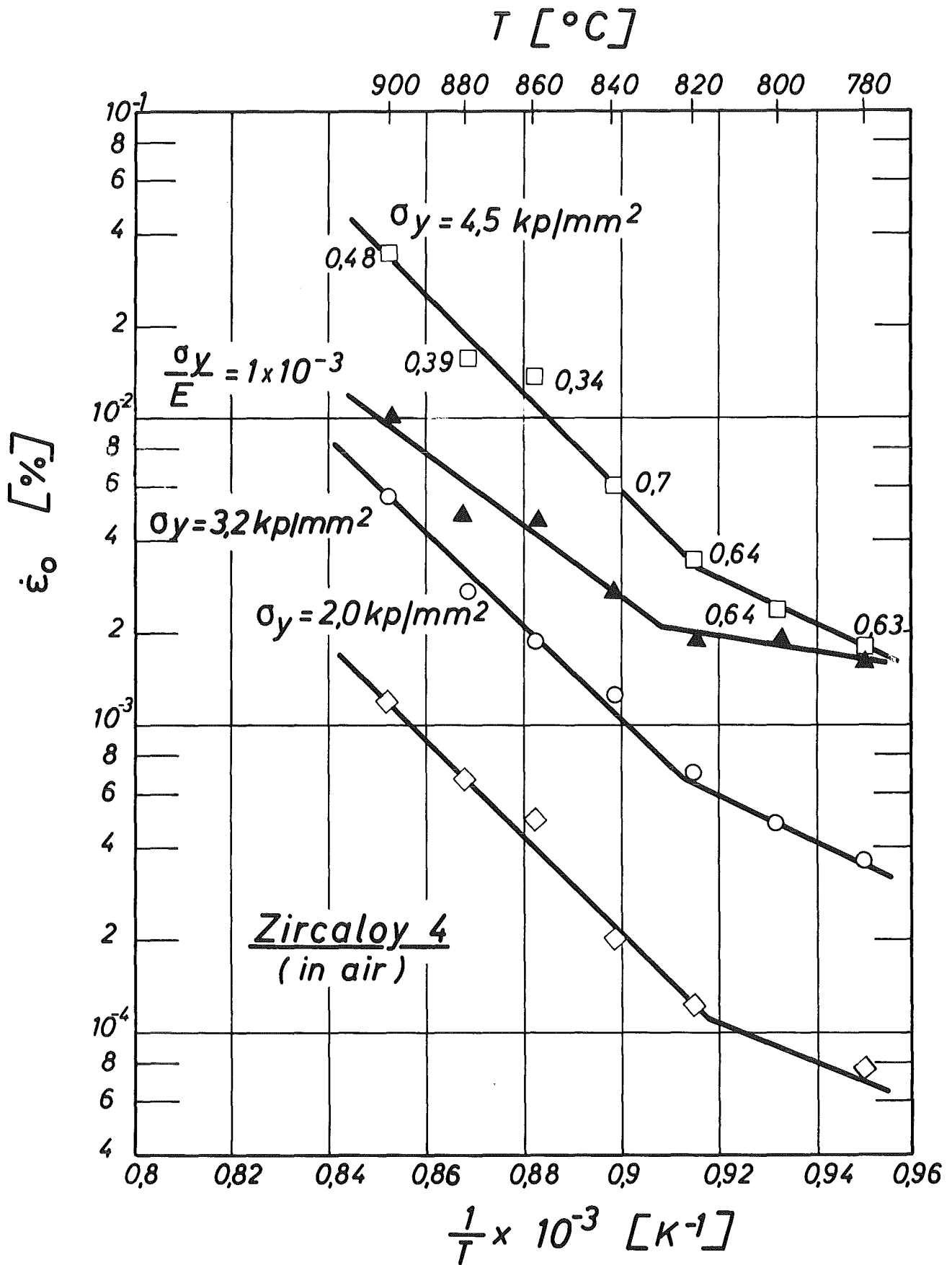


Abb. 4235.4 Die Abhängigkeit der Verformungsgeschwindigkeit von der Temperatur für konstante Spannung.

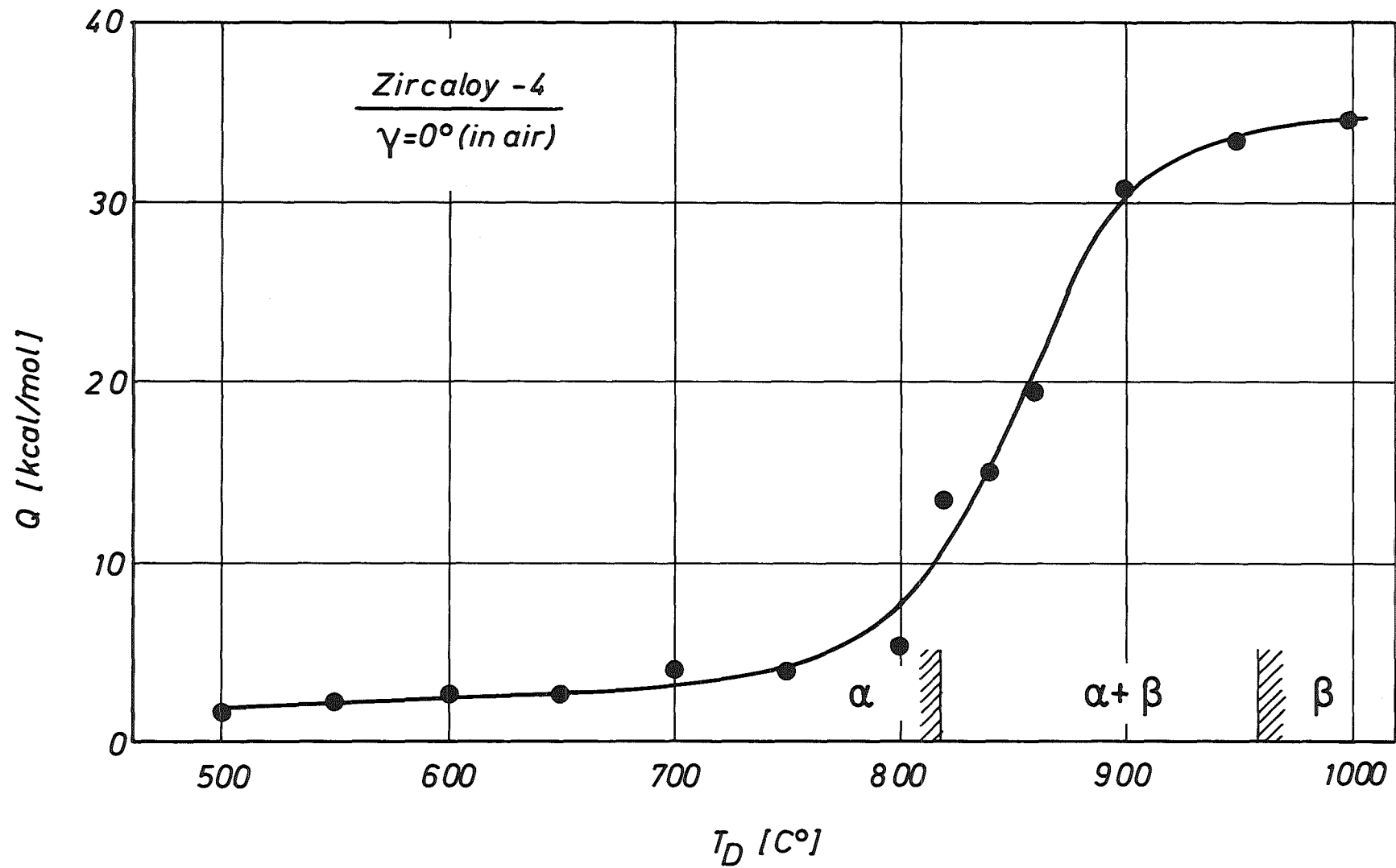


Abb. 4235.5 Die scheinbare Aktivierungsenergie in Abhängigkeit von der Temperatur aus Versuchen in Luftatmosphäre.

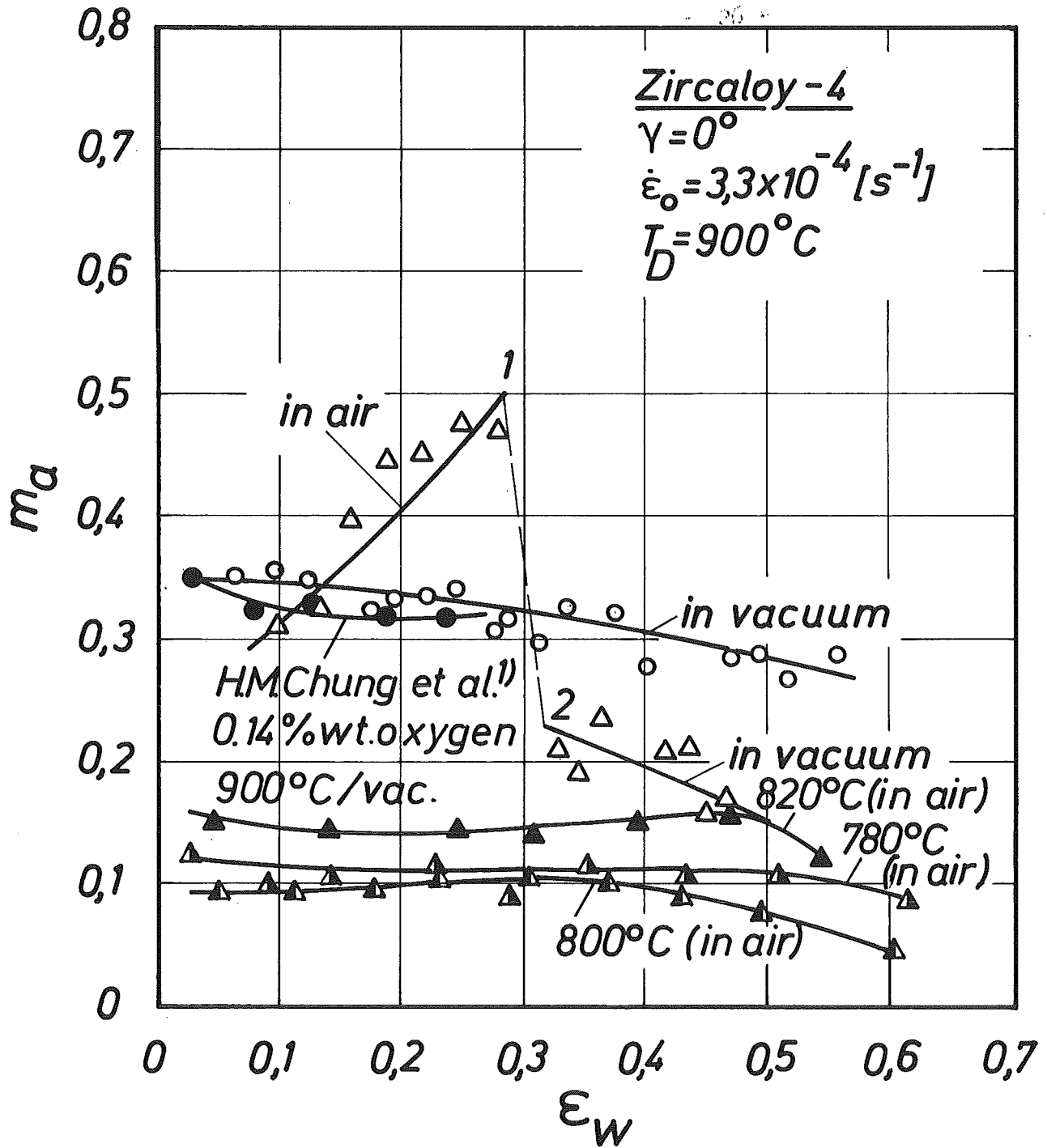
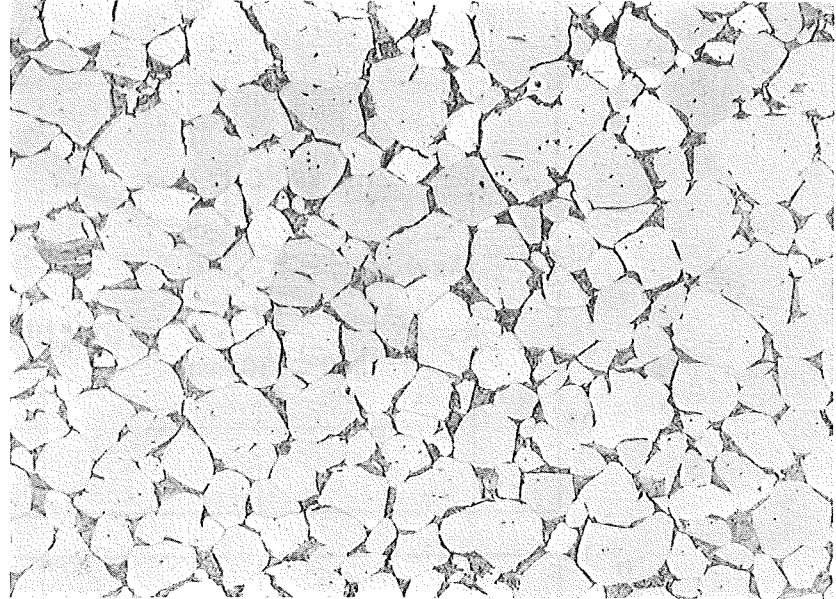


Abb. 4235.6 Die Verformungsabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten für unterschiedliche Temperaturen und Versuchsatmosphären.

Zircaloy -4 (in air)  $\gamma = 0^\circ$  - 227 -

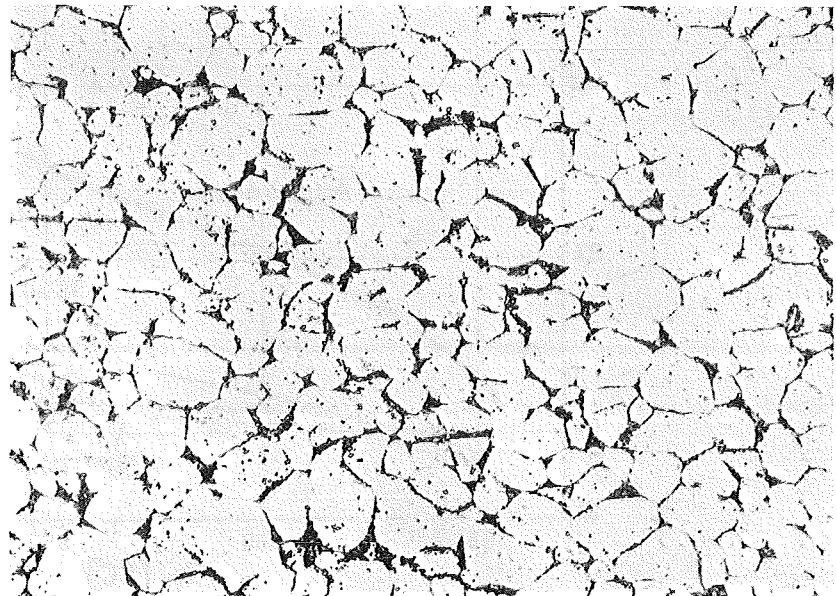
$T_D = 900^\circ\text{C}$ ;  $\dot{\epsilon}_0 = 3,3 \times 10^{-4} [\text{s}^{-1}]$ ;  $\epsilon_W = 0,2$

*Deformed Zone*



20  $\mu\text{m}$   
—|—

*Undeformed Zone*



20  $\mu\text{m}$   
—|—

Abb. 4235.7 Längsschliffe der verformten und unverformten Bereiche einer bei  $900^\circ\text{C}$  verformten Probe.

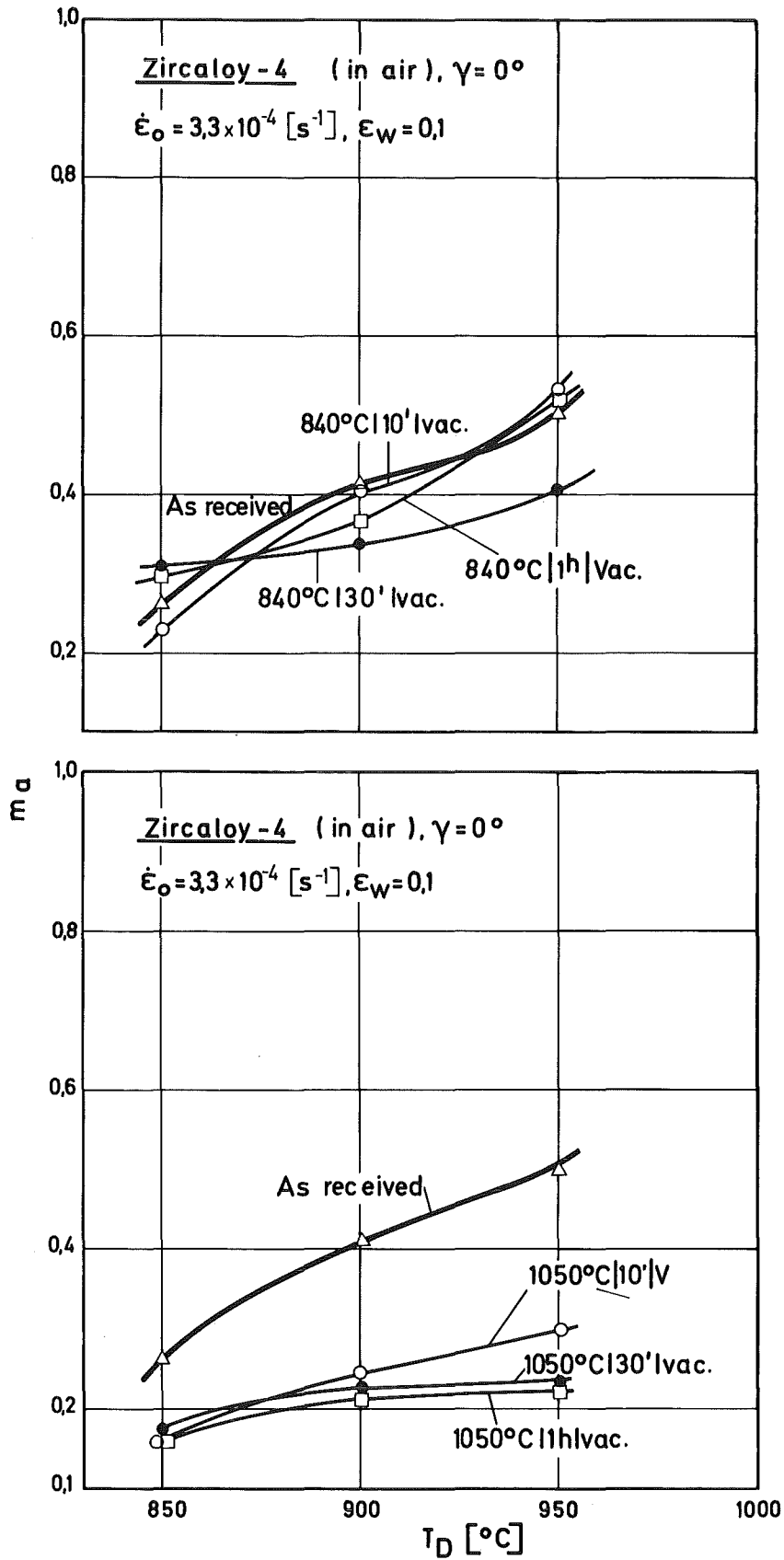


Abb. 4235.8 Die Temperaturabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten für Proben, die bei 840 und 1050°C gegläht wurden im Vergleich mit ungeglähten Proben.

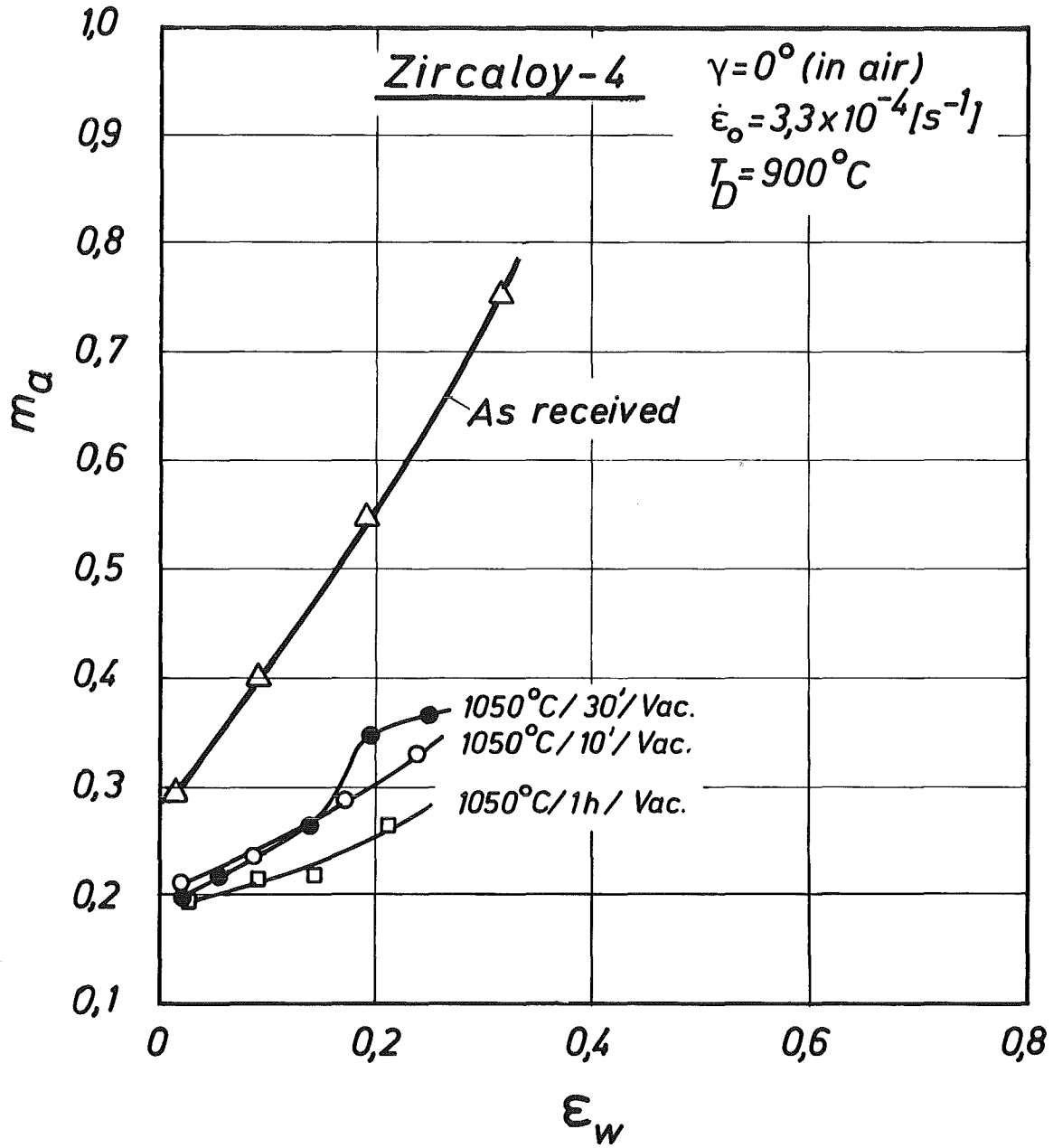
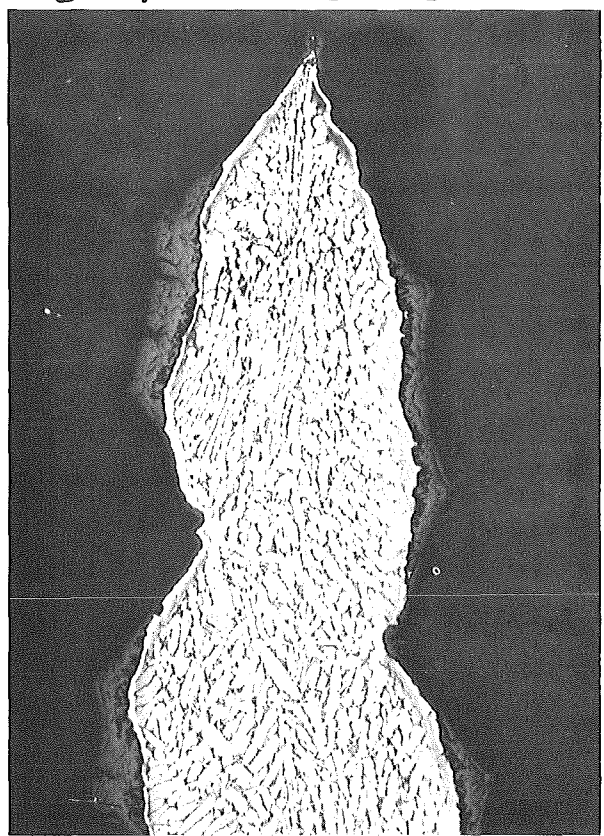


Abb. 4235.9 Die Verformungsabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten einer geglühten Probe im Vergleich mit einer Probe im Ausgangszustand.

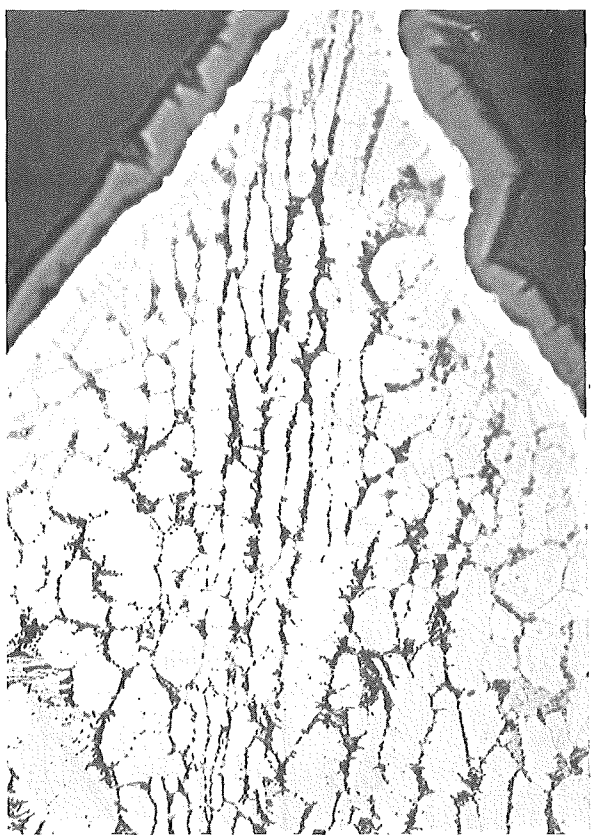


Zircaloy - 4 (in air)  $\gamma = 0^\circ$   
 $T_A = 1050^\circ\text{C} / 10' / \text{vac}$ ;  $T_D = 900^\circ\text{C}$ ;  
 $\epsilon_0 = 3,3 \times 10^{-4} [\text{s}^{-1}]$

Abb. 4235.10 Längsschliffe der verformten und unverformten Bereiche einer bei 1050°C geglähten und bei 900°C verformten Probe.

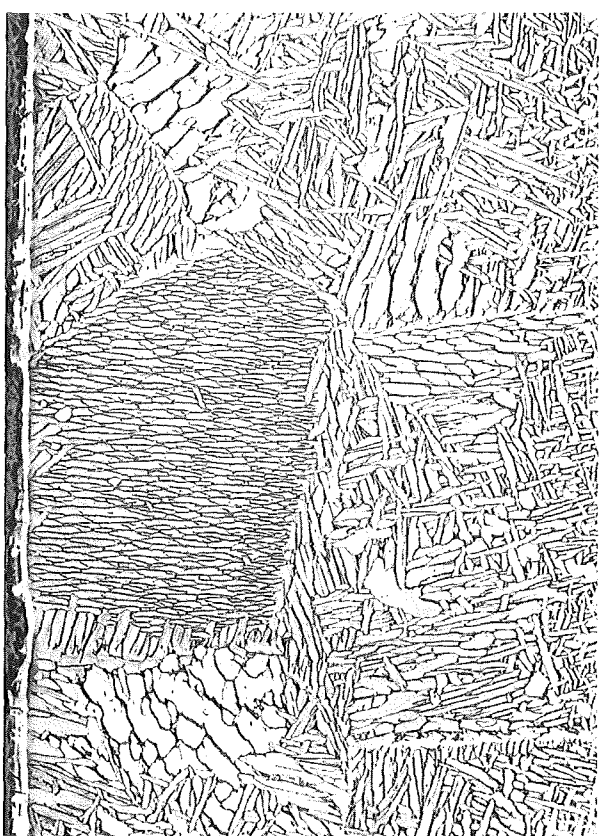


200 μm



20 μm

*Deformed Zone*



200 μm

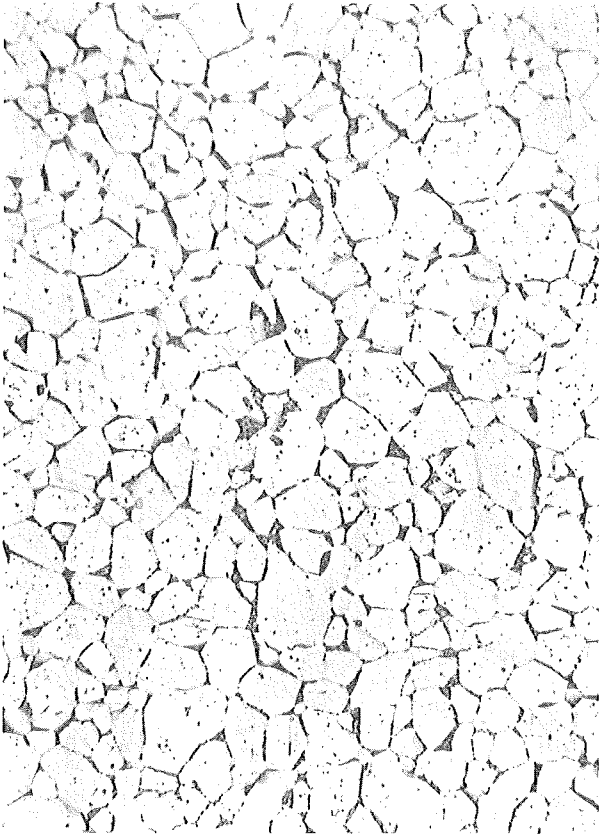


20 μm

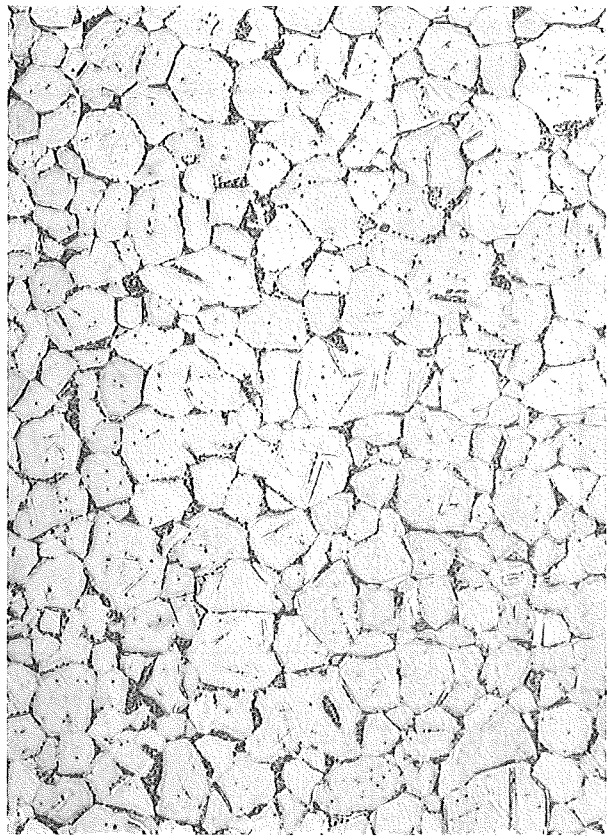
*Undeformed Zone*

Abb. 4235.10 Längsschliffe der verformten und unverformten Bereiche einer bei 1050°C geglähten und bei 900°C verformten Probe.

$t_A = 10'$

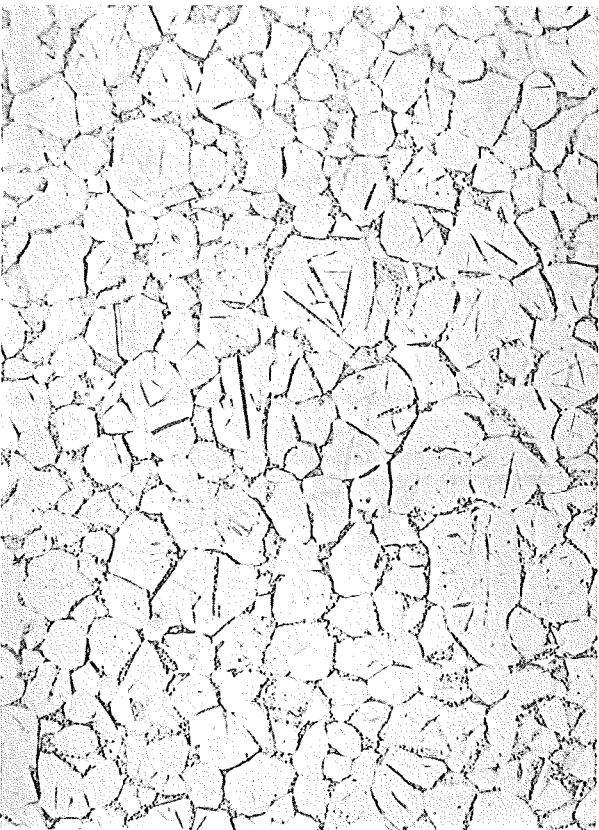


$T_A = 820^\circ\text{C}$

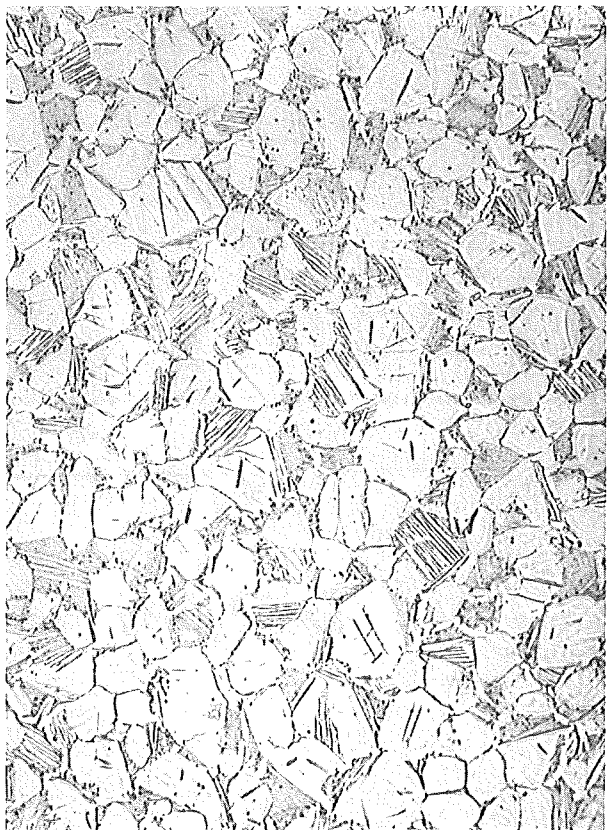


$T_A = 840^\circ\text{C}$

Abb. 4235.11 Längsschliffe von Proben, die im Temperaturbereich von 820 - 880°C gegläht wurden.



$T_A = 860^\circ\text{C}$



$T_A = 880^\circ\text{C}$

Abb. 4235.11 Längsschliffe von Proben, die im Temperaturbereich von

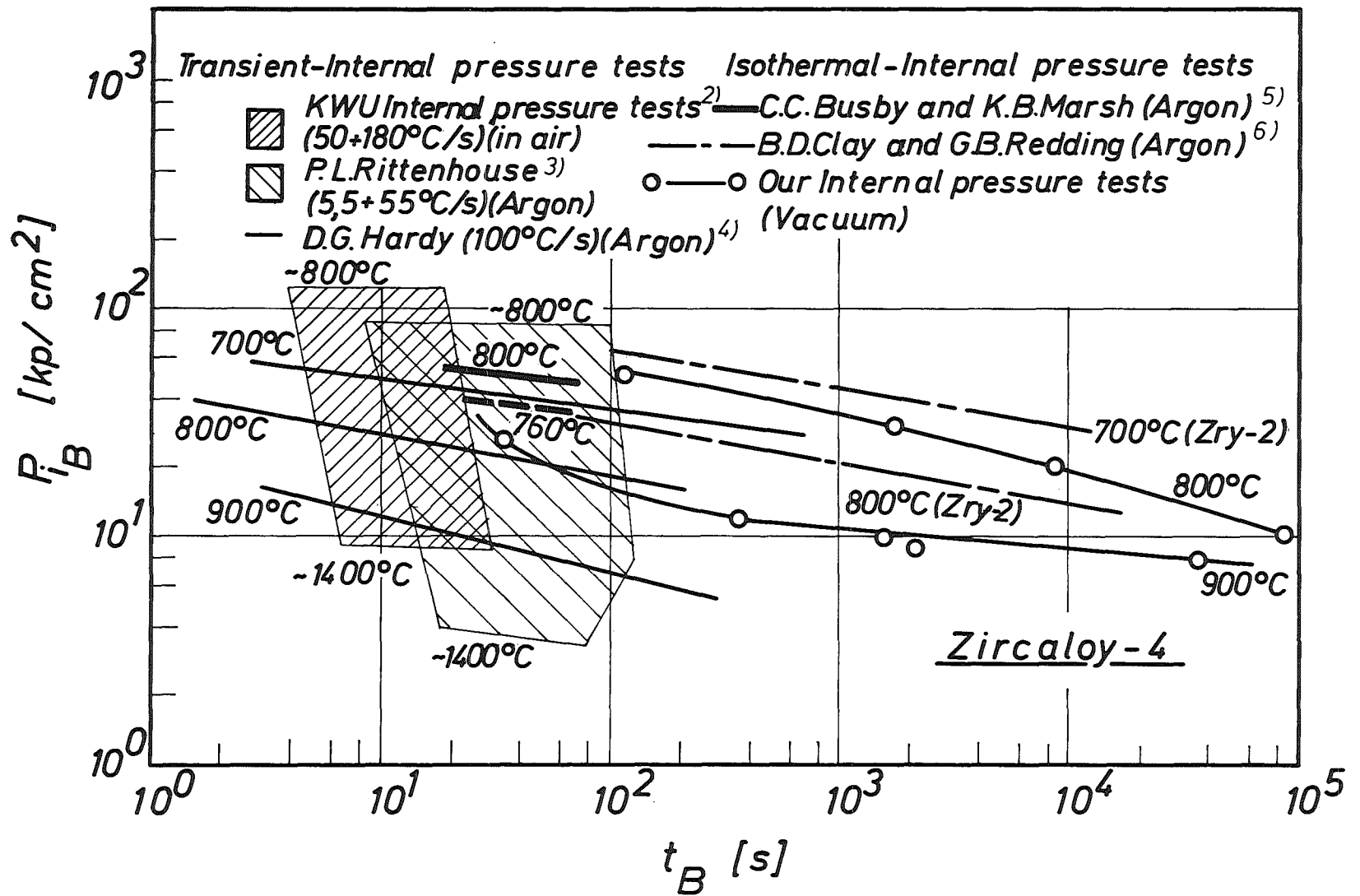


Abb. 4235.12 Die Berstzeit in Abhängigkeit vom Berstdruck aus transienten und isothermen Versuchen anderer Autoren im Vergleich mit eigenen Messungen bei 800°C und 900°C.

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation  
von Zircaloy-Hüllrohren

(S. Leistikow, H.v.Berg, D. Jennert, R. Kraft, G. Schanz)

1. Oxidationskinetische Untersuchungen an Rohrabschnitten  
in Wasserdampf

1.1 Oxidationskinetische Untersuchungen

1.1.1 Angenähert isotherme Zeit-Temperaturverläufe

1.1.1.1 Reaktionen in elektrisch-widerstandsbeheizten Rohröfen:  
Definition der Reaktionszeit bei angenähert isothermer  
Versuchsführung

Hochtemperatur-Oxidationsversuche mit Zirkonium-Legierungen in isothermer Reaktionsführung sind kinetisch schwierig auszuwerten, da es bei Reaktionsbeginn aufgrund der freiwerdenden Reaktionswärme - wie bereits beschrieben (7,8) - zu einer kurzzeitigen Temperaturüberhöhung kommt. Angenähert isotherme Versuche dagegen, die durch eine Phase schnellen Aufheizens und anschließendes isothermes Halten der Temperatur gekennzeichnet sind (Abb. 4235- 13), erfordern eine sinnvolle Definition der Reaktionszeit, da die Aufheizphase in geeigneter Weise berücksichtigt werden muß. Bei Oxidationsversuchen mit Temperaturmessung durch ein angelegtes Thermoelement, über deren Ergebnisse bereits berichtet wurde (8), war als Reaktionsbeginn der Zeitpunkt festgelegt worden, zu dem 90% des Temperaturanstiegs durchlaufen waren. Vergleichende Messungen mit angelegtem und angeschweißtem Thermoelement haben gezeigt, daß das angelegte Thermoelement die Proben temperatur mit geringer zeitlicher Verzögerung anzeigt, so daß bei angezeigten 90% die wahre Proben temperatur bereits ca. 95% des Sollwertes erreicht hatte. Mit dem Ziel, die gewählte Definition des Reaktionsbeginns zu bestätigen, wurde eine rechnerische Abschätzung durchgeführt und außerdem wurden Computerrechnungen mit dem Code SIMTRAN I für transiente und isotherme Versuchsführung untereinander verglichen.

Unter der Voraussetzung, daß die Oxidationsreaktion mit parabolischer Zeitabhängigkeit und exponentieller Temperaturabhängigkeit

abläuft - was experimentell bereits bestätigt ist (8) -, kann ein Zeitäquivalent errechnet werden, das so definiert ist, daß die während der Aufheizphase eintretende Oxidation (Gewichtszunahme, Schichtstärken) gleich stark ist wie die Oxidation bei Reaktionstemperatur während der Äquivalentzeit. Für lineare, beliebig steile Temperaturanstiege von etwa 100°C auf 900 bzw. 1300°C erhält man Zeitäquivalente von etwa 5-6% der Anstiegszeit. Das bedeutet, daß als Beginn der Reaktionszeit etwa 94-95% der Anstiegszeit bzw. des Temperaturanstiegs anzusetzen ist. Außerdem zeigt sich, daß die während des Durchlaufens einer Temperaturrampe unterhalb von 650 bzw. 850°C eintretende Oxidation nur etwa 1% der Gesamtoxidation ausmacht, so daß nur der Temperaturverlauf von 650 bis 900°C bzw. 850 bis 1300°C betrachtet werden muß. Eine entsprechende Abschätzung ergab für nichtlineare Anstiege des Typs, der in Oxidationsversuchen beobachtet wird, daß auch in diesen Fällen das Erreichen von ca. 95% des Temperaturanstiegs eine sinnvolle Definition des Reaktionsbeginns ist.

Die Ergebnisse der Computerrechnungen bestätigen diesen Befund. Der Vergleich eines linearen Anstiegs von 750 auf 1100°C mit isothermen Versuchen bei 900, 1000 und 1100°C ergab Reaktionszeit-Äquivalente bei den angegebenen Temperaturen, aus denen geschlossen werden kann, daß der Reaktionsbeginn mit Erreichen von 92 bis 95% des jeweiligen Temperaturanstiegs festzulegen wäre.

Somit kann in guter Näherung der Beginn der Reaktionszeit nach Durchlaufen von 95% des Temperaturanstiegs angesetzt werden, unabhängig von der Anstiegszeit und der Endtemperatur. Die bisher verwendete Definition des Reaktionsbeginns bei Temperaturmessung mit angelegtem Thermoelement hat sich als richtig erwiesen und wird weiterhin durch die gute Übereinstimmung der Versuchsergebnisse mit neuen Daten des HNL bestätigt.

#### 1.1.1.2 Reaktionen bei induktiver Beheizung

Reaktionen mit störfalltypischen Zeit-Temperaturverläufen (Abb. 4235-13) können nicht reproduzierbar in Rohröfen, sondern müssen z. B. mit Hilfe einer programmgesteuerten Induktionsheizung

durchgeführt werden. Mit Ausnahme des großen Transformators sind die zur Versuchsdurchführung notwendigen Komponenten einer funktionsfähigen Versuchsanlage (Dampferzeuger, Reaktionsgefäß, Spule, Kühler, Programmregler, Schreiber, Beheizungstransformatoren) in Abb. 4235-14 wiedergegeben.

Zur Durchführung von Oxidationsversuchen im Dampfstrom (1 at, 1 m/s) an 30 mm langen, gebeizten und gewogenen Rohrabschnitten wurden diese zur Temperaturmessung und -regelung zuerst mit einem angepunkteten Pt/Pt-10%Rh-Thermoelement (Iridium-Blättchen als Zwischenschicht) nahe der oberen Stirnseite der Probe auf der angephasten Probenoberfläche versehen. Für die angenähert isotherme Versuchsführung wurde eine Aufheizgeschwindigkeit von  $100^{\circ}\text{C}/\text{s}$  gewählt; das bedeutet, daß der Temperaturanstieg aus der Basistemperatur von  $300^{\circ}\text{C}$  auf Reaktionstemperaturen von 800 bis  $1300^{\circ}\text{C}$  innerhalb 5-10 sec erfolgte. Die Gesamtdauer der Versuche wurde in Analogie zu den Rohrofenexperimenten auf 15 min beschränkt.

Die durch Rückwägung ermittelten Resultate wurden einerseits den unter Rohrofenbeheizung erzielten gegenübergestellt, andererseits mit den durch Anwendung des SIMTRAN I-Code berechneten Gewichtszunahme-Zeit-Kurven verglichen (Abb. 4235-15). Die Übereinstimmung mit den bisherigen experimentellen Ergebnissen ist überzeugend gut, für die Übereinstimmung mit den computerberechneten Funktionen gilt - mit Ausnahme der bereits beschriebenen Abweichungen der experimentellen Ergebnisse bei  $900^{\circ}\text{C}$  und  $1300^{\circ}\text{C}$  - gleiches. Eine Überprüfung und Optimierung der im Code verwendeten Materialdaten ist in Arbeit. Der geprüfte Temperaturbereich wurde auf  $800^{\circ}\text{C}$  für Reaktionszeiten von maximal 15 Minuten erweitert und in die Gesamtdarstellung der Oxidationskinetik eingeordnet. Über die in Aussicht genommenen Rechnungen in diesem Temperaturbereich wird im nächsten Kapitel berichtet.

#### 1.1.1.3 Vergleichsrechnungen mit dem Code SIMTRAN I zu angenähert isothermen Oxidationsversuchen

Der Computercode SIMTRAN I zur modellmäßigen Berechnung der Oxidation von Zircaloy ist bereits vorgestellt worden. Die Vergleichs-

rechnungen zu angenähert isothermen Oxidationsversuchen bei 900 bis 1300<sup>o</sup>C hatten gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen erbracht (8).

Weitere Rechnungen werden für tiefere Temperaturen durchgeführt. Dazu muß sinnvollerweise der dem Programm vorgegebene Satz von Materialdaten verbessert und vervollständigt werden. Aus Untersuchungen des ANL (1) stehen Daten zur  $\alpha$ - $\beta$ -Umwandlung des Zirkons im System Zircaloy 4 - Sauerstoff zur Verfügung, aus denen die Gleichgewichts-Sauerstoff-Konzentration an den Grenzen der beiden Phasen entnommen werden können. Unterhalb von ca. 820<sup>o</sup>C ist die  $\beta$ -Phase nicht stabil; der Code muß also entsprechend entartet werden. Zwischen ca. 820 und 970<sup>o</sup>C ist die Sauerstoffkonzentration in der  $\beta$ -Phase als praktisch Null anzusetzen. Die Implementierung verbesserter Stoffdaten und erste Testrechnungen sind in Arbeit.

#### 1.1.2 Transiente Zeit-Temperaturverläufe

Zur Untersuchung der Sauerstoffaufnahme im Laufe von kühlmittelverlust-störfalltypischen Zeit-Temperatur-Verläufen wurden die in Abb. 4235-16 dargestellten Zeit-Temperatur-Funktionen ausgewählt, um während 3 Minuten unter Variation

- der ersten Aufheizgeschwindigkeit,
- der Höhe des ersten Maximums,
- der ersten Abkühlgeschwindigkeit,
- der Tiefe des Minimums,
- der zweiten Aufheizgeschwindigkeit,
- der Höhe und Haltezeit bei zweiter Maximaltemperatur,
- sowie der zweiten Abkühlgeschwindigkeit

durchfahren zu werden. Die beiden kurzzeitigen Verläufe, deren Haltezeiten bei Temperaturen < 800<sup>o</sup>C liegen, entsprechen dabei reaktortypischen Rechenkurven unter der Voraussetzung ungestörter Funktion der Notkühlung. Alle übrigen beinhalten pessimistische Annahmen sowohl was die Höhe der erreichten Maximaltemperaturen als auch die Dauer der Haltezeiten anbetrifft.

### 1.1.2.1 Experimentelle Untersuchungen im störfallähnlichen Zeit-Temperaturverlauf bei programmgesteuerter induktiver Beheizung

In Anlehnung an resp. unter pessimistischer Extension von reaktortypischen Störfallverläufen wurden Versuchsreihen mit der oben beschriebenen Anlage unter Wahl folgender konstanter Versuchsbedingungen durchgeführt:

- |    |                               |      |                      |
|----|-------------------------------|------|----------------------|
| 1. | Erste Aufheizgeschwindigkeit  | etwa | 100 <sup>0</sup> C/s |
| 2. | Erste Abkühlgeschwindigkeit   | etwa | 25 <sup>0</sup> C/s  |
| 3. | Zweite Aufheizgeschwindigkeit | etwa | 5 <sup>0</sup> C/s   |

Die Reaktionen wurden im zeitlichen Verlauf jeweils temperaturgebunden unterbrochen:

1. nach Erreichen des Minimums,
2. nach Erreichen von 1000, 1100 und 1200<sup>0</sup>C als zweiter Maximaltemperatur,
3. nach insgesamt dreiminütiger Reaktionszeit bei 1000, 1100 und 1200<sup>0</sup>C als maximale (Halte-) Temperatur.

Die Reaktionsprodukte wurden gravimetrisch und metallographisch ausgewertet.

In Abb. 4235-17 werden die zu den verschiedenen Zeiten nach Versuchsabbruch resp. -ende gravimetrisch bestimmten Gewichtszunahmen in zwei Einzelwerten wiedergegeben und in bezug gesetzt zu den ersten Ergebnissen der angenähert isothermen (umhüllenden) Verläufe. Der direkte Bezug von isothermen auf störfallähnliche Expositionen ist in Abb. 4235-18 für die Reaktionen über 3 Minuten bei 1000-1200<sup>0</sup>C hergestellt. Die prozentuale Differenz der gemessenen Werte liegt bei etwa 25-30%, d.h. die im Störfallverlauf aufgenommene Sauerstoffmenge einer nicht voroxidierten Probe ist also erheblich niedriger anzusetzen als in isothermen Versuchen gemessen worden ist. Die Gewichtszunahmen der Proben erwiesen sich als sehr empfindlich gegen Änderungen der jeweiligen Aufheiz- resp. Abkühlgeschwindigkeiten. Diese Feststellung erklärt die recht erheblichen Streuungen der Resultate.



### 1.1.2.2 Vergleichsrechnungen mit dem Code SIMTRAN I

Zur rechnerischen Absicherung der temperaturtransient geführten Versuche wird außer den üblichen Eingabedaten (Probenabmessungen, ursprüngliche Sauerstoffkonzentration, unbegrenztes Dampfangebot) der Zeit-Temperatur-Verlauf während der Versuchsdauer als Treppenfunktion, d.h. in Form von Zeit-Temperatur-Paaren, vorgegeben. Die Form der experimentell gefahrenen Temperaturkurven mit linearen Rampen ist günstig, da das Programm zwischen den eingegebenen Temperaturwerten linear interpoliert. Der Vergleich mit dem Experiment wird wesentlich erleichtert durch einige Versuche, die nach Erreichen definierter Abschnitte des zu untersuchenden Temperaturverlaufs abgebrochen wurden (s. 1.1.2.1). Dadurch sind auch Zwischenwerte dem Vergleich zugänglich.

Die Ergebnisse einiger spezieller Versuche (unter ähnlichen, aber nicht identischen Bedingungen, wie sie der Abb. 4235-17 zugrunde liegen), sind in der nachfolgenden Tabelle zum Zweck der Darlegung des derzeitigen Standes der Vergleichsrechnung den entsprechenden computerberechneten Werten gegenübergestellt. Die Rechnung beruht auf dem tatsächlichen Zeit-Temperatur-Verlauf der Reaktion.

#### Vergleich experimentell gemessener und computerberechneter Gewichtszunahme für temperaturtransiente Verläufe.

Versuchsdaten für störfall- typische Reaktionen	Gewichtszunahmen [mg/dm <sup>2</sup> ]	
	experimentell	computerberechnet
1. Anstieg auf 948/956 <sup>0</sup> C u. Abfall	49/62	/42
1. Phase 2. Anstieg auf 1000 <sup>0</sup> C	91	94
1. Phase 2. Anstieg auf 1100 <sup>0</sup> C	148	159
1. Phase 2. Anstieg auf 1200 <sup>0</sup> C	271	271
3 min 1000 <sup>0</sup> C (956 <sup>0</sup> -750 <sup>0</sup> -998 <sup>0</sup> C)	190	217
3 min 1100 <sup>0</sup> C (956 <sup>0</sup> -750 <sup>0</sup> -1096 <sup>0</sup> C)	279	321
3 min 1200 <sup>0</sup> C (953 <sup>0</sup> -750 <sup>0</sup> -1200 <sup>0</sup> C)	514	498

Die Vergleichsrechnungen zu den experimentell gefahrenen Zeit-Temperatur-Verläufen haben - wie aus der Tabelle zu ersehen ist - die gemessenen Werte gut bestätigt. Die bestehenden Abweichungen, die nicht systematisch sind, werden hauptsächlich durch nicht exakte Eingabe des experimentellen Zeit-Temperatur-Verlaufes erklärt.

## 2. Reaktionskinetische Untersuchungen an Rohrabschnitten in Luft, Sauerstoff, Stickstoff und Wasserstoff

### 2.1 Versuchsdurchführung

#### 2.1.1 Reaktion in einem Medium

Die Hochtemperaturreaktionen von Zircaloy 4 mit Luft, Sauerstoff und Stickstoff wurden in einem rohrförmigen Quarzrezipienten eines Rohrofens durchgeführt. Die Proben wurden mit einem auf der Rohr-Innenseite anliegendem Thermoelement versehen, dessen Anzeige mitgeschrieben wurde. Auf einem Quarzschlitten wurden die Proben bei Reaktionstemperatur (900-1150<sup>0</sup>C) und einer Gas-Strömungsgeschwindigkeit von 1 m/s in den Ofen eingeschoben und bis zum Reaktionsende darin belassen, sodann entnommen und schnell abgekühlt.

#### 2.1.2 Aufeinanderfolge von Reaktionen in verschiedenen Medien

Zur Bestimmung des Einflusses einer der Oxidation vorausgehenden Wasserstoffaufnahme wurden in der gleichen Versuchsanordnung Proben dem Wasserstoff während 20 Stunden bei 300<sup>0</sup>C, 1 bar ausgesetzt. Die nachfolgende Oxidation der hydrierten Proben wurde in Luft, Sauerstoff und Wasserdampf während 15 min bei 1000<sup>0</sup>C ausgeführt.

### 2.2 Versuchsergebnisse

#### 2.2.1 Resultate der Reaktionen in einem Medium

Die Abb. 4235-19 stellt die Gewichtszunahmen der Proben in vier verschiedenen Medien (vergleichsweise wurden die Wasserdampf-Ergeb-

nisse hinzugefügt) in Abhängigkeit von Zeit und Temperatur dar und zeigt übereinstimmend, daß Stickstoff in den geringfügigsten Quantitäten, die übrigen Gase in der Reihenfolge Wasserdampf, Sauerstoff und Luft mit steigender Geschwindigkeit reagierten. Im allgemeinen unterstreicht Abb. 4235-20 diesen Sachverhalt, hebt jedoch für Temperaturen  $> 1100^{\circ}\text{C}$  (besser als es Abb. 4235-19 im logarithmischen Maßstab kann) die wesentlich stärkere Luftoxidation hervor, die der Wasserdampf- und Sauerstoffoxidation weit vorausseilt. Die metallographische Darstellung der Oxidationsprodukte (15 min,  $1150^{\circ}\text{C}$ ) zeigt diesen Sachverhalt in Abb. 4235-21 sehr deutlich: während die nitrierte Probe nur mäßige Rand- und Volumenschädigung aufweist, sind spürbare oxidative Schädigung bei Wasserdampf-, erhebliche Schädigung bei Sauerstoff- und schwere Schädigung bei Luft-Oxidation (mit kompletter Versprödung) der Rohrwandung zu erkennen.

Die starke Schädigung des Werkstoffs in Luft ist durch den simultanen Angriff der Bestandteile der Luft: Stickstoff und Sauerstoff zu erklären, die im Fall des Stickstoffs volumenexpansiv und stark aktivierend, im Fall des Sauerstoffs oxidativ einwirken (9,10).

### 2.2.2 Resultate der Aufeinanderfolge von Reaktionen in verschiedenen Medien

Die hydrierten Proben zeigten bei Luft und Sauerstoff-Oxidation im Vergleich zu nicht vorbehandelten Proben weitgehend unveränderte Gewichtszunahmen, bei Wasserdampf-Oxidation (5 min,  $1000^{\circ}\text{C}$ ) wurde jedoch ein Rückgang der Gewichtszunahme um etwa 30% gemessen. Diese Tatsache läßt erhoffen, daß eine Herabsetzung der Sauerstoffaufnahme außer durch den Störfallverlauf (siehe 1.1.2), auch durch betriebsbedingte Voroxidation und Wasserstoffaufnahme des Hüllmaterials festgestellt werden kann. Dazu sind weitere Experimente erforderlich.

### 3. Oxidationskinetische Untersuchungen an Rohrkapseln unter Innendruck in Argon und Wasserdampf

Die Prüfung innendruckbeaufschlagter Rohrkapseln in Kurz-Zeitstandversuchen und in Berst-Tests unter überlagerter Dampfoxidation erfolgt mit dem Ziel, das korrosionschemische (durch Spannung verstärkte Oxidation) und mechanische (durch Oxidation vermehrte Festigkeit und verminderte Duktilität) Materialverhalten zu bestimmen. Die genannten Effekte werden unter Bezug auf gleichartige (Vergleichs-) Untersuchungen in reinem Argon ermittelt;

#### 3.1 Allgemeine apparative Durchführung

Zur Durchführung der Untersuchungen wurde eine Apparatur entwickelt, die es erlaubt, kombinierte oxidationschemische und mechanische Untersuchungen an Rohrkapseln durchzuführen, die innen mit Argon bei verschiedenem Druck und außen mit Dampf, Argon oder anderen Gasen beaufschlagt werden. Die Apparatur (Abb. 4235-22) besteht aus einem elektrisch beheizten Rohrofen, in den ein doppelwandiger Rezipient eingeschoben wird. Für den inneren Mantel des Rezipienten wird ein Quarzrohr und für den äußeren ein Keramikrohr verwendet. Der Zwischenraum wird während der Versuche mit Argon gespült. Dadurch wird bei Versuchen in Dampfatmosphäre bei einem eventuellen Bersten des Quarzrohres verhindert, daß der bei der Dampf-Zircaloy-Reaktion entstehende Wasserstoff mit Luft zu einer Knallgasexplosion führt.

Für die Herstellung der Zircaloy-Rohrkapseln wurden 50 mm lange Rohrabschnitte des üblichen Druckwasser-Hüllmaterials ( $r_i = 9,30 \pm 0,04$  mm,  $r_a = 10,75 \pm 0,05$  mm) der Firma Sandvik verwendet. Die Rohrstücke wurden auf einer Seite mit einem Zircaloy-2-Stopfen, auf der anderen Seite über ein Zircaloy-2-Zwischenstück mit einem 1 m langen Titan-Druckzuleitungsrohr elektronenstrahlverschweißt. Um die Durchbiegung des Titan-Zuleitungsrohres während des Versuches zu verhindern, wurde bei Temperaturen bis  $1100^\circ\text{C}$  ein hochwarmfestes Stahlrohr (Werkstoff-Nr. 1.4571) und bei Temperaturen über  $1100^\circ\text{C}$  ein Keramikrohr (Pythagoras) darübergeschoben. Zwischen  $1100^\circ\text{C}$  und  $1200^\circ\text{C}$  kommt es zu diversen Eutektika zwischen dem Edelstahl- und Titanrohr, so daß bei diesen Tempe-

raturen das Keramikrohr zur Sicherung der Formbeständigkeit des Titan-Rohres erforderlich ist.

Zur Entfernung der Luft aus der Probenkapsel vor dem Versuch wird mehrmals evakuiert und wieder Argon nachgefüllt. Der Argon-Innen-  
druck kann mit einem sehr genauen Druckminderer eingestellt und  
über ein Manometer bzw. einen sehr empfindlichen elektrischen  
Druckaufnehmer, der an einen Schreiber angeschlossen ist, während  
des Versuchs ständig kontrolliert werden. Die angegebene Druck-  
konstanz des eingesetzten Faltenbalg-Druckminderers der Firma  
Deutsche L'Air Liquide Edelgas GmbH liegt bei 1%. Dieser Druck-  
minderer hält über die gesamte Versuchszeit (ca. 20 Minuten) den  
einmal eingestellten Druck vollständig konstant, da eine Änderung  
des Flaschendruckes im Versuchszeitraum praktisch nicht erfolgt  
und der im System infolge Probendehnung auftretende Druckabfall  
durch aus der Druckflasche nachströmendes Gas sofort kompensiert  
wird. Dieser über den Druckminderer gesteuerte Druckausgleich im  
System erfolgt so schnell und genau, daß der zur Kontrolle einge-  
baute elektrische Druckaufnehmer, der noch eine Druckänderung von  
0,05 at deutlich registriert, über den ganzen Versuchsverlauf,  
einschließlich des Zeitraumes, in dem sich die Probe stark dehnt,  
keinerlei Druckänderung im System erkennen läßt.

Dampferzeuger und Siedgefäße können vor Versuchsbeginn durch  
Einleiten von Argon in einen seitlichen Stutzen des Siedgefäßes  
gespült werden. Durch den gleichen Stutzen wird über einen Tropf-  
trichter, der während des Versuches auftretende Wasserverlust  
ständig ergänzt. Am Zuführungsstopfen der Versuchskapsel wird  
über eine Iridium-Zwischenschicht ein Pt/Pt-10%Rh-Thermoelement  
angepunktet. Die Schenkel des Thermoelements werden in einem 1 m  
langen Zwei-Loch-Keramikrohr parallel zum Argonzuführungsrohr  
der Kapsel nach außen geführt. Diese Anordnung erlaubt es, die  
Probe samt Thermoelement im kalten Teil des Rezipienten zu de-  
ponieren - eventuell schon hier mit dem gewünschten Innendruck  
zu beaufschlagen - und dann sehr schnell in den bereits aufge-  
heizten Ofen zu schieben, so daß die Probe in etwa 3-4 Minuten  
die gewünschte Endtemperatur erreicht. Druck und Temperatur wer-  
den gleichzeitig über einen Schreiber, letztere zusätzlich über  
ein Digitalmeßgerät, kontrolliert. Der die Probe äußerlich um-

fließende Dampf- bzw. Argonstrom wird an der der Proben- und Thermoelementeinführung gegenüberliegenden Seite des Rezipienten eingelassen. So wird das Eindringen von Luft durch Leckagen im Bereich der Durchführung verhindert. Außerdem wird das Argon im Quarzrezipienten zwischen Einlaßöffnung und Kapselprobe durch Zr-Späne gegettert.

## 3.2 Kurz-Zeitstandversuche in Argon

### 3.2.1 Versuchsdurchführung

Bei der Durchführung von Kurz-Zeitstandversuchen, die mit der Ermittlung von mechanischen Vergleichswerten des Materialverhaltens in Argon als nicht korrosives Medium begannen, wurden die Kapseln drucklos in den auf Temperatur gebrachten, argon-durchspülten Rezipienten eingeschoben. Die gewünschte Temperatur wurde in 4 Minuten erreicht. Nun wurde in wenigen Sekunden der gewünschte Innendruck aufgegeben und gleichzeitig die Standzeit (bis zum Bersten) der Probe gemessen. Der Innendruck wurde - wie bereits oben erwähnt - über die gesamte Versuchszeit konstant gehalten, so daß sich die Tangentialspannung in der Probenwandung nach Maßgabe der Probenverformung durch Abnahme der Wandstärke ständig erhöhte.

### 3.2.2 Versuchsergebnisse

Für die Untersuchung von Zircaloy-4-Rohrkapseln unter mechanischer Zugspannung und gleichzeitigem Korrosionsangriff mußten zuerst vergleichende Versuche in Argonatmosphäre durchgeführt werden.

Erste Vergleichsversuche in gereinigtem Argon wurden bei 900, 1000, 1100 und 1200<sup>o</sup>C mit dem Ziel durchgeführt, das Festigkeitsverhalten in Zeiten bis 20 Minuten zu ermitteln. Bei 1000<sup>o</sup>C waren z.B. Tangentialspannungen zwischen 5,74 N/mm<sup>2</sup> (9,0 at) und 2,03 N/mm<sup>2</sup> (3,2 at) und bei 1100<sup>o</sup>C zwischen 4,47 N/mm<sup>2</sup> (7,0 at) und 1,91 N/mm<sup>2</sup> (3,0 at) wirksam. Aus den Kurven (Abb. 4235-23) ist zu ersehen, daß sich die Standzeit bei gleicher Tangentialspannung und einer Temperaturänderung von 1000<sup>o</sup>C auf 1100<sup>o</sup>C bei 4,47 N/mm<sup>2</sup>

von 61 Sekunden auf 26,5 Sekunden um 56,5% und bei 1,92 N/mm<sup>2</sup> von 1450 Sekunden auf 530 Sekunden um 63,4% erniedrigt. Die Dehnungswerte schwanken zwischen 60,7% und 101,5 %, wobei eine abnehmende Tendenz zu niedrigeren Spannungen resp. längeren Standzeiten schwach erkennbar ist.

Die bei 1000 bis 1200<sup>0</sup>C gedehnten Proben (Abb. 4235-24) zeigen die für die Hochtemperaturbeanspruchung typische orangenhautähnliche, silberglänzende Oberflächenstruktur (herausgedrückte Körner). Dagegen weist eine bei 900<sup>0</sup>C stark gedehnte Kapsel ( $\epsilon = 146,5\%$ ) eine matte graue, homogene Oberfläche auf.

Die Kapseln blähen sich relativ gleichmäßig zur Mitte hin auf. Beim Bersten der Proben treten an der Stelle maximaler Dehnung ein oder mehrere Risse auf, deren Größe mit abnehmendem Druck resp. längerer Standzeit abnimmt, so daß z. B. bei 3 at die Risse kaum erkennbar sind.

### 3.3 Temperatur-transiente\_Berst-Zeitstanduntersuchungen in\_Wasserdampf

#### 3.3.1 Versuchsführung

Bei der temperatur-transienten Versuchsführung wurden die Kapseln im kalten Teil des dampfdurchströmten Rezipienten auf den gewünschten Innendruck gebracht, wobei ein während des Aufheizens eintretender leichter Druckanstieg von ca. 0,2 at Berücksichtigung fand. Anschließend wurde die Kapsel in den auf Versuchstemperatur eingeregelter heißen Teil des Rezipienten eingeschoben. Die Kapseltemperatur erreicht in 3-4 Minuten ihre Endtemperatur. So kam es, daß die Kapseln unter hohen Innendrücker bereits vor Erreichen der beabsichtigten Versuchstemperatur in der Aufheizphase geplatzt sind. Um definiertere Bedingungen zu schaffen, wurde daher für die weiteren Versuche die in 3.2.1 beschriebene isotherme Versuchsführung gewählt.

#### 3.3.2 Versuchsergebnisse

Bei morphologischer Auswertung der ersten Berstversuche unter hoher Kriechgeschwindigkeit zeigten metallographische Aufnahmen

von Querschlifften oxidierten Oberflächen tiefe Risse bis in die Phasengrenze Oxid/Metall (Abb. 4235-25). Durch den Kriechvorgang wurden die Rißflanken in die äußere Oberfläche voll einbezogen und unterlagen einer vorab nur durch Phasengrenzvorgänge kontrollierten Dampf-Oxidation. An diesen Stellen trat in der inneren Rohroberfläche eine starke Wandstärkenverminderung auf. Dies sind Erscheinungen, die auf Grund der Vergrößerung der exponierten Oberfläche und reduzierten Wandstärke eine Verschärfung des Angriffs im Vergleich zu ungespannten Proben erkennen lassen.

Rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen (Abb. 4235-26) stark gedehnter Kapseln lassen die Konsequenzen des überlagerten Dehnvorganges sehr gut erkennen. Man sieht einerseits wenig gedehnte, glatte, oxidierte, mit feinen Rissen durchzogene Flächen und andererseits weit gedehnte, auseinandergezogene Risse, die neue stark zerklüftete, oxidierbare Oberflächenanteile bilden. Dieser Vorgang setzt sich in den immer neu gebildeten und noch nicht durch Korrosion geschützten, zerklüfteten Rißflanken fort. Die Wandstärke nahm dabei lokal sehr rasch ab, was schließlich zum Bruch der Kapseln führte.

Das den Oxidationsreaktionen überlagerte langsame Kriechen führte nur zum Anriß der  $ZrO_2$ -Oberflächenschicht. Dabei konnte ein langsamer, diffusionskontrollierter Angriff der Rißflanken nur eine örtliche Oxidschichtverstärkung hervorrufen.

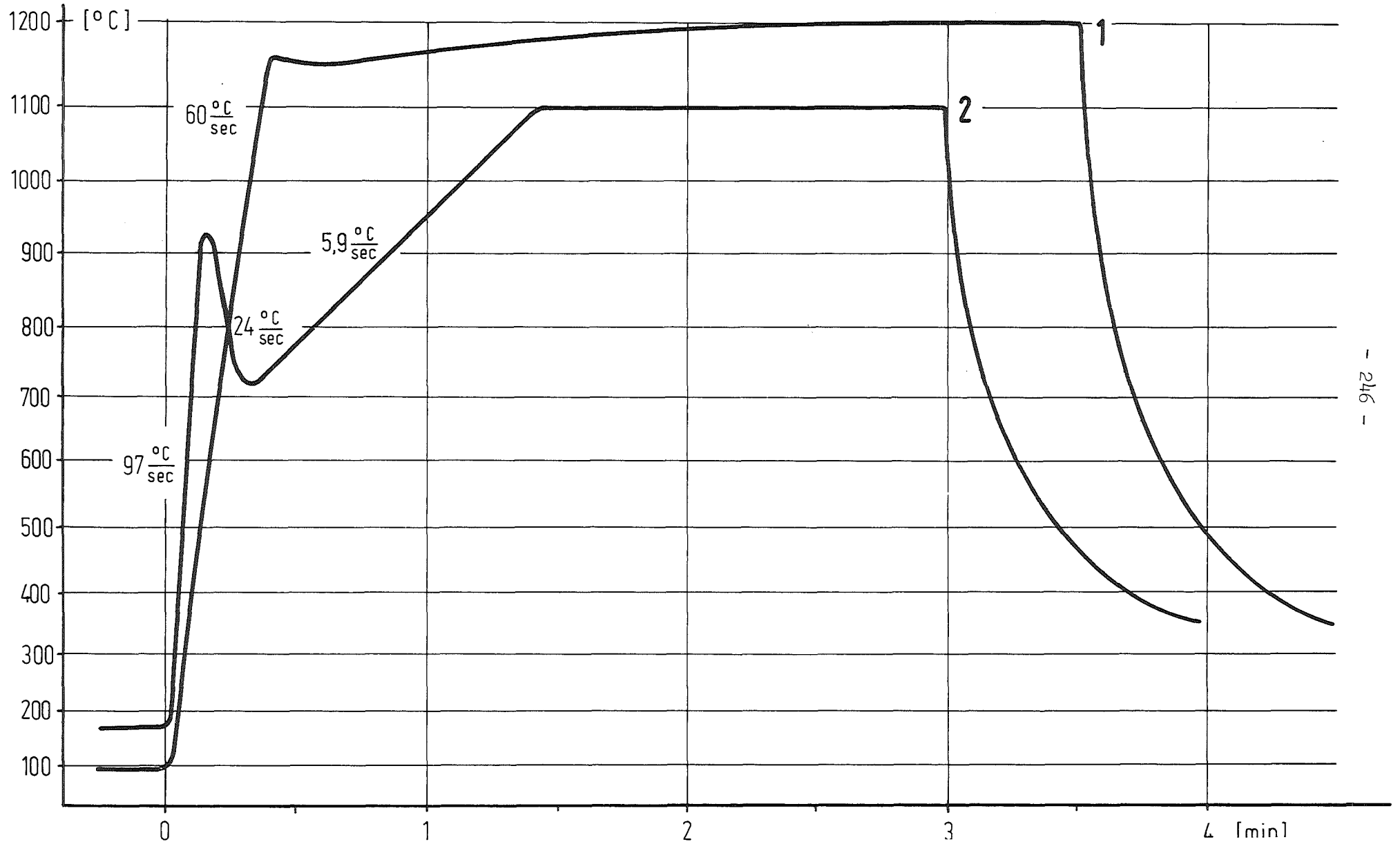


# ZIRCALOY 4 / DAMPF-HT-OXIDATION

VERGLEICH VON TYPISCHEN TEMPERATUR-ZEIT-VERLÄUFEN BEI OXIDATIONSKINETISCHEN UNTERSUCHUNGEN

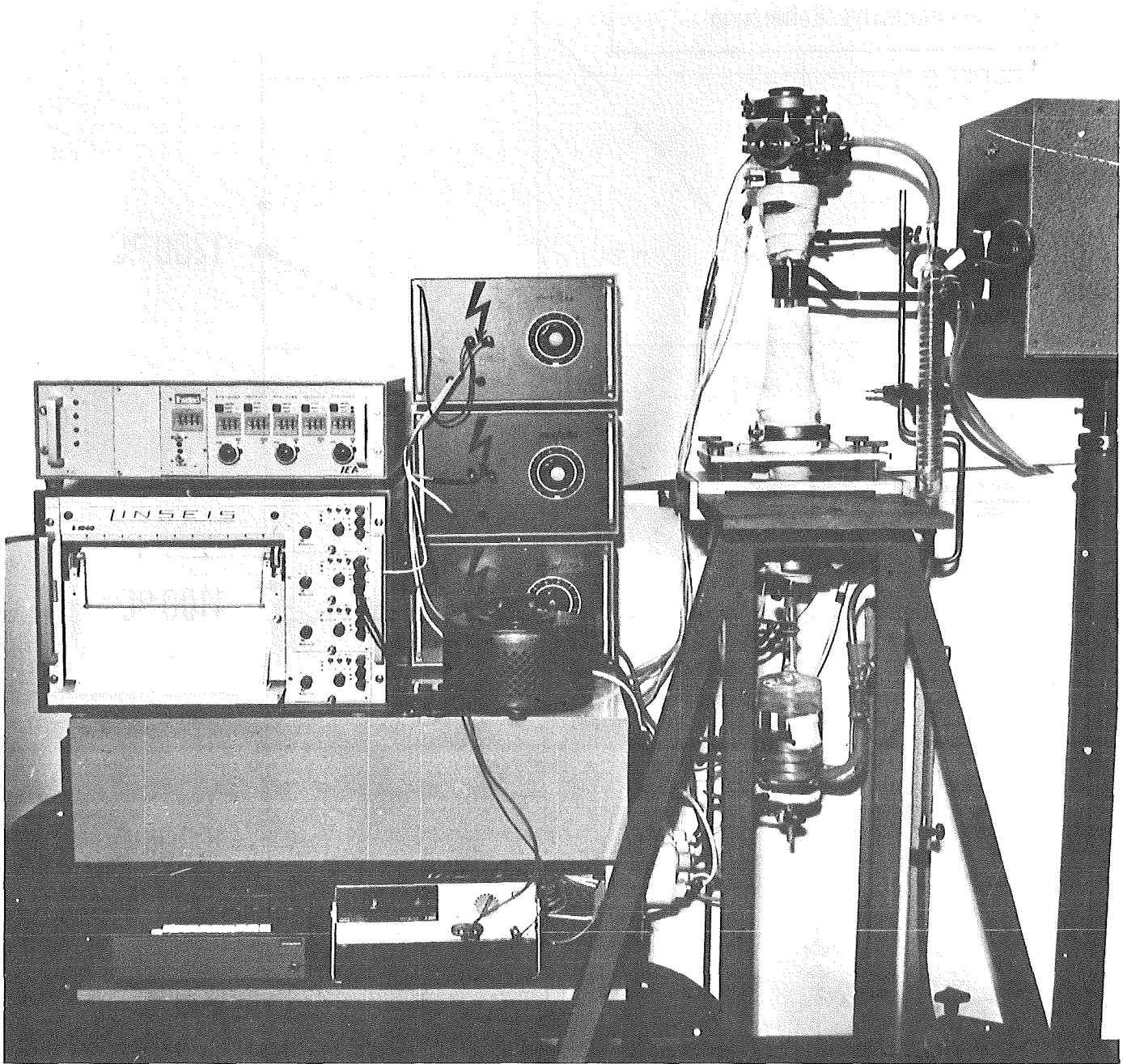
1. Transiente, angenähert isotherme Reaktionsführung bei Rohrofen-Beheizung

2. KVU-typische, reproduzierbare Reaktionsführung bei induktiver Beheizung



- 246 -

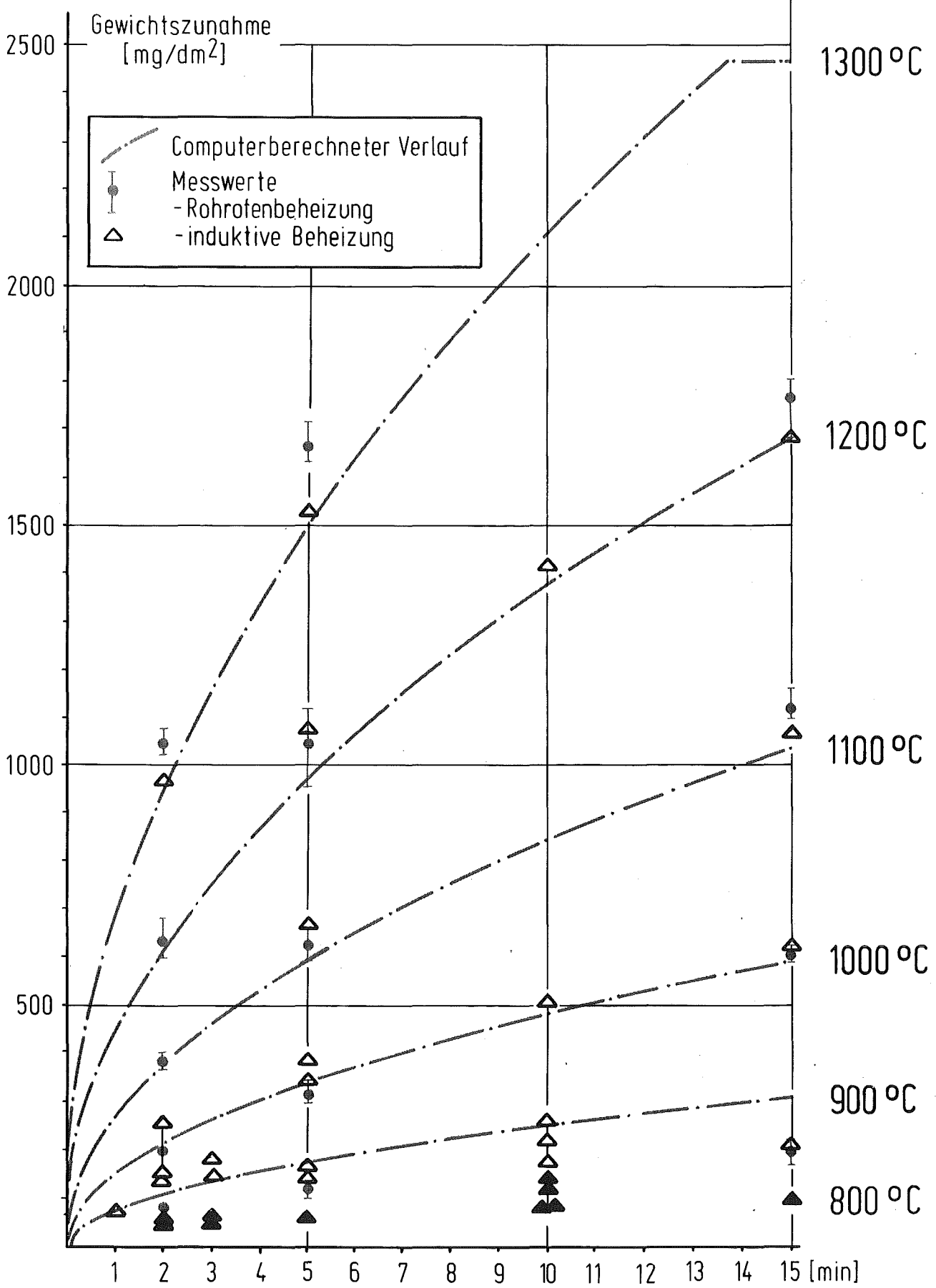
# VERSUCHSANORDNUNG FÜR HOCHTEMPERATUR- KORROSIONSREAKTIONEN UNTER INDUKTIVER BEHEIZUNG



# ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

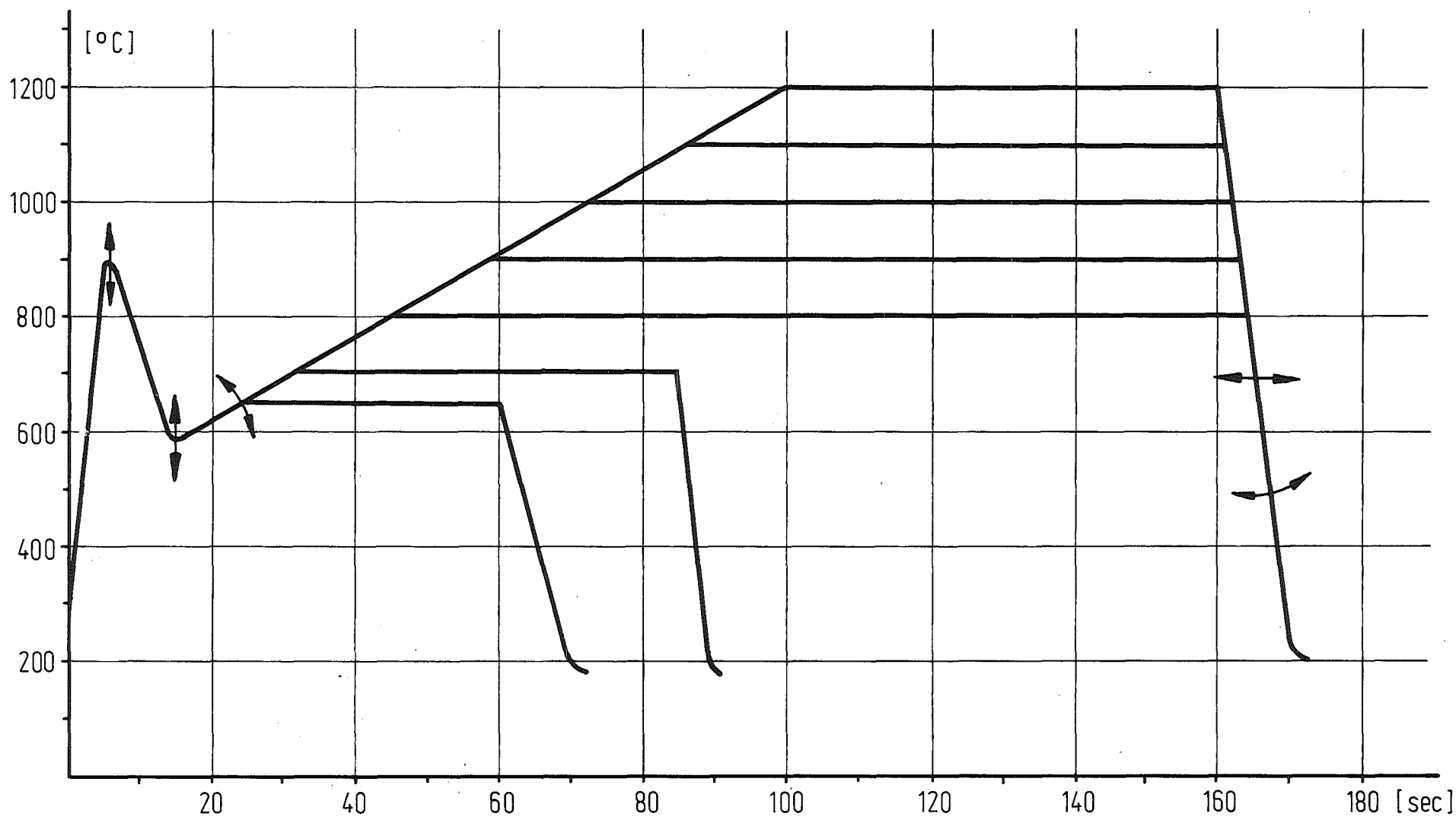
VERGLEICH COMPUTERBERECHNETER UND GRAVIMETRISCH GEMESSENER GEWICHTSZUNAHMEN BEI VERSCHIEDENART. PROBENBEHEIZUNG (1-15min, 800-1300°C, 1at, 1 m/s)

ABB. 4235-15



# ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

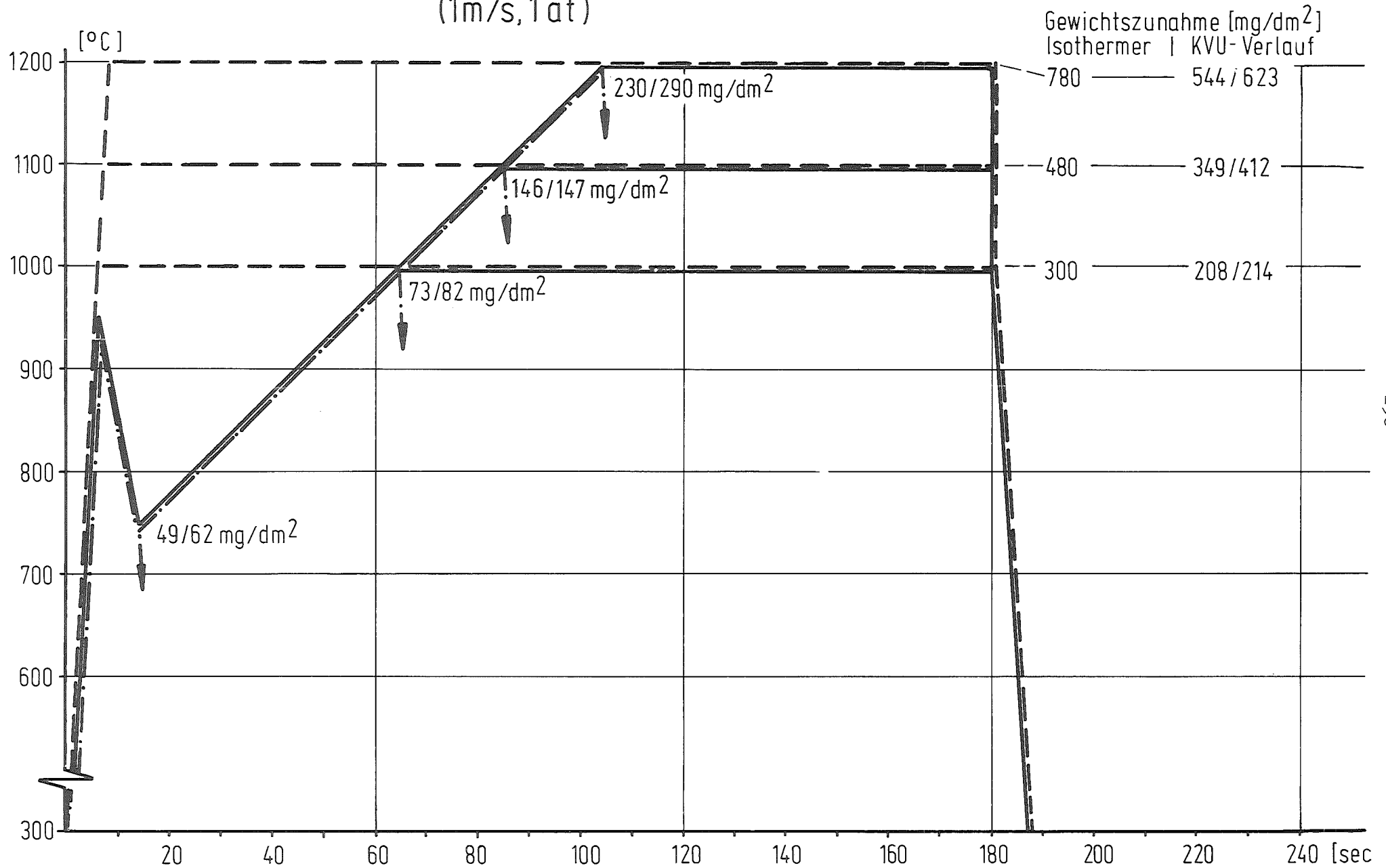
## EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN ZU HYPOTHETISCHEN KVVU-ZEIT-TEMPERATURVERLÄUFEN



# ZIRCALOY 4 / DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

ANGENÄHERT ISOTHERME UND TRANSIENTE ZEIT-TEMPERATUR-VERLÄUFE  
MIT ANGABE DER GEWICHTSZUNAHMEN NACH VERSUCHSABBRUCH RESP.-ENDE

(1m/s, 1at)

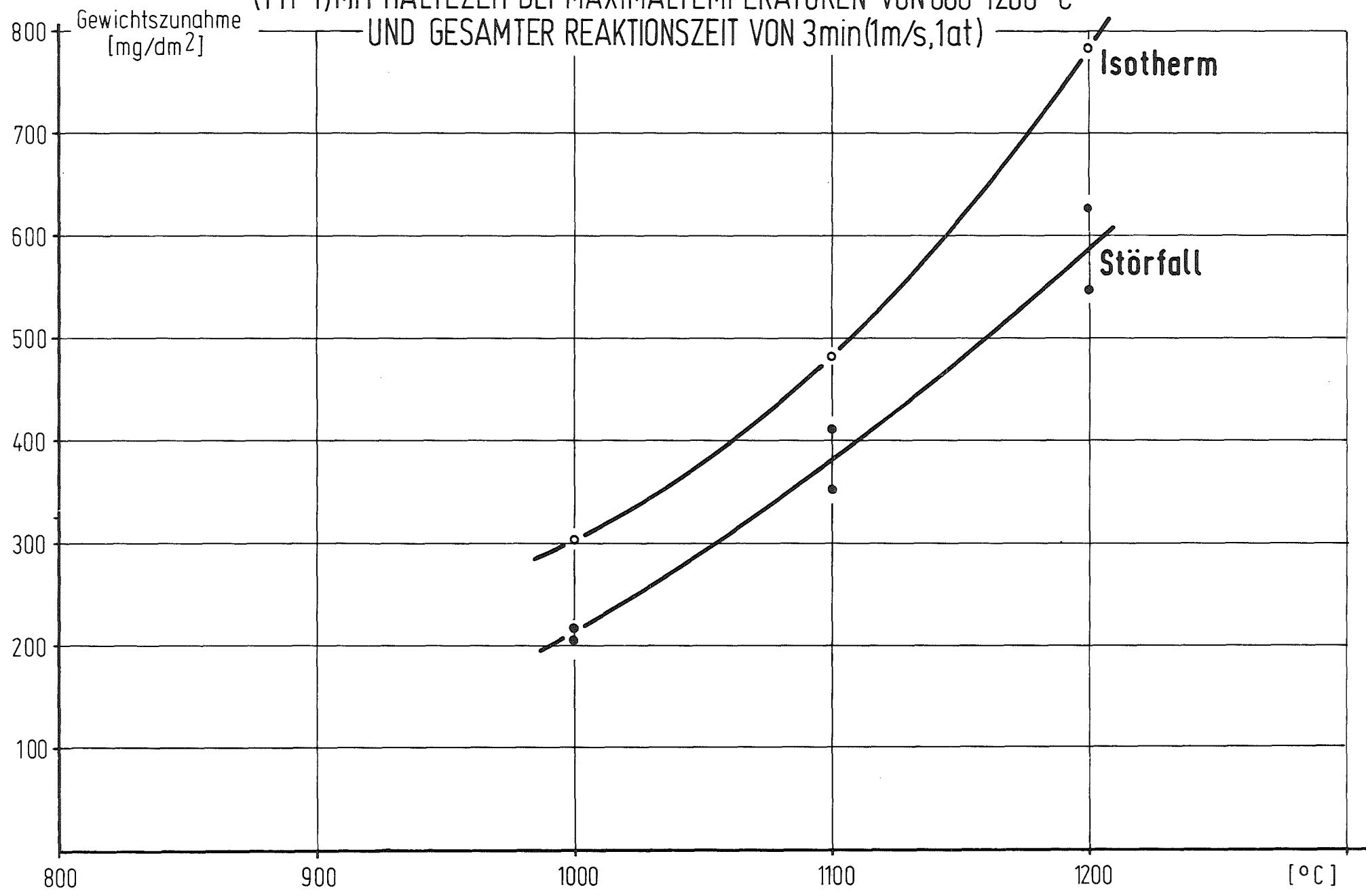


- 250 -

ABB. 4235-17

# ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

GEWICHTSZUNAHME NACH 1. ANGENÄHERT ISOTHERMER UND 2. STÖRFALLTYPISCHER REAKTIONSFÜHRUNG (TYP 1) MIT HALTEZEIT BEI MAXIMALTEMPERATUREN VON 800-1200 °C UND GESAMTER REAKTIONSZEIT VON 3min (1m/s, 1at)

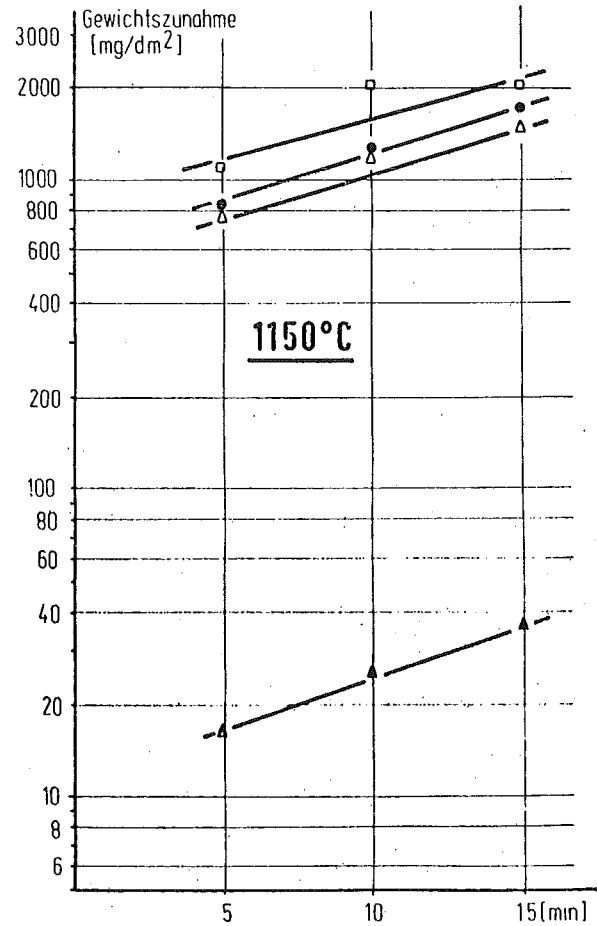
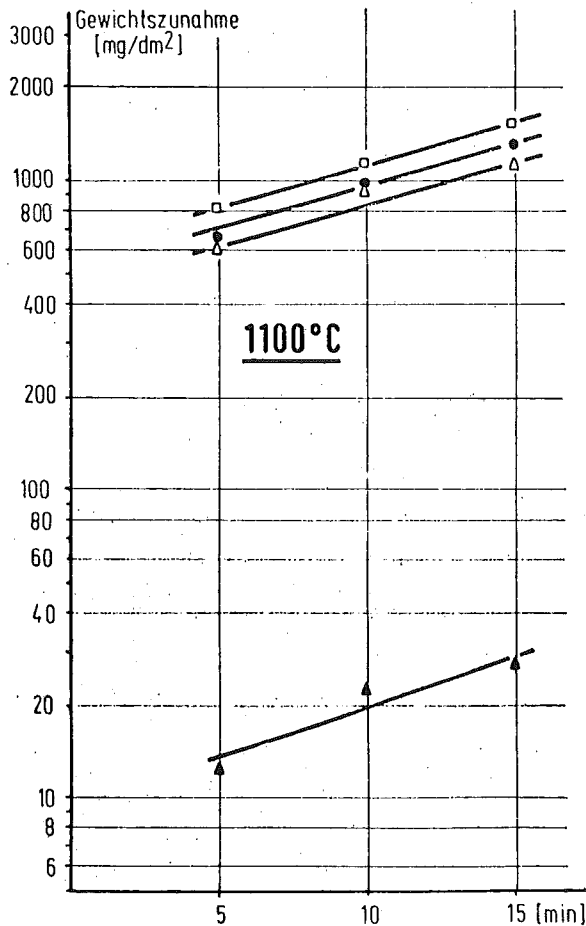
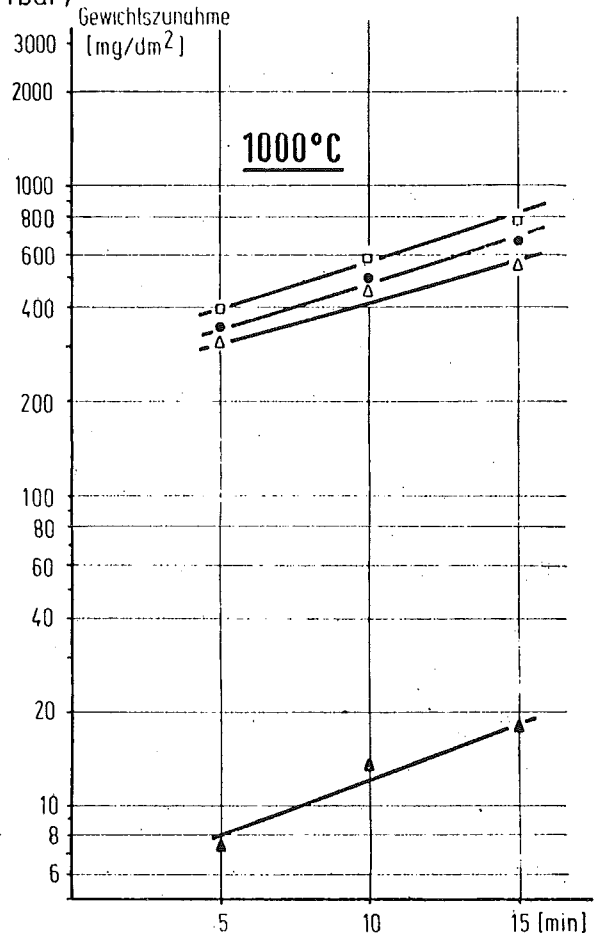
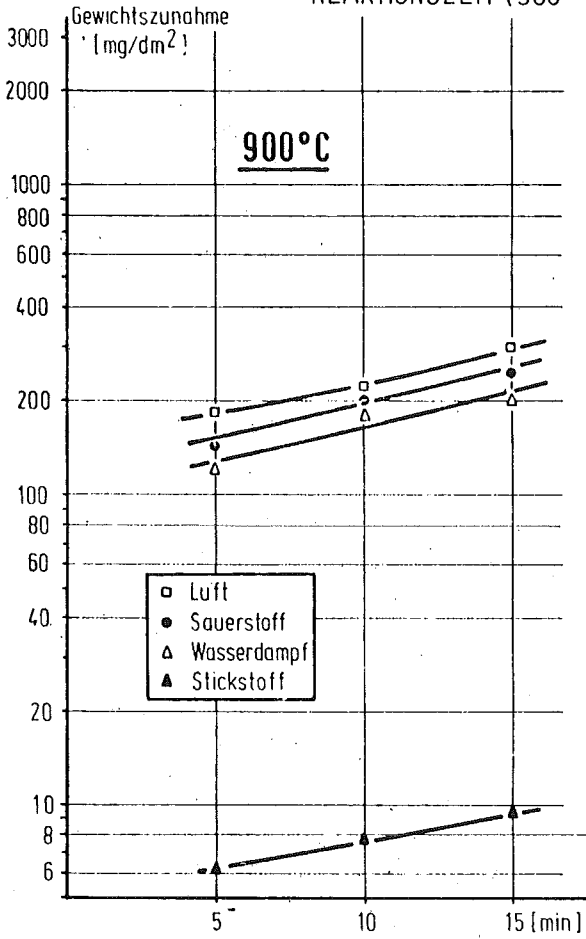


- 251 -

ABB. 4235-18

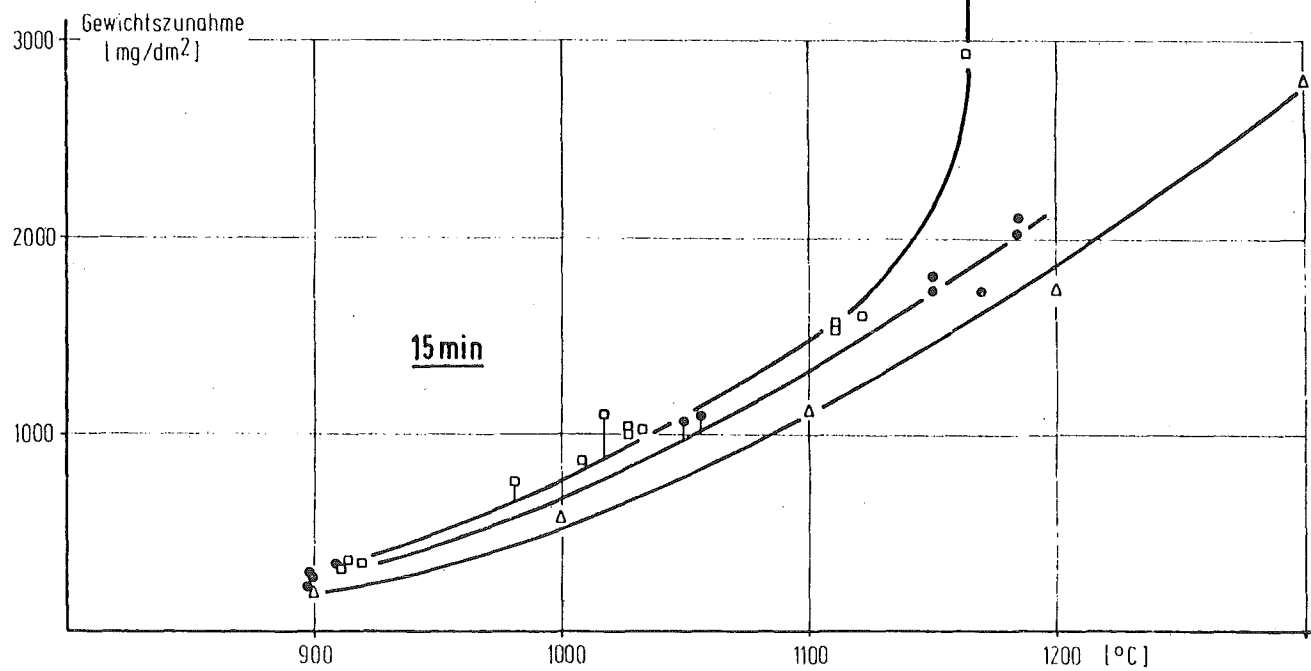
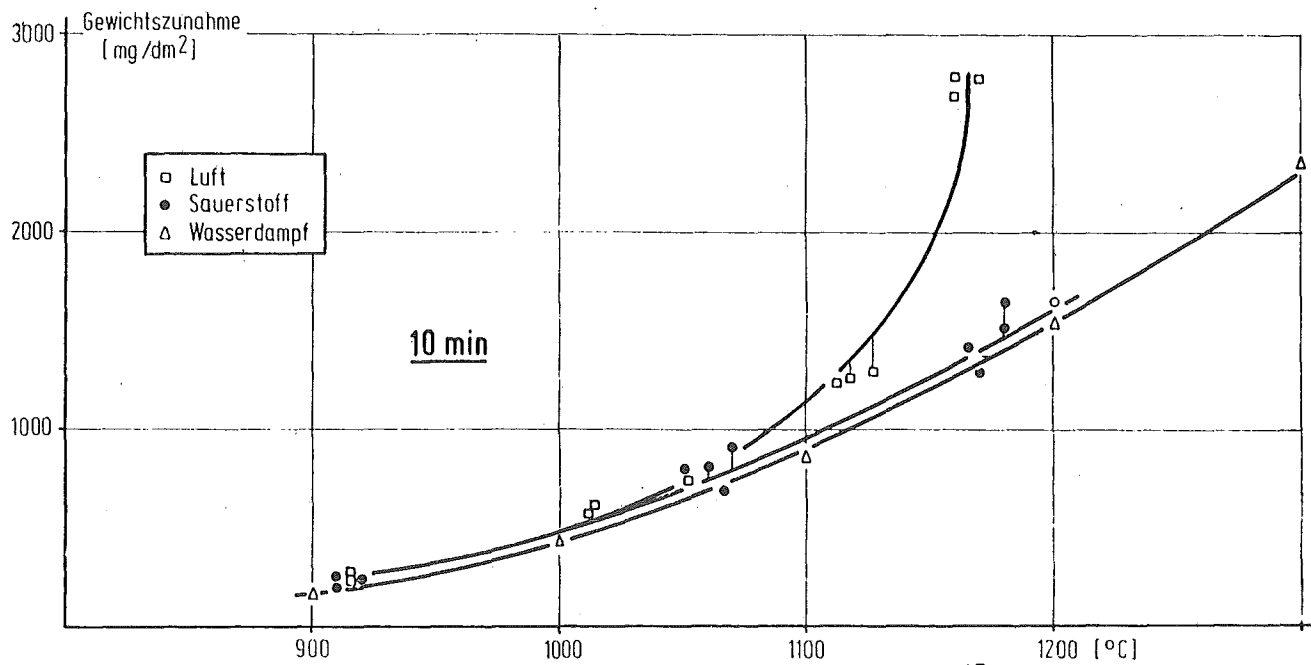
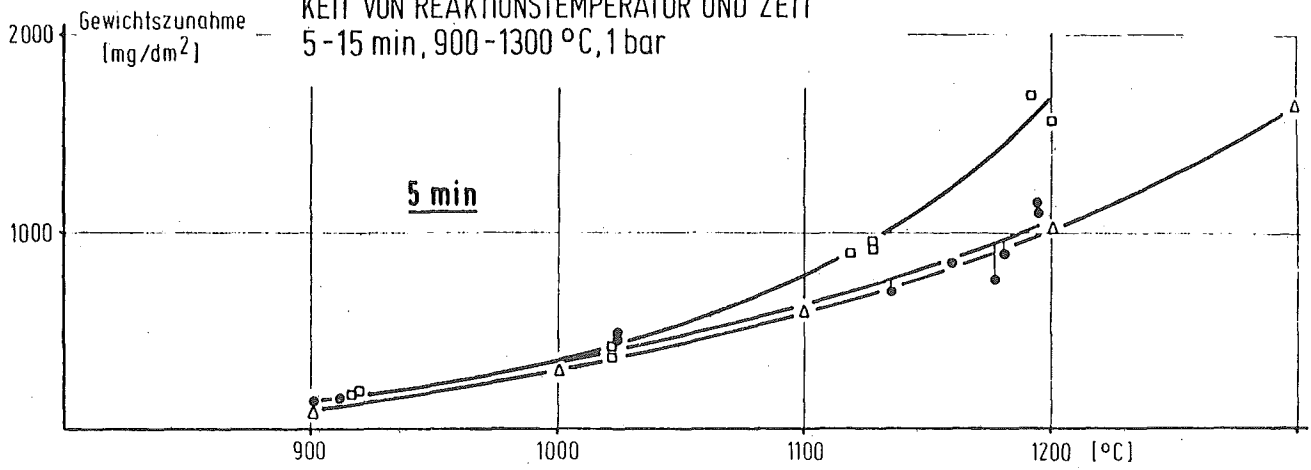
# ZIRCALOY 4 - HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

DURCH VERSCHIEDENE GASE IN ABHÄNGIGKEIT VON DER REAKTIONSZEIT (900 - 1150 °C, 1 bar)



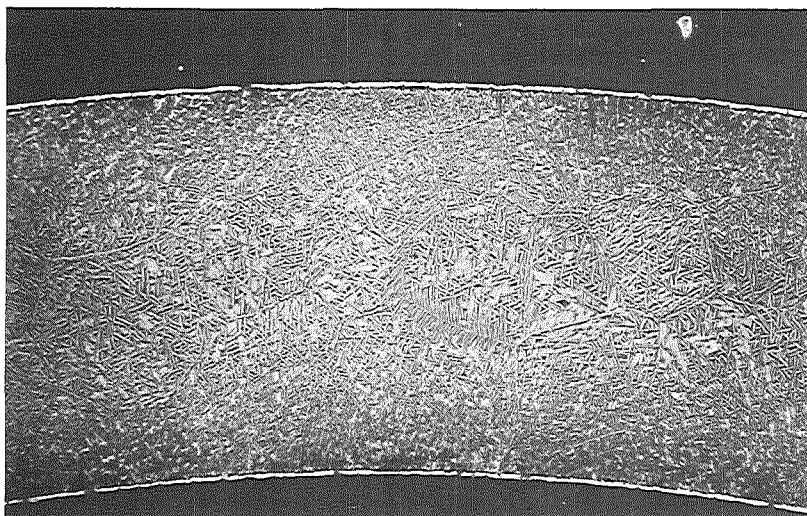
### ZIRCALOY 4 - HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

DURCH WASSERDAMPF, SAUERSTOFF UND LUFT IN ABHÄNGIG-  
KEIT VON REAKTIONSTEMPERATUR UND ZEIT  
5-15 min, 900-1300 °C, 1 bar

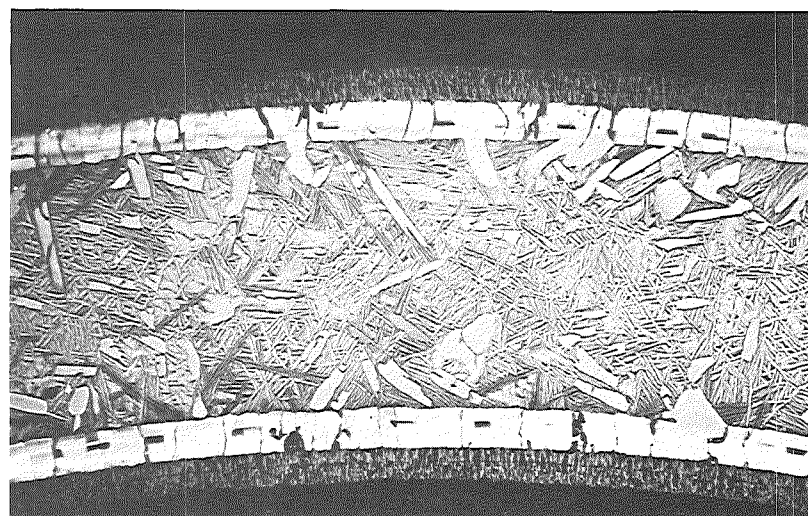




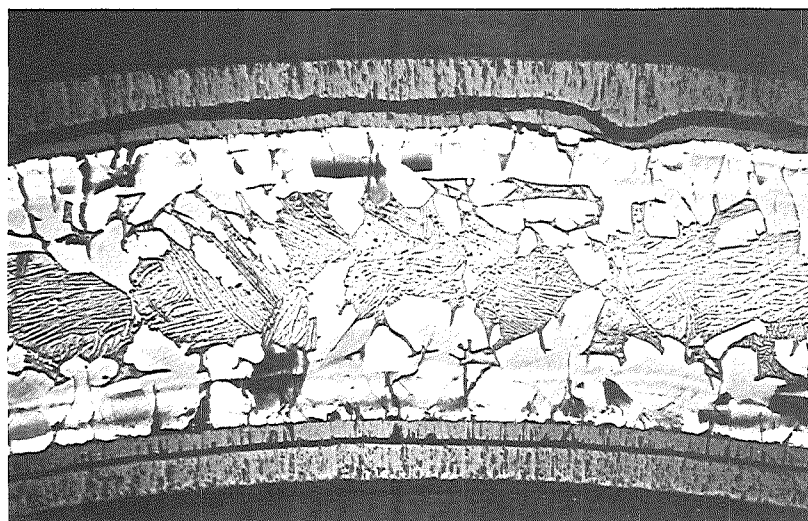
ZIRCALOY 4 - HOCHTEMPERATUR OXIDATION  
DURCH VERSCHIEDENE GASE  
15 min, 1150°C, 1 bar, 1 m/sec



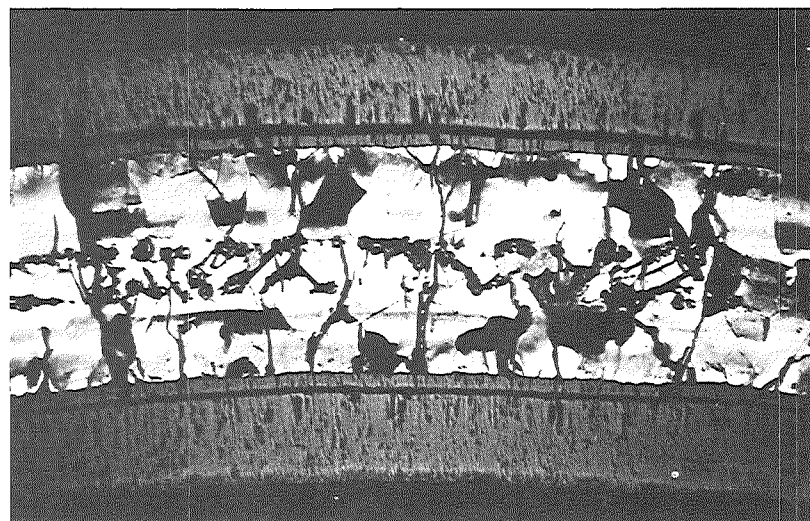
Stickstoff



Wasserdampf



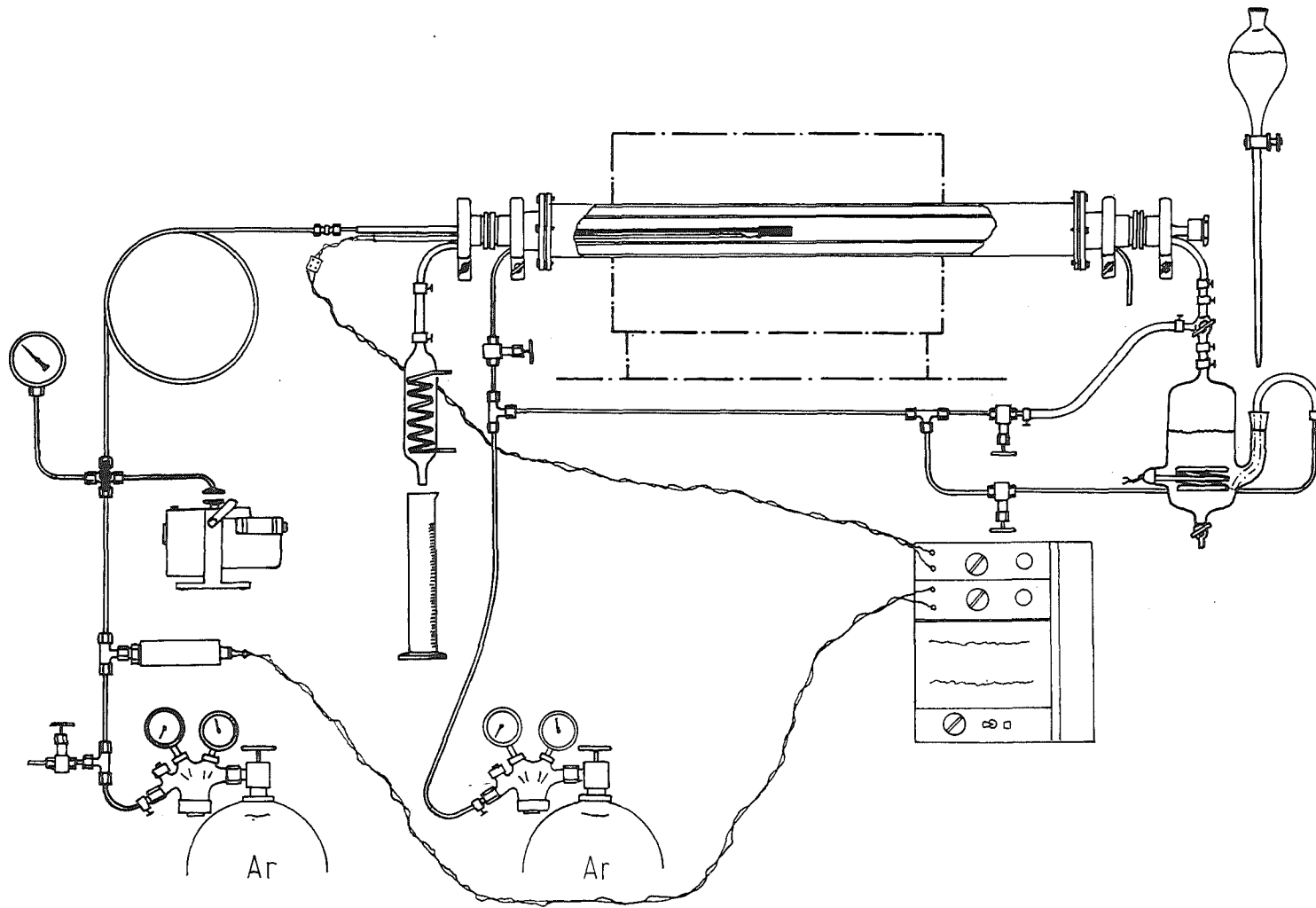
Sauerstoff



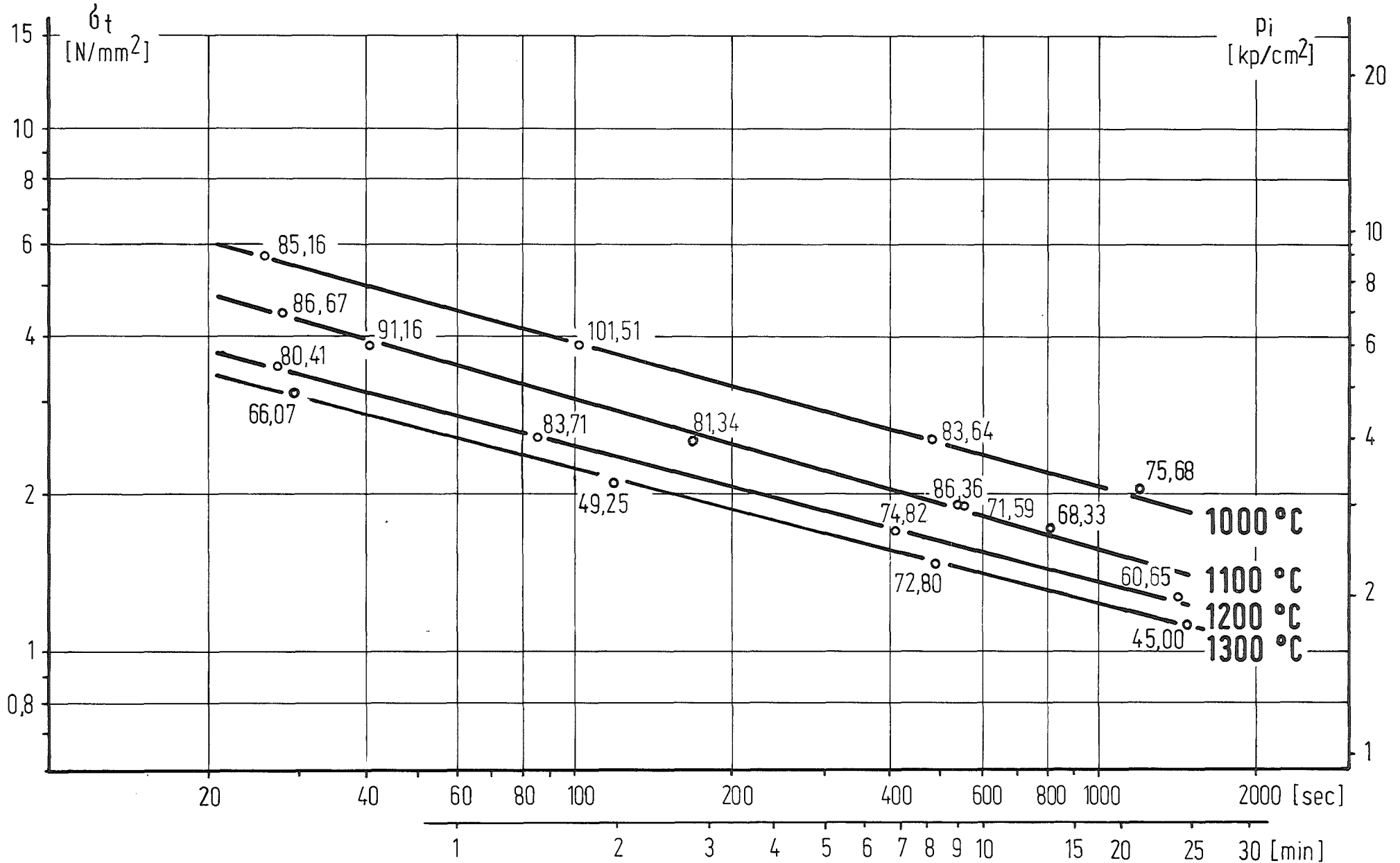
Luft

geätzt, 100X

# PRÜFSTRECKE FÜR ROHRKAPSEL-OXIDATION UNTER INNENDRUCK

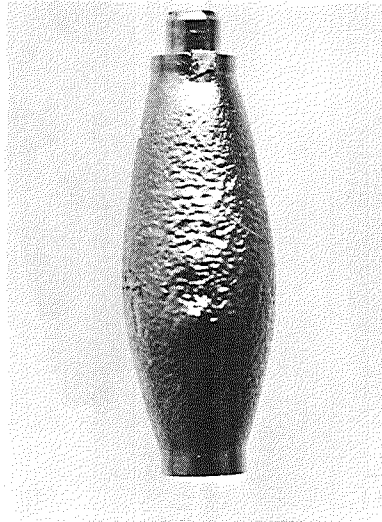


# ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON MIT ANGABE DER UMFANGSDEHNUNG IN %

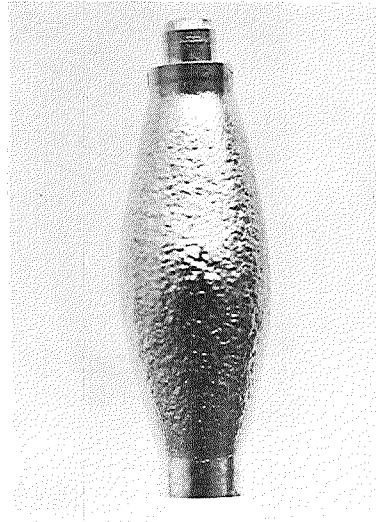


# ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALLOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON

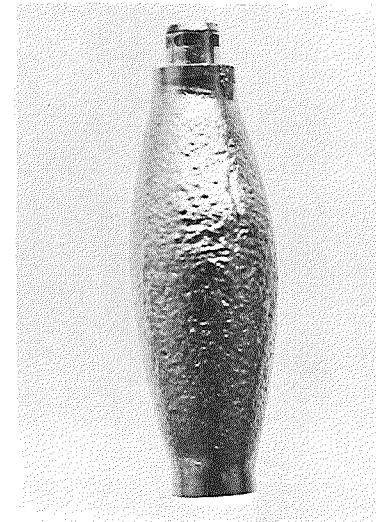
1200°C



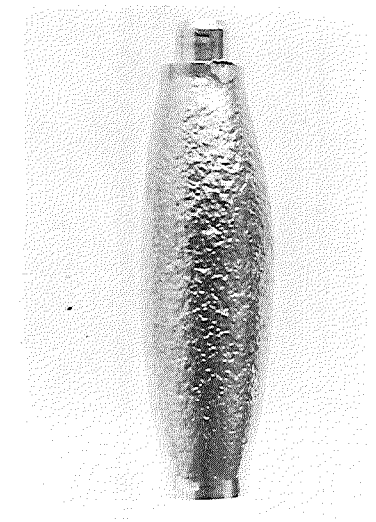
27"; 5,5  
3,51; 80,41



85"; 4,0  
2,55; 83,71



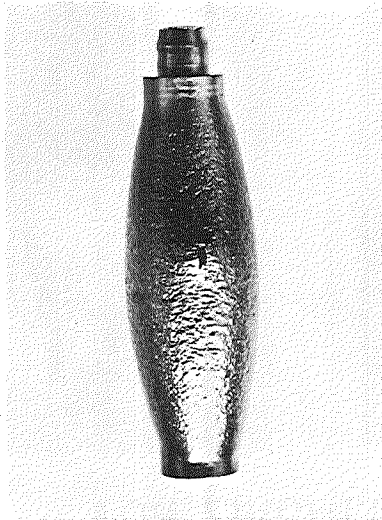
6'50"; 2,7  
1,72; 74,82



23'40"; 2,0  
1,28; 60,65

t [min,s]; p [at]  
 $\sigma_t$  [N/mm<sup>2</sup>];  $\epsilon_B$  [%]

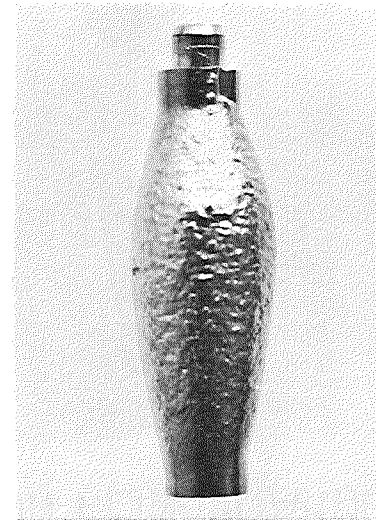
1300°C



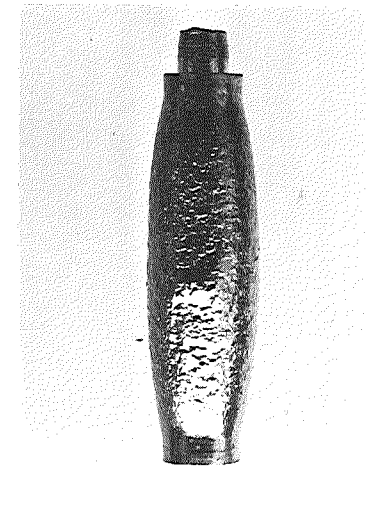
24"; 4,9  
3,11; 60,07



98"; 3,3  
2,10; 49,25



6'42"; 2,3  
1,47; 72,80



20'10"; 1,79  
1,14; 45,00

t [min,s]; p [at]  
 $\sigma_t$  [N/mm<sup>2</sup>];  $\epsilon_B$  [%]

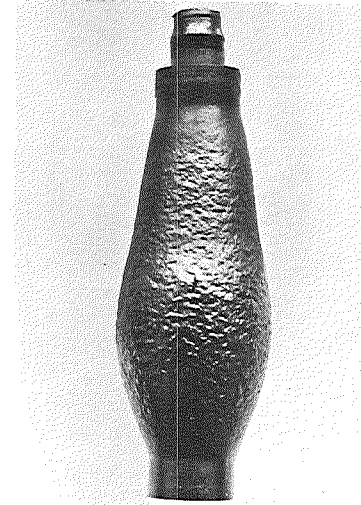
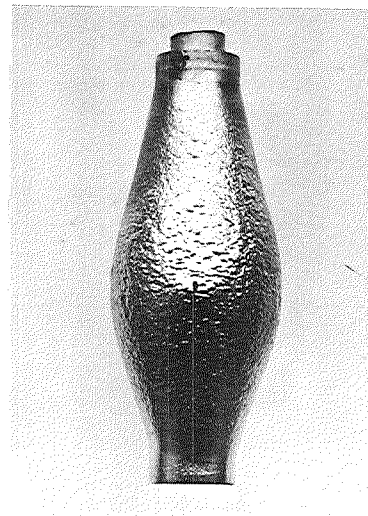
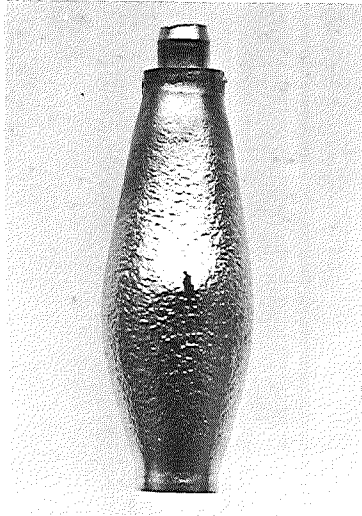
- 257 -

ABB. 4235-24A

1:1

# ROHRINNENDRUCK - KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON

1000 °C



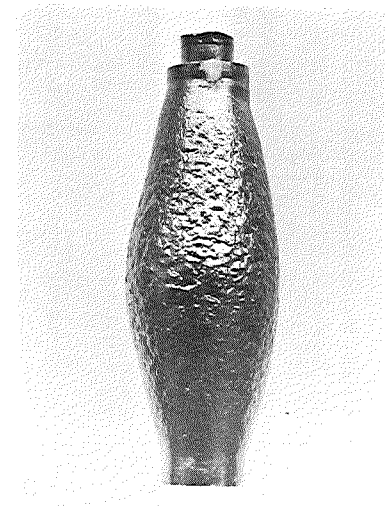
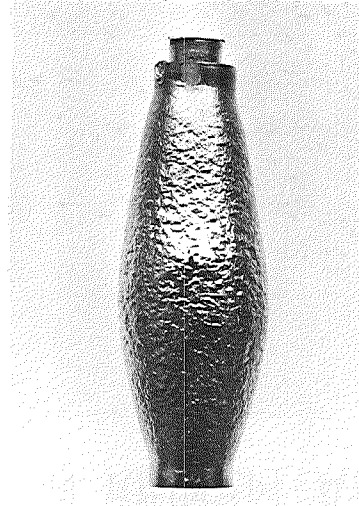
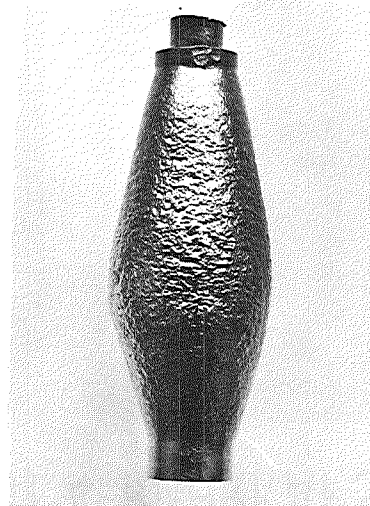
t [min,s]; p<sub>i</sub> [at] 26''; 9,0  
σ<sub>t</sub> [N/mm<sup>2</sup>]; ε<sub>B</sub> [%] 5,74; 85,16

1'44''; 6,0  
3,83; 101,51

8'6''; 4,0  
2,55; 83,64

19'46''; 3,2  
2,03; 75,68

1100 °C



t [min,s]; p<sub>i</sub> [at] 28''; 7,0  
σ<sub>t</sub> [N/mm<sup>2</sup>]; ε<sub>B</sub> [%] 4,47; 86,67

41''; 6,0  
3,83; 91,16

2'49''; 4,0  
2,55; 81,34

9'32''; 3,0  
1,91; 86,36

1:1



# ZIRCALOY 4 / DAMPF-HOCHTEMPERATUR OXIDATION

ANNÄHERND ISOTHERME VERSUCHE AN ROHRKAPSELN  
UNTER ARGON-INNENDRUCK

15 min, 1176°C, 7.25 bar  $\hat{=}$  4.81 N/mm<sup>2</sup>,  $\epsilon = 13,6\%$

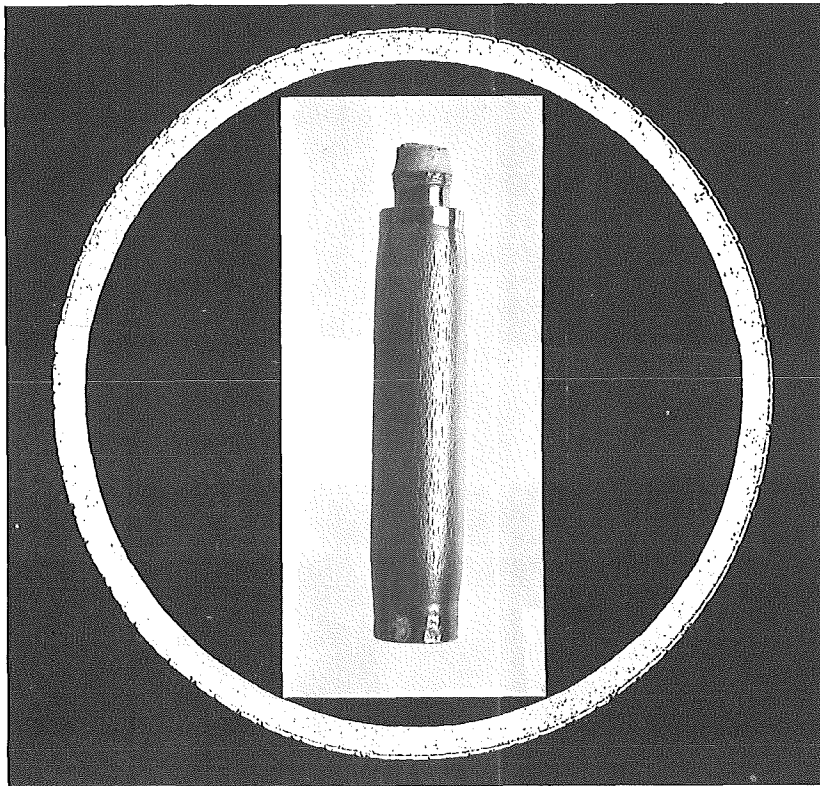
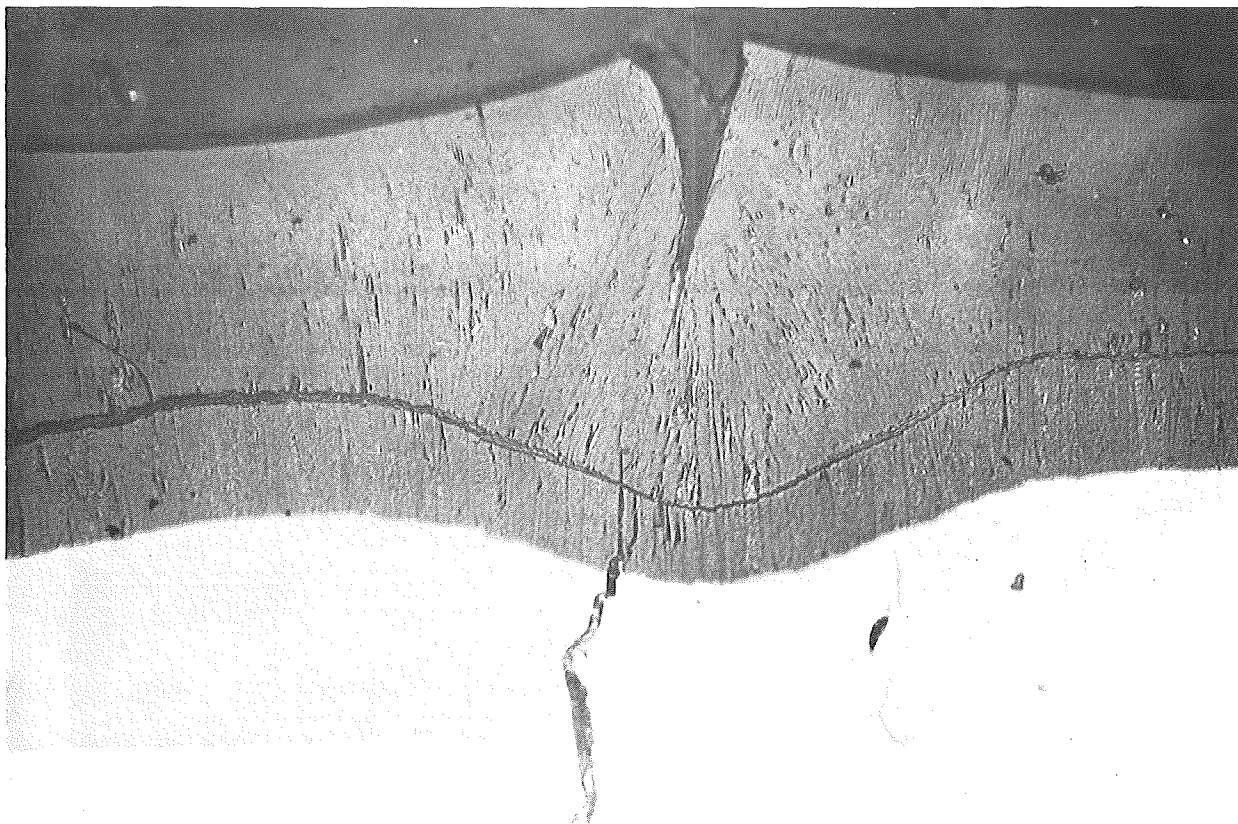


ABB. 4235-25

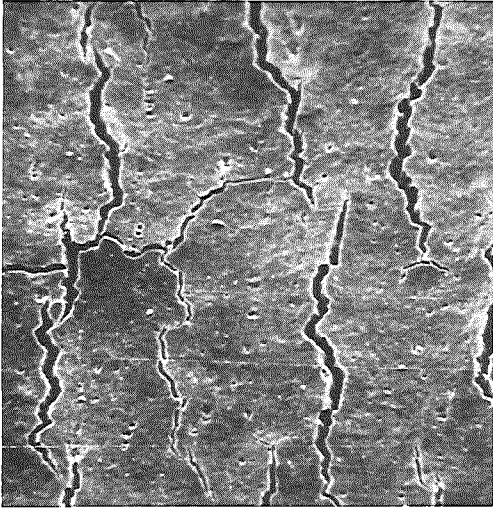
10 X



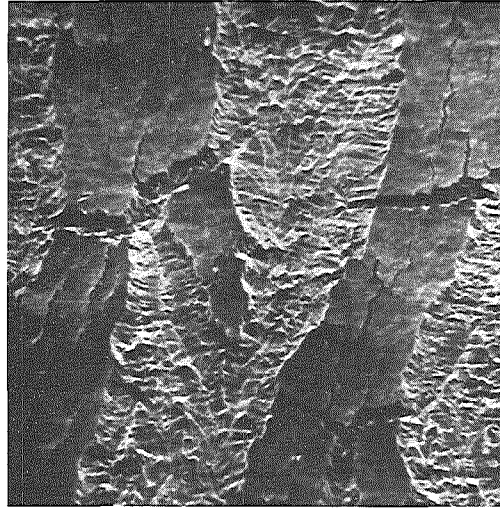
500 X

# ZIRCALOY 4/DAMPF -HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

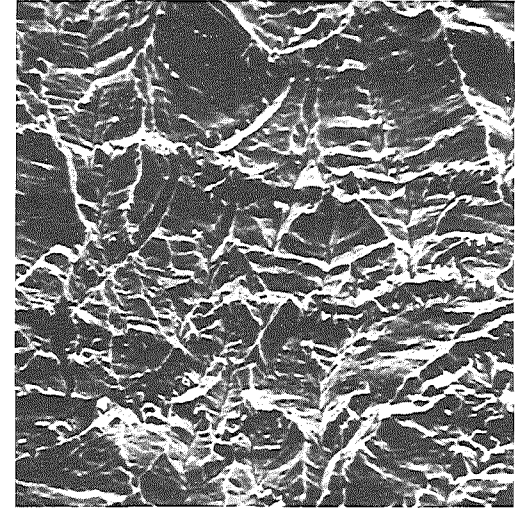
RASTERELEKTRONENMIKROSKOPISCHE AUFNAHMEN EINER UNTER INNENDRUCK OXIDIERTEN ROHRKAPSEL (1'14", 1073°C, 10 bar Ar)



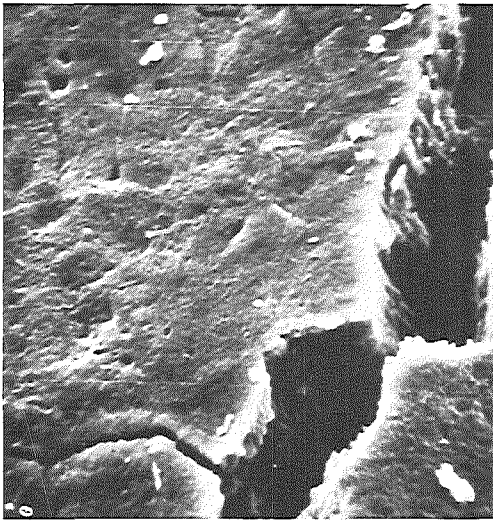
500 X



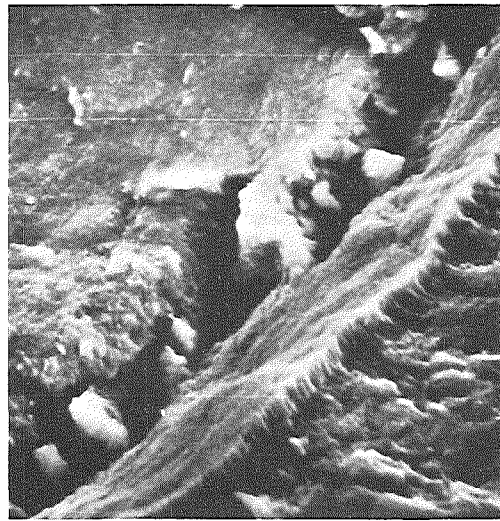
100 X



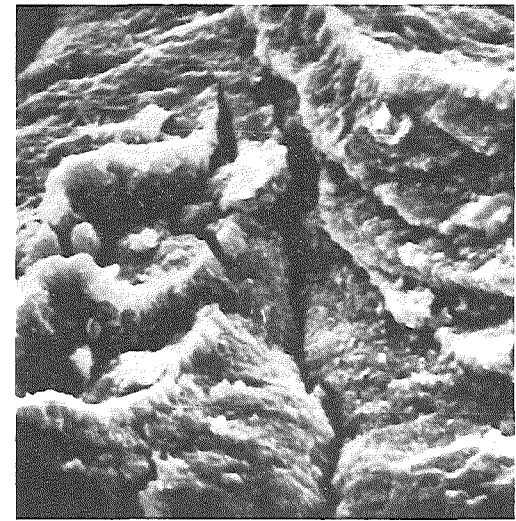
500 X



5 000 X



5 000 X



5 000 X

4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffes auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren

(P.Hofmann, C.Politis, H.Metzger, G.Rejman, B.Scheckel; IMF/I)

Experimente zum Studium der Innenkorrosion bei höheren Temperaturen

Um das Verformungs- und Bruchverhalten von LWR-Hüllrohren bei zunächst geringen Differenzdrücken zu ermitteln, wurden die Glühversuche mit kurzen DWR-Hüllrohren, die mit Oxidbrennstoff und/oder simulierten Spaltprodukten gefüllt waren, fortgeführt /8/. Die Zry-4-Rohre kamen zum größten Teil im Anlieferungszustand zum Einsatz, z.T. wurden sie thermisch vorbehandelt. Die Probenpräparation wurde in Handschuhboxen unter hochreinem Schutzgas durchgeführt. Die Aufheizung der Proben erfolgte in einem Rohrofen unter Helium, Luft und Wasserdampf. Die Aufheizgeschwindigkeiten variierten zwischen 2 und 15<sup>o</sup>C/s, die max. Temperatur betrug 1200<sup>o</sup>C. Die Glühversuche waren beendet, wenn es zum Bersten der Hüllrohre kam, ansonsten wurden die Proben 1 h isotherm geglüht. Der Gasdruck in den Rohrproben entsprach bei Raumtemperatur dem Atmosphärendruck. Die maximalen Rohrrinnen- oder Berstdrücke wurden abgeschätzt, sie ergeben sich aus dem Druckanstieg des Füllgases bzw. der Partialdrücke der Spaltprodukte infolge Temperaturerhöhung der Proben. Zum Vergleich wurden auch nur mit Argon gefüllte Rohrproben geglüht.

Als Versuchsparameter wurden die Temperatur, die Glühzeit, die Aufheizgeschwindigkeit, die Spaltproduktkonzentration, das O/U-Verhältnis des UO<sub>2</sub> und die Versuchsatmosphäre variiert. Der simulierte Abbrand betrug maximal 5 At.%.

Beeinflussung der mechanischen Eigenschaften von Zry-4-Hüllrohren durch die Innenkorrosion

Die bisherigen Ergebnisse zeigen, daß sowohl das Sauerstoffpotential des UO<sub>2</sub> als auch die untersuchten Spaltprodukte Cäsium, Jod und Tellur z.T. erhebliche Steigerungen der plastischen Verformungen der Zry-Hüllrohre unter Innendruck oberhalb 800<sup>o</sup>C zur Folge haben können. Die plastischen Verformungen treten meist lokal auf, in Form von Beulen. Die in Gegenwart von UO<sub>2</sub> und/oder Spaltprodukten ermittelten, bleibenden Umfangsdehnungen sind deutlich größer als diejenigen von Vergleichsproben, die nur mit Argon gefüllt sind.



Die Ergebnisse der Experimente mit spaltproduktfreiem  $\text{UO}_{2+x}$ -Pulver gefüllten Rohrproben sind in Abb.4235-27 dargestellt.

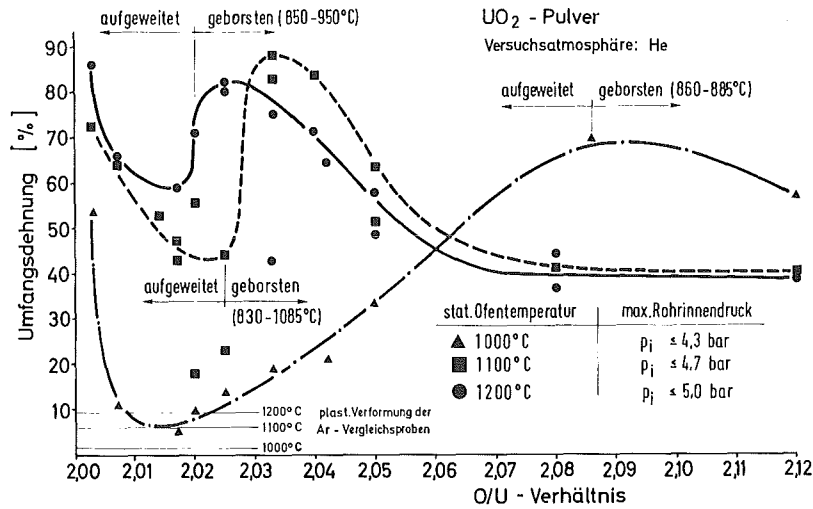


Abb.4235-27: Einfluß des O/U-Verhältnisses auf das Verformungsverhalten der Zry-4-Rohre unter Schutzgas für drei stationäre Ofentemperaturen.

Die Umfangsdehnungen bzw. Berstdehnungen der Zry-Rohre wurden nach den Versuchen gemessen. Ein Vergleich dieser Umfangsdehnungen mit denen der Argon gefüllten Rohrproben ergibt in allen Fällen eine größere plastische Verformung der Hüllrohre. Die Zunahmen in den Umfangsdehnungen hängen vom O/U-Verhältnis des  $\text{UO}_2$ , von der maximalen Probestemperatur sowie von der Aufheizgeschwindigkeit ab, und sie betragen maximal 90%. Oberhalb eines kritischen O/U-Verhältnisses bersten die Rohrproben bereits beim Hochheizen, größtenteils oberhalb 850°C, nach unterschiedlich starker Aufweitung (Abb.4235-27, 4235-28). Die Bersttemperaturen der  $\text{UO}_{2+x}$ -gefüllten Hüllrohre nehmen dabei i.a. mit zunehmendem O/U-Verhältnis ab (Abb.4235-28).

Die Rohrproben wurden nach den Glühexperimenten metallographisch untersucht, chemisch analysiert, und z.T. wurden Mikrohärtmessungen und Mikrosondenuntersuchungen durchgeführt. Abb.4235-29 zeigt die Schliffbildaufnahmen einiger Zry-4-Rohrproben, die mit  $\text{UO}_2$ -Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt waren. Es handelt sich um Querschliffe, die in der Ebene maximaler

Aufweitung oder an der Bruchstelle hergestellt wurden. Die maximalen Umfangsdehnungen dieser Proben sind in der Abb.4235-27 zu entnehmen.

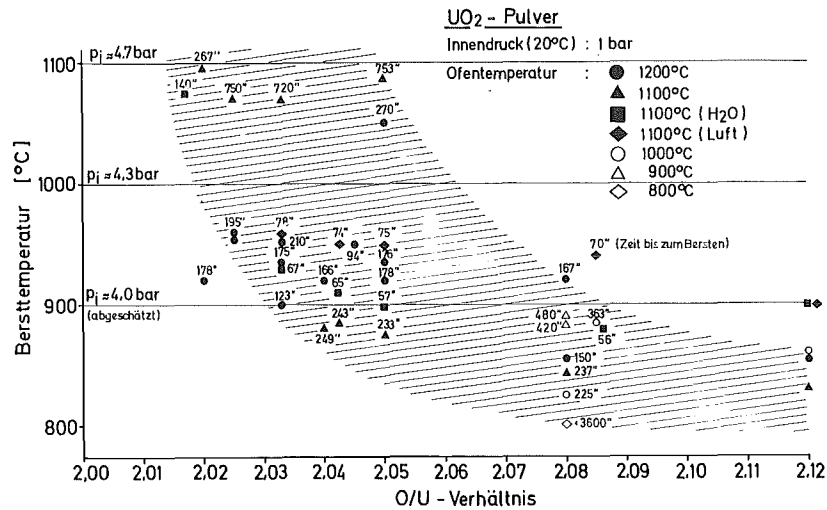
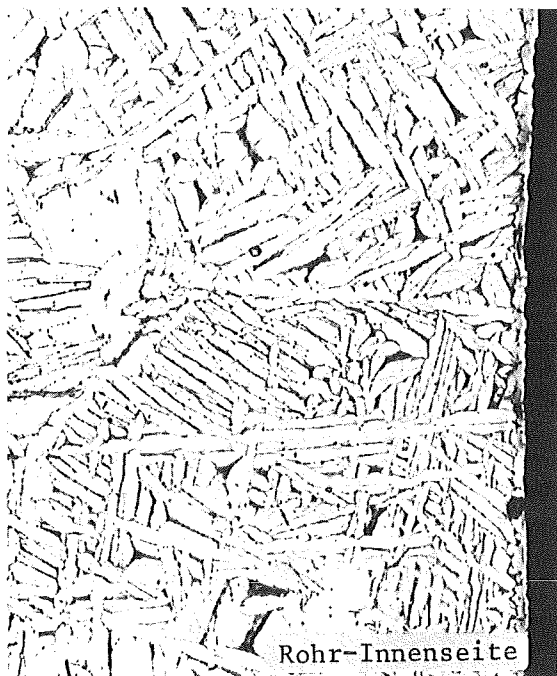
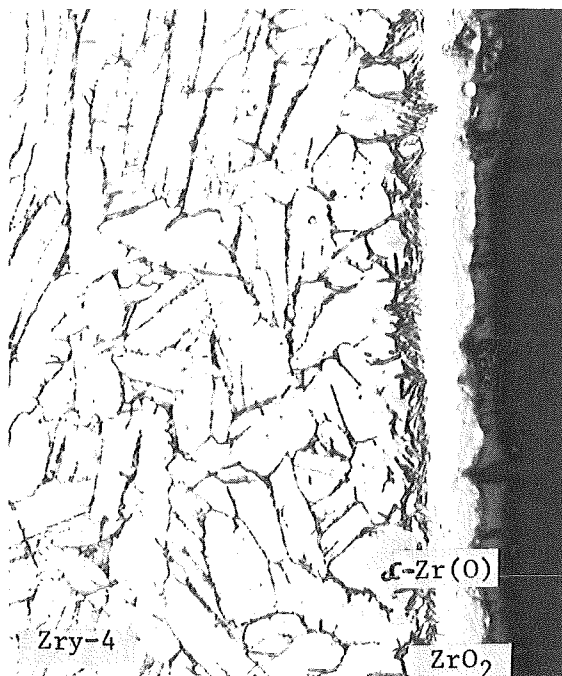


Abb.4235-28: Einfluß des O/U-Verhältnisses auf die Bersttemperatur von Zry-4-Rohren unter Helium, Luft und Wasserdampf. Die Zahlen geben die Zeit bis zum Bersten der Hüllrohre an

Man erkennt deutlich, die durch die chemische Wechselwirkung des Zry mit dem überstöchiometrischen UO<sub>2</sub> entstandene ZrO<sub>2</sub>-Schicht und die sauerstoffstabilisierte  $\alpha$ -Zr(O)-Phase auf der Hüllrohr-Innenseite sowie die rücktransformierte  $\beta$ -Phase (Matrix). Chemische Analysen der Zry-Rohre und des Oxidbrennstoffes vor und nach den Glühexperimenten zeigen, daß der überstöchiometrische Oxidbrennstoff zu nahezu stöchiometrischem reduziert wird, gleichzeitig nimmt der mittlere Sauerstoff und Wasserstoffgehalt im Zry-Hüllrohr zu (Tabelle 4235-1).



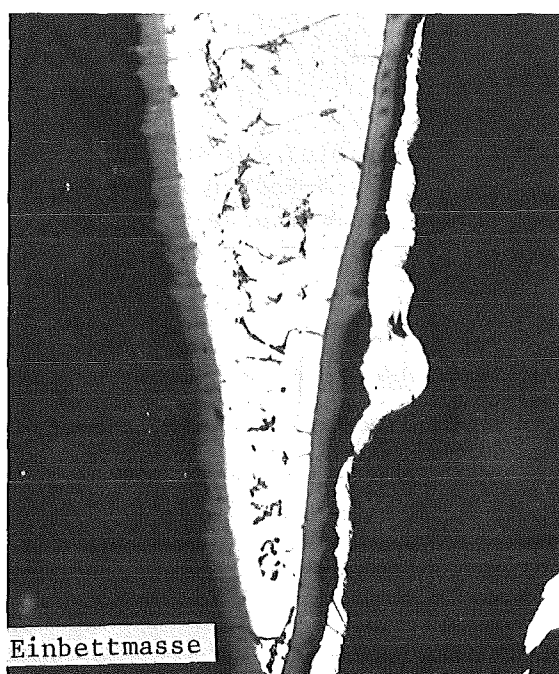
Rohr-Innenseite  
Ar-Vergleichsprobe x 250  
Glühbedingungen: 1100°C/1h



Zry/UO<sub>2,02</sub> x 500  
Zeit bis zum Bersten: 267s (1095°C)



Zry/UO<sub>2,08</sub> x 500  
Zeit bis zum Bersten: 217s (845°C)



Zry/UO<sub>2,08</sub> x 500  
Bruchstelle

Abb. 4235-29:

Gefügebildungen von Zry-4-Rohrproben (Querschliffe, geätzt), die mit UO<sub>2</sub> unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt waren, nach der Glühbehandlung unter Helium. Die stationäre Ofentemperatur betrug 1100°C. (Umfangsdehnungen siehe Abb. 4235-27).

Tabelle 4235-1: Mittlerer Sauerstoff- und Wasserstoffgehalt des Zry-Hüllmaterials und Oxidbrennstoffes einiger Versuchsproben (siehe Abb.4235-29) vor und nach dem Glühen

Versuchsprobe	Komponenten der Brennstabsimulatoren	chemische Analysen		
		O [Gew. %]	O/U-Verh.	H [ppm]
	Zry-4-Ausgangsmaterial	0,12	-	25
99 K Zry-4/Argon (1100°C/1h)	Zry-4-Vergleichsprobe nach dem Glühen	0,15	-	105
195 K Zry-4/UO <sub>2,02</sub> (1095°C/267 s)	UO <sub>2</sub> vor dem Glühen UO <sub>2</sub> nach dem Glühen Zry nach dem Glühen	- - 0,40	2,02 < 2,003 -	< 50 < 50 340
105 K Zry-4/UO <sub>2,08</sub> (845°C/217 s)	UO <sub>2</sub> vor dem Glühen UO <sub>2</sub> nach dem Glühen Zry nach dem Glühen	- - 0,55	2,08 < 2,005	< 50 < 50 200

(Die chemischen Analysen wurden von Frau Dr.H.Schneider und Mitarbeitern, IMF/I, durchgeführt).

Ein Maß für die Sauerstoffaufnahme des Zry ist die Mikrohärtigkeit, da der gelöste Sauerstoff zu einer Versprödung des Hüllrohres führt. Mikrohärtigkeitsmessungen der Zry-Hüllrohre zeigen nun aber, daß der Sauerstoff nicht gleichmäßig verteilt im Zry vorliegt, sondern an der Phasengrenze UO<sub>2</sub>/Zry angereichert vorhanden ist (Abb.4235-30). Je größer das O/U-Verhältnis des UO<sub>2</sub> ist, desto größer ist die absolute Härte bzw. der Sauerstoffgehalt des Zry an der Phasengrenze. Nach längeren Glühzeiten verringert sich der Härtegradient oder verschwindet sogar durch einen Konzentrationsausgleich des Sauerstoffs im Zry infolge Diffusion (Abb.4235-30).

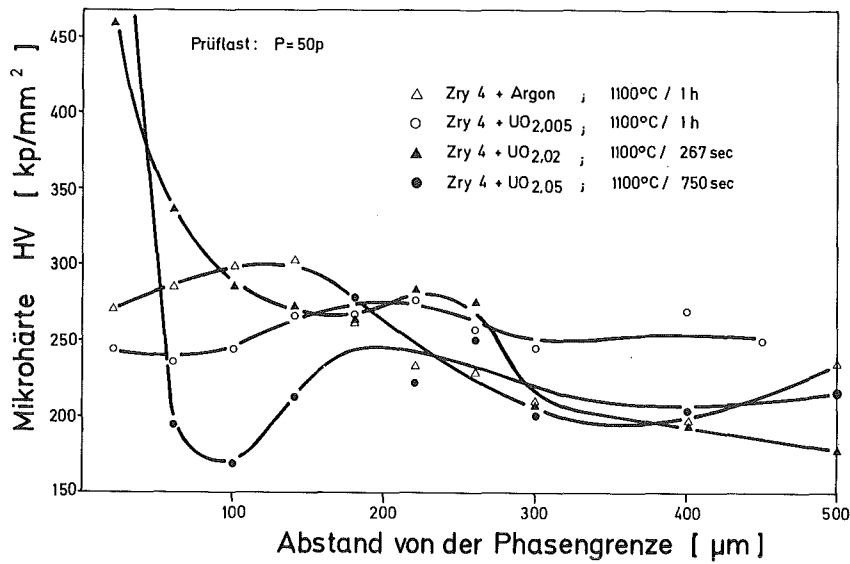


Abb.4235-30: Radialer Mikrohärteverlauf von Zry-Hüllrohren nach den Glühbehandlungen mit  $UO_{2+x}$  unterschiedlicher O/U-Verhältnisse. Stationäre Ofentemperatur:  $1100^{\circ}C$ ; Versuchsatmosphäre: Helium

Das Verformungsverhalten der Zry-Hüllrohre wird neben dem O/U-Verhältnis auch durch die Größe der spezifischen Oberfläche des  $UO_2$  bestimmt. Die mit  $UO_2$ -Pulver gefüllten Rohre zeigen unter sonst gleichen Versuchsbedingungen stärkere plastische Verformungen als die mit  $UO_2$ -Pellets gefüllten (Abb.4235-31).

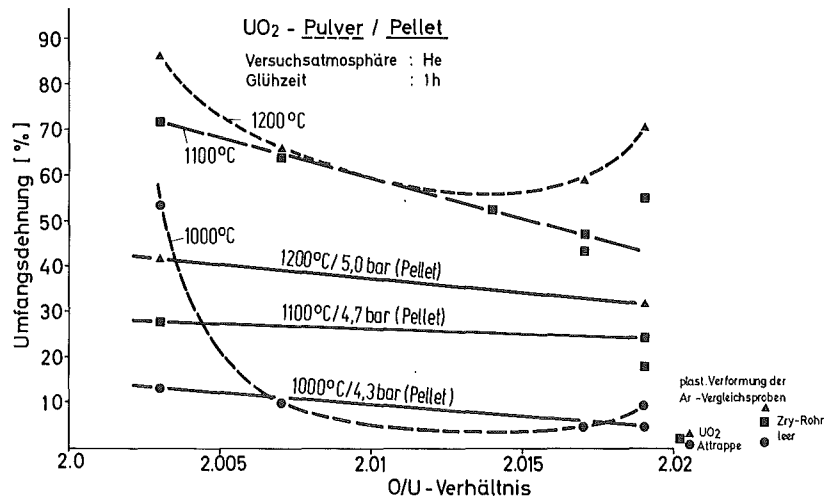


Abb.4235-31: Einfluß der spezifischen  $UO_2$ -Oberfläche auf das Verformungsverhalten der Zry-4-Rohre unter Schutzgas.  $UO_2$ -Attrappe: die  $UO_2$ -Pellets wurden durch Zry-Pellets gleicher Abmessungen ersetzt.

Auch unter oxidierender Versuchsatmosphäre (Luft, Wasserdampf) hat der Brennstoff noch einen deutlichen Einfluß auf die plastische Verformung der Hüllrohre. Die Umfangsdehnungen bzw. die Durchmesserzunahmen infolge plastischer Verformung und Außenoxidation liegen über denen von Vergleichsproben, die kein  $UO_2$  enthalten (Abb.4235-32).

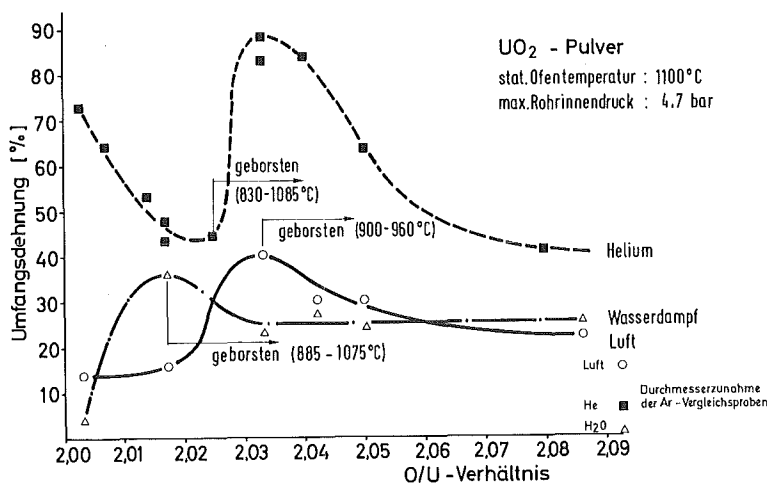
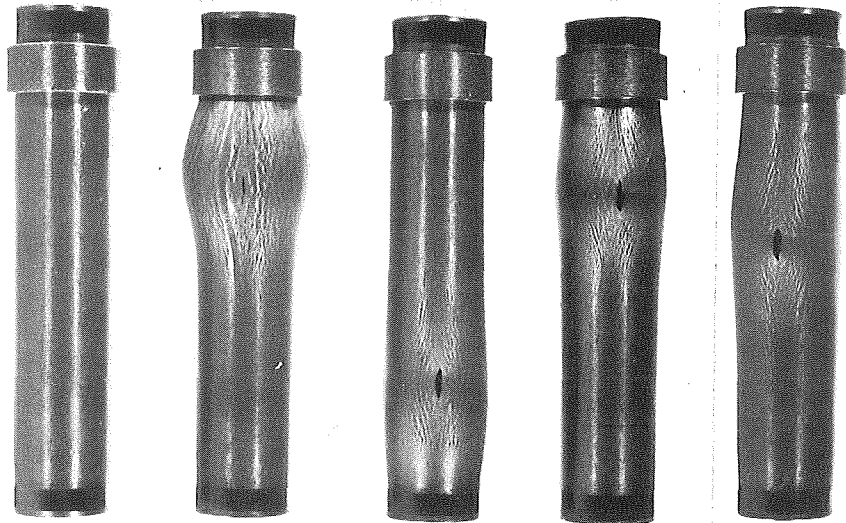


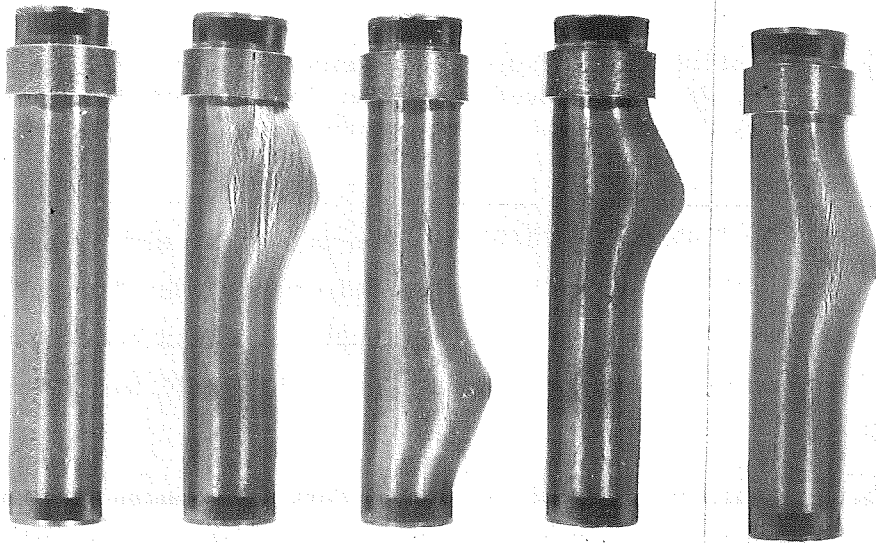
Abb.4235-32: Einfluß der Versuchsatmosphäre (He, Luft, Wasserdampf) auf das Verformungsverhalten der Zry-4-Rohre bei einer stationären Ofentemperatur von 1100°C

Die Sauerstoffaufnahme der Hüllrohre von außen hat eine Versprödung und damit eine Verringerung der plastischen Deformation des Zry zur Folge, was sich in kleineren Durchmesserzunahmen unter Luft und Wasserdampf (5 bis 40%) als bei den Experimenten unter Schutzgas (5 bis 90%) bemerkbar macht (Abb.4235-32).

Das Ausbeulverhalten, d.h. die Lage und Form der Beulen der unter Wasserdampf und Luft geblühten Brennstabsimulatoren, ist den Abb.4235-33 und 4235-34 zu entnehmen. Metallographische Untersuchungen der Versuchsproben zeigen, daß die Außenoxidation der Zry-Rohre in Luft erheblich stärker ist als unter Wasserdampf, unter vergleichbaren Versuchsbedingungen (vergleiche Abb.4235-35 mit 4235-36). Unter Luft ist die  $ZrO_2$ -Schichtdicke, im Gegensatz zu den unter Wasserdampf oxidierten Proben, nicht gleichmäßig und beträgt bis zu 500  $\mu m$ . Obwohl die Umfangszunahmen der Hüllrohre i.a. < 40% betragen, haben in der Umgebung der Bruchstellen stärkere lokale, plastische Verformungen der Rohre stattgefunden. Die Gefügebildungen der Bruchstellen lassen jedoch keine Verformungstextur erkennen, was auf ein superplastisches Verhalten des Zry hindeuten könnte (Abb.4235-36).



O/U-Verhältnis:	< 2,005	2,017	2,033	2,042	2,05
Zeit b.z.Bersten:	(1h) <sup>+</sup>	140 s	67 s	65 s	57 s
max. Temperatur:	1100°C	1075°C	930°C	910°C	895°C
max. Dehnung:	4%	36%	23%	27%	24%

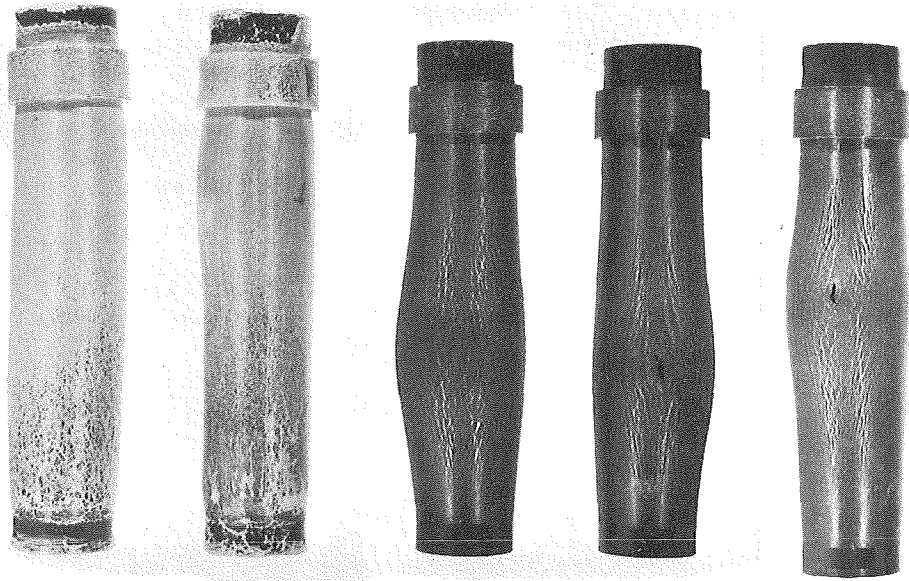


Rohrproben gegenüber oben um 90° gedreht

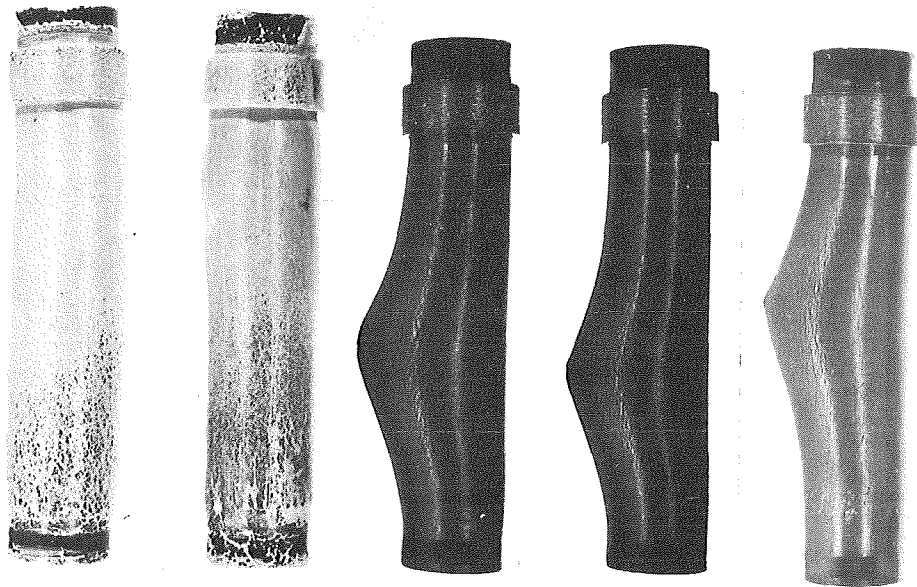
Abb.4235-33:

Zry-Rohrproben, die mit  $UO_2$ -Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt waren, nach der Glühbehandlung unter Wasserdampf. Die stationäre Ofentemperatur betrug 1100°C.

<sup>+</sup> Glühzeit, Hüllrohr nicht geborsten



O/U-Verhältnis:	< 2,005	2,017	2,033	2,042	2,05
Zeit b.z.Bersten:	(1h) <sup>+</sup>	(1h) <sup>+</sup>	78 s	74 s	75 s
max. Temperatur:	1100°C	1100°C	960°C	950°C	950°C
max. Dehnung:	14%	16%	41%	30%	30%

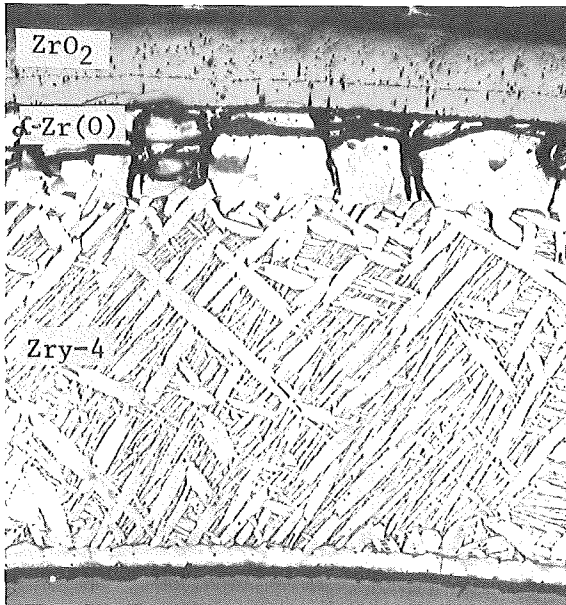


Rohrproben gegenüber oben um 90° gedreht

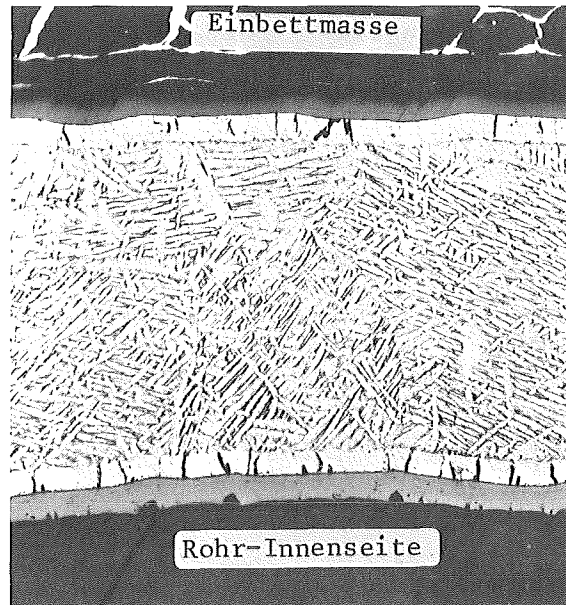
Abb.4235-34 :

Zry-Rohrproben, die mit  $UO_2$ -Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt waren, nach der Glühbehandlung in Luft. Die stationäre Ofentemperatur betrug 1100°C.

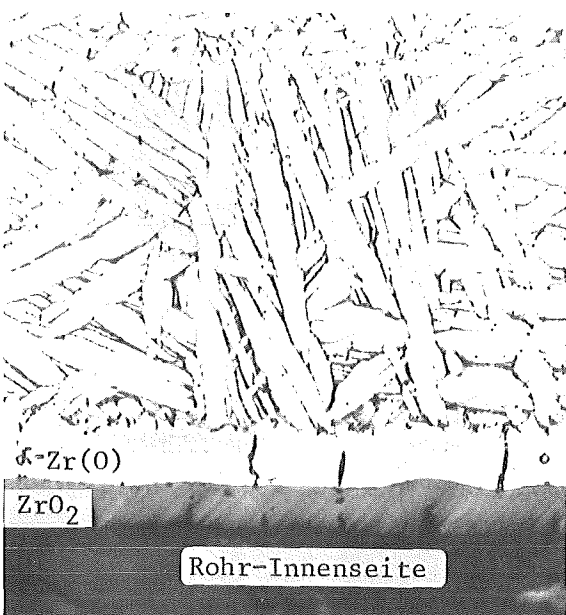




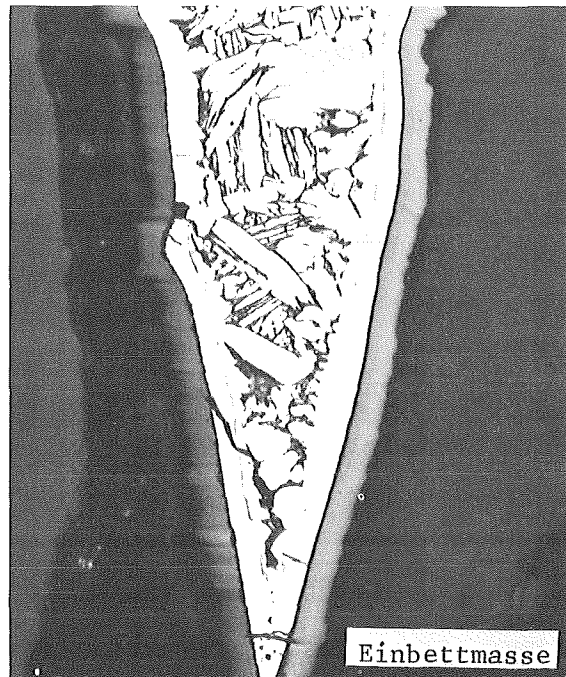
Zry/UO<sub>2,005</sub> x 100  
Glühbedingungen: 1100°C/1h



Zry/UO<sub>2,017</sub> x 100  
Zeit bis zum Bersten: 140s (1075°C)



Zry/UO<sub>2,05</sub> x 500  
Zeit bis zum Bersten: 57s (895°C)

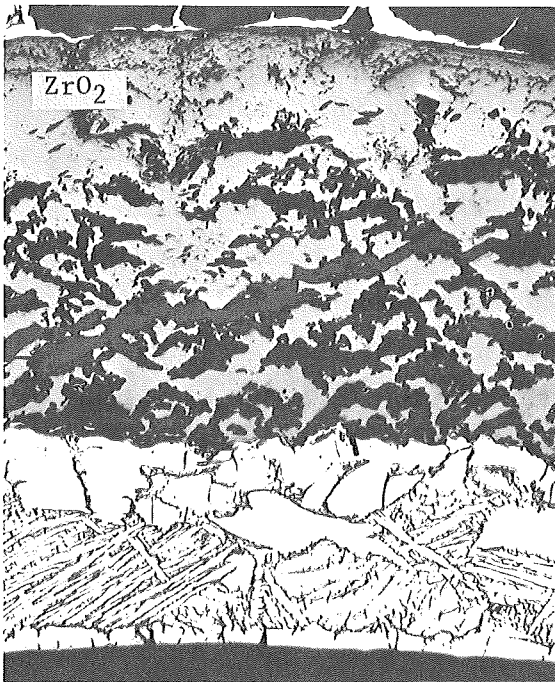


Zry/UO<sub>2,05</sub> x 250  
Bruchstelle

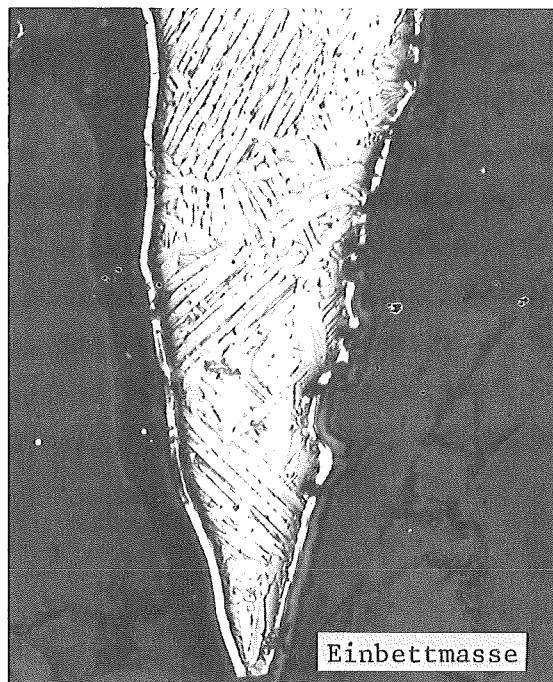
**Abb.4235-35:**

Gefügeaufnahmen von Zry-4-Rohrproben (Querschliffe, geätzt), die mit UO<sub>2</sub>-Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt waren, nach der Glühbehandlung unter Wasserdampf. Die stationäre Ofentemperatur betrug 1100°C.

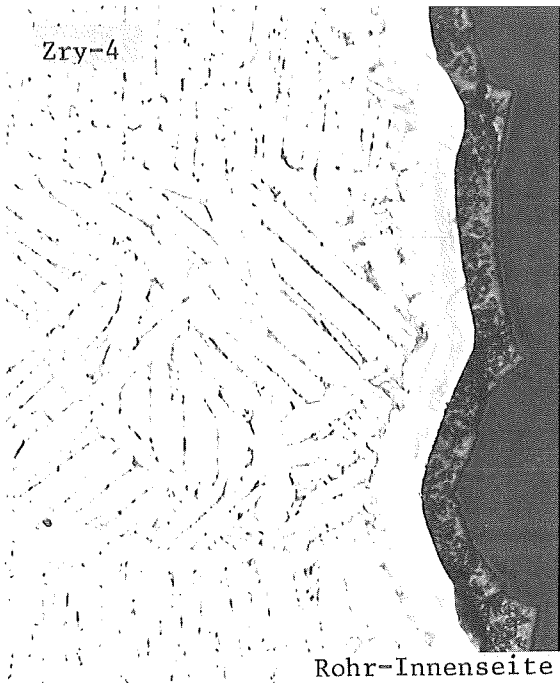
(Umfangsdehnungen siehe Abb.4235-32).



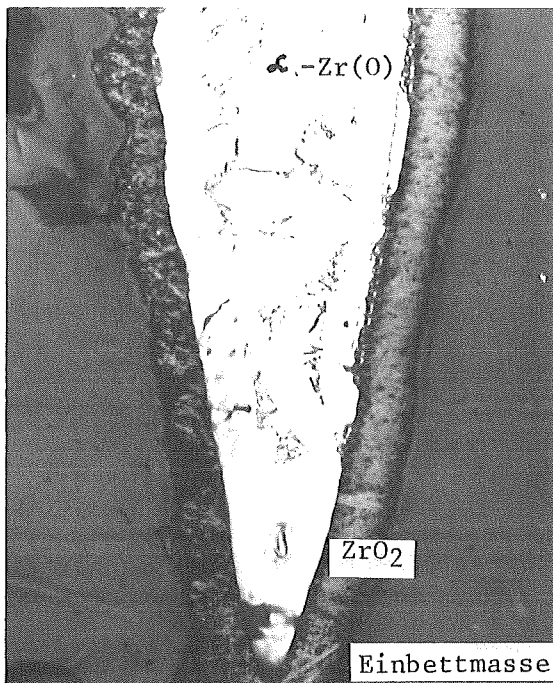
Zry/UO<sub>2,017</sub> x 100  
Glühbedingungen: 1100°C/1h



Zry/UO<sub>2,042</sub> x 250  
Zeit bis zum Bersten: 74s (950°C)



Zry/UO<sub>2,05</sub> x 500  
Zeit bis zum Bersten: 75s (950°C)



Zry/UO<sub>2,05</sub> x 500  
Bruchstelle

Abb.4235-36:

Gefügaufnahmen von Zry-4-Rohrproben (Querschliffe, geätzt), die mit UO<sub>2</sub>-Pulver unterschiedlicher O/U-Verhältnisse gefüllt waren, nach der Glühbehandlung unter Luft. Die stationäre Ofentemperatur betrug 1100°C.

(Durchmesserzunahmen siehe Abb.4235-32 ).

Neben des  $UO_{2+x}$ -Einflusses auf das mechanische Verhalten der Zry-Rohre wird auch der Einfluß der Spaltprodukte Cs, J und Te mit und ohne Brennstoff untersucht. Bei den Experimenten mit simulierten Spaltprodukten ist zu beachten, daß die Änderungen im Verformungsverhalten der Rohre gegenüber den Argon-Vergleichsproben unterschiedliche Ursachen besitzen. Einmal können chemische Wechselwirkungen der Spaltprodukte mit dem Zry stattfinden, zum anderen kommt es, besonders bei höheren Temperaturen, zu einem größeren Druckaufbau in den Hüllrohren durch den Partialdruck der flüchtigen Spaltprodukte Cs, J und Te. Dies gilt besonders für Cs aufgrund seiner hohen Spaltausbeute und damit großen Konzentration im Brennstabsimulator.

Bei den Versuchen mit Jod-dotierten  $UO_2$ -Pellets ist aber festzustellen, daß mit zunehmender Jod-Konzentration und damit größeren Innendruck in den Hüllrohren die plastische Verformung abnimmt (Abb.4235-37).

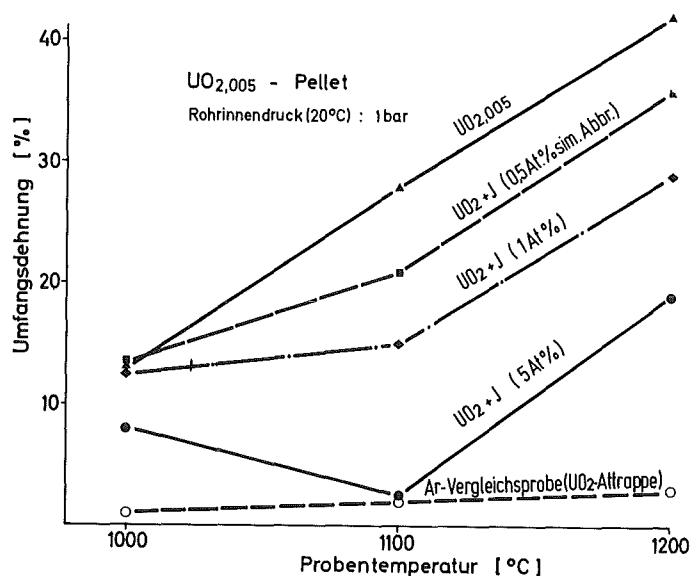


Abb.4235-37: Einfluß der Jodkonzentration auf das Verformungsverhalten der Zry-4-Rohre unter Schutzgas in Abhängigkeit der Temperatur

Jod hat in Gegenwart von  $UO_{2+x}$  eine geringere Aufweitung der Zry-Hülle zur Folge. Es kommt auch bei 1200°C nicht zum Aufreißen der Zry-Hüllrohre, da die Spannungen im Rohr offenbar unterhalb denen liegen, die für die Spannungsrißkorrosion erforderlich sind. Der Einfluß von Jod auf das Verformungsverhalten der Hüllrohre ist vom O/U-Verhältnis des Brennstoffes relativ unabhängig (Abb.4235-38).

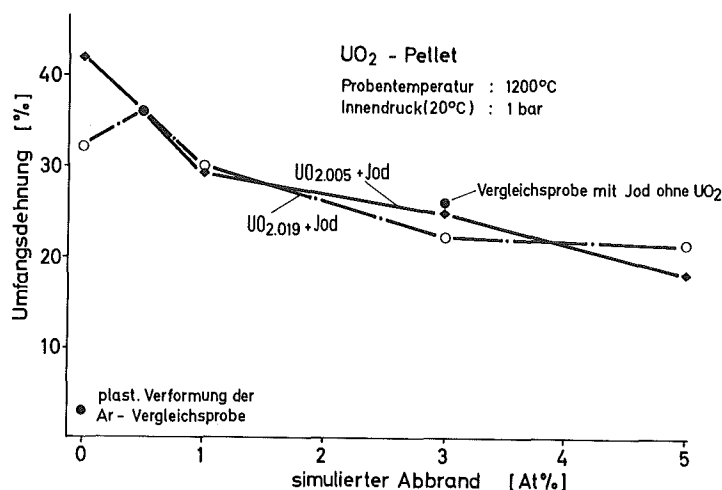


Abb.4235-38: Einfluß der Jodkonzentration auf das Verformungsverhalten der Zry-4-Rohre unter Schutzgas für UO<sub>2</sub>-Pellets unterschiedlicher O/U-Verhältnisse

Die Spaltprodukte (ohne UO<sub>2</sub>) verursachen bei den geringen Ausgangs-Innen- drücken von ca. 1 bar nur dann Hüllrohrschäden, wenn freies Cs im Brennstab vorhanden ist. Das Bersten der mit Cs gefüllten Rohrproben (simulierter Ab- brand 3 At.%) erfolgte oberhalb 950°C. Die Spaltprodukte Jod, Tellur und CsJ führen dagegen unter den bei diesen Experimenten herrschenden Differenz- drücken, auch bei 1200°C nicht zum Versagen der Hüllrohre. Die mit den Spalt- produkten J, Te und CsJ gemessenen Hülldehnungen (2 bis 25%) liegen zwischen denen mit spaltproduktfreier UO<sub>2+x</sub> und Argon-Füllung (Abb.4235-39).

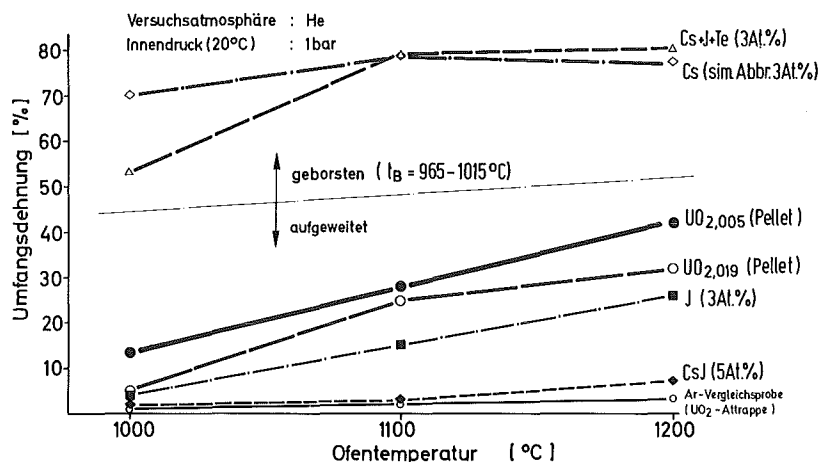


Abb.4235-39a: Einfluß von UO<sub>2+x</sub>, Cs, J, Te auf das Verformungsverhalten der Zry-4-Rohre unter Schutzgas; Rohrinndruck bei Raumtemperatur: 1 bar.

In Gegenwart von Oxidbrennstoff hängt das chemische Verhalten von Cäsium stark vom O/U-Verhältnis des  $UO_2$  ab. In Anwesenheit von überstöchiometrischem Brennstoff reagiert das Cs mit dem  $UO_{2+x}$  unter Bildung von Cäsiumuranat, bei stöchiometrischem Brennstoff kommt es dagegen nicht zu chemischen Wechselwirkungen zwischen dem Cs und dem  $UO_{2,00}$ . Das hat zur Folge, daß in Anwesenheit von stöchiometrischem Brennstoff das Cs elementar im Brennstab vorliegt. Bei höheren Temperaturen trägt das Cs deshalb erheblich zum Druckaufbau in den Rohrproben bei, und es kommt zwischen 950 und  $1000^{\circ}C$  zum Bersten der Zry-Hüllrohre mit Berstdehnungen zwischen 50 und 90% (Abb.4235-39b).

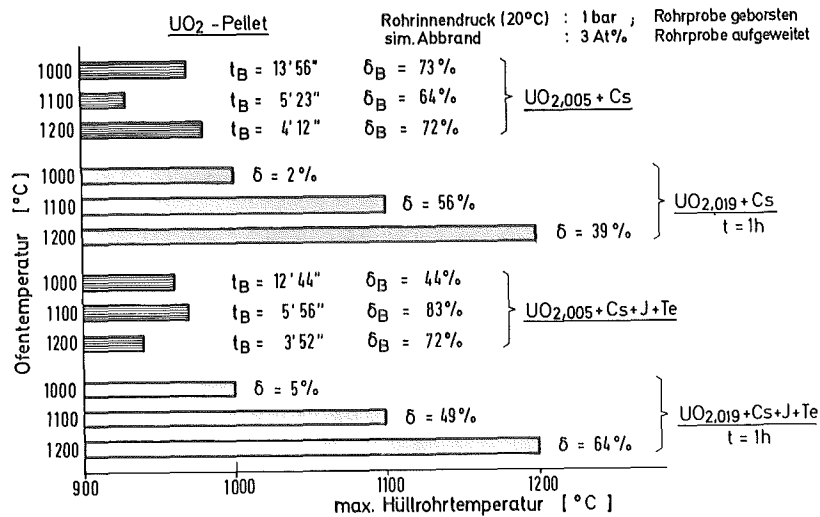


Abb.4235-39b: Einfluß der Spaltprodukte Cs, J und Te auf das Verformungsverhalten der Zry-4-Rohre in Gegenwart von Oxidbrennstoff (Pellets) unterschiedlicher O/U-Verhältnisse. In Anwesenheit von  $UO_{2,005}$  kommt es bereits beim Hochheizen zum Bersten der Rohrproben, nicht dagegen bei  $UO_{2,019}$ , auch nicht bei  $1200^{\circ}C/1h$ .

### Folgerungen aus den Innenkorrosionsexperimenten bei höheren Temperaturen und geringen Differenzdrücken

Das Verformungs- und Bruchverhalten der Zry-4-Hüllrohre wird bestimmt durch die gleichzeitige Wirkung des Sauerstoffpotentials des Brennstoffs und die mechanische Beanspruchung durch den Innendruck. Werden die Rohre zunächst ohne Einwirkung von Kräften oxidiert und dann mechanisch beansprucht, bei gleichen Temperatur-Zeit-Verläufen wie die  $UO_2$ -gefüllten Proben, so entsprach die plastische Verformung ungefähr der von nichtoxidierenden Ar-gefüllten Vergleichsproben.

Der Innendruck in den Hüllrohren wird durch den Druck des Füllgases und den Partialdruck der flüchtigen Spaltprodukte bestimmt. Unter den gewählten Versuchsbedingungen war der abgeschätzte Berstdruck deutlich kleiner als der experimentell ermittelte Berstdruck an unkorrodierten Hüllrohrproben /3/.

Die während eines Kühlmittelverluststörfalles tatsächlich auf die Hüllrohre einwirkenden Kräfte werden in der Praxis meistens erheblich größer sein als bei diesen Experimenten. Bei DWR beträgt der Vorinnendruck bei Raumtemperatur ca. 30 bar, bei SWR ca. 1 bar. Ein weiterer Druckaufbau in den Brennstäben erfolgte durch die Spaltgaserzeugung und ist vom Abbrandzustand des Brennstabes abhängig. Bei DWR ist daher mit einem größeren Differenzdruck zu rechnen, da der Außendruck in der Niederdruckphase eines Kühlmittelverlustunfalles nur einige bar beträgt. Das hier beschriebene plastische Verhalten der Zry-Rohre kann daher nicht ohne weiteres auf höhere Differenzdrücke und damit eventuell verbundene größere Verformungsgeschwindigkeiten übertragen werden, wie sie beim Kühlmittelverluststörfall von LWR zu erwarten sind. Die out-of-pile-Experimente werden daher mit Kühlmittelverluststörfalltypischen Randbedingungen fortgesetzt und durch in-pile-Experimente im Dampf-Kontaminations-Loop des FR2 ergänzt.

### Experimente zur Messung des Innengasdruckes in den Brennstabsimulatoren

Die in den vorangegangenen Abschnitten beschriebenen Experimente mit kurzen Brennstabsimulatoren wurden ohne Druckmessung durchgeführt, d.h. der Innendruck wurde lediglich abgeschätzt. Zur Beschreibung des Hüllrohrverhaltens durch ein geeignetes Materialgesetz ist es aber notwendig, neben der Temperatur, auch die Druckdifferenz in Abhängigkeit von Zeit und damit die Spannungen sowie die Verformungsgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}$  der Zry-Hüllrohre zu ken-

nen. Es wurde deshalb ein Versuchsaufbau entwickelt, der es gestattet, den Innendruck in den Brennstabsimulatoren kontinuierlich bis zum Bersten zu messen. Als Absolutdruck-Meßumformer werden Druckmeßdosen mit kleinem Eigenvolumen und schneller Ansprechbarkeit verwendet. Die Druckmeßdosen wurden mit Hilfe eines Präzisions-Feinmeßmanometers (Anzeigengenauigkeit  $\pm 0,1\%$  des Endwertes) und einer hydraulischen Prüfpumpe geeicht (Abb.4235-40). Zwischen der Ausgangsspannung der Druckmeßdose und dem Druck besteht ein linearer Zusammenhang.

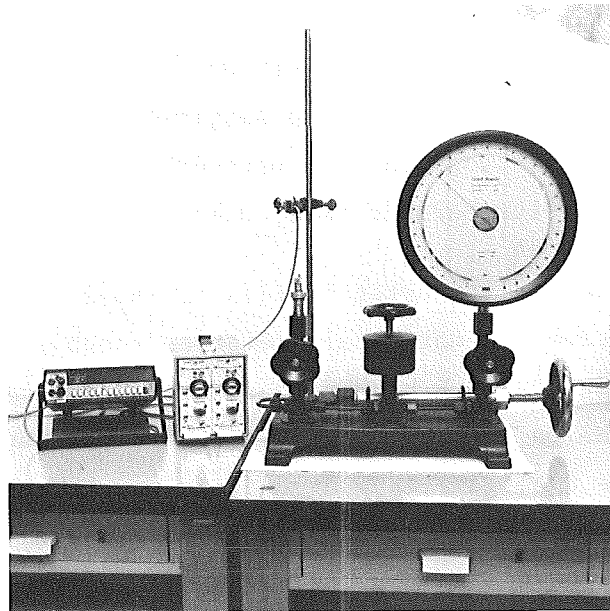


Abb.4235-40: Versuchsanordnung zum Eichen der Druckmeßdosen mittels eines Präzisions-Feinmeßmanometers

Bei den Versuchsproben zur kontinuierlichen Messung des Innendruckes besteht die Meßleitung aus einem 150 mm langen rostfreien Stahlrohr mit einem Innendurchmesser von 0,5 mm, das mittels einer 1/8"-Rohrverschraubung mit einem ca. 100 mm langen Zr-Röhrchen (3,0 mm  $\emptyset$ ) verbunden ist. Dieses Zr-Röhrchen wird direkt an das Zry-Hüllrohr angeschweißt. Die verhältnismäßig lange Meßleitung ist notwendig, da die bisher vorhandenen Druckmeßdosen nur für eine maximale Betriebstemperatur von 120°C ausgelegt sind.

Die Durchführung der Experimente erfolgt ebenfalls in einem Rohrofen, wobei sich die Versuchsproben in einem Quarzrohr unter gereinigtem Helium (> 99,999%ig) befinden. Zunächst wurde bei Raumtemperatur ein bestimmter Ar-Innendruck vorgegeben, dann wurde der aufgeheizte Rohrofen über die im Quarzrohr liegende Rohrprobe geschoben. Es wurde sowohl der Innendruck als auch

die Temperatur des Hüllrohres kontinuierlich gemessen. Die Temperaturmessung erfolgte mit einem CrNi-Mantelthermoelement, das mittels einer Ir-Folie auf das Zry-Rohr angeschweißt wurde (Punktschweißung). In Abb.4235-41 ist der zeitliche Temperatur-Druck-Verlauf einer Leerprobe mit einem Anfangsdruck von 5 bar bei 20°C wiedergegeben. Diese Probe wurde mit einer mittleren linearisierten Aufheizgeschwindigkeit von ca. 3,2°C/s bis zur Bersttemperatur von 982°C unter Helium aufgeheizt. Die stationäre Ofentemperatur betrug 1100°C. Der maximal erreichte Druck betrug bei diesem Experiment 10,1 bar, der Berstdruck 6,6 bar. In Abb.4235-42 ist diese Zry-Kapsel nach dem Bersten zu sehen. Bei Testversuchen zur Erprobung des Meßsystems wurde auch das Verformungs- und Berstverhalten einiger  $UO_{2+x}$ -gefüllter Zry-Hüllrohre untersucht.

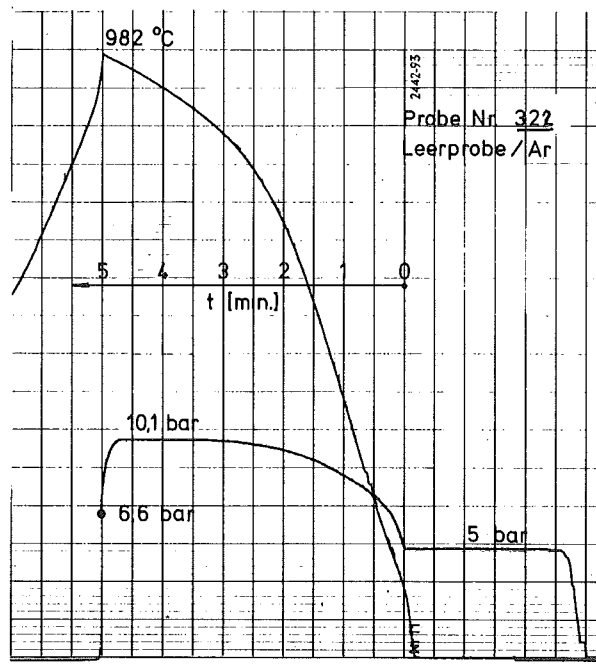


Abb.4235-41: Zeitlicher Verlauf von Hüllrohr-Temperatur und Innendruck einer Ar-gefüllten Zry-4-Rohrprobe. Innendruck bei Raumtemperatur: 5 bar; stationäre Ofentemperatur: 1100°C; Versuchsatmosphäre: Helium.

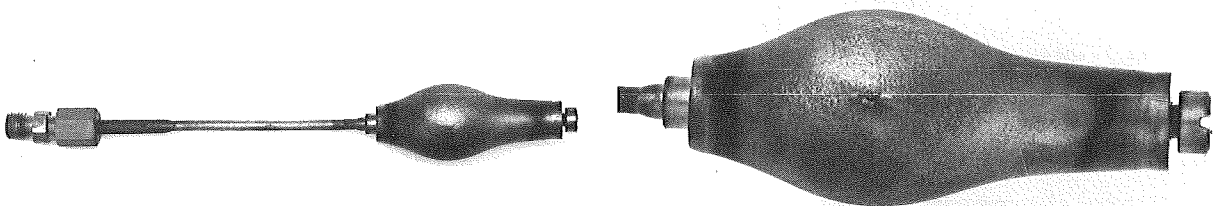


Abb.4235-42: Zry-4-Rohrprobe mit Zr-Kapillar-Zuleitungsrohr nach dem Bersten bei 982°C unter Schutzgas; Berstdruck 6,6 bar. Maximale Umfangsdehnung 121%.



Die Messung des Innendruckes von Brennstabsimulatoren, die mit flüchtigen Spaltprodukten wie Jod, Cäsium oder Tellur gefüllt sind, bereitet erhebliche Schwierigkeiten. Die Spaltprodukte tragen im dampfförmigen Zustand, d.h. bei höheren Temperaturen, erheblich zum Druckaufbau in den Rohrproben bei. Bei einer exakten Druckmessung muß jedoch verhindert werden, daß die Spaltprodukte an kühleren Stellen des Systems kondensieren. Das bedeutet jedoch, daß die Druckmeßmembranen Temperaturen zwischen ca.  $200^{\circ}\text{C}$  (Jod) und etwa  $1000^{\circ}\text{C}$  (Tellur) aushalten müssen. Da es keine ungekühlten Druckmeßdosen gibt, die bei den hohen Temperaturen einsatzfähig wären, wurde eine Druckkammer entwickelt, die es gestattet, die Brennstabsimulatoren mit beliebigen Vorinnendrüken bis ca. 50 bar bei Raumtemperatur zu beaufschlagen und gasdicht zu verschließen (Abb.4235-43).

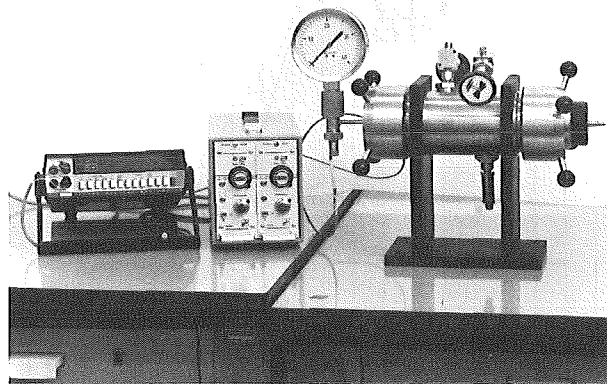


Abb.4235-43: Druckapparatur mit Manometer und elektronischer Druckmeßeinheit zum Beaufschlagen von brennstoff- und/oder spaltprodukt-haltiger Zry-Hüllrohrproben mit einem Vorinnendruck bis zu 50 bar. Die Rohrproben können anschließend von außen mittels einer Drehdurchführung gasdicht verschraubt werden.

Die Abdichtung der in der Druckkammer befindlichen Zry-Rohrproben erfolgt durch eine im angeschweißten Hüllrohrstöpsel angebrachte Zry-Schraube über eine Konusdichtung. Dazu wird von außen die Abdichtschraube mit Hilfe einer Drehvorrichtung und eines Drehmomentenschlüssels festgedreht (Abb.4235-44). Die Leckrate der Rohrproben mit Konusabdichtung beträgt bei einem Innendruck von 40 bar etwa  $1 \cdot 10^{-10}$  Torr·l/s. Zur Sicherheit kann die Abdichtsschraube trotzdem noch mit dem Stöpsel der Rohrprobe gasdicht verschweißt werden.

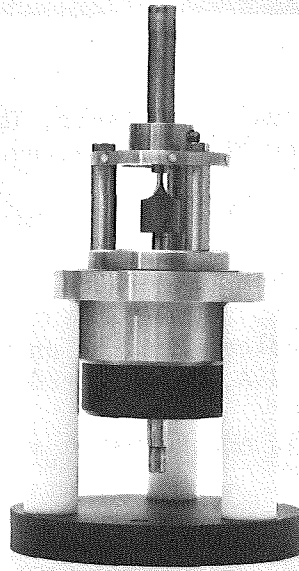


Abb.4235-44: Drehdurchführung der Druckapparatur mit Haltevorrichtung für die Brennstabsimulatoren auf Montage-Gestell. Die Verschlussschraube (Konusdichtung) wird von außen mit einem Drehmoment-schlüssel angezogen.

Man ist zwar bei diesen Brennstabsimulatoren nicht in der Lage den Innendruck während des Versuchs zu messen, es besteht aber so trotzdem die Möglichkeit, den Einfluß der Spaltprodukte bei hohen Differenzdrücken zu untersuchen.

#### Experimente zur Bestimmung der Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$

Erste vergleichende Untersuchungen zur Bestimmung der Verformungsgeschwindigkeit der Zry-Hüllrohre mit Hilfe lichtoptischer Verfahren wurden durchgeführt. Die radiale Aufweitung der Hüllrohre wird mit einer Filmkamera während des Glühversuchs photographisch festgehalten. Die zeitliche Änderung der Querschnittfläche der Hüllrohre an der Stelle maximaler Ausbeulung soll danach mittels eines Flächenanalysators automatisch ausgewertet werden, um so Aussagen über die Verformungsgeschwindigkeit machen zu können.

Literatur

- /1/ H.M.Chung, A.M.Garde, u. T.F.Kassner, The Journal EPRI/NRC Zicaloy Projects Review Meeting, September 10-11, 1975
- /2/ Weidinger, KWU-Erlangen, Persönliche Mitteilung
- /3/ P.L.Rittenhouse u.D.O.Hobson, ORNL-4727/1971
- /4/ D.G.Hardy, National Topical Meeting on Water Reactor Safety, Salt Lake City, Utah, USA, March 26-28, 1973
- /5/ C.C.Busby u. K.B.Marsh, AEC Research and Development Report WAPD-TM-1043, Oct.1974
- /6/ B.D.Clay u. G.B.Redding, Research Department, Berkeley Nuclear Laboratories RDBIN 3129, SGHW/FEWG (74) 42 Nov.1974
- /7/ KFK 2050, PNS 1.Halbjahresbericht 1974
- /8/ KFK 2195, PNS 1.Halbjahresbericht 1975
- /9/ J.Bénard, "L'Oxydation des Métaux" Tome II Gauthier-Villars, Paris 1964, S.313-340
- /10/ E.B.Evans, N.Tsangarakis, H.B.Probst u.N.J.Garibotti "Critical Role of Nitrogen during High Temperature Scaling of Zirconium"; Conf. on "High-Temperature Gas-Metal Reactions in Mixed Environments"; Met. Soc. AIME, Boston/Ms., 1972

4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles.

Out-of-pile Versuche mit elektrisch beheizten Einzelstäben

(G.Class, M.Cramer, D.Fömpe, IRE; K.Hain, F.Brüderle, H.Naschwitz, N.Paroth, G.Müller, T.Vollmer, K.Wagner, RBT)

### 1. Brennstabsimulator

Aufgrund der schon im 1. Halbjahresbericht erwähnten nicht gewährleisteten Durchschlagsfestigkeit der nach dem Plasmaspritzverfahren auf den  $\text{UO}_2$ -Pellets aufgebrachten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Sperrschicht, waren weitere Untersuchungen hinsichtlich der Verwendbarkeit anderer Materialien erforderlich. Es zeigte sich, daß neben Ringpellets aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bevorzugt solche aus  $\text{ThO}_2$  für diese Versuche geeignet sind. Von der letztgenannten Stabvariante wird dabei gegenüber dem bisherigen Stabkonzept ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  beschichteten  $\text{UO}_2$ -Pellets) eine weitere Steigerung der Simulationsqualität erwartet (s. Abb. 4236.1 und 4236.2). Ebenso ist der mit  $\text{ThO}_2$ -Pellets ausgerüstete Simulationsbrennstab (SIM), wie aus Diagramm 4236.3 hervorgeht, unempfindlich gegen Abweichungen zwischen dem für die Ermittlung der elektrischen Heizkurve vorausgesetzten und dem tatsächlichen DNB-Zeitpunkt. Die zudem inzwischen eingetretene Verschiebung im Kostenverhältnis  $\text{UO}_2/\text{ThO}_2$ -Pellets zugunsten des  $\text{ThO}_2$  läßt die Modifizierung hinsichtlich der zum Einsatz vorgesehenen Ringpellets sinnvoll erscheinen. Erste Vorversuche zur Verwendbarkeit der  $\text{ThO}_2$ -Pellets wurden vorbereitet und sollen im Frühjahr 1976 bei RBT erfolgen. Die Erprobung eines mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Ringpellets ausgerüsteten, eine ausreichende Simulationsfähigkeit aufweisenden Teststabes konnte abgeschlossen und somit die Prototypfertigung des SIM aufgenommen werden. Gegen Ende des Berichtszeitraumes waren zwei dieser Stäbe, für deren Einzelteil-Montage und Hüllrohrschweißung mehrere Hilfseinrichtungen konstruiert und angefertigt werden mußten, bereits einbaufähig. Ebenfalls in der Fertigung befinden sich auch die beiden verschiedenen (mit und ohne Cosinus-Leistungsprofil) Prototypen der elektrisch direkt beheizten Rohrstäbe für Wärmeübergangsmessungen (WUS).

### 2. Versuchsanlage

Nachdem sich bei der Auslieferung einiger Hauptkomponenten Lieferzeitüberschreitungen von mehreren Monaten abzeichneten, mußte die Rohrleitungsmontage entgegen der Planung mit eigenem Werkstattpersonal durchgeführt werden,

um sich dem durch die Lieferschwierigkeiten diktierten, veränderten Montageplan anpassen zu können. Infolgedessen war es erforderlich, die durch die Temperaturänderungen im Rohrleitungsnetz hervorgerufene Materialbeanspruchung selbst rechnerisch zu erfassen und die Rohrleitungsführung entsprechend auszuführen. Mit einer ersten erfolgreich verlaufenen Wasserdruckprobe konnte die Montage des Hochdruckanlageanteils abgeschlossen und somit das für das Jahresende gesetzte Zwischenziel erreicht werden.

Als Beispiel für eine Komponentenausführung sei kurz auf die in der Abb. 4236-4 dargestellte Ausblaseventilkombination der Plena hingewiesen. Einem Schnellöffnungsventil NW 15 mit einer Öffnungszeit  $< 60$  msek ist ein Regelventil mit hydraulischem Antrieb nachgeschaltet, mit dem die gewünschte Anfangsbruchgröße voreingestellt und der Bruchquerschnitt während des Blowdown-Vorgangs so eingestellt werden kann, daß DWR-kerntypische Massendurchsatzverläufe am Simulationsstab realisiert werden können. Erste Ergebnisse der theoretischen Arbeiten für die Steuerprogramme dieser Ventilkombination sind als Diagramm in der Abb. 4236-4 dargestellt und unterstreichen die Durchführbarkeit dieser Simulation des Primärkreiseinflusses, wobei durch eine verfeinerte Programmsteuerung des Regelventils noch weitere Anpassungsverbesserungen möglich sind. Durch das getrennt steuerbare Ausblasen aus Ober- und Unterplenum kann somit das ganze Feld interessierender Kerndurchsatz- und Druckverläufe abgedeckt werden.

Die elektrischen Komponenten für die Heizstromversorgung der Versuchsstäbe SIM und WUS (560-1800 A; 23-115 V; entsprechend einer maximalen Stabileistung von 750 W/cm), der Kesselheizkreise und der 8 den Versuchsstab umgebenden Teststreckenheizstäbe wurden vor Ort montiert und mit der elektrischen Installation begonnen. Im gleichen Aufbaustadium befindet sich die Warte zur Steuerung und Überwachung der Gesamtanlage mit Blindschaltbild, Regler und Grenzwerteinheiten sowie Störungssignalisierung, den Registriereinrichtungen für die Betriebsmeßwerte bis zum Blowdown-Beginn, den automatisch ablaufenden Folgeschaltungen bei Grenzwertüberschreitung u.a. Die Peltier-Nullpunkt-Thermostate als Vergleichsmeßstelle für die Thermoelemente der Teststreckeninstrumentierung und der elektronische Meßeinschub der Dichtemeßeinrichtungen wurden in einem Meßschrank zusammengefaßt und anschlussfertig verdrahtet.

### 3. Sonderinstrumentierung

Nach Abschluß der "kalten" Luft-Wassergemisch-Versuchsserie für die Entwicklung des True-Mass-Flow-Meters (TMFM) und Erstellung der Spezifikation für die "heiße" Ausführung (300 °C, 160 bar) konnte nach mehreren Entwurfschritten deren Konstruktion festgelegt und mit den Detailzeichnungen begonnen werden. Terminbestimmende Teile, wie z.B. die Gleitringdichtungen, wurden in Auftrag gegeben und Materialbeschaffungsrecherchen für die Laufrad- und Statorbeschaukelung durchgeführt.

Für die Oberflächentemperaturmessung am Hüllrohr, für die, wie schon berichtet, eine pyrometrische Meßeinrichtung entwickelt wurde, konnten die 8 Meßeinsätze fertiggestellt und dem Pyrometerhersteller zur Eichung übergeben werden. Die Auslieferung der kompletten meßbereiten Einsätze steht unmittelbar bevor. Das Gammastrahl-Absorptionsmeßsystem zur Ermittlung der integralen Kühlmitteldichte in den Plena wurde ausgeliefert und wird Anfang 1976 eingebaut.

### 4. Weitere Arbeiten

Für die zur Erstellung der Ventilsteuerprogramme notwendigen Vorausberechnungen der Versuche wurde für das Vorhaben PNS 4236 eine spezielle Variante des Codes RELAP3 programmiert, die eine getrennte Behandlung der Versuchsstäbe und der Teststreckenheizung gestattet. Die mit diesem Programm bisher durchgeführten Rechnungen bestätigen durch Vergleich mit DWR-Blowdown-Rechnungen das gute thermohydraulische Verhalten der Versuchseinrichtung.

Eine zweite RELAP3-Version, die die Möglichkeit bietet, aufbereitete Versuchsmeßwerte in die Auswertungsrechnungen einfließen zu lassen, wurde fertiggestellt. Somit können nach Abschluß weiterer Programmierarbeiten zum Auswerteprogramm voraussichtlich Ende März 1976 sowohl die ersten Vorversuche als auch deren Auswertung erfolgen.

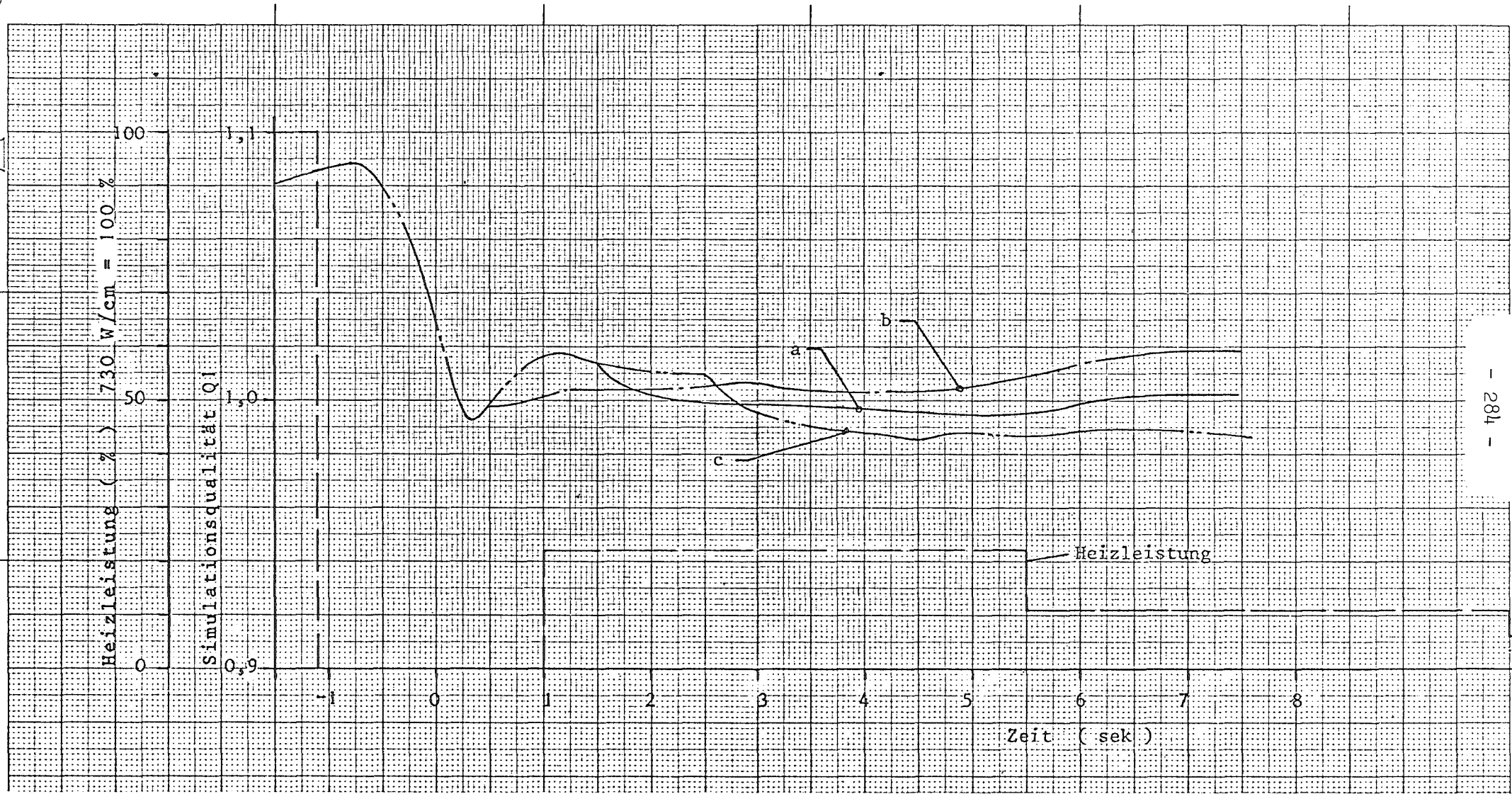


Abb. 4236-1

Verlauf der Simulationsqualität Q1 bei verschiedenen DNB-Zeitpunkten und konstanter Heizleistungsfunktion.  
 Simulationsstab mit ThO<sub>2</sub>-Pellets.

Q1 = Simulationsstabelleistung/Referenzstabelleistung

a = DNB bei 1,5 sek (Auslegungszeitpunkt)

b = DNB bei 0,5 sek

c = DNB bei 2,5 sek

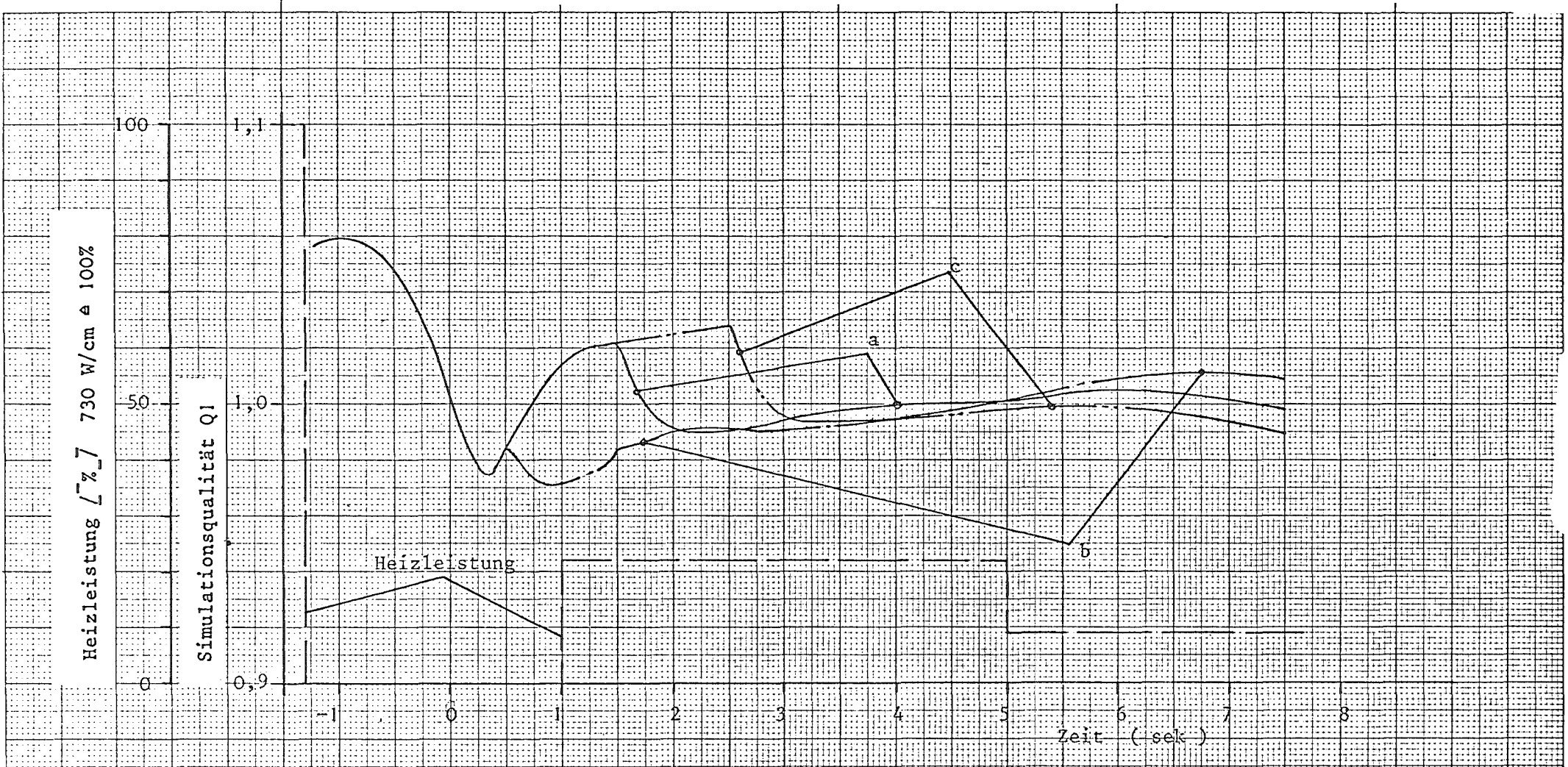


Abb. 4236-2

Verlauf der Simulationsqualität  $Q_1$  bei verschiedenen DNB- Zeitpunkten und konstanter Heizleistungsfunktion.

Simulationsstab mit  $UO_2$ - Pellets

$Q_1 = \text{Sim- Stableistung} / \text{Referenzstableistung}$

a = DNB bei 1,5sek (Auslegungszeitpunkt für Heizleistungsfunktion)

b = DNB bei 0,5sek

c = DNB bei 2,5sek



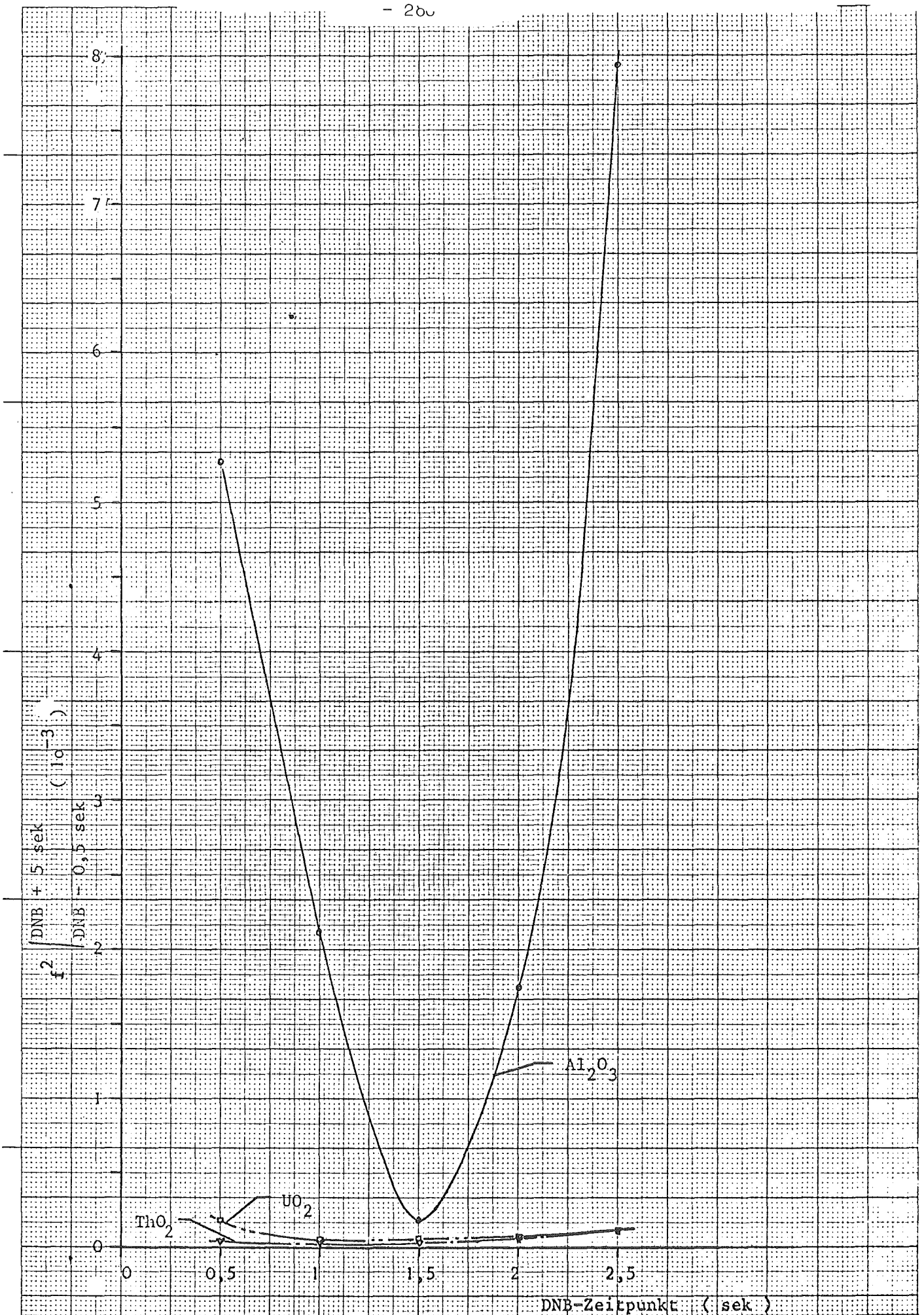
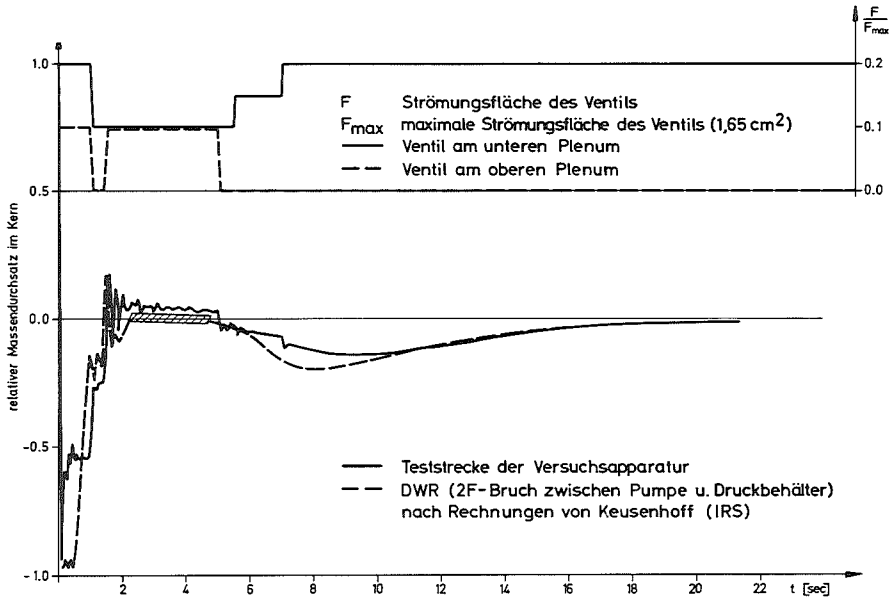
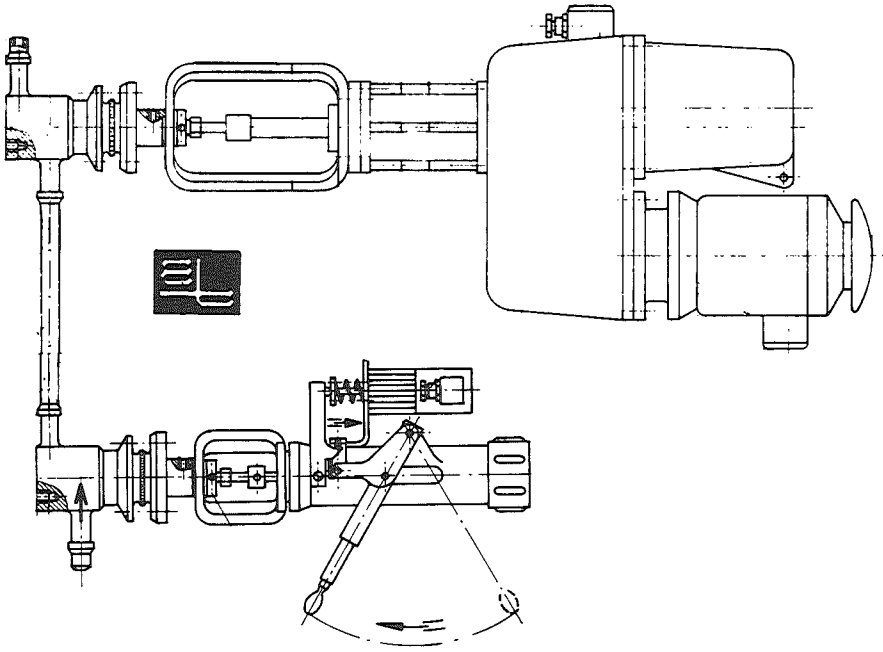


Abb. 4236-3

Mittleres Fehlerquadrat der Simulationsqualität  $Q_1$  bei Abweichung des DNB-Zeitpunktes vom Auslegungszeitpunkt 1,5 sek.

$Q_1$  = Simulationsstabelleistung/Referenzstabelleistung

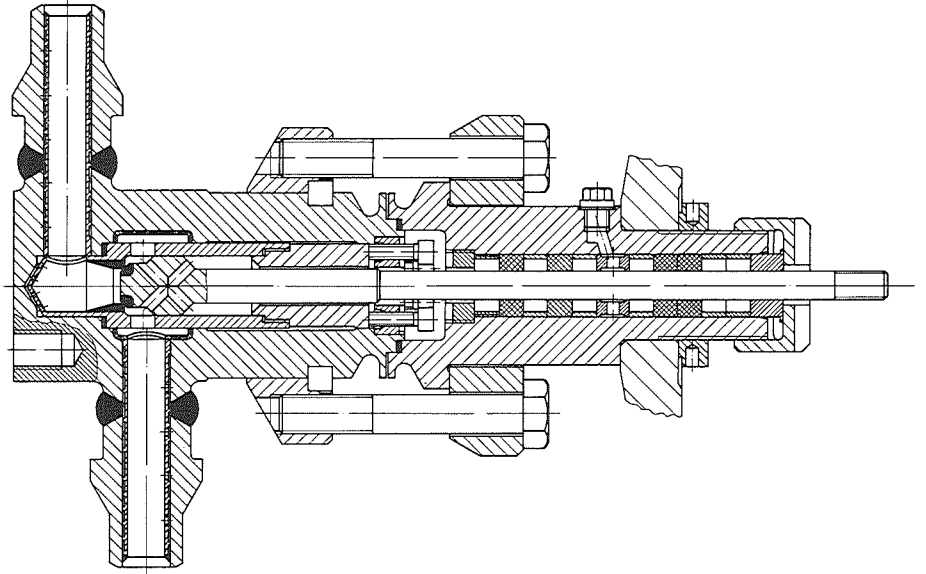
Blow-down-Ventilkombination



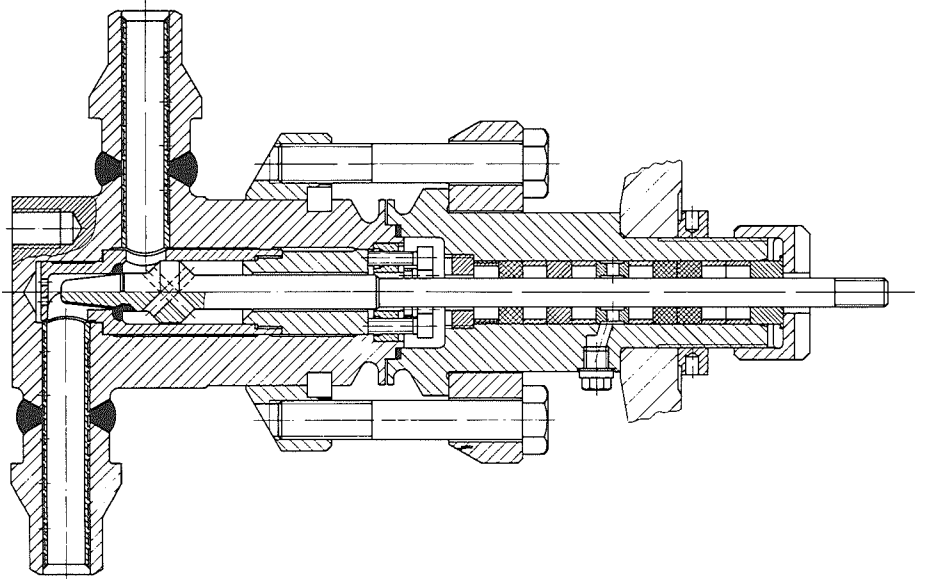
Relativer Massendurchsatz und Stellprogramm der Abblaseventile PNS 4236

Abb. PNS 4236-4

Schnellöffnungsventil



Ausström-Regelventil



4237.1 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalls. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampfkontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2.

(E.Karb, L.Sepold, K.Baumgärtner, G.Harbauer, W.Leiling, H.Lukitsch, K.Wagner, RBT)

### 1. Beginn der In-pile-Hauptversuche

Wie im letzten Halbjahresbericht angekündigt, konnten die Versuche mit Nuklearstäben im 2. Halbjahr 1975 beginnen. Zwei Versuche mit unterschiedlichen Stabinnendrücker wurden durchgeführt.

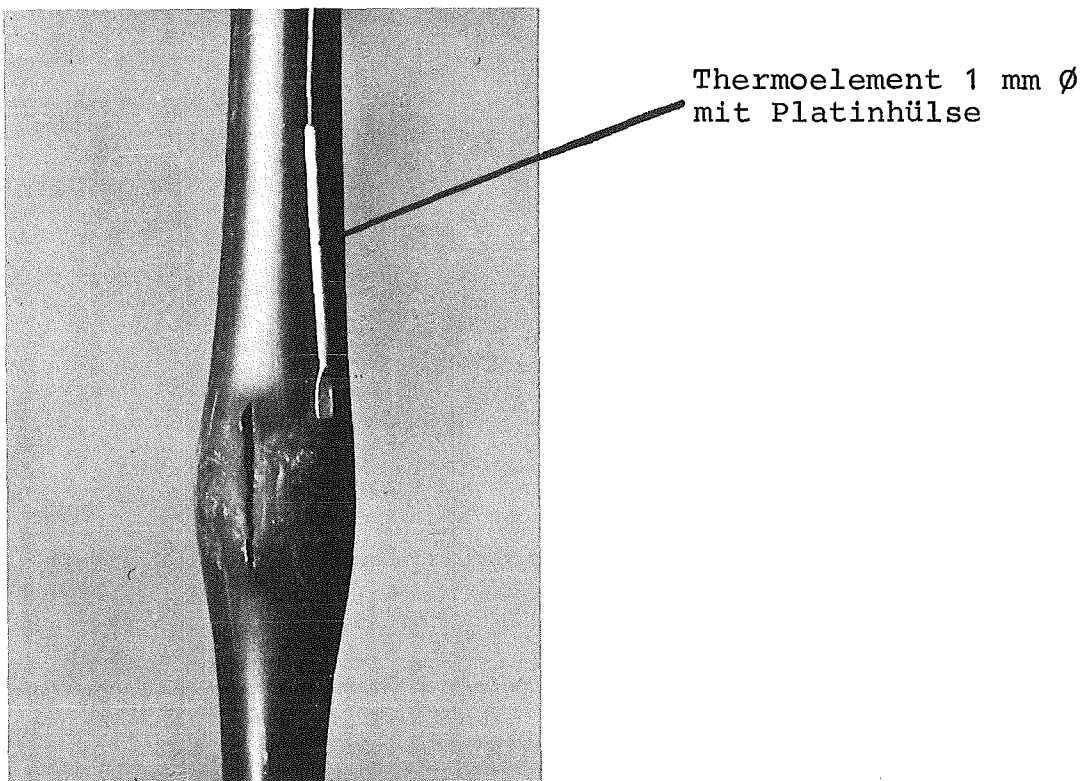


Abb. 4237.1 - 1 In-pile erzeugte Beule

Abb. 4237.1 - 1 zeigt den Ausschnitt des gebeulerten Stabes nach dem ersten In-pile-Versuch vom 8. Oktober 1975. Der Innendruck (warm) betrug 50 atü. Bei ca. 800 °C Hülltemperatur ist der Stab geplatzt. Dies ist aus Abb. 4237.1 - 2

Erster In-Pile-Hauptversuch (A1.1) vom 8.10.75

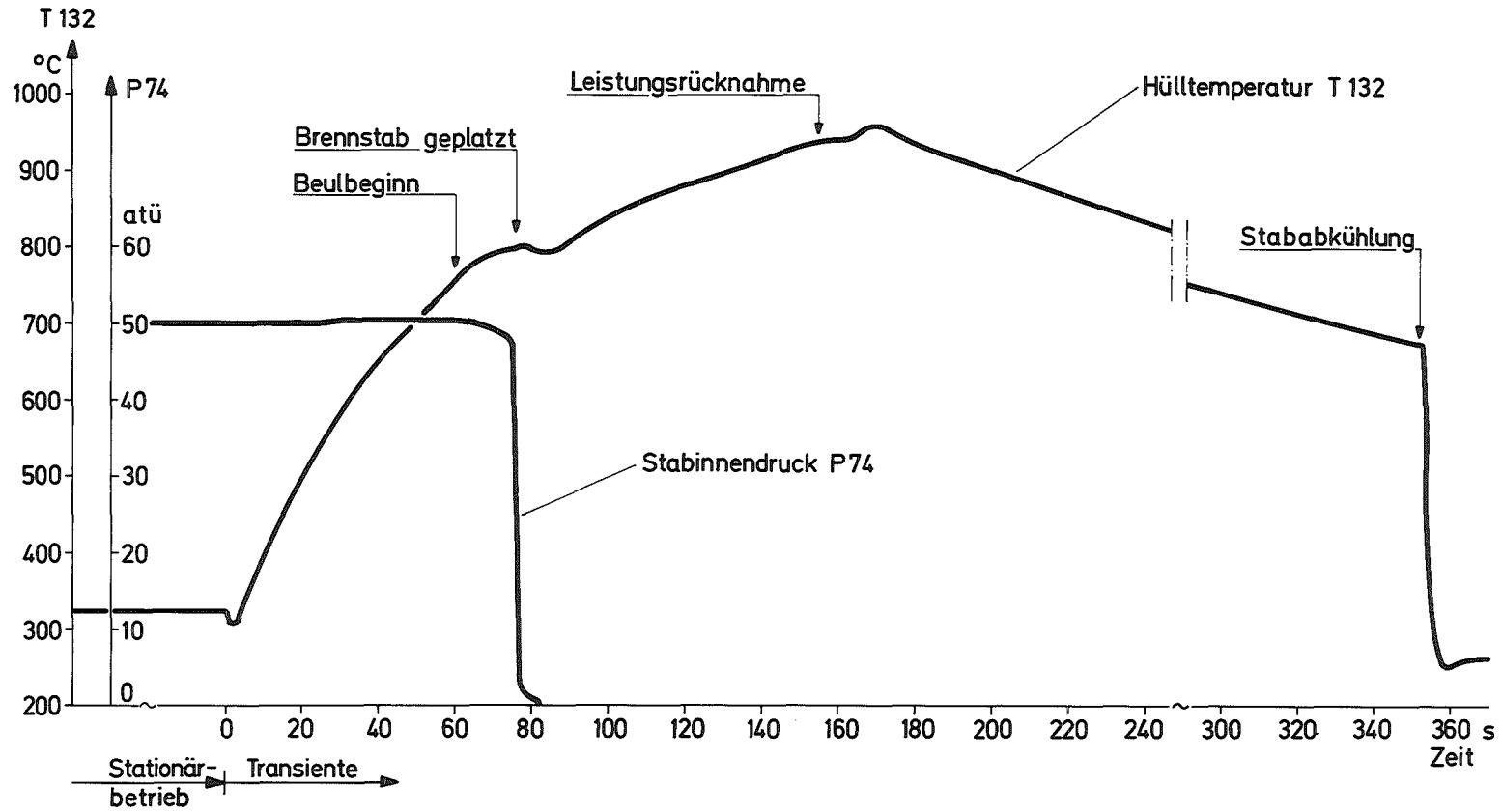


Abb. 4237.1-2

PNS

RBT

ersichtlich. Hier ist der Innendruck (P 74) und die Temperaturmeßstelle T 132 über der Zeit aufgetragen. Deutlich ist der Beulvorgang (ballooning) und das Platzen der Zirkaloy-Hülle anhand des Innendruckverlaufs zu erkennen. Auch die Auswirkung des Platzvorganges auf die Temperaturmeßstelle ist deutlich zu sehen.

Die größte Umfangsdehnung der Beule dürfte bei ca. 60 % liegen. Die Vermessung sowie die übrige Nachuntersuchung der Stäbe kann jedoch erst 1976 in den Heißen Zellen durchgeführt werden. Erst dann können genaue Angaben gemacht werden.

Ein erster Vergleich mit den (vorwiegend in den USA durchgeführten) Out-of-pile-Versuchen zeigt, daß die hier in-pile gemessenen Bersttemperatur- und -druckwerte im Streuband der Out-of-pile-Ergebnisse liegen.

## 2. Temperaturmessung der Stabhülle

Das im letzten Halbjahresbericht beschriebene Konzept zur Temperaturmessung der Zirkaloy-Hülle hat sich bewährt. Aus über 500 Schweißversuchen wurde das optimale Material (edelstahlgemantelte NiCr/Ni-Thermoelemente, MgO-isoliert, mit einer Platinhülle an der Meßstelle) sowie die optimalen Schweißparameter (Anpreßdruck, Stromstärke, Energie) ermittelt.

Dabei wurden die optimalen Schweißparameter durch die geringste Beeinflussung des Hüllmaterials, wie Wärmeeindringzone an der Schweißstelle und Durchhang der Brennstabhülle, herausgefunden.

Eine für gut befundene TE-Aufschweißung ist im letzten Halbjahresbericht (1. Halbjahresbericht 1975, KFK 2195) in Abb. 4235 - 8b zu sehen. Die Beurteilung wurde zusammen mit dem IMF, das auch die Schlitze durchführte, getroffen. Der am besten geeignete Werkstoff wurde zum einen metallographisch

(Eutektikumbildung, Dampfverträglichkeit), zum anderen visuell (Haftung) bzw. durch Messung der Abreißkräfte ermittelt.

Dabei wurden die Abreißkräfte im wesentlichen durch das TE-Hülsenmaterial bestimmt: die TE-Hülse riß neben der Schweißstelle. Die Abreißkräfte lagen in der Größenordnung um 10 kp. Nach durchlaufenem Versuch mit Stationärbetrieb und anschließender Transiente (kurzzeitige Aufheizung und Abkühlung der Elemente) hatten sich bei den ersten Versuchen keine wesentlich schlechteren Werte ergeben. Selbst für das TE, das in Abb. 4237.1 - 1 an der Beulstelle liegt, wurden 7,4 kp zum Abreißen benötigt.

Eine solche Abreißstelle des TE am bestrahlten Stab zeigt Abb. 4237.1 - 3.

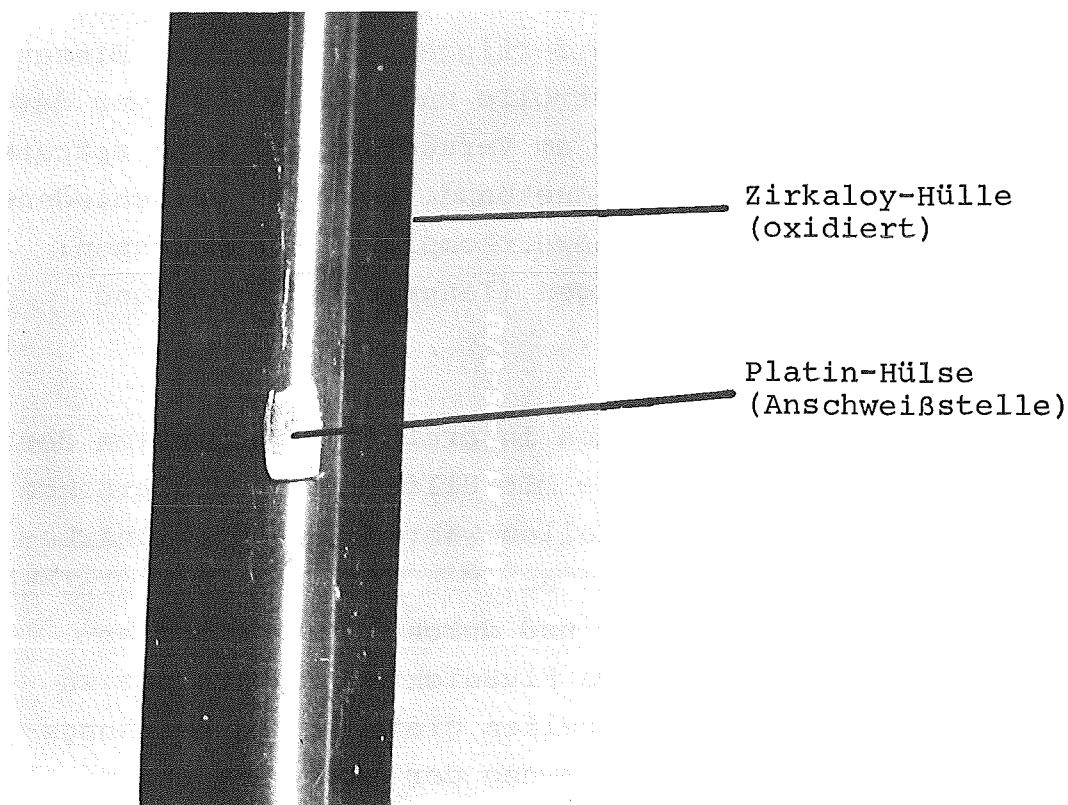


Abb. 4237.1 - 3

TE-Anschweißstelle nach gezieltem Abreißversuch

Während der beiden Versuche ist kein Thermoelement ausgefallen. Wesentlich zu dieser guten Bilanz haben die Prüfbedingungen sowie die erfolgreiche Hülsenbefestigung der Herstellerfirma beigetragen. Beides war Bestandteil der TE-Spezifikation.

Im kommenden Jahr soll das Problem der Anbringung dieser 1 mm-TE an bestrahlte Stäbe unter Heißen-Zellen-Bedingungen gelöst werden.

### 3. Datenerfassung

Rechtzeitig zum Versuchsbeginn konnte der Anschluß an die CALAS-Datenverarbeitungsanlage fertiggestellt werden. Dieses System erlaubt neben einer Kontrolle und Protokollierung der Meßwerte (während der Versuche am Versuchsstand) eine spätere Auswertung der Versuche vom Magnetband. Bei zwei verschiedenen Abfragefrequenzen sind drei Meßwertkomplexe aufzuzeichnen: Stationärbetrieb, Sondermessungen (langsame Abfrage) und Transiente (schnelle Abfrage).

Bei den "Sondermessungen" werden in drei Isotopenkanälen des FR2 axiale Neutronenflußprofile mit Hilfe einer Cobalt-Sonde aufgenommen. Diese Wertpaare fallen während des Stationärbetriebes zeitlich hintereinander an. Nun gilt es, die gleichen Axialwerte einander zuzuordnen und durch Addition und anschließende Integration mehrere Flußdichte-Verhältnisse zu berechnen. Diese Verhältnisse stellen gleichzeitig Leistungsverhältnisse dar, die zur Bestimmung der maximalen und mittleren Prüflingsleistung benötigt werden. Die auch Softwareseitig komplizierte Verarbeitung dieser Sondermessungen bereitet zur Zeit noch Schwierigkeiten, während die Komplexe "Stationärbetrieb" und "Transiente" funktionieren. Hierbei

müssen allerdings noch Meßwertschwankungen durch die Störeinflüsse anderer Geräte im Reaktorgebäude beseitigt werden. Es wird davon ausgegangen, daß das Anfang 1976 erfolgen kann.

#### 4. Vorbestrahlung der Brennstäbe im FR2

Wie vorgesehen, konnte die Vorbestrahlung der Brennstabprüflinge mit der Reaktorbetriebsphase E/75 im August beginnen. Nach vorheriger Prüfung im BE-Prüfstand des FR2, sowie Ausrüstung mit Temperatur-, Durchfluß- und Neutronenflußdichtemessern (Vanadium-Detektoren), konnte der erste Vorbestrahlungseinsatz mit 6 Brennstäben bestückt werden. Das war ca. eine Woche nach Anlieferung der Brennstäbe. Die Bestrahlung ging ohne Zwischenfälle vor sich, so daß dieser erste Vorbestrahlungseinsatz, dessen Zielabbrand  $35000 \text{ MWd/t}_u$  beträgt, zum Jahresende über  $5000 \text{ MWd/t}_u$  Abbrand erreicht hat. Der zweite Einsatz, der denselben Zielabbrand hat, wurde im Dezember in den FR2 eingebracht.

Die Abbrandbestimmung beruht im wesentlichen auf der Leistungsbestimmung des Einsatzes. Diese Methode ist zur Festlegung des Ausbautermines hinreichend genau. Zur genauen Abbrandbestimmung wird nach erhaltener Vorbestrahlung einer der sechs Stäbe zur radiochemischen Analyse benutzt.

Zur Thermodynamik des Brennstabes während der Vorbestrahlung stellte uns die KWU Erlangen entgegenkommenderweise ihr Stabauslegungsprogramm "CARO-C3" zur Verfügung. Damit wurden berechnet:

- Brennstoff- und Hülltemperaturen
- Innendruckaufbau durch Temperatur und Spaltgase
- Spaltbreite und Wärmedurchgangszahl  $\alpha_{\text{Spalt}}$
- radiale Dehnungen von Brennstoff und Hülle

Die Berechnungen wurden für zwei unterschiedliche Einfüllspiele berechnet. Die Rechnungen ergaben zusammen mit den BE-Prüf-



standswerten, daß der Vorbestrahlungseinsatz sicherheitstechnisch wie ein übliches FR2-Brennelement (BE) einzustufen ist.

#### 5. BSS-Versuche

Die Versuche mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (BSS), die in Vorbereitung und Durchführung mit dem Forschungsvorhaben 4237.2 kombiniert sind, werden dort beschrieben (nachfolgender Bericht).

4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten  
PNS 4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstab-  
simulatoren

(B.Räpple, K.Baumgärtner, G.Harbauer, J.Hauschild,  
M.Hespeler, W.Knappschneider, M.Prüßmann)

### 1. Durchgeführte Arbeiten

Die Anfertigung einer 1. Serie von 5 Heizstäben (Aufbaubeschreibung siehe 1. Halbjahresbericht 1975) im IRB wurde abgeschlossen, die Stäbe geprüft und zum Einbau freigegeben.

An den vorhandenen Bauteilen für drei Versuchseinsätze wurden weitere Voruntersuchungen und Prüfungen vorgenommen. Dabei mußten schweiß- und fertigungstechnische Schwierigkeiten überwunden werden, die z.T. durch die beengte Einbaugeometrie und die Kombination verschiedener Werkstoffe hervorgerufen worden waren. Bisher stehen zwei fertig geschweißte Hüllrohre zur Verfügung. Infolgedessen konnten zwei Versuchseinsätze komplett montiert und zu Versuchen bereitgestellt werden.

Für zwei kombinierte Prüflinge (elektrisch und nuklear beheizbar) wurden angereicherte  $UO_2$ -Ringpellets beschafft und abgenommen, die Montage dieser Prüflinge wurde vorbereitet.

Die Untersuchungen zum elektrischen Isolationsverhalten der Ringpellets wurden beendet, ausgewertet und in einem Bericht zusammengefaßt.

Die elektrische Stromversorgung wurde von RBT/E projektiert, - noch ohne Regeleinrichtung - beschafft und installiert. Hierzu mußte ein Gerät entwickelt werden, das aus den Meßwerten von Spannung und Strom auch bei transienten Vorgängen eine zuverlässige Leistungsbestimmung durchführt und den jeweiligen Wert als Datum an CALAS und - bei der endgültigen Anlage - als Vergleichsgröße an den Regler abgibt.

Grundsätzlich wird die für PNS 4237.1 erstellte Meßwertverarbeitungsanlage bei den Referenzversuchen mitgenutzt. Es waren allerdings Erweiterungen für die Bewältigung der anfallenden elektrischen Daten notwendig. Die Kalibrierung und Erprobung der Anlage wurde - z.T. unter echten Betriebsbedingungen - fortgesetzt.

Der erste, mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Ringpellets ausgestattete Prüfling BSS 1 wurde in einem in-pile-Versuchsprogramm ca. 30 stationären und 3 transienten Vorversuchen unterzogen. Variiert wurden dabei die elektrische Leistung von 0 bis 50 W/cm und die Reaktorleistung von 0 bis 30 MW. Die Versuche wurden ohne inneren Überdruck gefahren. Im Versuchsprogramm wurden

- der elektrische Heizstab
- die elektrische Anlage
- die Instrumentierung und Meßwerterfassung

einem ersten gemeinsamen Testprogramm unter echten Betriebsbedingungen unterzogen.

Für den komplizierten geometrischen Aufbau des elektrischen Heizstabes wurde in Zusammenarbeit mit dem IKE ein Netzwerk für das WL-Programm erstellt, die spez.Stoffdaten gesammelt und die Randbedingungen abgeklärt. Ferner wurden die vorrangigen Rechenoperationen sowie die Prioritäten für Arbeiten an den Projekten PNS 4237.1 und 4237.2 festgelegt.

## 2. Erzielte Ergebnisse

Im in-pile-Test hat sich der Heizstab in der vorliegenden Ausführung durchaus bewährt. Gewisse Unzulänglichkeiten im Bereich des Übergangsstückes zum Kaltende und bei der Bemessung der axialen Einteilung, die bei den übrigen vier Stäben gleichermaßen vorhanden sind, schränken die Verwendbarkeit nicht ein.

Die Schweißprobleme an den Verbindungsstellen des Hüllrohres wie auch an anderen Stellen des Prüflings-Kopfes konnten noch nicht endgültig gelöst werden. Für die Verbindung verschiedener Materialien (Cu-Zry-Edelstahl) am Prüflingskopf ergab sich eine - wegen des niedrigen Innendrucks - für die in-pile-Vorversuche befriedigende Lösung durch Einbau einer DILO-Doppelverschraubung.

Die Versuche zum elektrischen Isolationsverhalten der Ringpellets zeitigten ein abschließendes Ergebnis. Danach müssen für die Referenzversuche vorgesehene  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Ringpellets, die aus dem GfK-Vorrat stammen, vor ihrer Verwendung ausgeheizt werden. In einem geringen Luftstrom und bei Temperaturen von  $\geq 250^\circ\text{C}$  wird während einer Ausheizzeit von 2 bis 3 Stunden der - in Mengen von bis zu 0,2 mg pro Pellet - eingelagerte Kohlenstoff unter Bildung von  $\text{CO}_2$  entfernt. Die Pellets erhalten dadurch das für  $\text{Al}_2\text{O}_3$  typische Temperatur-Widerstandsverhalten. Der früher vermutete Einfluß angelagerter metallischer Stoffe auf die Leitfähigkeit der Pellets hat sich nicht bestätigt.  $\text{UO}_2$ -Ringpellets auszuheizen ist nicht notwendig, da die elektrische Isolierfähigkeit des Grundmaterials bei höheren Temperaturen ohnehin unzureichend ist und durch eine  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Zwischenschicht verbessert werden muß.

Der Betrieb der elektrischen Anlage während der in-pile-Tests verlief störungsfrei. Ob die Anlage in allen Belangen einwandfrei gearbeitet hat, wird die Versuchsauswertung ergeben.

Die Meßwertverarbeitung funktionierte noch nicht völlig störungsfrei. Trotzdem sind die Daten bei der Auswertung verwendbar, insbesondere für die Bestimmung der Dampfaufheizspanne, des Dampfdurchsatzes und der elektrischen bzw. thermischen Leistung.

Mit der Betriebssicherheit des Heizstabes und der elektrischen Anlage wurde ein wichtiges Versuchsziel des Versuchsprogrammes erreicht. Der Prüfling hat sich jedoch soweit verkrümmt, daß

er für weitere in-pile-Versuche nicht mehr in Betracht gezogen wird. Außerdem hat sich das Hüllrohr um ca. 7 mm bleibend verlängert. Die Pelletsäule ist, wie sich aus neutronenradiographischen Aufnahmen ergibt, nicht mehr geschlossen.

Neben diversen Störeffekten in der Meßwertverarbeitung traten an einem Teil der Thermoelemente Ausfälle auf, die zur Messung axialer Hüllrohrtemperaturen vorgesehen waren. Die Aussagen über das axiale Temperaturprofil und damit die Schlußfolgerungen hinsichtlich der Stabauslegung werden dadurch erschwert.

Die übrigen Versuchsziele wurden im wesentlichen erreicht:

- die CALAS-Erprobung ergab lediglich zwei geringfügige Fehler
- die Messung instationärer Temperaturen verlief zufriedenstellend
- Methoden zur Bestimmung und zum Vergleich der elektrischen bzw. thermischen Leistung stehen in funktionsfähiger Form im CALAS-Programm zur Verfügung.

Für PNS 4237.2 wurden im IKE bisher noch keine Berechnungen durchgeführt.

### 3. Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Auslegung des Heizstabes und des Versuchseinsatzes wird fortgeführt, insbesondere der Prüflingskopf muß konstruktiv überarbeitet, die Anschlußteile müssen in Versuchen getestet werden. Weitere Versuche zu den Schweißparametern sind erforderlich. Ziel dieser Arbeiten ist die Ausbildung der Prüflingsanschlüsse für druckdichten Betrieb bei erhöhter Temperatur.

Die Ergänzung der elektrischen Stromversorgung auf automatischen Regelbetrieb (Regelgröße : Leistung) wird im 1. Halbjahr 1976 durchgeführt und bei den folgenden in-pile-Versuchen mitgeprüft.

Im Januar 1976 ist ein umfangreiches in-pile-Testprogramm für die gesamte elektrische und meßtechnische Anlage eingeplant, das mit dem elektrisch beheizten Prüfling BSS 3 und bei laufendem Reaktor absolviert wird. Im Verlauf dieser Versuche sollen noch vorhandene Störungen - auch fremder Herkunft - ermittelt und beseitigt werden.

BSS 3 soll nach dem meßtechnischen Testprogramm einer ähnlichen in-pile-Versuchsreihe wie BSS 1 unterzogen werden mit dem Ziel einer Verbesserung der thermischen und der  $\gamma$ -Leistungsbestimmung wie der verbesserten Messung von axialen Hüllrohr-Temperaturprofilen. Danach sollen Versuche mit zwei elektrisch und nuklear beheizbaren Prüflingen folgen, die bei unterschiedlicher Neutronenabschirmung entlang des Prüflings (BSS 2 ohne, BSS 4 mit "nuklearen Graukeilen") und damit mit unterschiedlichen nuklearen Leistungsprofilen durchgeführt werden. Sie sollen einer höheren Genauigkeit der nuklearen Leistungsbestimmung (PNS 4237.1) dienen und Aufschluß vermitteln über die Notwendigkeit steilerer n-Flußgradienten im Stabbereich. Voraussetzung für die genannten in-pile-Vorversuche ist der Einbau einer neuen geeichten Meßblende in den Dampfkreislauf, der für den Jahresanfang in Aussicht steht.

WL-Berechnungen der radialen Temperaturfelder unter verschiedenen Randbedingungen (transient; adiabate Aufheizung bzw. konstante Randtemperatur) und der Einflüsse axialer Randzonen sollen durchgeführt werden, Vergleiche des zeitlichen Temperaturanstiegs zwischen  $Al_2O_3$ - bzw.  $UO_2$ -Ringpellet-Anordnungen und  $UO_2$ -Vollpellet-Stäben sollen angestellt werden.

PNS 4238 Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung

(K. Wiehr, S. Barth, F. Erbacher, W. Hame, U. Harten, W. Just, A. Megerle, St. Müller, H.J. Neitzel, M. Reimann, P. Schäffner, He. Schmidt, IRB)

Zielsetzung des Vorhabens ist die Erarbeitung experimenteller Informationen über den Aufblähvorgang von Zircaloyhüllen während der Niederdruckphase eines Kühlmittelverluststörfalles zur Erstellung, Überprüfung und Weiterentwicklung von Rechenprogrammansätzen zum Brennstabverhalten des Codesystems SSYST.

#### 1. Brennstabsimulatoren

Die Ersatzlieferung der Firma Union Carbide Corporation für das im Oktober 1974 reklamierte Bornitrid (Firmenbezeichnung: HCJ 48) traf im Juli 1975 ein. Geliefert wurde ein in seiner Reinheit und Rieselfähigkeit ausgezeichnetes Bornitrid, welches nach einem neuen Verfahren hergestellt wird (neue Firmenbezeichnung TS 945). Die Verarbeitung dieses neuen Bornitrids ergab jedoch eine geringere Rütteldichte im Ringspalt zwischen Heizleiter und Heizstabhülle und führte demzufolge zu einer geringeren Verlängerung des Heizstabes beim Hämmern auf den geforderten Heizstabdurchmesser von 6 mm.

Um wieder auf das Sollmaß von 3,90 m beheizter Länge zu kommen, mußten neue Versuche zur Ermittlung der Verlängerungsfaktoren und zur Festlegung des Einbaudurchmessers des Heizleiters durchgeführt werden.

Die Entwicklungsarbeiten wurden abgeschlossen und die Fertigung aufgenommen. 30 Heizstäbe wurden bereits gefertigt und 18 Stück davon bisher elektrisch auf Durchschläge geprüft. Die Prüfung erfolgt mit Wechselstrom mit 80 A über eine Zeitdauer von mindestens einer halben Stunde, wobei die Stäbe mit vollentsalztem Wasser gekühlt werden. Die Prüfung der weiteren Stäbe ist vorbereitet. Alle bisher geprüften Stäbe wurden als gut und einsetzsfähig befunden.

Darüber hinaus wurde die Funktionsfähigkeit an drei Heizstäben nachgewiesen, indem die Stäbe in schwach strömendem Helium durch plötzliches Zuschalten der vollen Auslegungsleistung von 30 KW aufgeheizt wurden. Mit Erreichen einer Heizstabhüllentemperatur von knapp  $1000^{\circ}\text{C}$ , wurde die Leistung weggeschaltet. Dieser Vorgang wurde mehrmals wiederholt, was die Stäbe ohne Schaden überstanden.

Der erste komplette Prototyp-Brennstabsimulator voller Länge mit oberem und unterem Plenum mit Gasanschlußspezialsteckverbindung, Sprengschweißverbinder zwischen Zr.-4 und Inconel 600, und Dehnungsausgleichssystem wurde fertiggestellt und auf Funktionstüchtigkeit überprüft.

In Abb. 1 sind alle wesentlichen Auslegungskriterien und Auslegungsmerkmale des Brennstabsimulators zusammengestellt, Abb. 2 zeigt dessen schematischen Aufbau sowie die axiale Leistungsverteilung.

Neben der berührungslosen Temperaturmessung der Zirkaloyhülle an der Stelle der größten Hüllrohrverformung werden an 2 weiteren axialen Positionen Temperaturen mit Mantelthermoelementen gemessen. Um Eutektikumbildung an der Anschweißstelle zwischen Zr-4-Hülle und Thermoelement bei Erwärmungen bis zu  $1000^{\circ}\text{C}$  zu vermeiden, wird als Verbindungsmaterial eine auf einem  $0,5\text{ mm } \emptyset$  Mantelthermoelement aufgewalzte Platinhülle verwendet.

Für die Einzelstabversuche mit Fluten besitzen die Brennstabsimulatoren um den Zentralstab herum Inconel-Hüllen. Die Hüllen werden mit auf dem Umfang um  $90^{\circ}$  bzw. um  $180^{\circ}$  versetzten Nuten versehen, in die Inconel-gemantelte Thermoelemente eingelegt und verlötet werden.

Um das bisher angewendete teure Verfahren des Nutenfräsens durch das billigere Nutenhobeln zu ersetzen, wurden Vorversuche durchgeführt. Die bisherigen Ergebnisse lassen den Schluß zu, daß dieses Verfahren anwendbar ist und eine beträchtliche Kostenersparnis für die Brennstabsimulatorinstrumentierung bringt.



Der beim Hobeln entstehende Grat an beiden Nuträndern soll maschinell ebenfalls in der Nutenhobelvorrichtung nach Einlegen der Thermoelemente wiederzugewalzt werden. Erste Vorversuche versprechen Aussicht auf Erfolg. Sobald dieses Einwalzen der Thermoelemente Fertigungsreife erreicht hat, ergibt sich daraus eine weitere Verbilligung in der Stabinstrumentierung, da dann das langwierige und damit teure Zustemmen der Nut von Hand entfällt, und möglicherweise auch das Einlöten der TE's über größere Stablängen überflüssig machen kann. Die Thermoelemente werden dann nur noch im Bereich der Meßspitze über eine Länge von ca. 20 - 30 mm eingelötet und die Lotnaht überarbeitet.

Aus der Abb. 3 geht die axiale, azimutale und über die Bündelgeometrie verteilte Anordnung der Thermoelemente hervor. Die Anordnung der Thermoelemente auf den Hüllen in der gewählten Form hat den Vorteil der einfachen Fertigung sowie z.T. der mehrfachen Redundanz der Meßstelle.

Die Stabinstrumentierungsarbeiten haben begonnen.

Für das Vorhaben 4237.2 wurden im 2. Halbjahr 5 weitere Heizstäbe gefertigt und an RBT ausgeliefert (Näheres s. PNS-Bericht 4237.2)

## 2. Versuchsstand

Die Montage der Rohrleitungen und Komponenten des Versuchsstandes sowie die Isolierungsarbeiten wurden abgeschlossen. Die elektrischen Sicherheitssysteme zur Überwachung der Netzeinspeisungen und der Teststrecken wurden konzipiert. Hierfür wurden spezielle Schnellschaltgeräte für Wechselstrom (4 ms) zur kontaktlosen Ansteuerung entwickelt und gefertigt. Zur Erzielung eines optimalen Schutzes und zur Automation der sicherheitstechnischen Überwachung wurden außerdem entsprechende Vorsatzgeräte zu den Sicherheitssystemen entwickelt und gebaut.- Für die Stromversorgung des 180 KW Überhitzers und des 200 KW Vorwärmers wurden die Steuer- und Regleinheiten der vorhandenen Leistungstransduktoren an die neuen Erfordernisse angepaßt.-

Die vorhandenen, regelbaren Thyristoren wurden für die Betriebsbedingungen des Versuchsstandes eingerichtet.- Die programmierbare Leistungssteuerung der Thyristoren wurde eingebaut und ihre Funktionstüchtigkeit mit einem simulierten Lastwiderstand nachgewiesen. Die Einflüsse von Netzspannungsschwankungen und der Charakteristik der Thyristoren auf die Leistungskonstanz wurde ermittelt. Um stärkere Leistungsschwankungen zwischen den einzelnen Stabgruppen (4 Stäbe werden jeweils von einem Thyristor versorgt) untereinander auszuschließen, wurde eine neue Regelung der Thyristorenstrecken konzipiert und eingebaut.

Die Instrumentierung der Schaltwarte mit den verschiedenen Anzeigegeräten wurde abgeschlossen. Die Stellantriebe für die Regelventile des Versuchsstandes wurden montiert. Die Instrumentierung des Versuchsstandes wurde begonnen und steht unmittelbar vor der Fertigstellung.

### 3. Röntgenkinematographie

Die Röntgendurchleuchtungsanlage zur Erfassung des Aufblähvorganges der Zircaloy-Hülle wurde bei mehreren Aufblähversuchen an verkürzten Einzelstäben erprobt. Die Qualität der mittels einer Filmkamera vom Röntgenbildverstärker aufgenommenen Bilder war ausreichend, um eine einwandfreie Filmauswertung durch Ausmessung der Hüllrohrdehnung vorzunehmen.

Abb. 4 zeigt den schematischen Aufbau der Röntgendurchleuchtungsanlage.

Die Abb. 5 zeigt zwei Röntgenbilder eines Brennstabsimulators. Links ist der intakte Brennstabsimulator vor Versuchsbeginn dargestellt, das rechte Bild zeigt den gleichen Brennstabsimulator nach Versuchsende mit der aufgeblähten und geborstenen Zircaloy-Hülle. Der auf dem jeweiligen linken Bildrand abgebildete Maßstab hat Markierungen im Abstand von je 10 mm.

Die Röntgenaufnahmen, die zur Simulation der späteren Verhältnisse durch ein Stahlblech von 5,0 mm Dicke hindurch aufgenommen wurden, lassen den inneren Aufbau des Brennstabsimulators noch deutlich erkennen. Von innen nach außen sieht man den

Magnesiumoxid-Kern, den Heizleiter, die Bornitrid-Isolation, die Heizstabhülle, die  $\text{Al}_2\text{O}_3$  - Ringpellets und die Zircaloy-Hülle. Auf dem rechten Bild erkennt man das bei den bisherigen Vorversuchen typische Erscheinungsbild, nämlich ein über eine größere Länge auftretendes deutliches Abheben der Hülle und ein Bersten ohne Ausbildung einer besonders ausgeprägten lokalen Beule.

#### 4. Berührungslose Temperaturmessung

Durch weitere Vorversuche am Laboraufbau des Quotientenpyrometers und Erkenntnisse daraus konnten noch einige wichtige Änderungen zur Verbesserung der Meßgenauigkeit und zur Erweiterung des Meßbereichs zu tiefen Temperaturen hin für den endgültigen Zusammenbau des Quotientenpyrometers Prototyp 1 vorgenommen werden. Eine Erhöhung der Wellenlänge im langwelligeren Kanal von 820 auf 850 nm, d.h. eine Vergrößerung des Abstandes der beiden Wellenlängenbanden (jetzt: 650 nm u. 850 nm) erhöht die Empfindlichkeit und damit die Anzeigegenauigkeit des Gerätes noch, ohne daß sich bereits ein Einfluß der sich ändernden Emissivität bemerkbar macht.

Eine Erweiterung des Meßbereichs zu Temperaturen noch unterhalb von  $500^\circ\text{C}$  konnte durch sog. Choppern erreicht werden. Dabei wird durch kurzzeitige Unterbrechung des Lichtflusses (eigentliches Meßsignal) eine getrennte Messung des Dunkelstromes für beide Photomultiplier vorgenommen und der Dunkelstromwert von dem in der Hellphase entstehenden Meßsignal abgezogen. Dadurch konnte das ursprünglich erforderliche Verhältnis von Signal- zu Rauschpegel von etwa  $10^{-2}$  erheblich reduziert werden, so daß nun sogar Photomultiplier aus einer Serienproduktion verwendet werden können. Der komplette Zusammenbau zum einsatzbereiten Prototyp 1 ist fast abgeschlossen (Aktion ADI II). Weitere Verbesserungen, die Ausfallempfindlichkeit sowie die Meßgenauigkeit des Gerätes zu erhöhen, und zwar durch Verwendung nur eines Photomultipliers, sind in Vorbereitung und werden mit einigen weiteren Modifikationen den Prototyp II ergeben.

## 5. Meßdatenerfassung und- übertragung

Die Meßdatenerfassungsanlage wurde im ADI an das Interface und den Rechner angepasst. Nach Behebung verschiedener Mängel wurde die Anlage in der Schaltwarte eingebaut. Zur regelmäßigen Überprüfung des Meßdatenerfassungssystems wurde eine Checkliste erarbeitet und eine entsprechende Prüfvorrichtung erstellt.- Der Aufbau des rechnergesteuerten Systems zur Datenfernübertragung und Datenspeicherung wurde abgeschlossen. Zur Aufstellung der Abwicklerprogramme wurde eine sogenannte Pflichtenliste erarbeitet, in welcher die Gesamtstruktur der Datenübertragung, Speicherung, Meßwertverarbeitung und Bildschirmdarstellung detailliert festgelegt wurde.

Mit dem Meßdatenübertragungssystem wurden Probeläufe unter Benutzung dieser Abwicklerprogramme durchgeführt. Hierbei erwies sich die Funktionsfähigkeit des Systems.

Um eine Datensicherung der wichtigsten Meßstellen im Falle eines Ausfalls des CALAS-Systems zu gewährleisten und auch oszillierende Drücke mittels DMS-Druckaufnehmer erfassen zu können, wurde ein Konzept zur Aufnahme der Daten auf ein parallel angeschlossenes 14-Kanal-Analogbandgerät erstellt. Die hierfür benötigten Vorverstärker wurden bestellt.

## 6. Theoretische Arbeiten (z.T. mit experimenteller Begleitung)

Zur Überprüfung des thermischen Verhaltens war zu klären, inwieweit sich eine entstehende Beule auf die axiale Temperaturverteilung des Brennstabsimulators auswirkt. Hierfür wurden unter sonst unveränderten Randbedingungen Rechnungen mit einem zwei-dimensionalen instationären Wärmeleitprogramm im IKE-Stuttgart durchgeführt. Die Beule wurde rechnerisch dadurch simuliert, daß auf einer Länge von 5 cm in der Mitte des Stabes die Wärmedurchgangszahl im Spalt nach einer Aufheizzeit von 10 sec auf Null gesetzt wird. Die Abb. 6 zeigt die berechneten axialen Temperaturverteilungen für einen von der axialen Stabmitte aus gerechneten axialen Abschnitt von 15 cm Länge. Aufgetragen sind zu verschiedenen Aufheizzeiten von 5 sec bis 50 sec jeweils die axialen Temperaturverteilungen in der Zircaloy-Hülle (jeweils durchgezogene untere Kurve) sowie am Außenrand der Ringpellets (jeweils gestrichelte obere Kurve).

Bis zu 10 sec Aufheizung ergibt sich wegen der axial gleichbleibenden Heizleistung und Randbedingung eine konstante axiale Temperaturverteilung. Ab 10 sec wird die Hülle infolge der simulierten Beule radial nicht mehr mit Wärme gespeist, so daß eine weitere Aufheizung der Hülle im Bereich der Beule nur noch aus der axialen Nachbarschaft erfolgen kann. Da die Aufheizung außerhalb der Beule stetig weiterverläuft, bildet sich ein fallender axialer Temperaturgradient in der Hülle zur Beule hin, welcher allmählich die gesamte Beule erfaßt.

Es ist deutlich zu erkennen, daß der Temperaturanstieg der Hülle im Bereich der Beule merklich hinter dem Temperaturanstieg außerhalb der Beule zurückbleibt. Dies weist auf die zentrale Bedeutung des Wärmedurchganges durch den beim Aufblähen sich vergrößernden Spalt zwischen Pellets und Hülle hin. Außerdem wird hierdurch die Tendenz bei indirekt, von innen durch Wärmeleitung beheizten Brennstabsimulatoren bestätigt, daß eine lokal entstehende Beule infolge der gezeigten Temperaturerhöhungen in den Randbereichen zu einer axial sich auswachsenden Aufblähung führen kann.

Ein ähnliches Verhalten, jedoch mit umgekehrter Auswirkung, ergibt sich für den Temperaturverlauf am Außenrand des  $UO_2$ -Ringpellets. Diese werden im Bereich der Beule schneller aufgeheizt als vorher und als die axiale Nachbarschaft, da in diesem Bereich die Heizleistung ja nach wie vor gleich bleibt und der Teil der Wärme, der vorher in die Hülle abfließen konnte, jetzt mit übernommen werden muß.

Die in der Abbildung dargestellten Ergebnisse zeigen, daß sich die axiale Wärmeleitung wenige Zentimeter vom Beulrand entfernt nicht mehr bemerkbar macht. Der gleiche Effekt wurde an den auf der Abbildung nicht mehr dargestellten axialen Heizleistungssprüngen festgestellt. Dies bedeutet, daß sofern keine lokalen Vorgänge an den Leistungssprüngen bzw. keine lokalen stark instationären Aufbeulvorgänge einbezogen werden, mit ein-dimensionalen Wärmeleitprogrammen gerechnet werden kann.

Um die Ergebnisse der mit ZET-2D vom IKE, Stuttgart durchgeführten Rechnungen der oben beschriebenen Aufgabenstellung zu bestätigen, wurden im IRB Vergleichsrechnungen mit einem selbst entwickelten Programm durchgeführt. Anders als in ZET-2D wird mit diesem Programm eine für den langen, dünnen Stab modifizierte Wärmeleitungsgleichung gelöst. Das zugrundeliegende Modell fußt auf der Annahme, daß die extrem schnellen radialen Ausgleichsvorgänge durch Wärmeübergangsbeziehungen zwischen den einzelnen Schichten beschrieben werden können. Für die axialen Ausgleichsvorgänge wird der FOURIER'sche Ansatz gewählt. Die parabolische Differentialgleichung wird durch ein implizites Differenzenschema approximiert und mit Hilfe eines Relaxationsverfahrens gelöst. In Abb. 7 sind links die axialen Temperaturverläufe 5, 10 und 15 sec nach Beendigung der ungestörten Aufheizphase (10 sec) und rechts die radialen Temperaturverläufe an der maximal gestörten Stelle (Stabmitte) und im ungestörten Bereich aufgetragen. Die gestrichelten Linien stellen jeweils die Ergebnisse der ZET-2D-Rechnung, die durchgezogenen Linien bzw. die Punkte, die der eigenen Rechnungen dar.

Die Abweichungen liegen im Mittel bei etwa zwei Grad, d.h. wenn man eine Bezugstemperatur von  $400^{\circ}\text{C}$  zugrunde legt, bei ungefähr 0,5%. Sie sind von derselben Größenordnung wie die vorgegebene Genauigkeitsschranke von 0,1% bezogen auf  $673^{\circ}\text{K}$  und damit vernachlässigbar.

Beim Entstehen einer Aufblähung des Hüllrohres setzt eine Gasströmung im Spalt zwischen Pellet und Hülle von den Gasplena zur aufblähenden Stelle ein. Der Strömungsvorgang im Spalt und der dadurch bedingte orts- und zeitabhängige Druck ist mitverantwortlich für den weiteren Ablauf des Aufblähvorganges.

Zur theoretischen Beschreibung und Berechnung der Spaltströmung wurde für die laminare Strömung eine vereinfachte Beziehung erarbeitet, die der Lösung von Hagen-Poiseuille für den inkompressiblen Fall entspricht.

Eine Vergleichsrechnung mit den Methoden der Gasdynamik ergab eine gute Übereinstimmung und bestätigte die getroffenen Vereinfachungen, daß die Einflüsse der bewegten Massen (Impulsänderung, Änderung der kinetischen Energie) gegenüber den Einflüssen von Druckänderung und Zähigkeit vernachlässigbar sind. Von der ausgebildeten laminaren Strömung abweichende Strömungsverhältnisse werden durch die Einführung von geeigneten Reibungsbeiwerten in die theoretischen Beziehungen berücksichtigt.

Die theoretischen Betrachtungen führten u.a. zu folgenden wichtigen Ergebnissen:

- das strömende Gas verhält sich quasistationär und quasiinkompressibel,
- die Reynolds-Zahl ist bei isothermer Strömung in axialer Richtung konstant, damit ändert sich der Strömungszustand über die Rohrlänge nicht,
- die Exzentrizitäten haben bei laminarer Strömung einen starken Einfluß auf den Massenstrom.

In ersten Versuchen wurde der Massenstrom in Abhängigkeit vom mittleren Druck und Druckgefälle bei Umgebungstemperatur gemessen, die den Spalt begrenzende Innenfläche wurde zum einen durch glatte Stäbe (glatter Ringspalt) und zum anderen durch  $Al_2O_3$  - Pellets gebildet.

Ein Vergleich dieser Versuche mit den Ergebnissen der theoretischen Betrachtung führte zu folgenden Schlußfolgerungen:

- Beim glatten Ringspalt entsteht ausgebildete laminare Strömung,
- bei Pellets behindern die Stoßstellen die Ausbildung der laminaren Strömung,
- bei turbulenter Strömung haben Exzentrizitäten keinen Einfluß.

## 7. Versuche

Zur Ermittlung von Beziehungen für Temperatur und Druck an der aufblähenden Stelle ist die Messung des lokalen Beuldruckes von großer Bedeutung. Dies erfolgt mittels einer Meßkapillare von 0,36 mm Außendurchmesser, 0,155 mm Innendurchmesser und einer Länge von 2,95 m. Die Kapillare wird in die Hülle des Heizstabes eingelegt. Die Druckanzeige erfolgt über einen angeschlossenen Mikro-DMS-Druckaufnehmer. Da die Ansprechzeit eines solchen Druckmeßsystems u.a. direkt proportional vom Volumen des Meßinstrumentes abhängt, wurde durch Auswahl des Druckaufnehmers und entsprechende Gestaltung des Gehäuses ein Meßkammervolumen von  $15 \text{ mm}^3$  verwirklicht. Zur Bestimmung des Übertragungsverhaltens dieser Meßkapillare wurden erste Versuche durchgeführt, deren Ergebnisse in der Abb. 8 dargestellt sind. Die Versuche wurden unter Helium bei einer Temperatur von  $622^\circ\text{C}$  durchgeführt, wobei eine schnelle Druckabsenkung auf der offenen Geberseite der Kapillare von 100 bar auf etwa 65 bar vorgegeben wurde. In der Abbildung sind die gemessenen Drücke über der Zeit aufgetragen, wobei die untere Kurve für  $p_L$  die vorgegebene, gemessene Druckabsenkung darstellt und die obere Kurve  $p_0$  die mit dem Druckaufnehmer des Meßsystems gemessene Druckantwort. Die dargestellten Meßwerte zeigen, daß es sich bei diesem Druckmeßsystem um ein System mit ausreichend schnellem Übertragungsverhalten handelt und daß der Verlauf des Druckes  $p_L$  in der Beule aus dem Meßsignal  $p_0$  mit Hilfe der Differentialgleichung rechnerisch ermittelt werden kann.

Zur Gewinnung erster Aufschlüsse über den Aufblähvorgang einer Zircaloy-Hülle wurden Vorversuche an einem Brennstabsimulator bereits beschriebenen Aufbaus mit einer indirekt beheizten Länge von 325 mm durchgeführt. Das obere und untere Plenum war in Originalgröße nachgebildet. Zwischen der Zircaloy-Hülle und den Ringpellets befand sich ein mittlerer radialer Spalt von  $50 \mu\text{m}$ , der dem Originalspalt eines frischen Brennstabes entspricht. Am unteren Plenum war ein DMS-Druckaufnehmer angeschlossen, dessen Meßkapillare und Meßkammer-



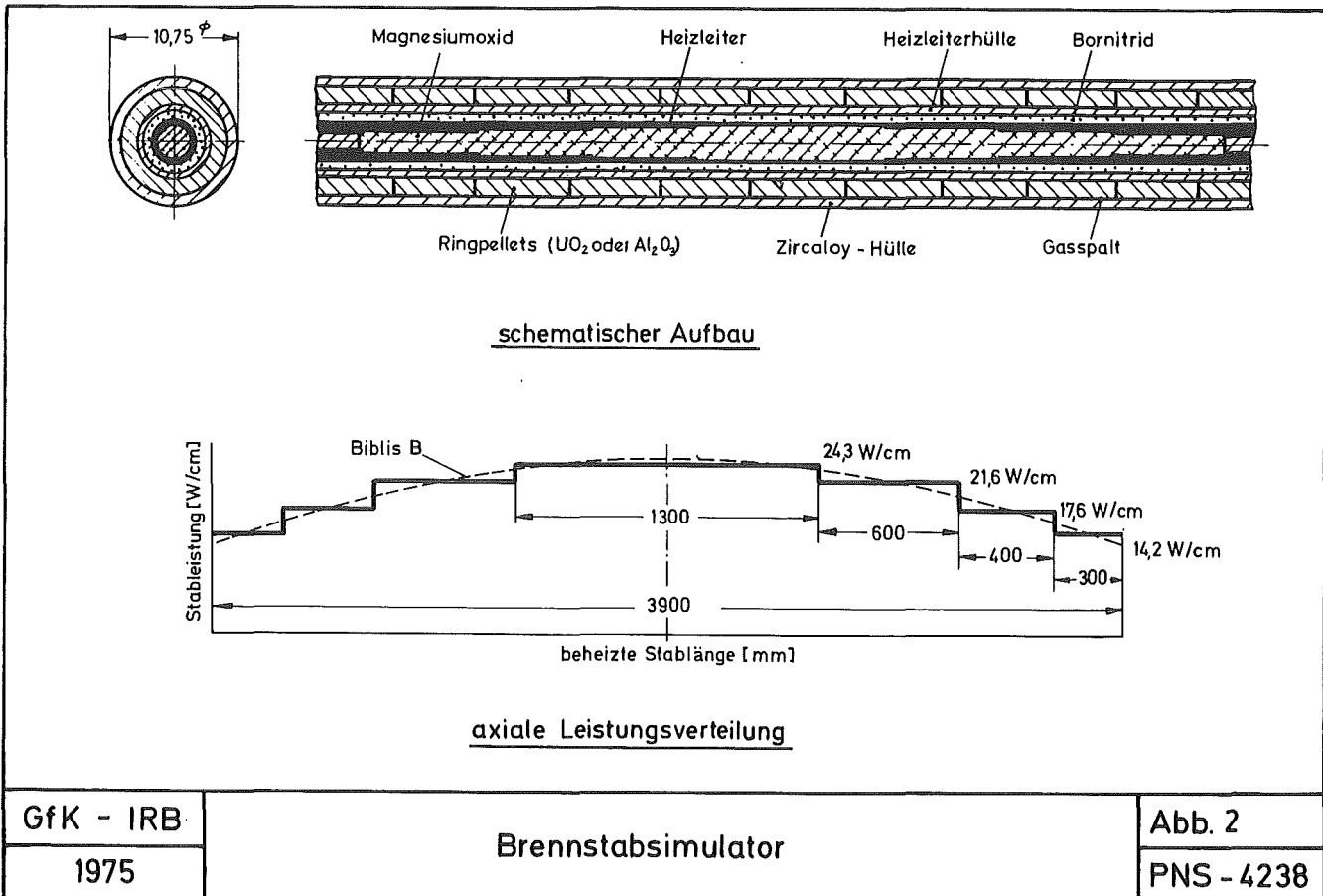
volumen vernachlässigbar klein waren. Das System wurde mit Helium verschiedenen Druckes gefüllt. Die Hüllrohrtemperatur wurde mit Hilfe eines nicht isolierten direkt aufgepunkteten Pt/PtRh-Thermoelementes mit 0,1 mm Drahtstärke gemessen. Die Hüllrohrverformung wurde über einen Röntgenbildverstärker mit einer Filmkamera bei 25 Bildern/sec aufgezeichnet. Bei einer Heizleistung von 50 W/cm wurde eine Anfangsaufheizrate von etwa 12 grad/sec erreicht. Abb. 9 zeigt schematisch den Versuchsaufbau.

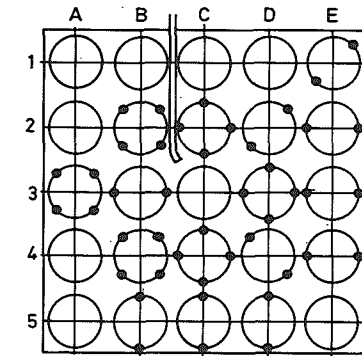
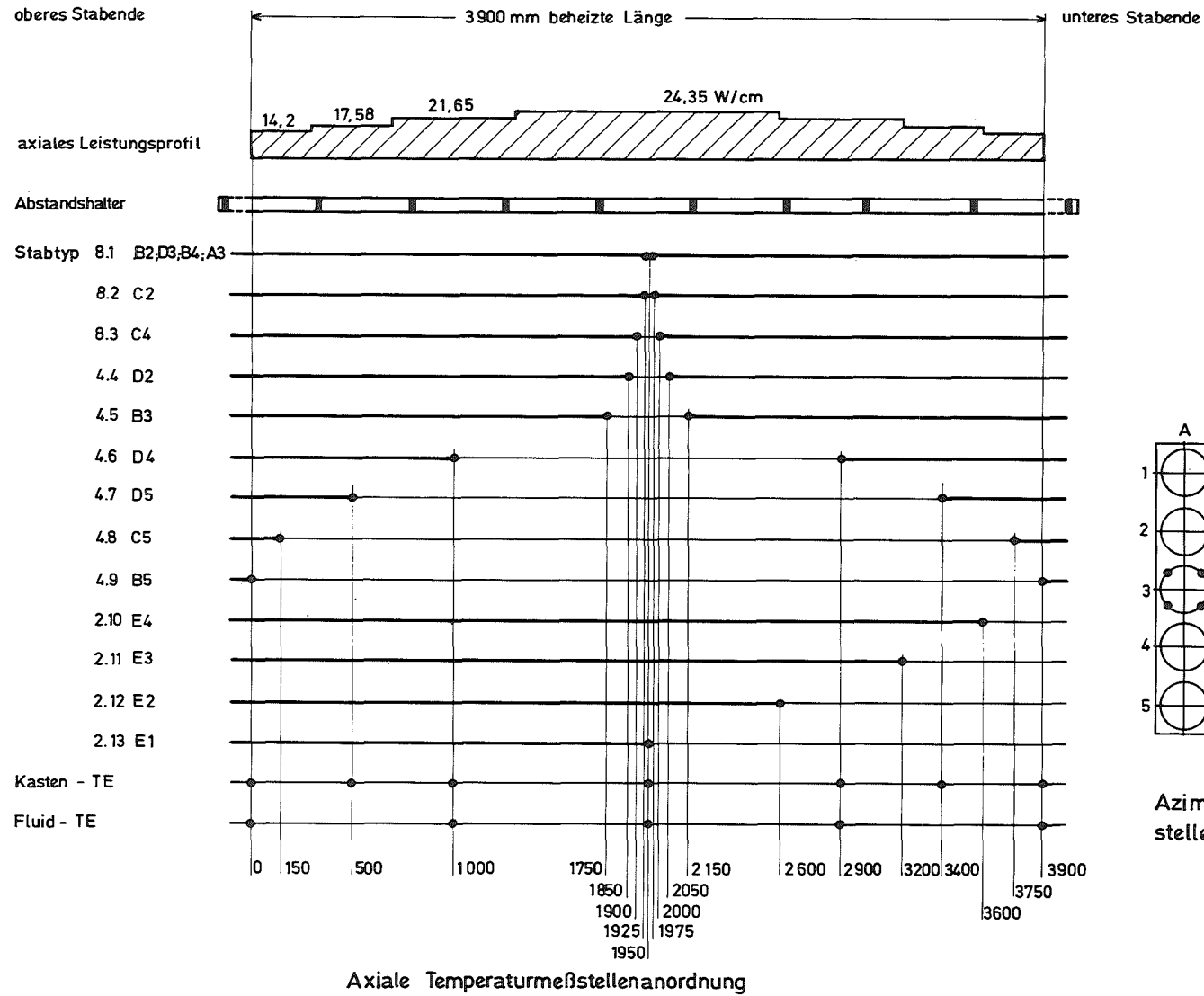
Der Vorgang läuft folgendermaßen ab: Ausgehend von Raumtemperatur (Zeitpunkt: 0 sec) nimmt entsprechend dem Gasgesetz mit steigender Temperatur auch der Innendruck zu.

Unter der Spannung durch den Innendruck beginnt das Zircaloy-Hüllrohr bei Temperaturen von etwa 400°C zu kriechen, allerdings noch mit kleinen Kriechgeschwindigkeiten. Bei Temperaturen etwa oberhalb 700°C treten jedoch meßbare Umfangsdehnungen auf, die bis zum Bersten des Hüllrohres stark zunehmen. Mit beginnendem deutlichen Abheben des Hüllrohres von seiner Wärmequelle, d.h. sich vergrößerndem Spalt wird der Wärmetransport zum Hüllrohr reduziert, was sich erst durch ein schwächeres Ansteigen und schließlich sogar durch ein Wiederabsinken der Hüllrohrtemperatur bemerkbar macht. Mit sich abhebendem Hüllrohr beginnt auch der Innendruck schwächer anzusteigen und wieder zu sinken, da bei konstanter eingeschlossener Gasmenge das Hohlraumvolumen wächst. In Abb. 10 sind die Temperatur-, Druck- und Dehnungsverläufe über der Zeit aufgetragen und zwar für drei verschiedene Drücke. Der niedrige Druck entspricht etwa einem Abbrand von Null, der höchste Druck von 130 bar etwa dem bei maximalem Abbrand auftretenden Spaltgasdruck in einem DWR-Brennstab. Es ist deutlich zu erkennen, daß bei höherem Innendruck meßbare Umfangsdehnungen bei kürzeren Zeiten, d.h. bei niedrigeren Temperaturen auftreten und auch rascher zunehmen. Die mittlere Dehnungsgeschwindigkeit bis zum Bersten des Rohres nimmt mit steigendem Druck zu und beträgt bei 70 bar etwa  $2,0 \times 10^{-2} \text{ sec}^{-1}$  und bei 130 bar etwa  $4,0 \times 10^{-2} \text{ sec}^{-1}$ . Diese Werte sind entsprechend den bei metallkundlichen Versuchen gewonnenen Erfahrungen typisch für ein normal plastisches Verformungsverhalten der Zircaloy-Hüllrohre.

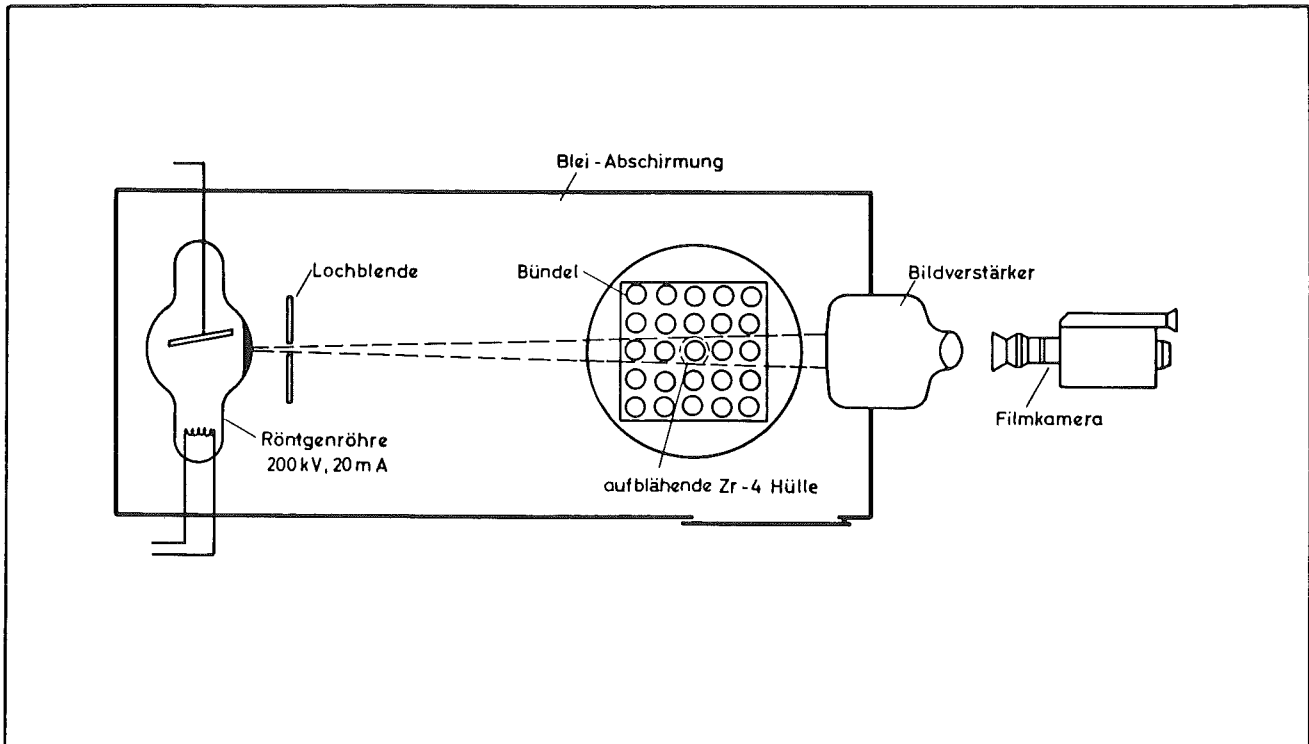
Auslegungskriterium	Auslegungsmerkmal
thermisches Verhalten eines DWR - Brennstabes (KWU)	geometrische Anordnung und Wahl geeigneter Werkstoffe (Wärmekapazität, Wärmeleitung über Spalt zur Zircaloy - Hülle) – Auslegung mit Wärmeleitprogramm
Wärmezufuhr zur Zircaloy - Hülle von innen	Indirekt beheizter Brennstabsimulator
cosinusförmiges axiales Leistungsprofil (Nachwärme)	stufenförmiges axiales Leistungsprofil, später im mittleren Bereich cosinusförmig
echte Zuströmverhältnisse über den Spalt von den Plena zur Beule	volle Brennstablänge: 3,90m beheizt originaler mittlerer Einfüllspalt (kalt): 50 µm radial echte Plenagröße: oben 9,3cm <sup>3</sup> , unten 16,8cm <sup>3</sup>
echte temperaturabhängige Verhältnisse im Spalt (Gasströmung, Wärmedurchgang)	Materialien gleicher Wärmedehnung und Strahlungszahl (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Ringpellet, Zircaloy - Hüllrohr)
Zircaloy - 4 - Hüllrohr, KWU - DWR	Zircaloy-4 Hüllrohr (KWU-Spezifikation): 10,75 <sup>±</sup> 0,72mm
innerer Spaltgas- und Heliumdruck bei Betriebstemper. 70 at (frischer Brennstab) 130 at (max. Abbrand)	Innendruck durch Helium bzw. Gasgemisch von 70 - 130 at (Betriebstemperatur)
echte Thermohydraulik im Kühlkanal (zeit- und ortsabhängiges Wasser - Dampf - Gemisch, Druckverlust)	volle Brennstablänge mit Originalabstandshaltern
Kurzschluß - Vermeidung beim Bersten der Hülle	isolierter indirekter Heizstab

GfK - IRB	<b>Auslegung des Brennstabsimulators</b>	Abb. 1
1975		PNS - 4238

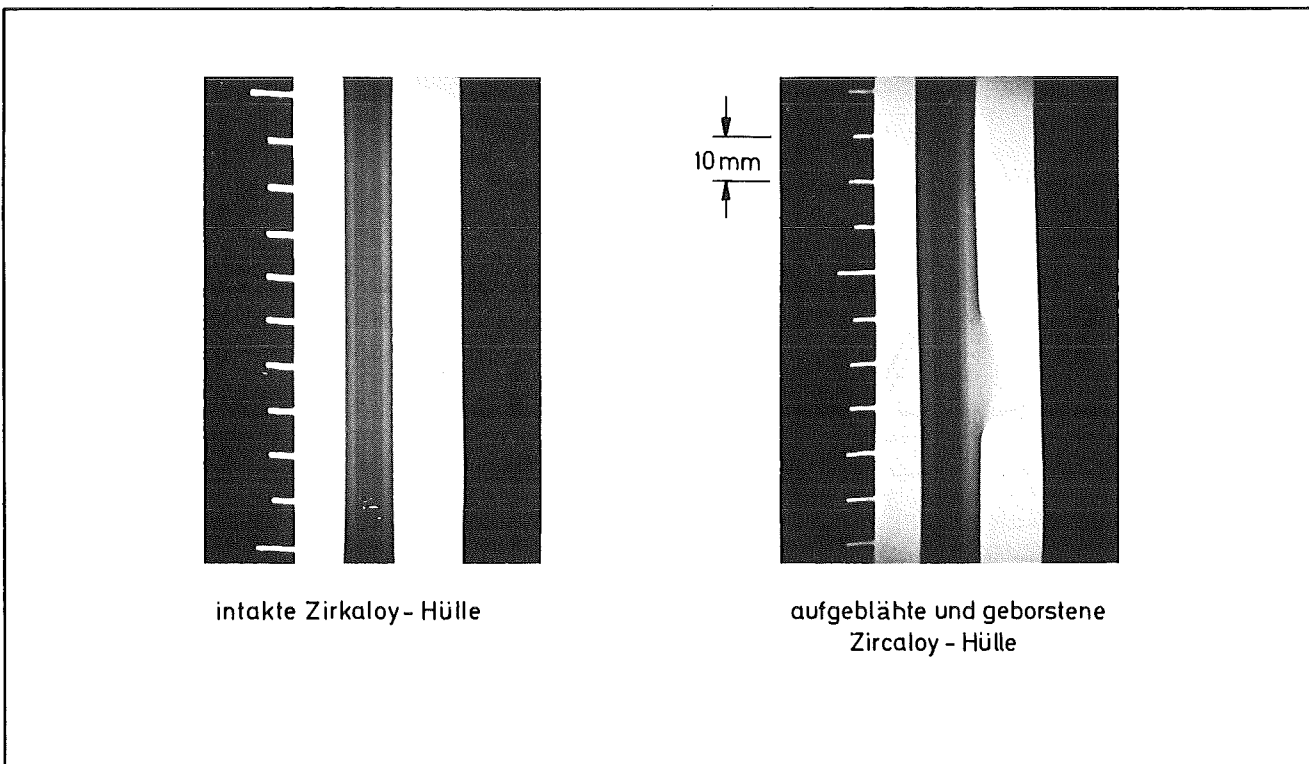




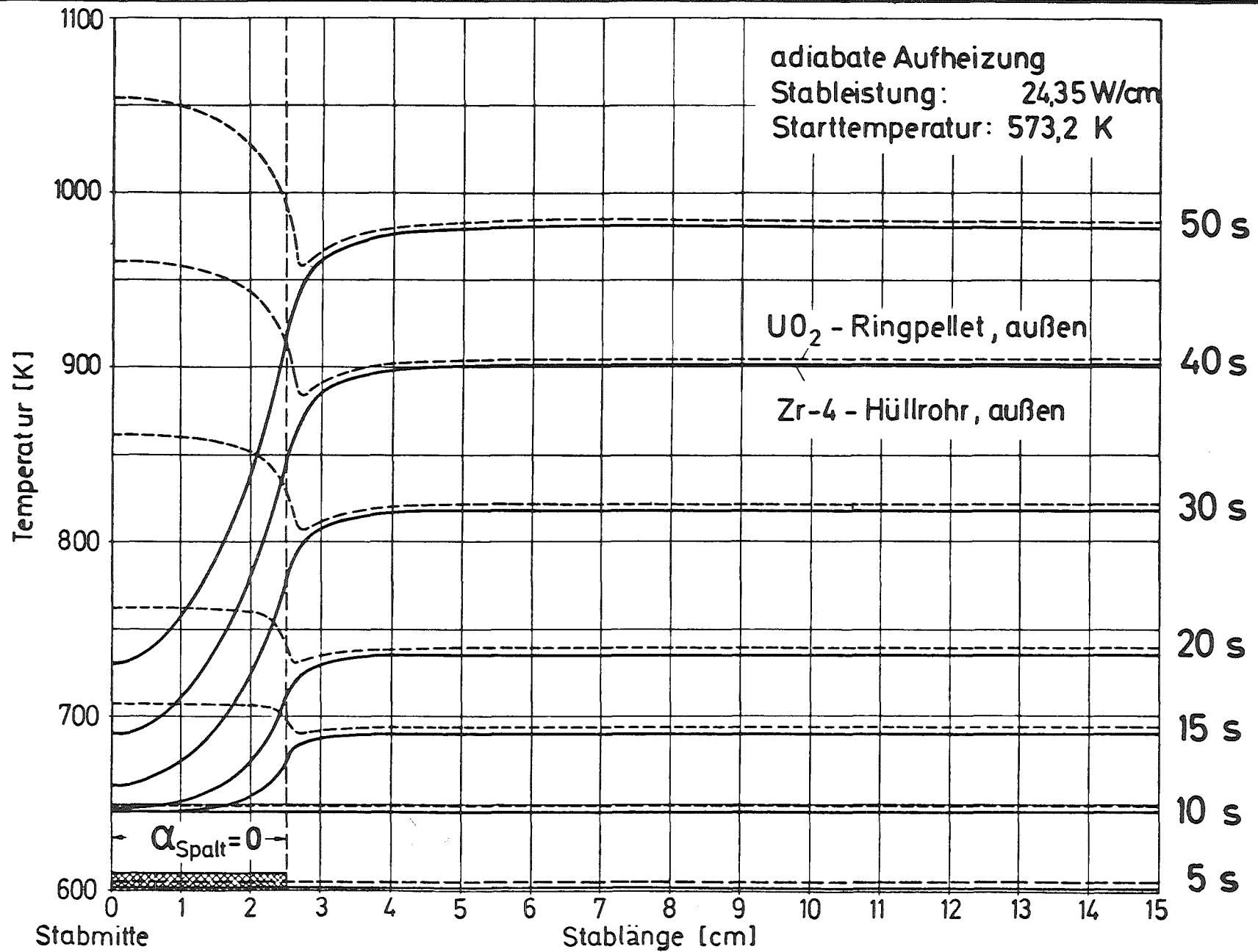
Azimutale Temperaturmessstellenanordnung



GfK - IRB	Röntgendurchleuchtungsanlage	Abb. 4
1975		PNS - 4238



GfK - IRB	Röntgenbild des Brennstabsimulators	Abb. 5
1975		PNS - 4238



GfK - IRB

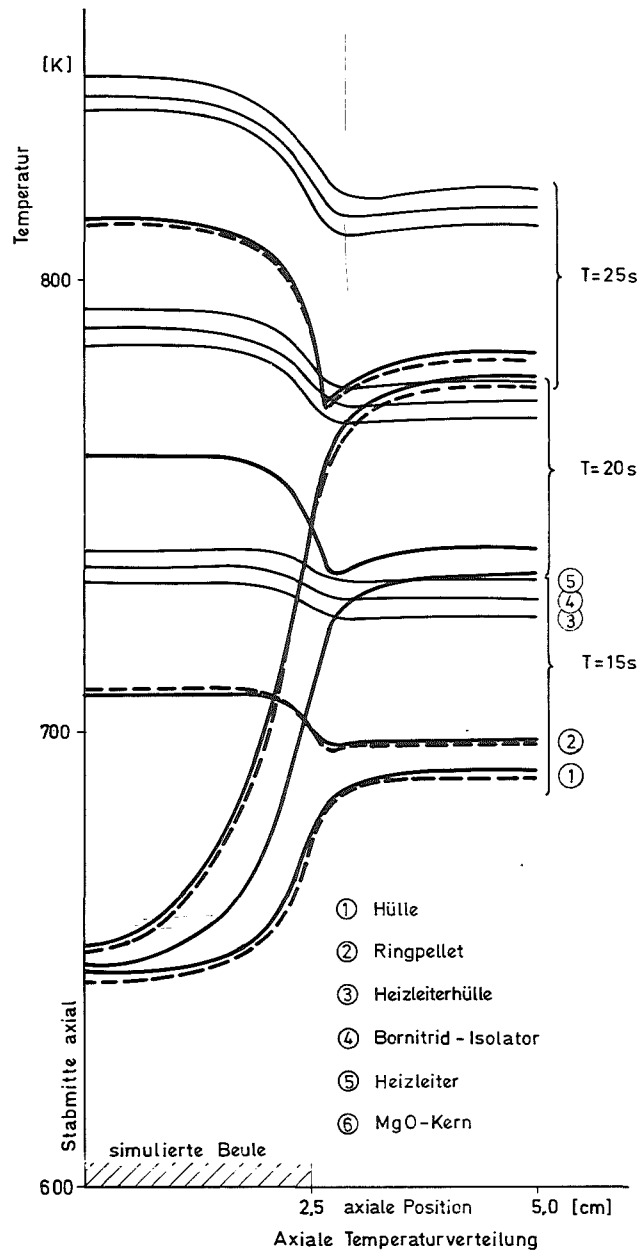
1975

Temperaturverteilung des Brennstabsimulators  
 (ZET 2D-Rechnungen)

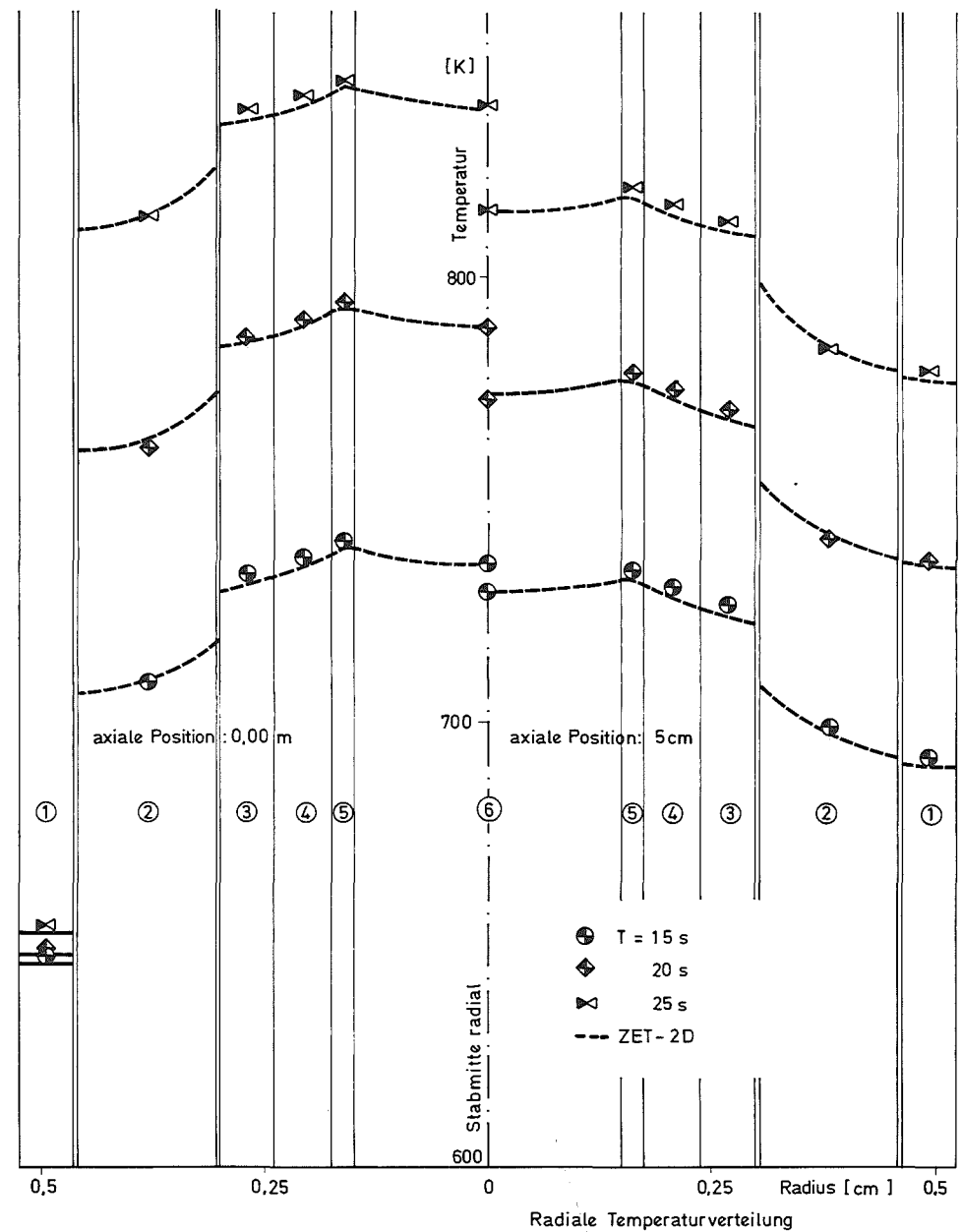
Abb. 6

PNS - 4238

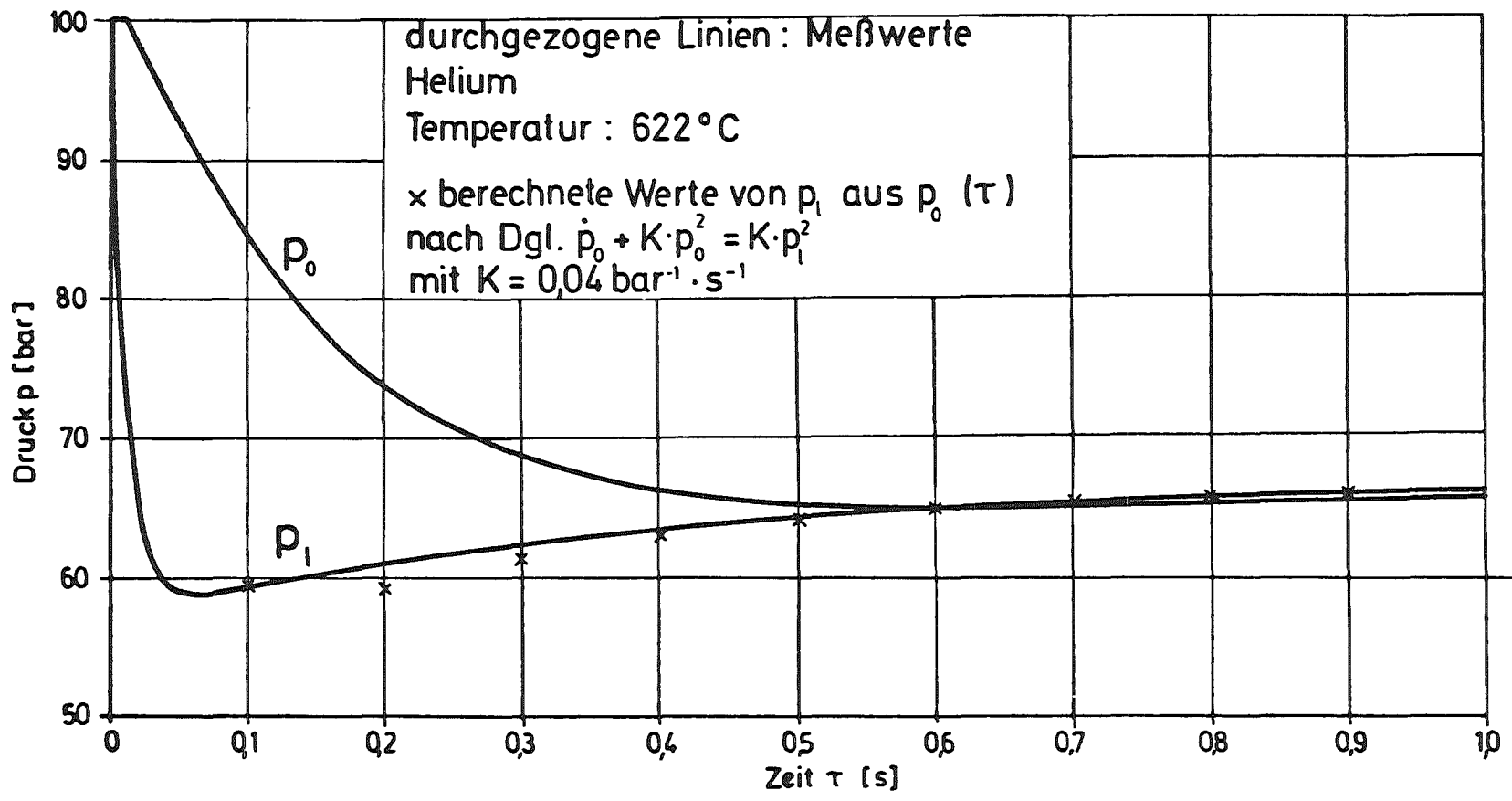
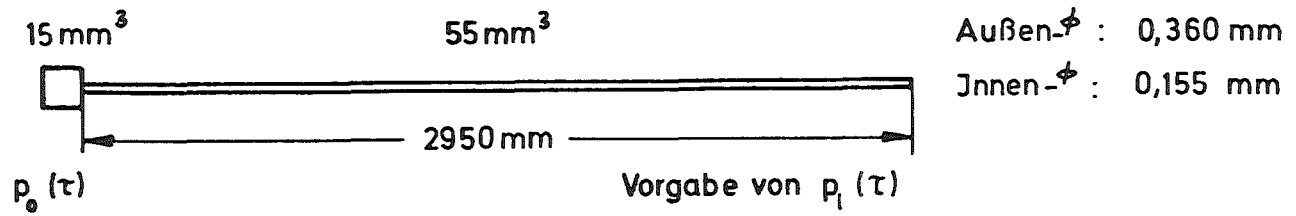
- 314 -



Axiale Temperaturverteilung



Radiale Temperaturverteilung

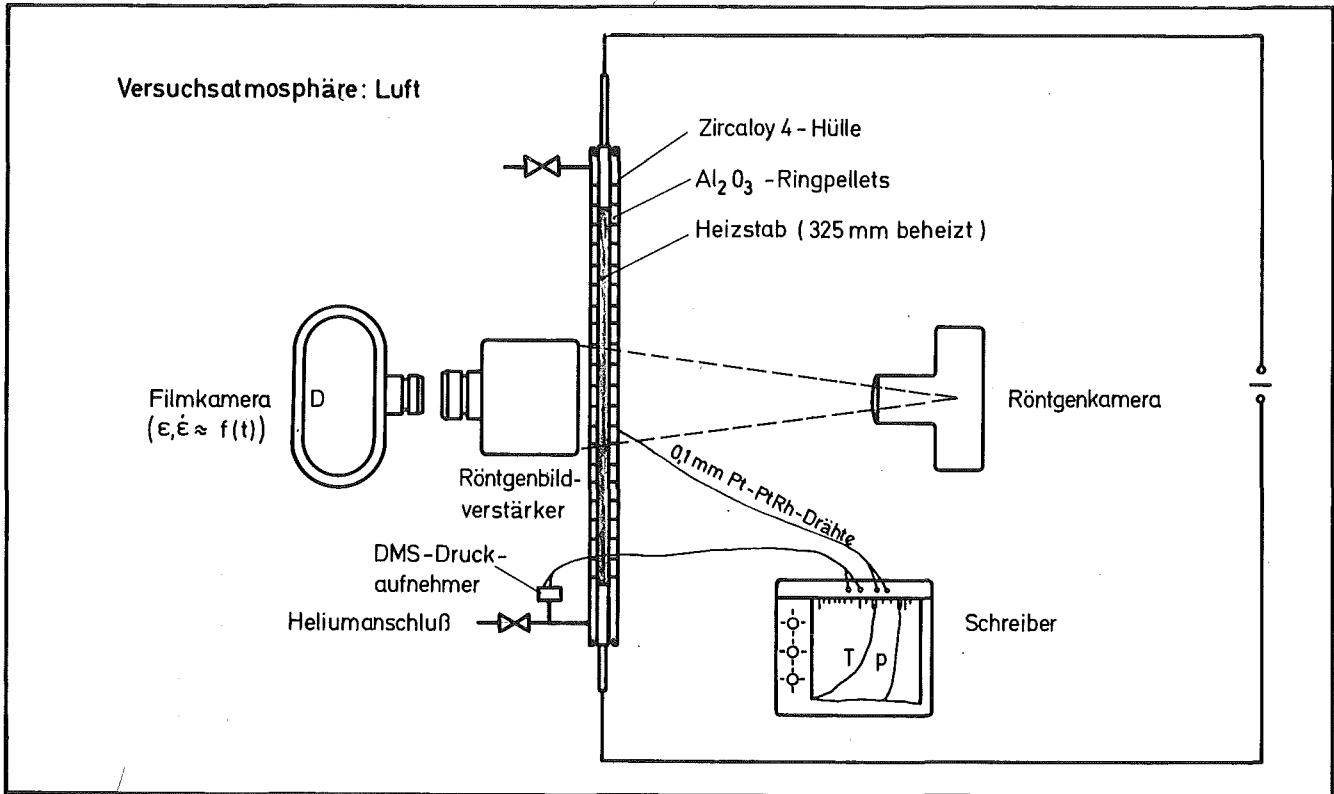


- 316 -

GfK - IRB  
1975

Verhalten einer Meßkapillare  
mit sehr kleinem Meßkammervolumen

Abb. 8  
PNS - 4238



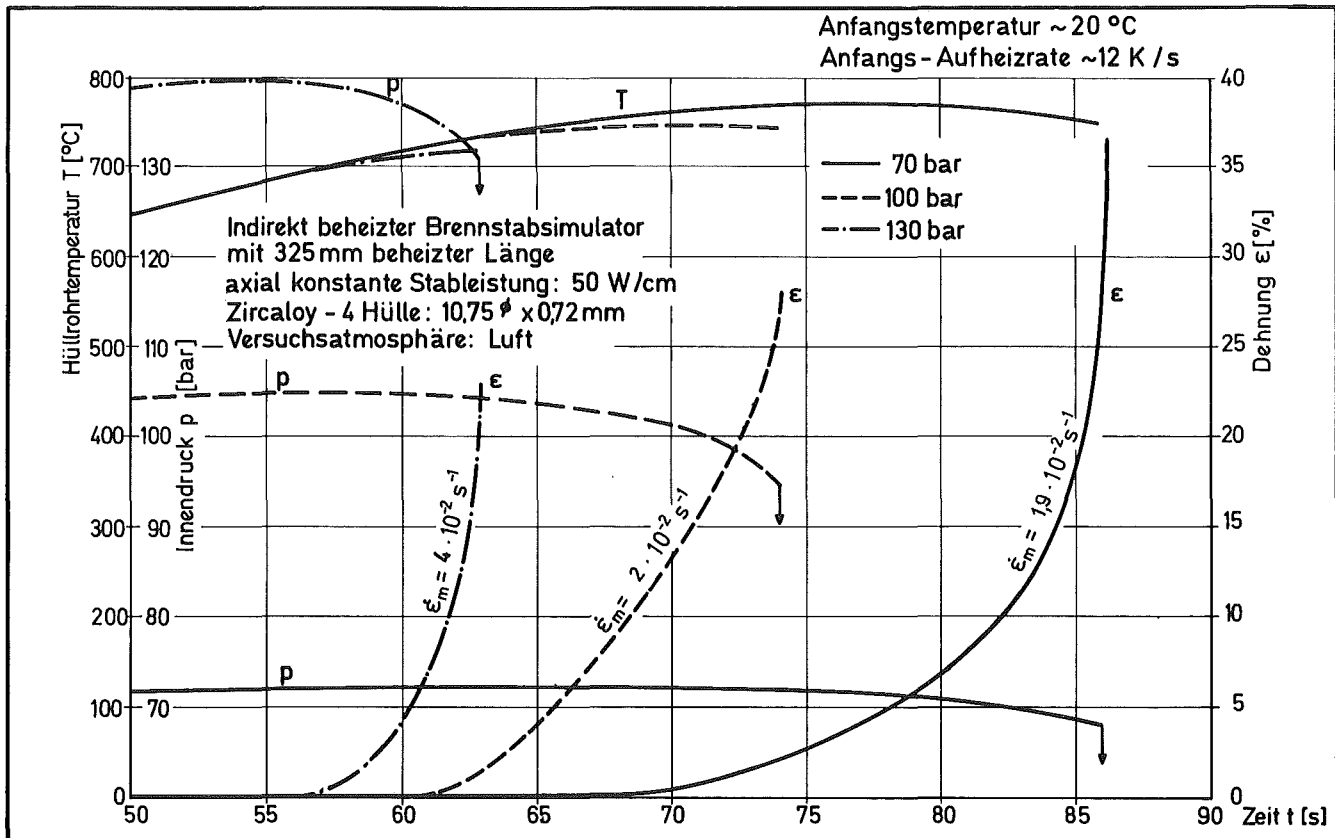
GfK - IRB

1975

Versuchsaufbau für Aufblähversuche

Abb. 9

PNS - 4238



GfK - IRB

1975

Aufblähvorgang einer Zircaloy - 4 Hülle  
(Meßergebnisse)

Abb. 10

PNS - 4238



4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles.

(S. Malang, S. Barth, E. Eggert, P. Ihle, H. Kreuzinger, A. Megerle, K. Rust, Ha. Schmidt, B. Schöffler, He. Schneider, IRB)

Es ist das Ziel dieser Arbeit, den Einfluß einer durch aufgeblähte Brennstabhüllen entstandenen Kühlkanalblockade auf die Strömungsform des Dampf-Wassergemisches der Flutphase zu beobachten und den Einfluß auf die Kühlwirkung hinter der Blockade zu messen, wobei die Größe und die Form der Blockade variiert werden sollen.

Schwerpunkte der Arbeiten im Berichtszeitraum lagen auf:

- Einfahren des Versuchskreislaufs
- Verdrahtung und Überprüfung der Meß- und Registriergeräte
- Fertigstellung und Montage der Teststrecke
- Prüfung der instrumentierten Brennstabsimulatoren
- Verbesserung der Stabinstrumentierung
- Verbesserung des Beobachtungsverfahrens
- Organisation der Erfassung und Darstellung der Versuchsdaten.

## 1. Kreislauf und Stromversorgung

### 1.1 Einfahren des Kreislaufs

Die Montage des Kreislaufes wurde im Berichtszeitraum abgeschlossen. Nach Dichtheitsprüfung, Reinigung, erster Funktionsprüfung mit Fremddampf und Flutwasser wurden geringfügige Änderungen durchgeführt und die Isolierung montiert. Die notwendigen Anfahr- und Betriebsvorschriften für den späteren Versuchsbetrieb wurden erstellt. Der Kreislauf ist somit betriebsbereit (Abb. 4239-1).

## 1.2 Stromversorgung für die Bündelheizung

Die im vorigen Bericht beschriebene Stromversorgung mit dem zusätzlichen Ansteuergerät für die Leistungstyristoren wurde mit einem Lastwiderstand mehrfach überprüft. Es stellte sich heraus, daß zur Erzielung einer guten Reproduzierbarkeit die Regelgeschwindigkeit vergrößert und die Leistung während des gesamten Versuchsablaufes geregelt werden muß. Die notwendige Ergänzung der Anlage wurde ausgelegt und bestellt. Die Nachrüstung und Funktionserprobung werden voraussichtlich im Januar 1976 abgeschlossen.

Die vorhandene und erprobte Sicherheitseinrichtung zur Schnellabschaltung der Stromversorgung mit den Eingangsgrößen Maximaltemperatur, Minimal- und Maximalstrom wird erweitert um ein weiteres Glied, das die jeweiligen Leistungen der einzelnen parallel geschalteten Stäbe vergleicht und bei Überschreiten der vorgebbaren Abweichungsgrenzen zur Abschaltung führt. Durch diese Zusatzeinrichtung wird die Sicherheit der Bündel gegen Zerstörung vor allem bei transients Leistung erheblich erhöht. Das Prinzip und die Schaltung wurden im Berichtszeitraum erarbeitet, die Nachrüstung erfolgt im 1. Halbjahr 1976.

## 1.3 Steuer - Anzeige- und Registriergeräte

Die im vorigen Bericht ausführlich beschriebenen Einrichtungen zur Kreislaufbedienung und-überwachung wurden angeschlossen und während der Kreislauferprobung im gesamten Meßbereich überprüft. Die Anlage zur schnellen Erfassung der Versuchsdaten wurde nach einer Funktionsprüfung wieder ausgebaut und vom ADI und dem Lieferer überprüft. In Punkt 6 wird näher darauf eingegangen.

## 2. Teststrecke

Die Teststrecke (Abb. 4239-2) wurde fertiggestellt, montiert und auf Dichtheit geprüft. Nach Demontage und Einbau der ersten Stabreihe mit 4 nicht instrumentierten und 1 instrumentierten Stab wurde die Teststrecke in den Kreislauf eingebaut. Seit dem Einbau werden die Stäbe zur Vermeidung von Feuchtigkeitsaufnahme dauernd mit kleiner Leistung beaufschlagt.

### 3. Heizstäbe und Instrumentierung

#### 3.1 Heizstäbe

Die ersten 20 gelieferten Heizstäbe liegen in ihrem Gesamtwiderstand zwischen 1,4% und 3,4% unter dem Sollwert von  $5,81\Omega$ . Durch entsprechende Auswahl läßt sich die Abweichung innerhalb einer Stabreihe auf ca.  $\pm 0,3\%$  verringern. Die Widerstände der einzelnen Heizzonen innerhalb eines Stabes weichen jedoch erheblich mehr vom Sollwert ab, sind aber nicht zerstörungsfrei festzustellen. Im zerlegten Stab Nr. 6 beträgt die Abweichung bis zu 18% in Zone III, in Zone I mit der höchsten Leistung etwa 1,5%. Mit Hilfe der aus den Röntgenaufnahmen ersichtlichen Windungszahl und den mittleren Widerständen je Windung der einzelnen Heizzonen ließ sich diese Unsicherheit auch zerstörungsfrei soweit verringern, daß durch Auswahl bestimmter Stäbe zu einer Stabreihe die Unterschiede zwischen den einzelnen Stäben vernachlässigbar klein ist.

#### 3.2 Heizstabinstrumentierung

##### 3.2.1 Thermoelemente

Im vorigen Bericht wurden Ort und Art der Temperaturmeßstellen in den Heizstabhüllen beschrieben. Beim Fräsen der 0,53 mm breiten und 0,65 mm tiefen Thermoelementnuten sind jedoch zuviel Ausschuß und zu hohe Fertigungskosten entstanden, so daß diese Methode für die noch folgenden Stäbe nicht beibehalten werden kann. Es wurde ein anderes Fertigungsverfahren konzipiert und in Zusammenarbeit mit der Industrie entwickelt, das enger tolerierte Nuten erlaubt und Ausschuß weitgehend ausschließt. Hiermit können die Thermoelemente mit 0,5 mm Außendurchmesser beibehalten werden, die sich hinsichtlich Applikation und Standzeit bewährt haben.

##### 3.2.2 Kühlkanalblockaden

Der in Punkt 3.3 beschriebene Funktionstest instrumentierter Stäbe zeigt, daß die gewählte, im vorigen Bericht beschriebene Ausführung der auf die Stäbe aufzubringenden, auswechselbaren Blockadekörper zwar im Versuch gute Ergebnisse bringt.

Beim Rundhämmern der Trägerbuchse auf den Stab wurden jedoch ein Teil der darunter liegenden Thermoelemente beschädigt. Es wurden deshalb verschiedene Methoden des Metallauftrags ohne Beanspruchung des darunter liegenden Heizstabes mit den eingebetteten Thermoelementen untersucht. Die am besten geeignete wird z.Zt. auf ihre Verträglichkeit mit dem Lot, mit dem die Thermoelemente eingebettet sind, untersucht. Schwierigkeiten werden nicht mehr erwartet. Die Form der auswechselbaren Blockadekörper bleibt unverändert.

### 3.3 Funktionstests instrumentierter Heizstäbe

Im Berichtszeitraum wurden ein SWR-Stab mit 4 auf der ganzen Länge eingebetteten Thermoelementen und einer auswechselbaren Blockade auf aufgehämmerter Trägerbuchse und ein DWR-Stab mit 5 eingebetteten Thermoelementen bis 950°C Hüllrohrtemperaturen getestet. Die Stäbe wurden trocken bis auf die Ausgangstemperatur aufgeheizt und mit Wasser von Raumtemperatur bei variierter Flutrate geflutet. Während des Flutens wurde die der Nachwärmeproduktion entsprechende Leistung zugeführt als konstante oder abklingende Leistung. Aufgezeichnet wurden die Hüllrohr-, Fluid- und die Kastentemperaturen der unisolierten einfachen Anordnung. Die auswechselbare Blockade ließ sich nach den ca. 40 Zyklen noch einwandfrei abheben. Zwei der 4 Thermoelemente des SWR-Stabes hatten nach dem Aufhämmern der Trägerbuchse Masseschluß an der Quetschstelle. Eines davon zeigte die Temperatur der Quetschstelle, das andere die Temperatur am Ort der Meßspitze. Letzteres versagte nach ca. 20 Zyklen. Die beiden anderen Thermoelemente blieben über die ganze Zyklenzahl intakt. Die beiden Thermoelemente wiesen gegenüber den intakten T.E. mit isolierter Spitze einen größeren Störpegel auf. Durch Zwischenschalten von Filtern konnte das Störsignal auf weniger als 1% des Nutzsymbols gefiltert werden. Der Heizstab selbst blieb in seinen geometrischen Abmessungen erhalten, krümmte sich jedoch leicht während der Hochtemperaturzyklen um 950°C. Ähnliche Ergebnisse wurden beim DWR-Stab mit 10,75 Außendurchmesser, 2,90 beheizte Länge und 5 vollständig eingebetteten Thermoelementen erzielt.

Hier waren ebenfalls zwei Thermoelemente defekt, deren Signale aber noch verwertbar waren. Der Defekt war bei der Instrumentierung aufgetreten: eine zu tief geführte Nut platzte beim Lötten lokal auf. Beim Versuch, dieses Leck zu schließen, verbrannten die Hüllen der beiden Thermoelemente. Diese Stelle wurde mit einer Hülse überdeckt, verlötet und der Stab für Funktionstests präpariert. Auch dieser Stab zeigte korkenzieherartige Krümmungen nach ca. 30 Zyklen bei  $900^{\circ}\text{C}$ , hervorgerufen durch sein Eigengewicht. Er war wie der SWR-Stab stehend angeordnet mit freier Dehnung nach oben.

In der Teststrecke der 5-Stabreihe hängen die Stäbe mit freier Dehnung nach unten. Evtl. Reibung an der unteren O-Ring-Dichtung wird durch Zusatzgewichte kompensiert.

#### 4. Beobachtungsverfahren

##### 4.1 Beheizte Scheiben

Bei der optischen Beobachtung der zu Beginn der Flutphase typischen Zweiphasenströmung traten Benetzungsprobleme an den Beobachtungsfenstern auf. Es wurden Versuche zur direkten elektrischen Beheizung auf der Strömungsseite der Scheiben unternommen. In einer institutseigenen Sputteranlage wurden Chrom, Gold und Platin auf Quarzscheiben aufgedampft und Transparenz, mögliche Leistungsfreisetzung und Standzeit der Beschichtungen in Abhängigkeit von der Temperatur ermittelt. Eine ausreichend transparente Chromschicht (ca.  $300 \text{ \AA}$ ) zeigt im Gegensatz zu metallischem Chrom fallenden elektrischen Widerstand mit steigender Temperatur. Eine Leistungsregelung wird dadurch aufwendig. Die beiden anderen Materialien zeigen bei dünnen Schichten diese Eigenschaft nicht und ergaben bis ca.  $200^{\circ}\text{C}$  eine Leistungsfreisetzung von  $8 \text{ W/cm}^2$  in Luft. Bei höheren Temperaturen, untersucht bis  $600^{\circ}\text{C}$ , betrug die Standzeit nur wenige Minuten wegen exponentiell ansteigender Metallverdampfung. Ein positives Ergebnis vor allem hinsichtlich längerer Standzeit scheint bei den Stab- und Gehäusetemperaturen der Flutversuche unwahrscheinlich oder zumindest sehr aufwendig. Die Verzögerung der Scheibenbenetzung mittels direkt beheizter Scheiben wurde deshalb vorerst aufgegeben.

#### 4.2 Verbesserung der Bildqualität von Filmaufnahmen

Zur Visualisierung der Tropfenströmung bei der simulierten Wiederauffüllphase eines SWR wurden mit einer 2-Stab-Anordnung innerhalb eines umgebenden, rechteckigen Kastenprofils Vorversuche durchgeführt. Durch Quarzfenster wurden die Strömungszustände mittels Zeitdehnerfotografie und durch Beobachtung von der Dampfströmung über die Tropfenströmung und Blasenströmung bis hin zur reinen Wasserströmung verfolgt.

Bei der Versuchsdurchführung wurde ein möglichst gleichmäßiges Fortschreiten der Benetzungsfront zwischen Stäben und Kasten angestrebt; zu diesem Zweck erfolgte eine Beheizung des Kastens durch elektrische Widerstandsheizkörper von außen.

Die Abb. 4239-3 zeigt den schematischen Versuchsaufbau und die Anordnung der Meßstellen.

Bei Heizstabtemperaturen um  $700^{\circ}\text{C}$  liegt das Intensitätsmaximum der Schwarzkörperstrahlung bei  $\bar{\lambda} = 3\mu\text{m}$ . In diesem Wellenlängenbereich absorbieren die eingesetzten, 10 mm dicken Quarzscheiben etwa 18% der einfallenden Wärmestrahlung. Dies ist ausreichend, um bei Isolation von außen der Scheiben bis auf rund  $20^{\circ}\text{C}$  unter die benachbarte Stabtemperatur aufzuheizen.

Die Versuche wurden mit einer Kaltflutrate von  $0,08 - 0,24\text{ m/s}$  bei einer maximalen Stabtemperatur von bis zu  $800^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Die Flutdauer lag dabei zwischen  $2,12 - 4,8\text{ min}$ ; die Belichtung der Zeitdehnerfilme erfolgte mit einer zeitlichen Verzögerung bezogen auf den Flutbeginn von  $0\text{ sec}$  bis  $3,5\text{ min}$ .

Es wurden folgende Ergebnisse gewonnen:

- Die Stabtemperatur in Scheibenebene ist im Vergleich zu der axialen Temperaturverteilung der Stäbe abgesenkt wegen des Strahlungsverlustes durch die Quarzfenster.
- Die Fenster halten der Thermoschockbeanspruchung stand; die Glasoberfläche wird durch das Wasser-Dampf-Medium wohl wegen des geringen Systemdruckes nur sehr gering angegriffen.
- Bis  $\sim 30\text{ sec}$  nach Flutbeginn ist eine ungestörte optische Beobachtung möglich.

Auf der Scheibe wird danach eine Benetzung beobachtet, die sich beginnend am unteren Scheibenrand von unten nach oben in Form eines fingerförmigen Wasserfilmes in Strömungsrichtung vorausschiebt. Eine Verbreitung des Filmes über die Scheibe erfolgt sehr zögernd ebenfalls von unten beginnend. Die Ursache hierfür ist in dem zwischenzeitig gemessenen Vorstehen der Scheibe in den Strömungskanal um 0,5 - 0,7 mm zu sehen. Durch Umlenkung der Tropfenströmung um diese Kante wird der Scheibe offensichtlich soviel Wärme entzogen, daß in Verbindung mit der sehr schlechten Wärmeleitung des Quarzes ein Benetzen an dieser Stelle und ein Ausbreiten in Strömungsrichtung möglich wird.

- Bei der Bildfrequenz von  $4000 \text{ s}^{-1}$  und einer Belichtungszeit von 25  $\mu\text{s}$  zeigen die Filme noch eine beträchtliche Bewegungsunschärfe.
- Nahezu konstant 3 sec nach Einleitung der Flutphase setzt die Dampfproduktion ein und führt zur gleichzeitigen Abnahme der bis zu diesem Zeitpunkt stationären Temperaturen. Nach etwa einer weiteren Sekunde werden die ersten Tropfen in der Strömung beobachtet, die zu Beginn einen Tropfendurchmesser bis zu 3 mm haben können. Die mittlere axiale Tropfengeschwindigkeit liegt bei 13 m/s.
- 15 - 20 sec nach Flutbeginn werden überwiegend Tropfen 1 mm  $\varnothing$  beobachtet. Die mittlere, axiale Tropfengeschwindigkeit liegt in Abhängigkeit von der Flutrate zwischen 20 und 40 m/s.
- Bei der Umströmung einer beulenförmigen Verformung an den Schmalseiten der Kastenwand ist eine Zunahme der Tropfendichte auf der Anströmseite in Beulennähe zu beobachten. Auf der Abströmseite ist diese Tropfenfahne bevorzugt zur Strömungskanalmitte gerichtet. Hinter der Beule ist in Wandnähe eine nahezu tropfenfreie Zone anzutreffen.

Weiteres Vorgehen:

- Zurücksetzen der Quarzscheibe, um vorzeitiger Benetzung zu begegnen.

- Wärmeeinstrahlung in Scheibenebene mittels Infrarot-Strahlen, um Scheiben aufzuheizen und Absenkung der Stabtemperaturen zu verhindern.
- Anwendung ultra kurzer Lichtblitze im ns-Bereich zur Filmbelichtung, um Bewegungsunschärfen zu eliminieren.

5. Organisation der Erfassung und Darstellung der Versuchsdaten

In Abstimmung mit den Möglichkeiten und Kapazitäten des zentralen Prozeßrechnersystems CALAS und in Zusammenarbeit mit dem ADI und PNS 4238 wurden der Versuchsablauf in Abschnitte eingeteilt und die jeweils notwendigen Meßdaten bzw. Meßstellen den möglichen Darstellungsarten zugeordnet.

Alle Daten der Anfahrphase und des 4 bis 10 Minuten dauernden instationären Experimentes werden in teilweise aufbereiteter Form für die spätere ausführliche Auswertung auf Band abgespeichert. Die Daten aus vier Meßstellen werden während des Versuchs aufbereitet und zur Verfolgung des Experimentablaufs auf zwei Bildschirmen in Kurvenform dargestellt. Zur ersten Beurteilung des Versuches dienen 30 Meßstellen, deren Daten unmittelbar nach Abschluß des Experimentes aufbereitet und ebenfalls in Kurvenform auf Bildschirm bzw. hard-copy dargestellt werden. Aufgrund dieser Ausgabe kann das Experiment wiederholt oder mit neuen Parametern fortgesetzt werden.

Zur Vereinfachung und besseren Reproduzierbarkeit des Versuchsablaufs werden vom Rechner während des Versuches Umrechnungen durchgeführt und Befehle gegeben. Die gemessenen Thermospannungen z.B. werden über die zyklisch gemessene Drift der Meßdatenerfassung korrigiert und für die on line-Darstellung in Grad Celsius umgerechnet. Der Zeitpunkt, zu dem der Flutwasserspiegel die Unterkante der beheizten Stabzone erreicht, wird aus Durchsatz, Bündelquerschnitt, Dehnung der aufgeheizten Stäbe und Signal eines davor liegenden Wasserspiegeldetektors errechnet. Dieser für die Auswertung wichtige Zeitpunkt wird außerdem für Befehle wie z.B. Kamerastart verwendet.



Die Anpassung des im letzten Halbjahresbericht beschriebenen, in der Schaltwarte neben dem Kreislauf installierten schnellen Datenerfassungssystems an das zentrale Rechnersystem verursachte unvorhergesehene und noch nicht restlos geklärte Schwierigkeiten. Der Wiedereinbau in die Schaltwarte erfolgte im Dezember. Die Funktionstests sind noch im Gange.

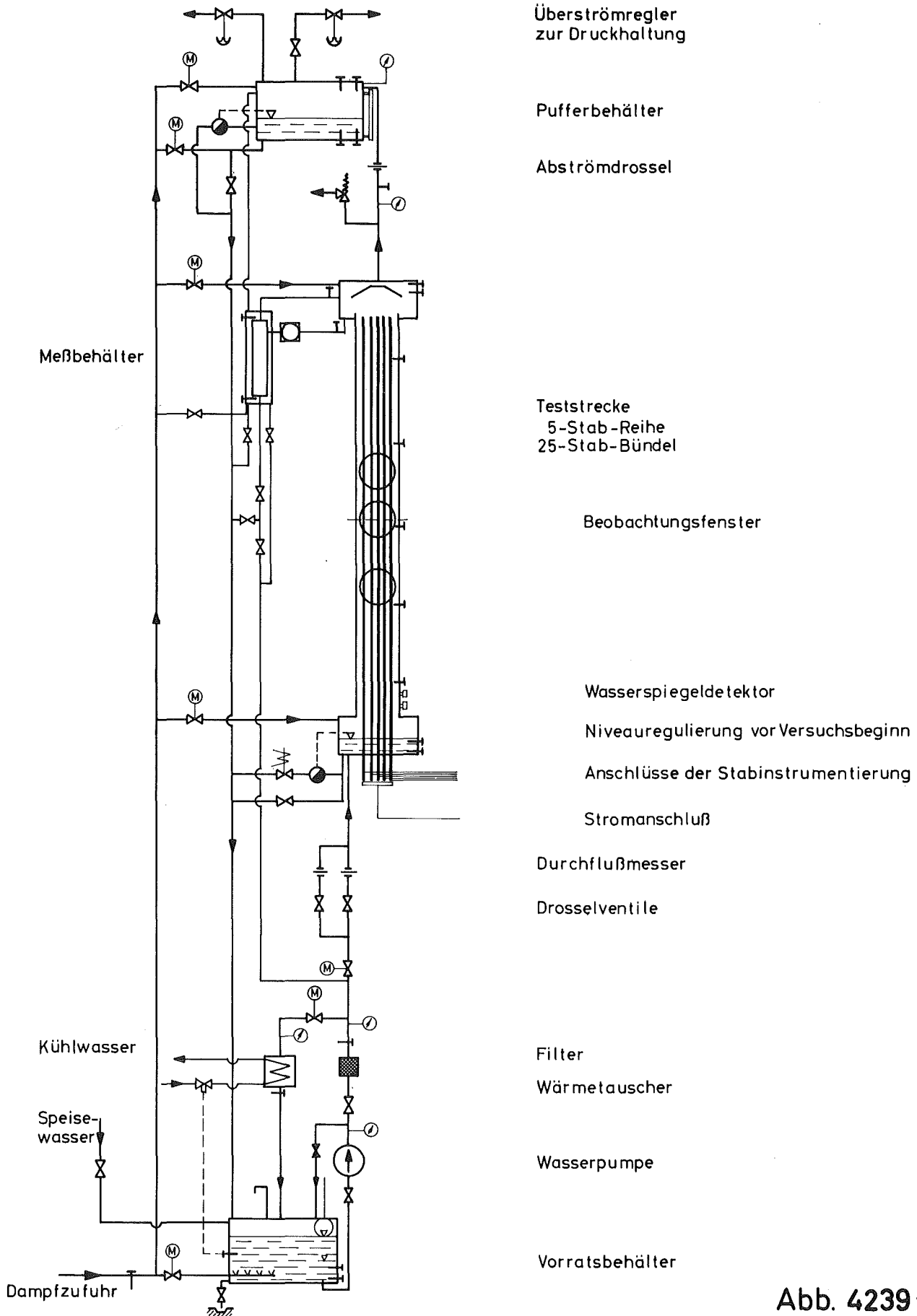
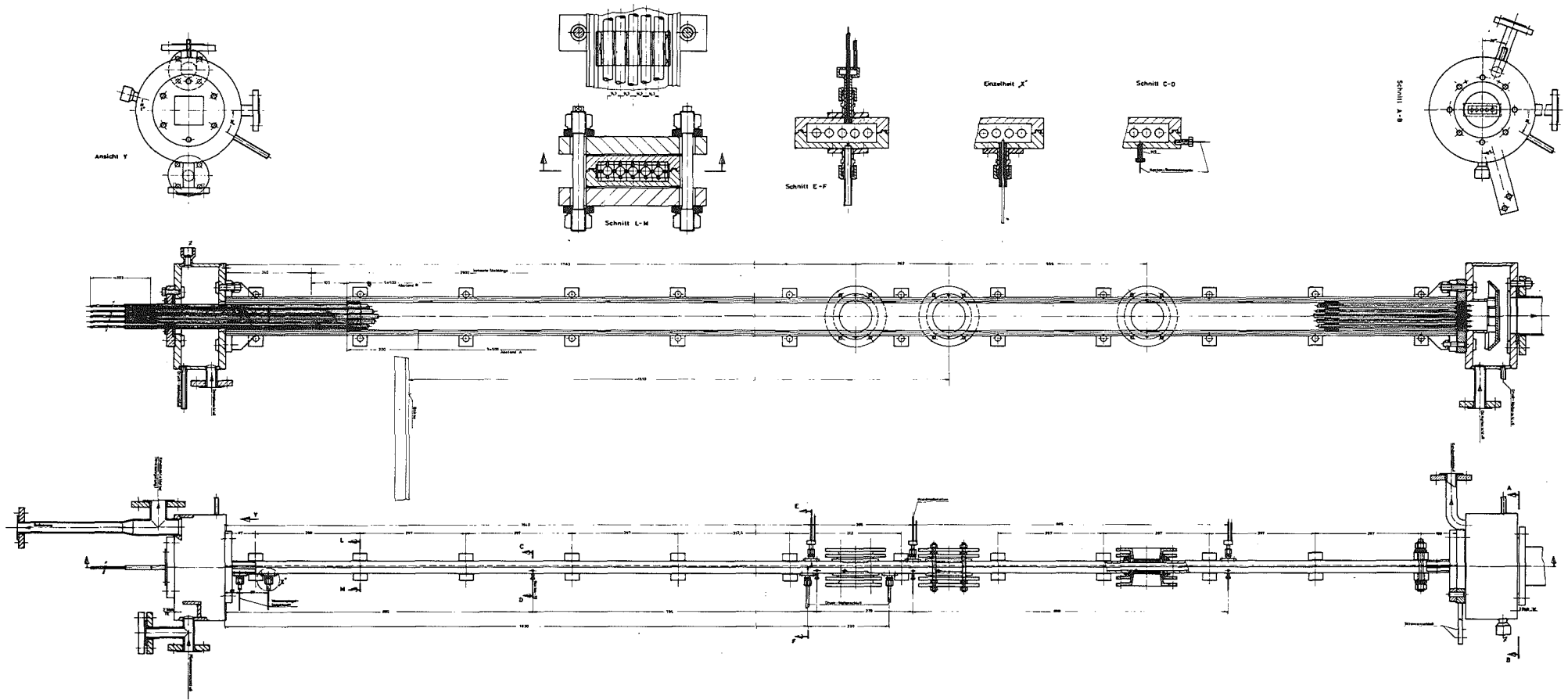


Abb. 4239 - 1

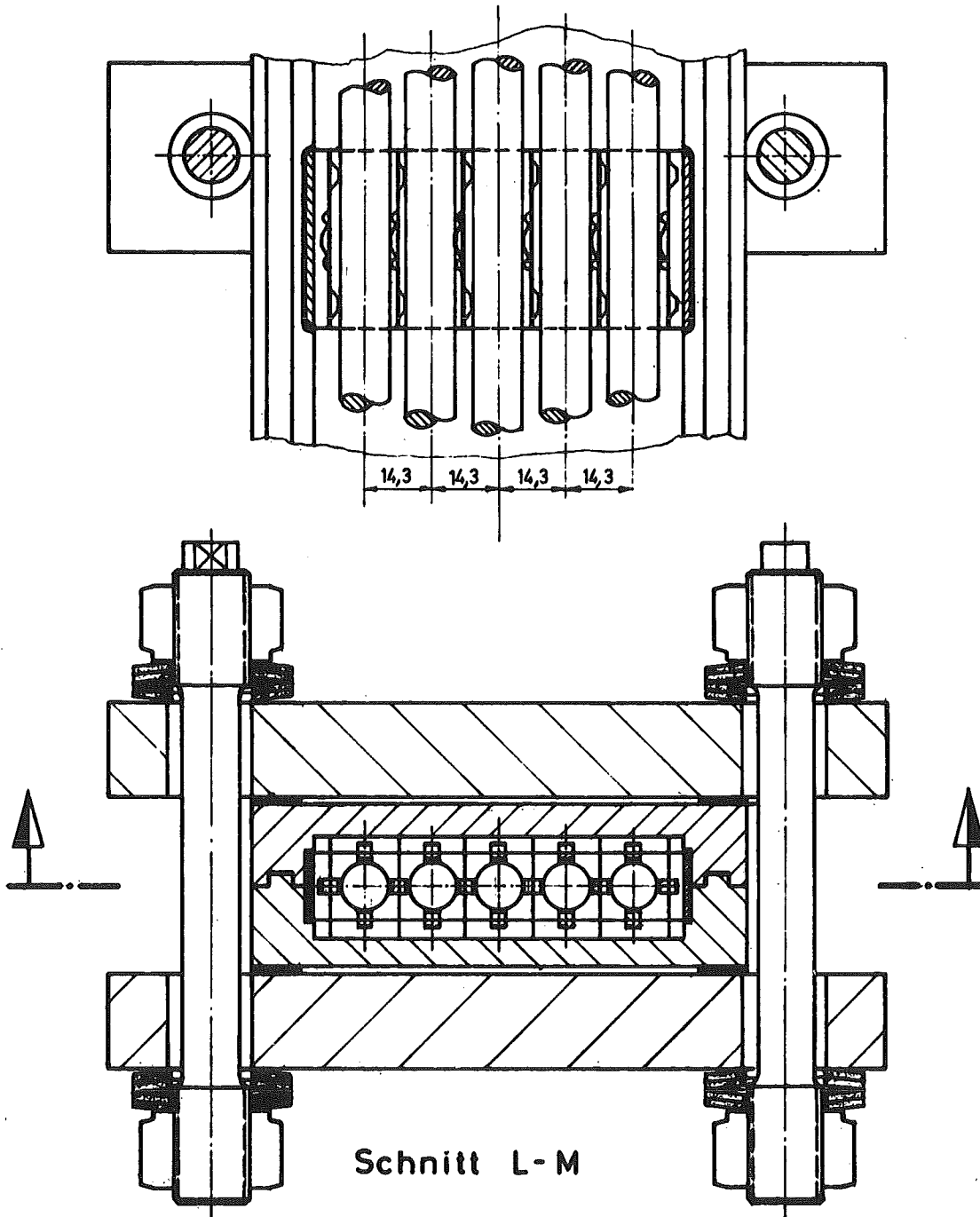
**Wärmeübergang in der Flutphase bei blockierten Kühlkanälen  
Schema des Versuchskreislaufs**



Wärmeübergang in der Flutphase bei blockierten Kühlkanälen

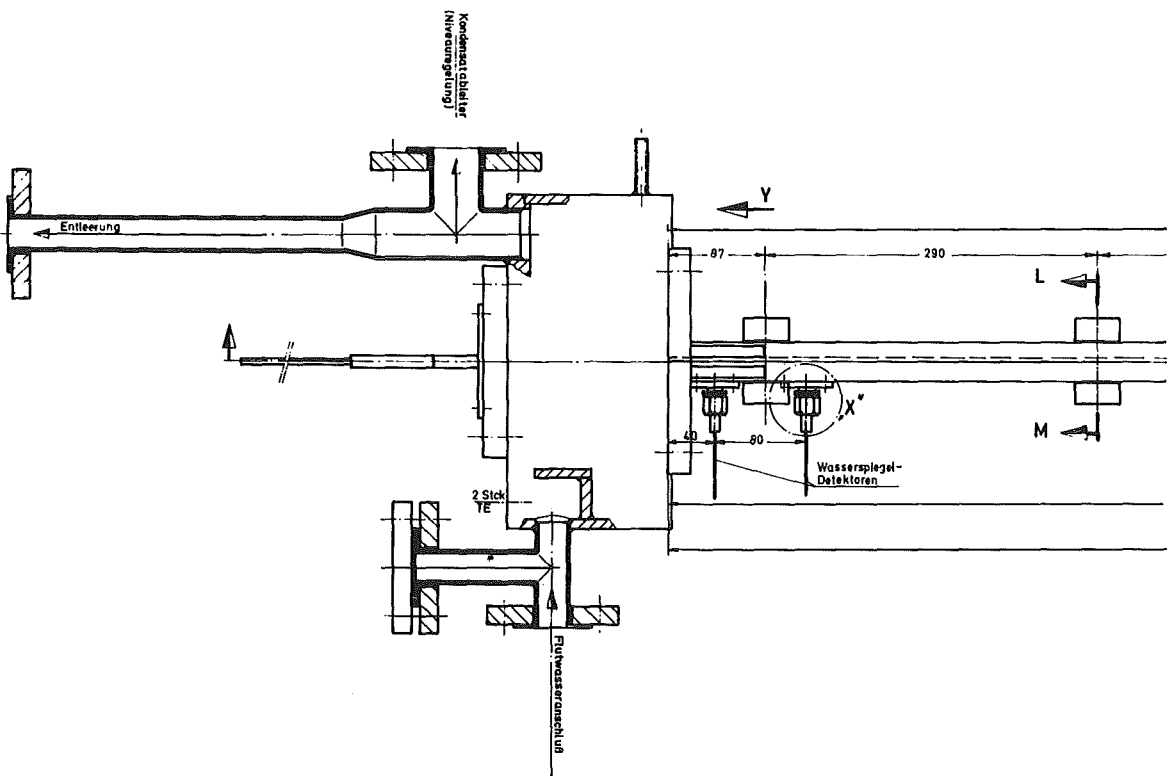
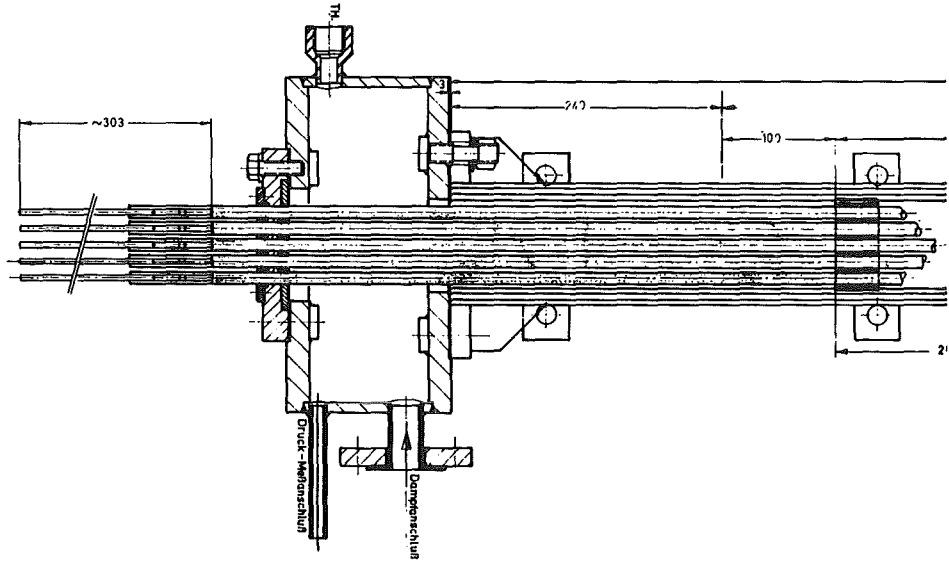
Teststrecke

Abb. 4239-2

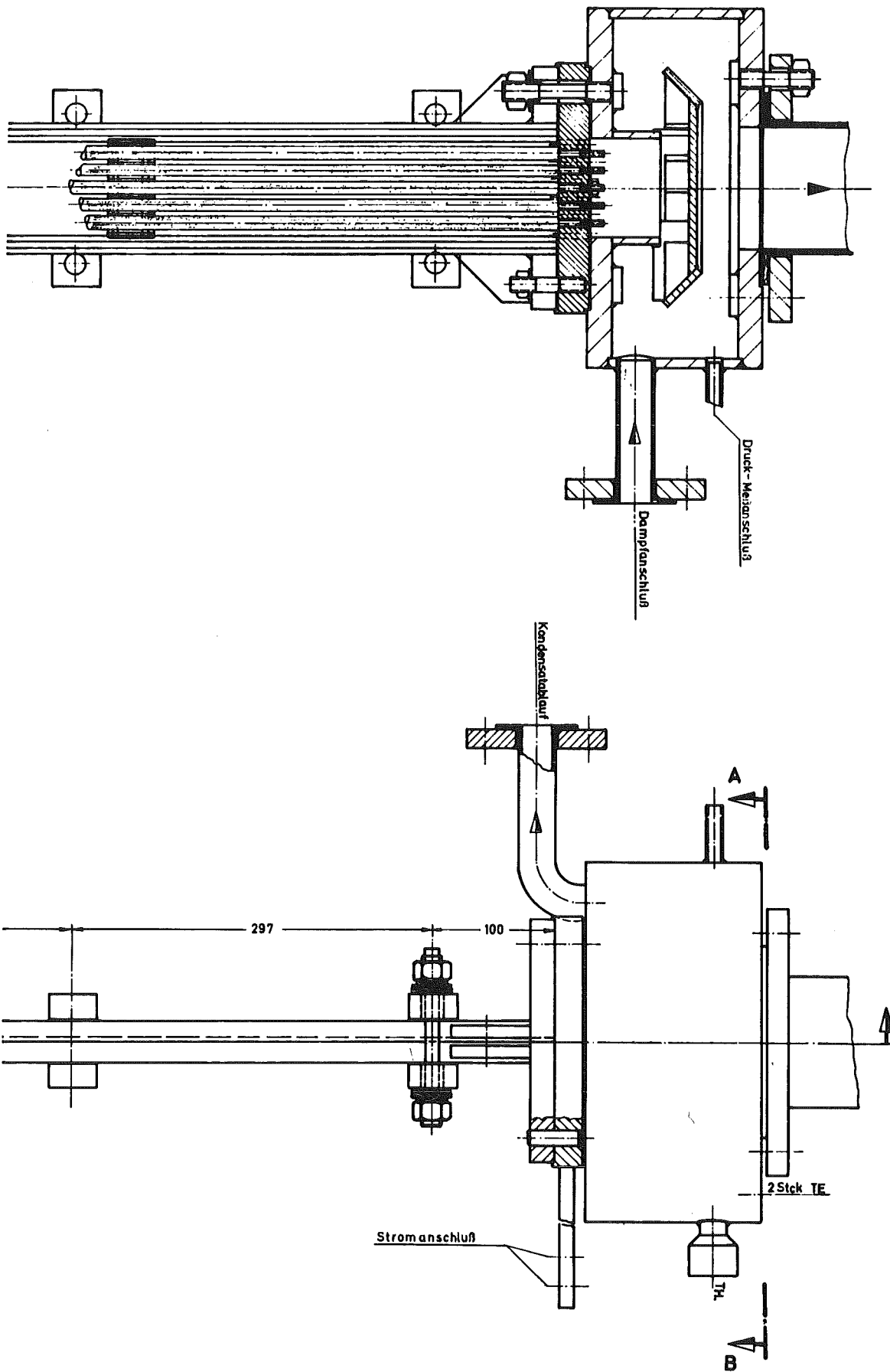


Teststrecke - Querschnitt

Abb. 4239 - 2a

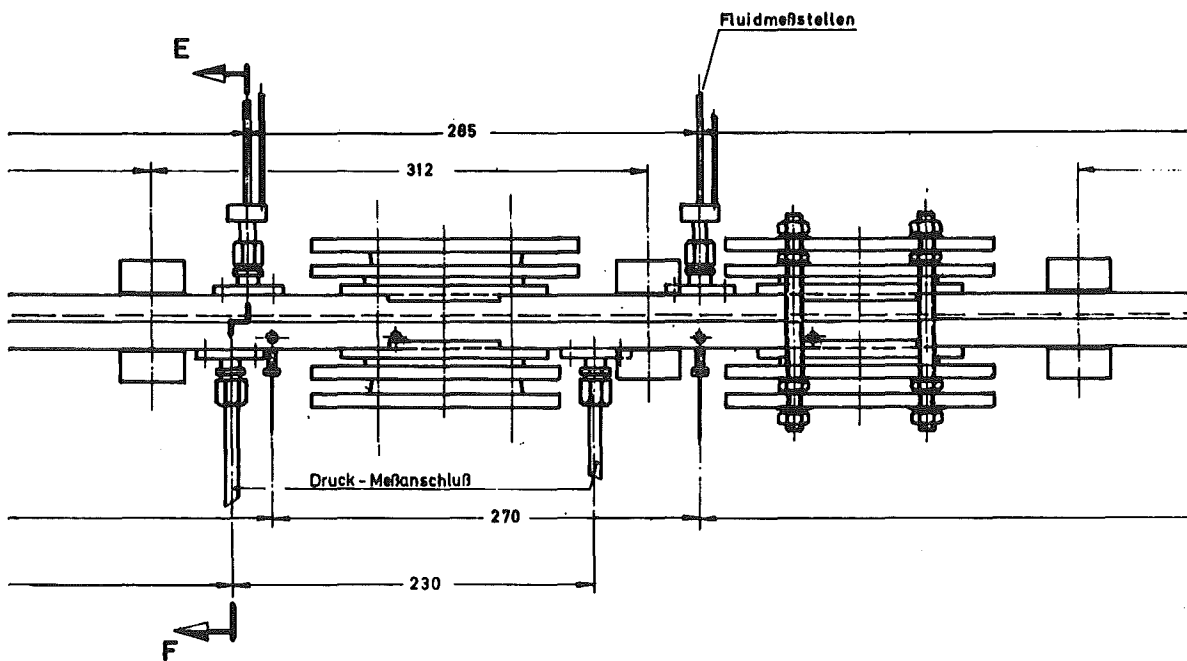
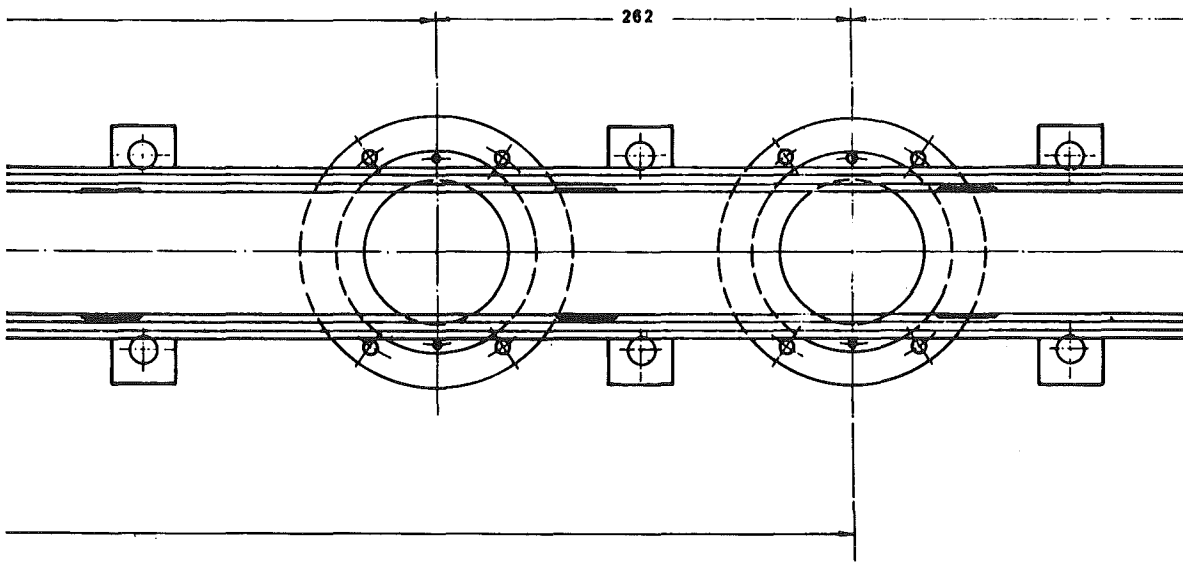


Teststrecke - Anströmseite



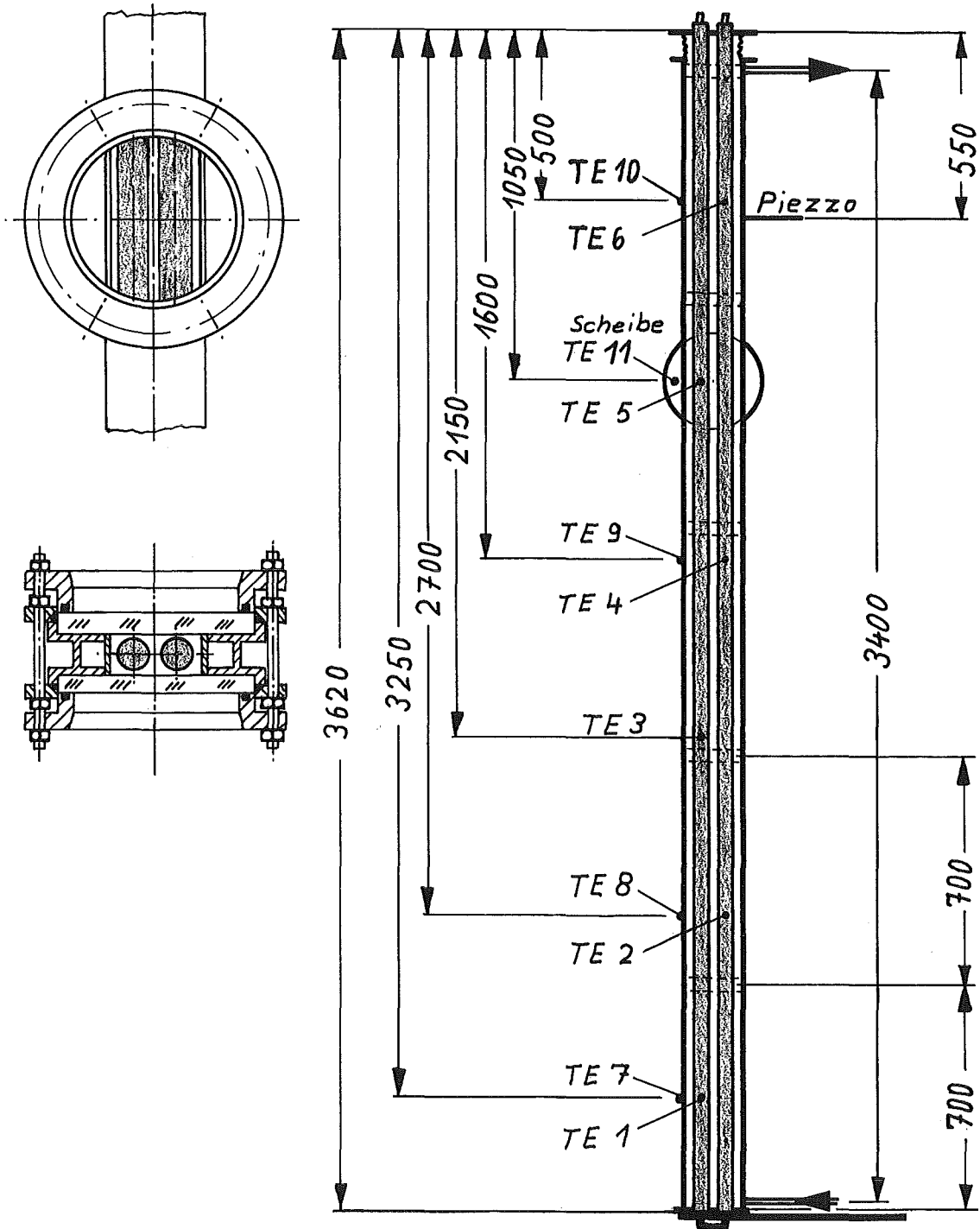
Teststrecke - Abströmseite

Abb.42 39 - 2 d



Teststrecke - Beobachtungsfenster

Abb. 4239 - 2 c



Versuchsanordnung zur  
Entwicklung der Aufnahmetechnik



4240 Coreschmelzen von LWR

4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von  $UO_2$ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung  
(S. Hagen, A. Mack, E. Mackert, H. Malauschek, K. Wallenfels, RBT)

### 1. Einleitung

Wie die bis jetzt durchgeführten Versuche gezeigt haben, wird das Abschmelzverhalten wesentlich durch die metallurgische Wechselwirkungen zwischen den  $UO_2$ -Pellets und der Zircaloy-Hülle, aber auch der umgebenden Atmosphäre bestimmt. In den vorherigen Halbjahresberichten haben wir über das Abschmelzverhalten in Schutzgas, das fehlende oxidierende Atmosphäre simulieren sollte, und Luft berichtet. In diesem Halbjahresbericht werden erste Ergebnisse zum Abschmelzverhalten von Einzelstäben in Wasserdampf und von Einzelstäben in Kontakt mit den Abstandshaltern in Schutzgas, in Luft und in Wasserdampf mitgeteilt. Durch das Inconel des Abstandshalters entstehen weitere Möglichkeiten der Legierungsbildung, die wiederum durch die umgebende Atmosphäre beeinflusst werden.

### 2. Versuche in Wasserdampf

Wie Abschätzungen (1) gezeigt haben, kann das Dampfangebot in den verschiedenen Bereichen des Unfallcores stark variieren. Bei den im folgenden beschriebenen Versuchen haben wir die Versuchsbedingungen so gestaltet, daß Dampf im Überschuß vorhanden war, d.h. es stand erheblich mehr Dampf für die Metall-Wasserdampfreaktion zur Verfügung, als bei der höchsten Temperatur verbraucht werden konnte. Dazu wurde der Stab mit einer ringförmigen Schale (Abb. 9) umgeben, in der das Wasser durch eine Heizspirale entsprechend erhitzt werden konnte. (Das Zirkon-Heizrohr war nur bei den Abstandshalterversuchen vorhanden.)

Die Aufheizgeschwindigkeit wurde bei der ersten Serie der Versuche in Wasserdampf zu  $0,5 \text{ } ^\circ\text{C}/\text{sec}$  gewählt. Dies entspricht der niedrigsten Temperaturanstiegsgeschwindigkeit, die man beim hypothetischen Kernschmelzenunfall erwartet. Um die Entwicklung der Einwirkung des Wasserdampfes beobachten zu können, wurden die Stäbe jeweils bis zu einer Maximaltemperatur im

Bereich von 1800 °C bis 1950 °C aufgeheizt. Die Ergebnisse sind in Abb. 1 wiedergegeben.

Ebenso wie in Luft bildet sich auch in Wasserdampf eine Oxidschicht, die den Stab umschließt. Vom äußeren Aussehen her hat sie aber nicht die rauhe, pockennarbige Oberfläche, wie die der in Luft aufgeheizten Stäbe, sondern sie erscheint vollkommen glatt. Die im Wasserdampf entstandene Schicht scheint gegenüber der in Luft entstandenen auch länger fest zu sein, denn in ihr wurden selbst bei 1950 °C noch nicht die kleinen Löcher und Risse gefunden, aus der das im Stabinnern entstandene Schmelzgut langsam abfließen kann.

Zum Vergleich sind in Abb. 3 je 2 in Luft und Wasserdampf aufgeheizte Stäbe wiedergegeben. Der jeweils linke Stab wurde bis zu einer Temperatur aufgeheizt, bei der die Oberfläche noch unversehrt blieb, während der rechte Stab bis zur Maximaltemperatur der jeweiligen Versuchsserie aufgeheizt wurde. Man sieht deutlich den Unterschied zwischen der rauhen, pockennarbigen Schicht und der selbst bei 1950°C noch vollkommen glatten Oberfläche.

Die rauhe Oberfläche der in Luft erzeugten Hülle entsteht wahrscheinlich bei der gleichzeitigen Reaktion von Sauerstoff und Stickstoff mit dem Zircaloy. Eine Hülle aus Zirkonoxid und Zirkonnitrid gemischt, wie sie in Luft entsteht, scheint viel weniger glatt und fest zu sein, als eine reine Oxidhülle oder eine reine Nitridhülle. Abb. 2 zeigt die Entwicklung der in reinem Stickstoff aufgeheizten Stäbe. Die Risse bei dem in Stickstoff bis 2200 °C aufgeheizten Stab entstanden erst beim Abkühlen.

### 3. Versuche mit Einzelstäben in Kontakt mit dem Abstandshalter

Im Druckwasserreaktor werden die Brennstäbe durch Abstandshalter aus Inconel in die gewünschte Position gebracht. Der vertikale Abstand der Abstandshalter beträgt ca. 50 cm.

Inconel besteht im wesentlichen aus 73 % Nickel, 15 % Chrom und 7 % Eisen. Nickel bildet 4 Eutektika mit Zirkon: Schmelzpunkt bei 960 °C (75,9 Atom %), 1010 °C (36,3) und 1170 °C (8,8). Chrom bildet 2 Eutektika mit Zirkon: Bei ca. 950 °C (76 %) und 1300 °C (8,8 %).

Es kann also auch an der Grenzfläche Hüllrohr-Abstandshalter durch die Wechselwirkung zwischen Zircaloy und Inconel zum Anschmelzen der Hülle weit unter der Schmelztemperatur des Zircaloy kommen. Es ist aber dabei zu beachten, daß das Einstellen der für die Schmelzpunkterniedrigung notwendige Konzentration ein Prozeß ist, der erst beim Aufheizen abläuft. Ferner können entstandene Oxidschichten einen merklichen Einfluß auf die metallurgische Wechselwirkung und damit auf das Abschmelzverhalten besitzen.

Um die zeitliche Entwicklung des Abschmelzens des Hüllrohres durch den Abstandshalter zu untersuchen, haben wir in Schutzgas in einer ersten Serie den Brennstabsimulator zusammen mit dem Abstandshalter auf jeweils 1000, 1150, 1250 und 1600 °C erhitzt. Um einen flachen radialen Temperaturgradienten zu erhalten, wurden Brennstabsimulator und Abstandshalter gemeinsam mit einem Heizrohr aus Zirkon umgeben.

Die Ergebnisse dieser Versuchsreihe sind in Abb. 4 wiedergegeben. Bei 1000 °C sind von außen noch keine Anschmelzerscheinungen zu bemerken. Auf der Vergrößerung, Abb. 5, sieht man aber an den Berührungsstellen einen Angriff am Abstandshalter. Beim Einblick von oben oder unten unter den Abstandshalter erkennt man an diesen Stellen kleine Löcher in der Zircaloy-Hülle.

Bei 1150 °C sind schon große Bereiche des Abstandshalters mit der Hülle zusammengeschmolzen, wie es sich noch deutlicher auf Abb. 6, einer Vergrößerung der Rückseite dieses Stabes zeigt. Bei diesen Temperaturen hat sich der Angriff auf das Zircaloy praktisch auf den Bereich des Abstandshalters beschränkt.

Bei 1250 °C ist der ganze innere Bereich des Abstandshalters, der sich in der Nähe des Stabes befindet, abgeschmolzen, und die Schmelze beginnt am Stab hinunterzulaufen (Abb. 6 + 7). Dabei wird auch in dem Bereich unterhalb des Abstandshalters das Hüllrohr angeschmolzen.

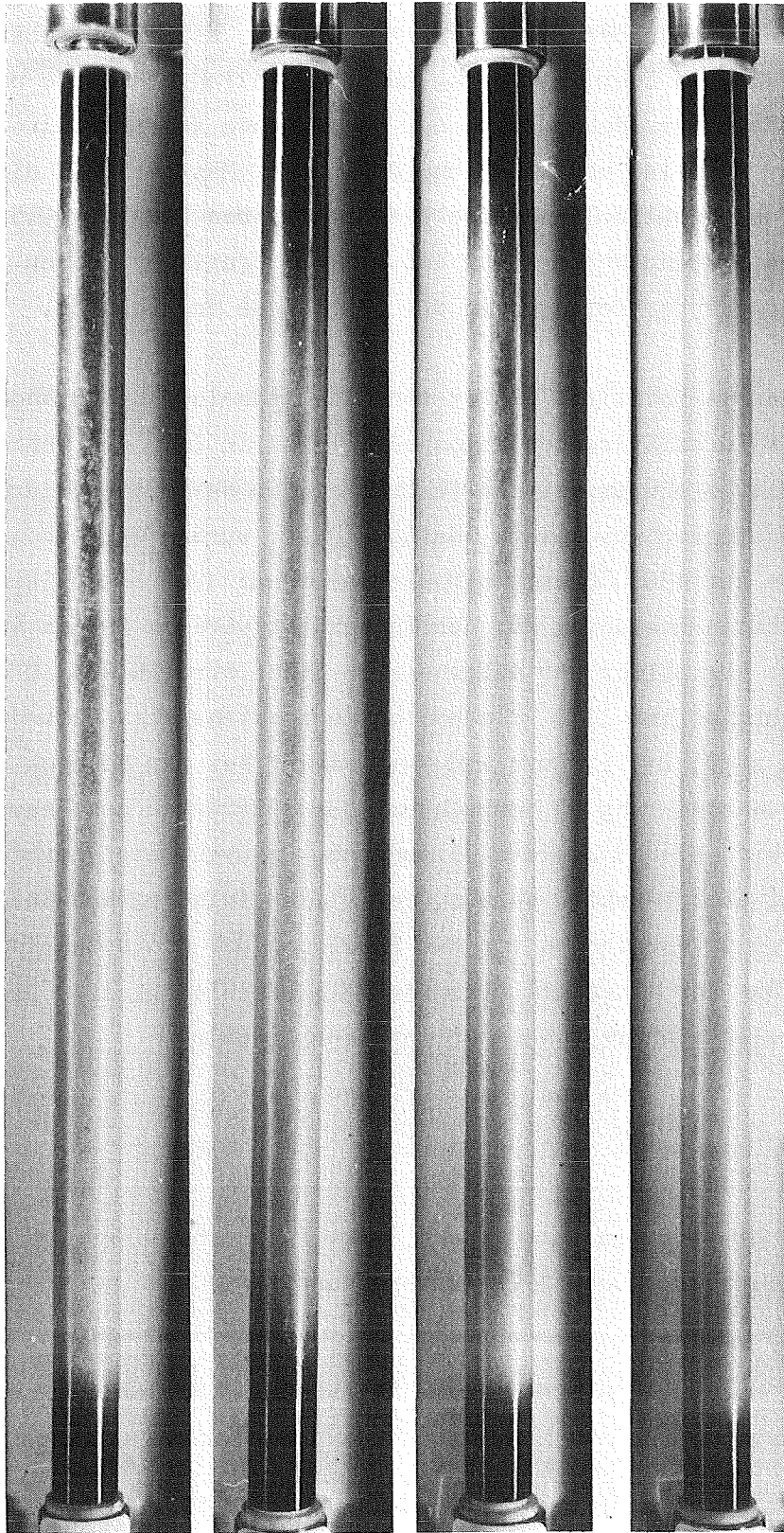
Bei 1600 °C ist der ganze Abstandshalter abgeschmolzen. Durch die herabfließende Schmelze wurde praktisch der ganze untere Stab angegriffen. Die erstarrte Schmelze am unteren Ende des Stabes deutet darauf hin, daß bei einem längeren Stab die Schmelze über einen noch viel längeren Bereich hinuntergelaufen wäre. (Die bei dieser Versuchsreihe verwendeten Stäben waren 24 cm lang.)

Die nach dem Abfließen der Abstandshalterschmelze stehengebliebene Wandstärke der Hülle ist über den Umfang unterschiedlich stark. Je nachdem gegen welche Seite des Rohres sich der schmelzende Abstandshalter lehnt, wird dort mehr Schmelze abfließen und damit mehr Material auf dieser Seite des Zircaloy-Hüllrohres aufgelöst. An kleinen Stellen ( $0,5 \text{ cm}^2$ ) im Bereich des Abstandshalters war das Hüllrohr ganz abgetragen. Es zeigten sich sogar leichte Vertiefungen in der Oberfläche des Pellets.

Ein völlig anderes Verhalten findet man beim Aufheizen des Stabes mit Abstandshalter in oxidierender Atmosphäre, d.h. in Luft und Wasserdampf. Bis jetzt wurde je ein Experiment in Luft und in Wasserdampf durchgeführt. Bei einer Aufheizgeschwindigkeit von  $0,5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{sec}$  wurden Stab und Abstandshalter in Luft auf  $1300 \text{ }^\circ\text{C}$  und in Wasserdampf auf  $1200 \text{ }^\circ\text{C}$  erhitzt. Die experimentelle Anordnung für den Wasserdampfversuch ist in Abb. 9 wiedergegeben. Die Bilder der aufgeheizten Stäbe sind in Abb. 8 dargestellt. Obwohl in Schutzgas bei  $1150 \text{ }^\circ\text{C}$  schon große Bereiche des Abstandshalters angeschmolzen sind, ist in Luft und Wasserdampf bei den höheren Temperaturen noch keine Wechselwirkung zu beobachten. Das Eindringen des Inconels ins Zircaloy wird hier durch die Bildung von Oxidschichten verhindert. Es muß hierbei aber beachtet werden, daß kleine Aufheizgeschwindigkeiten die Bildung von Oxidschichten vor dem Erreichen der kritischen Temperaturen begünstigen. Das Verhalten bei hohen Aufheizgeschwindigkeiten und hohen Temperaturen wird zukünftig noch zu untersuchen sein.

#### Literatur:

- (1) Bericht über Arbeiten zum Projekt Reaktorsicherheit und Umweltschutz  
Zeitraum Sept. bis Dez. 1972 (unveröffentlicht)



1800

1850

1900

1950

Abb.: 1

PNS  
4241

In Wasserdampf aufgeheizte Stäbe.  
Die Oberflächentemperatur der Hülle er-  
reichte die jeweils angegebenen Werte.

GfK  
RBT



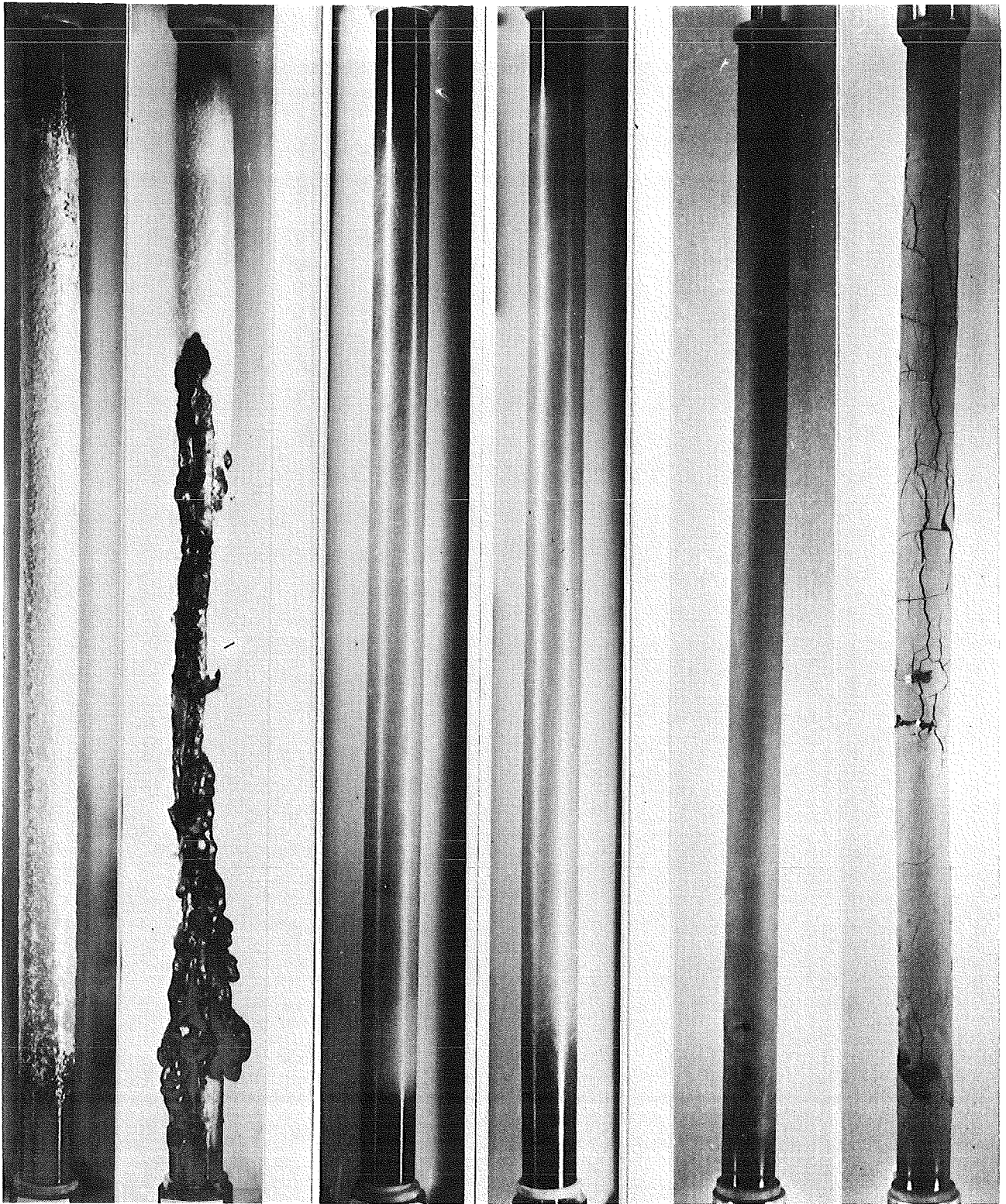
Abb.: 2

PNS  
4241

In Stickstoff aufgeheizte Stäbe.  
Die Oberflächentemperatur der Hülle er-  
reichte die jeweils angegebenen Werte.

GfK  
RBT





1800 2000  
Luft

1900 1950  
Wasserdampf

1850 2200 °C  
Stickstoff

Abb.: 3

PNS  
4241

Vergleich der Oberfläche von in Luft,  
Wasserdampf und Stickstoff aufgeheizten  
Brennstabsimulatoren.

GfK  
RBT

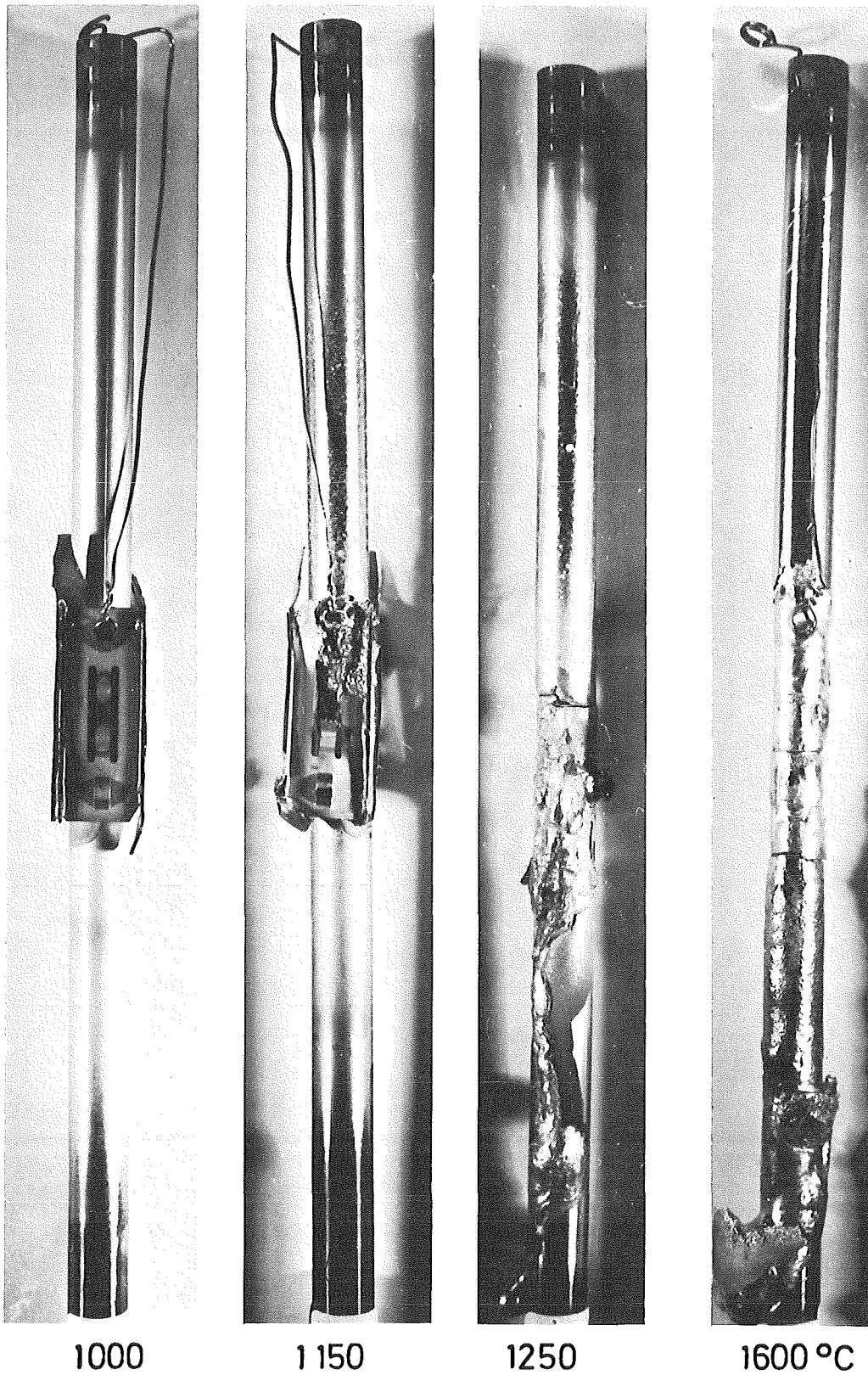


Abb.: 4

PNS  
4241

Einfluß des Abstandshalters auf das  
Abschmelzverhalten in Schutzgas. Ver-  
schiedene Maximaltemperaturen.

GfK  
RBT



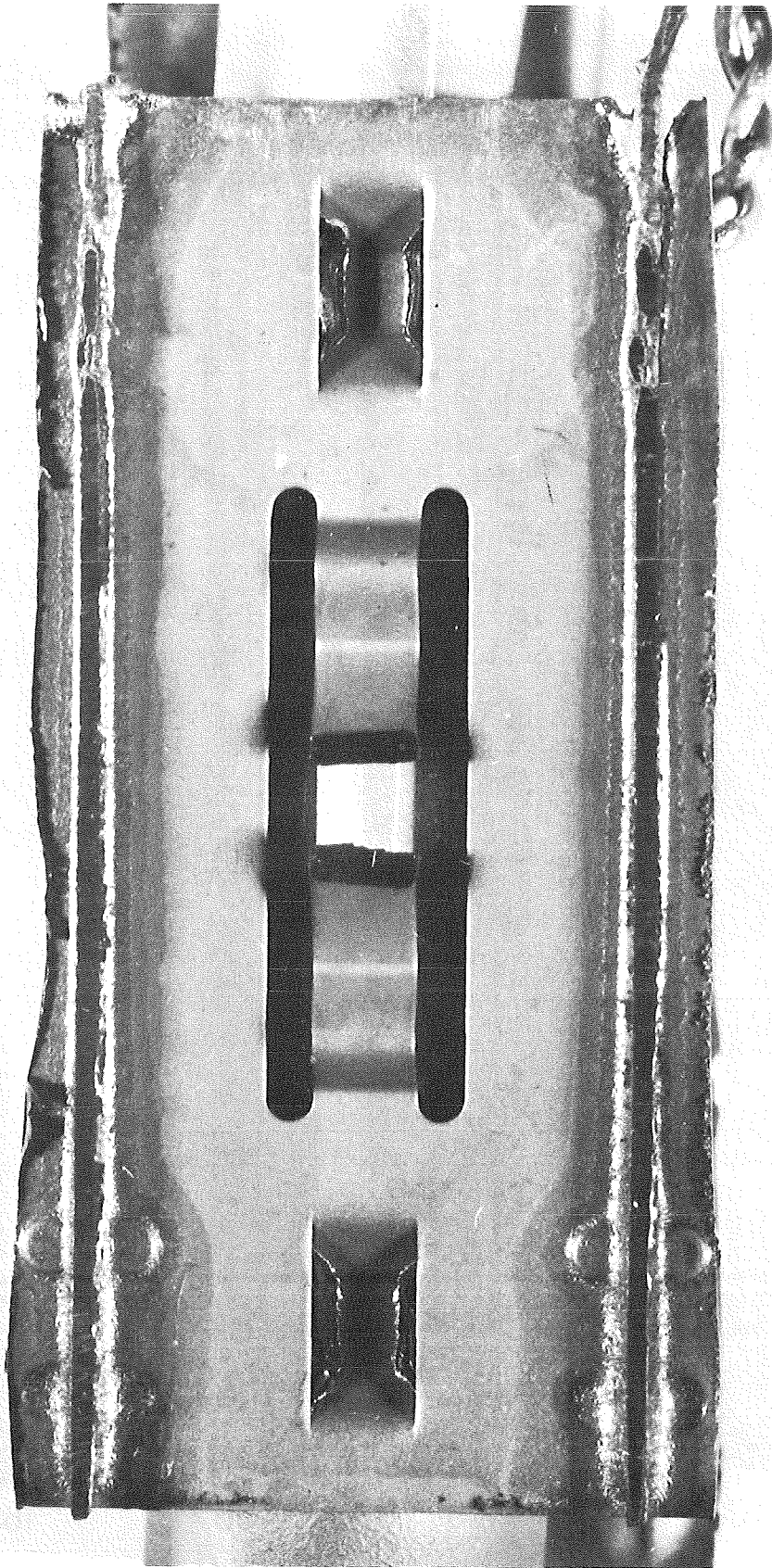


Abb.: 5

PNS  
4241

Beginn der Wechselwirkung Inconel-Zircaloy an der Berührungsstelle Abstandshalter Hülle bei ca. 1000°C in Schutzgas.

GfK  
RBT

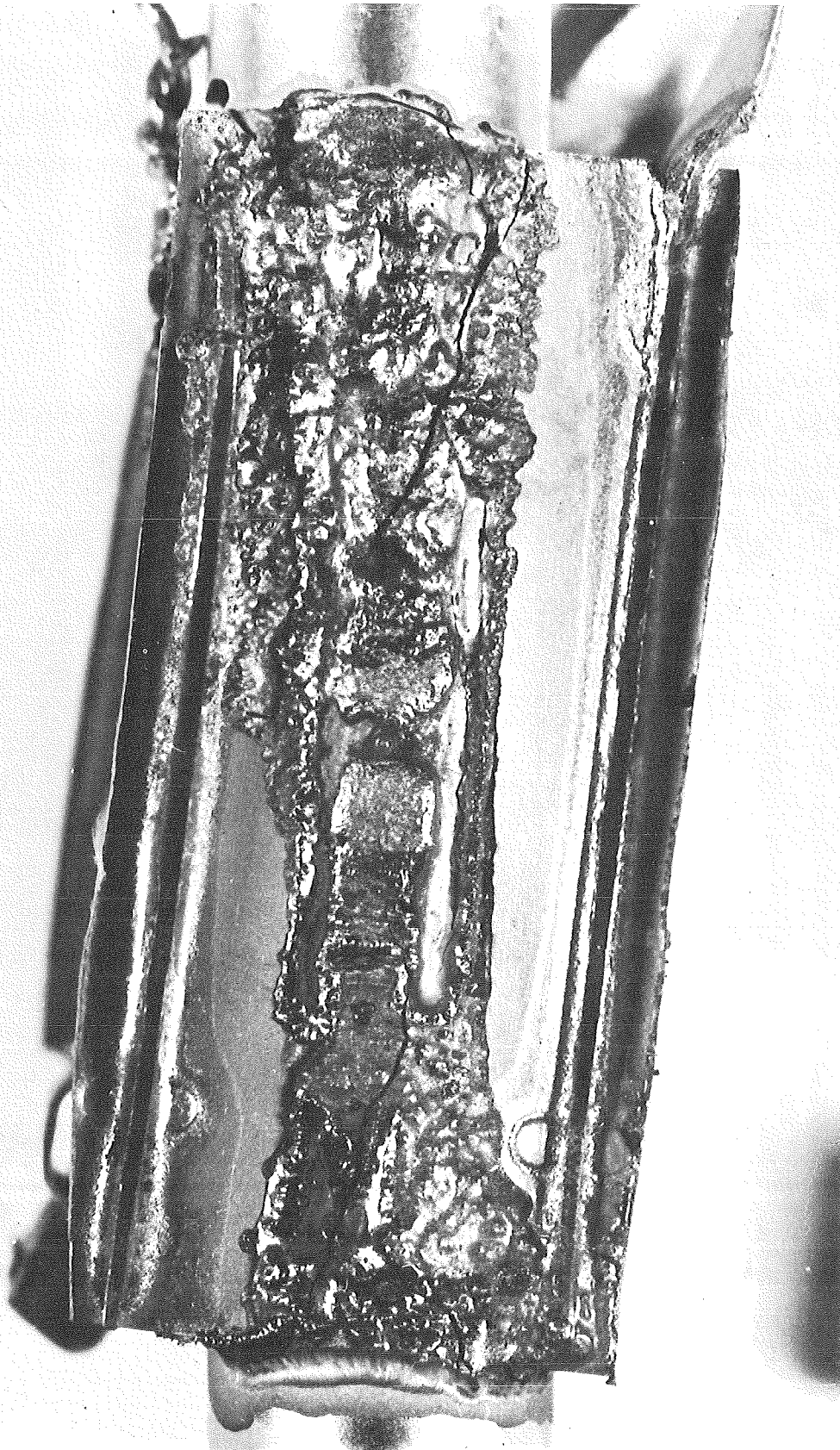
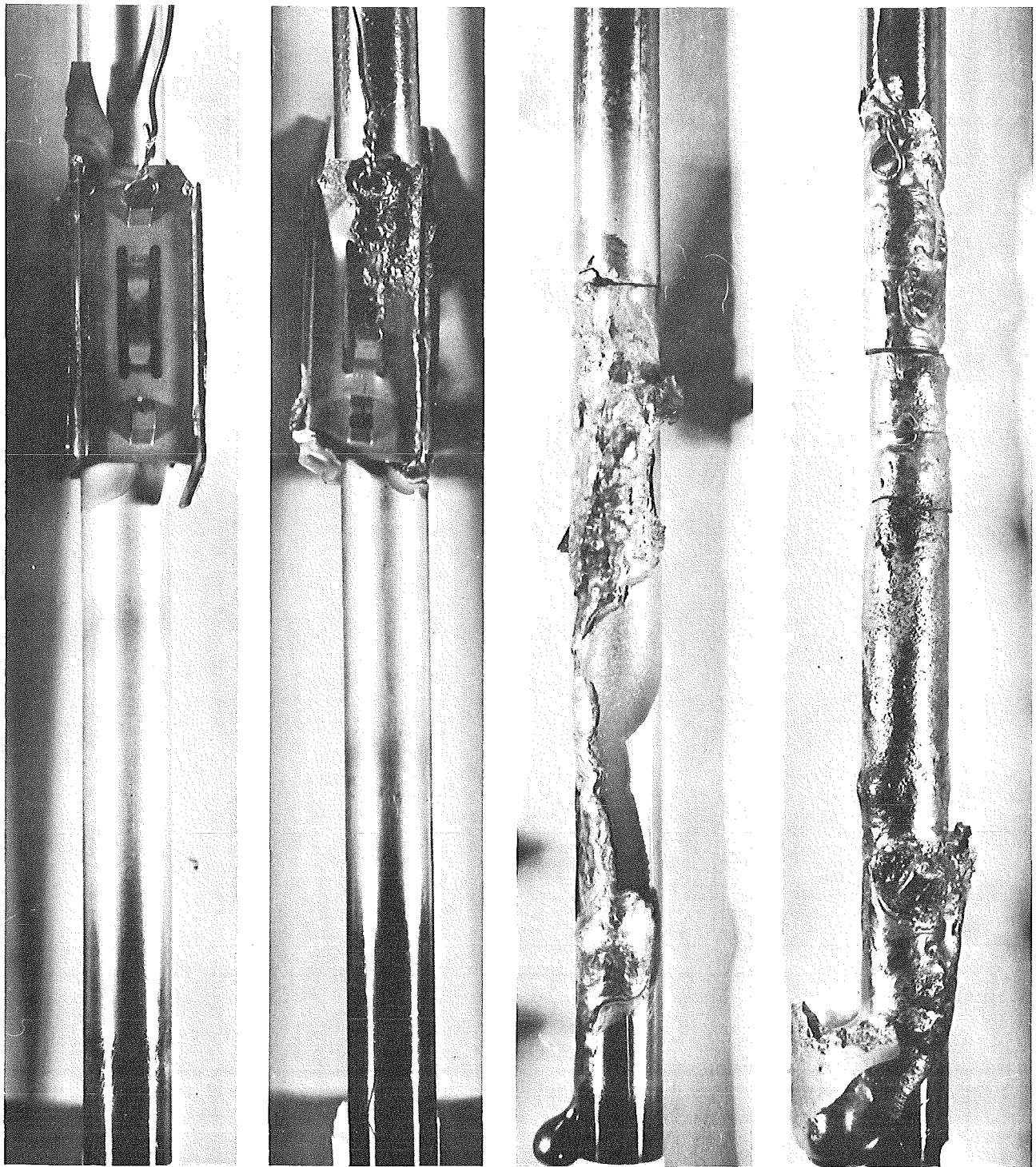


Abb .: 6

PNS  
4241

Abschmelzverhalten des Abstandshal-  
ters in Schutzgas bei 1150°C

GfK  
RBT



1000

1150

1250

1600°C

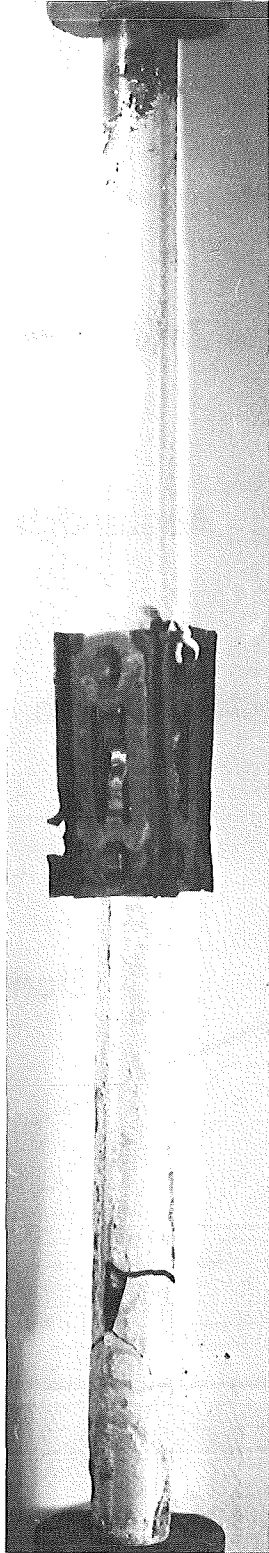
Abb.: 7

PNS  
4241

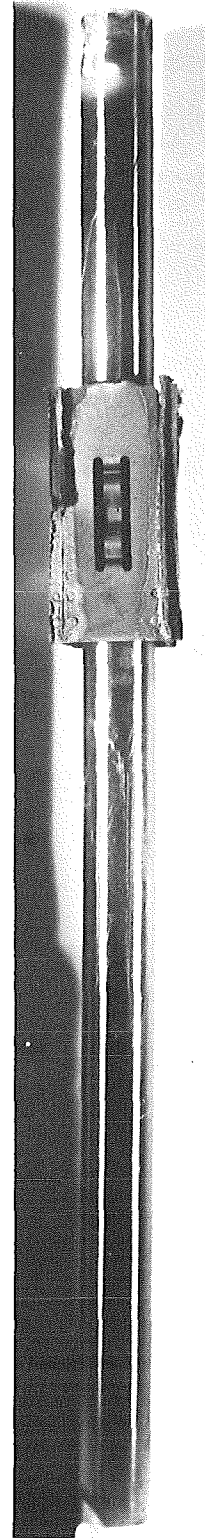
Vergrößerte Darstellung der Abschmelzversuche mit Abstandshaltern in Schutzgas.

GfK  
RBT





Luft  
1300°C



Wasserdampf  
1200°C

Abb.: 8

PNS  
4241

In Luft und Wasserdampf in Kontakt  
mit den Abstandhaltern aufgeheizte  
Einzelstäbe.

GfK  
RBT

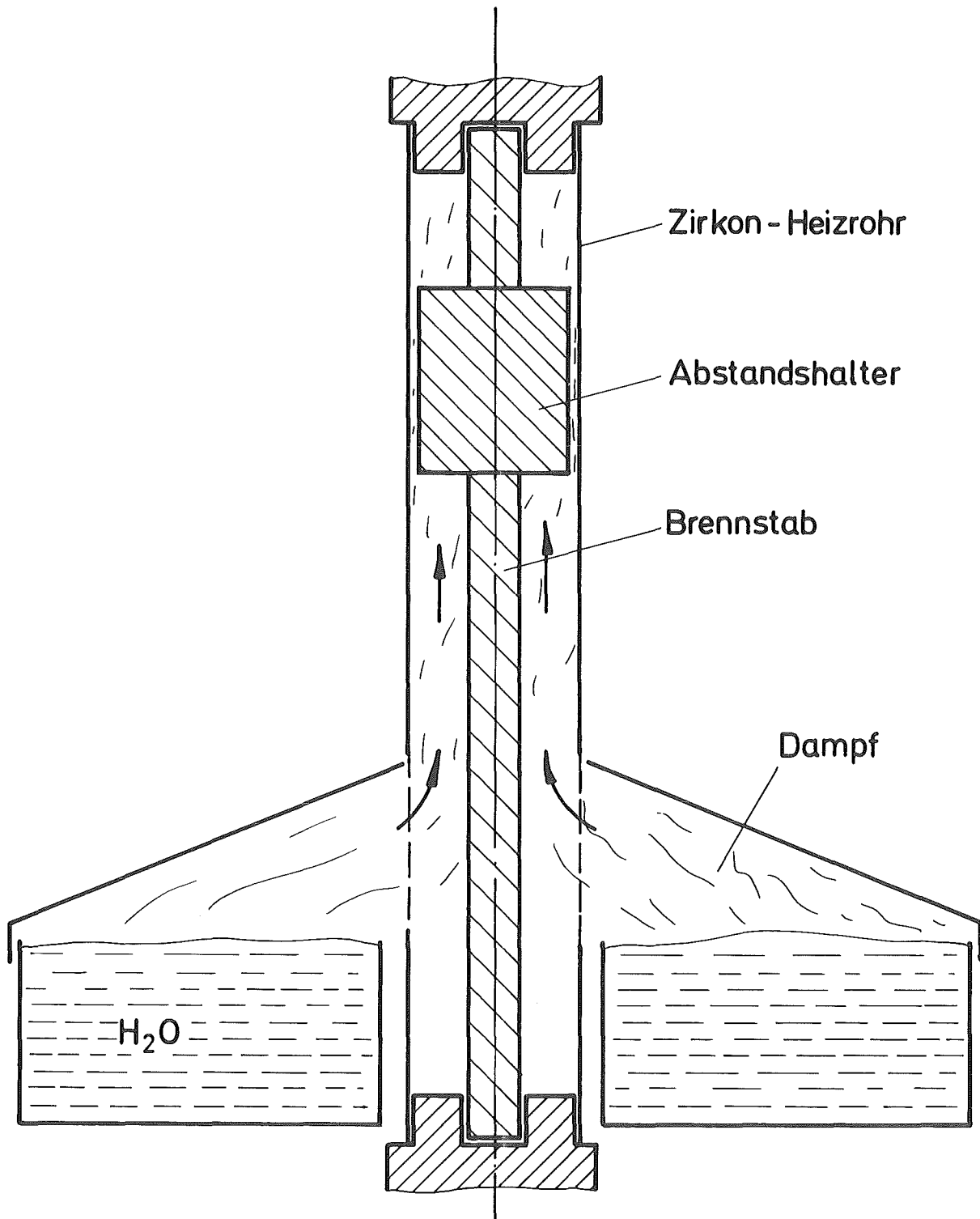


Abb.: 9

PNS  
4241

Schematische Darstellung der Versuchsanordnung für die Abschmelzversuche in Wasserdampf.

GfK  
RBT

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

(H. Albrecht, W. Krause, H. Wild, IRCH; D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT; M.F. Osborne<sup>+</sup>)

### Einleitung

Um Aussagen über die radiologischen Folgen eines hypothetischen Coreschmelzen-Unfalls zu erhalten, wird ein Versuchsprogramm durchgeführt, das der Bestimmung des freigesetzten Anteils des Aktivitätsinventars eines LWR-Cores dient. Neben der quantitativen Erfassung der einzelnen Elemente sollen auch Aussagen über die physikalische und chemische Form der Freisetzungserzeugnisse gewonnen werden, die für die Ausbreitung dieser Erzeugnisse im Containment und in der Umgebung von Bedeutung sind. Ferner ist die Entwicklung von Maßnahmen zur Begrenzung der Freisetzung vorgesehen.

Nach den im 1. Halbjahr 1975 erfolgreich durchgeführten Testversuchen mit der neu installierten Schmelzanlage SASCHA (1,2) konnte gegen Ende des Berichtszeitraumes mit ersten Freisetzungserzeugnissen begonnen werden. Zuvor jedoch mußte die Versuchsanlage durch eine Reihe von technischen Einrichtungen ergänzt werden, was noch zahlreiche mechanische und elektrische Installationsarbeiten erforderte.

Zu den wichtigsten Aufbauarbeiten gehörten

- die Montage je einer Handschuhbox für den Deckelbereich des Ofens sowie für die Spaltprodukt-Transport- und -Filterstrecke
- der Einbau von Temperatur- und Durchflußmeßgeräten in den Ölkühlkreis der Schmelzanlage
- die Installation eines Wärmeleit-Gasanalysators zur Überwachung der H<sub>2</sub>-Konzentration in den Ofenabgasen; dabei werden mit Hilfe eines speziellen Dosiersystems bis zu 20 Nm<sup>3</sup> gefilterte Raumluft zugespeist, damit der H<sub>2</sub>-Anteil in der Abluft stets unter der Zündgrenze von 4 % bleibt

---

<sup>+</sup>) Delegierter der US-NRC

- die Einrichtung einer optischen und akustischen Aktivitätsüberwachung der Raumlufte.

Abbildung 4243-1 zeigt eine Gesamtansicht der Versuchsanlage. Im Folgenden werden die ersten Freisetzungsversuche mit inaktivem Corium sowie die zur Auswertung angewandte radiochemische Analysetechnik beschrieben (Abschnitte 1 und 2); ferner werden die Versuche zur Ermittlung und Verbesserung des Betriebsverhaltens der Schmelzanlage einschließlich der Temperatur-Meßtechnik dargestellt (Abschnitt 3) und der Aufbau einer Anlage zur Herstellung von schwach aktivem Fissium erläutert. (Abschnitt 4).

### 1. Freisetzungsversuche mit inaktivem Corium

Freisetzungsversuche mit inaktivem Schmelzgut wurden durchgeführt, um die Funktionsweise der Transport- und Filterstrecke (vgl. (2,3)) unter verschiedenen Betriebsbedingungen zu testen und um Aussagen darüber zu gewinnen, in welchem Ausmaß die Hauptkomponenten der Coreschmelze, nämlich  $UO_2$ , Stahl und Zircaloy, freigesetzt werden.

#### Versuchsdurchführung

Um zunächst den Einfluß der Atmosphäre als einer der wichtigsten Einflußgrößen auf die Freisetzung zu untersuchen, wurde je ein Schmelzversuch unter Luft, Argon und Wasserdampf durchgeführt.

Die Anordnung von Tiegel ( $ThO_2$ -Tiegel mit äußerem Schutztiegel aus  $Al_2O_3$ ) und Schmelzgut (30 g Corium) waren die gleichen wie bei den früher beschriebenen Vorversuchen (1,2). Zur Absaugung der Freisetzungserzeugnisse aus dem Bereich des Schmelztiegels wurde eine kugelförmige Glasglocke von 10,5 cm Durchmesser mit einem anschließenden Rohrsystem aus Duranglas verwendet, vgl. Abbildung 4243-2. Dieses Glassystem weist gegenüber einem keramischen oder metallischen Absaugsystem verschiedene Vorteile auf

- es erlaubt eine bessere Beobachtung des Versuchsablaufes, z.B. die Bildung von Flammen über dem Tiegel oder den Auswurf glühender Schmelzgutpartikel
- es ist magnetisch neutral, so daß das Hochfrequenz-Induktionsfeld nicht beeinflußt wird

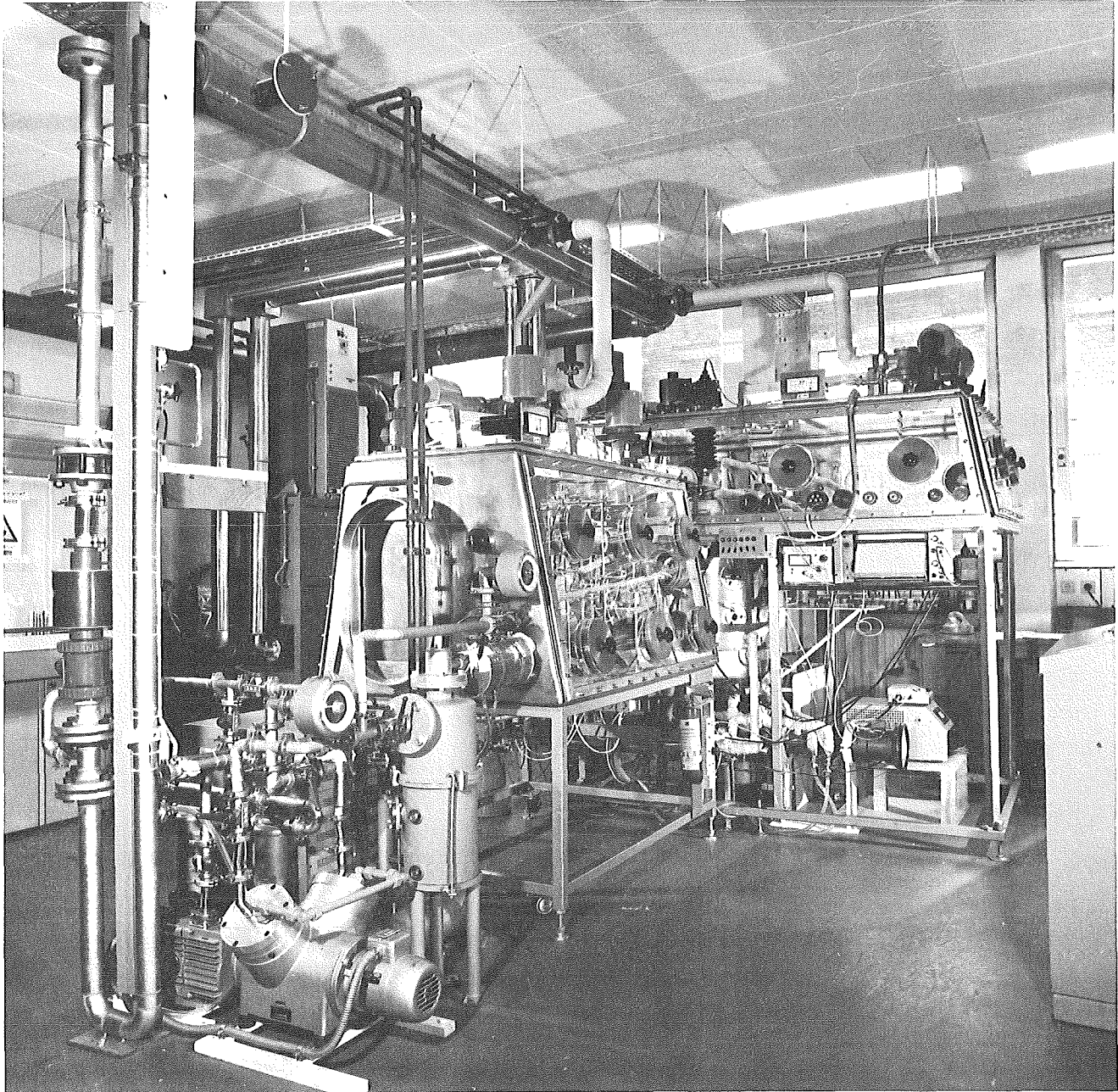


Abbildung 4243-1: Gesamtansicht der Schmelzanlage für Proben mit schwacher Aktivität (SASCHA)  
im Vordergrund: Pumpenstand, Kondensator, H<sub>2</sub>-Überwachung  
in der Mitte: Handschuhbox mit Transport- und Filter-  
strecke  
im Hintergrund: eine auf das Oberteil des Ofenkessels  
montierte zweite Handschuhbox, die zum  
Chargieren und Reinigen des Ofens dient.



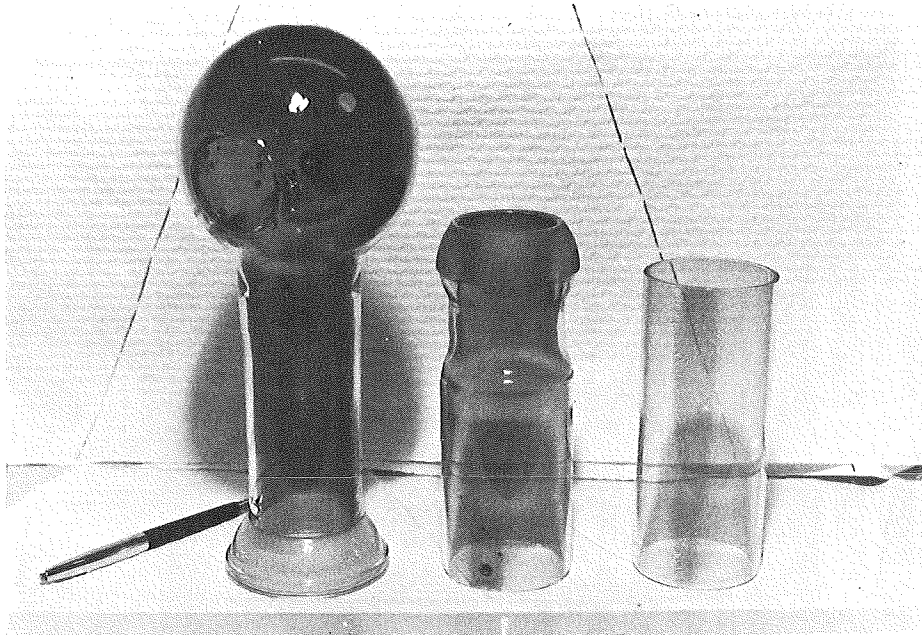


Abbildung 4243-2: Die zum Absaugsystem gehörenden Teile aus Duranglas nach einem Freisetzungsversuch mit Corium unter Luft. Die Dichte des Niederschlages ist bei dem 3. Rohrteil (ohne Kugelschliff) deutlich geringer als bei dem Glaskolben.

Die 35 mm große Öffnung des Kolbens liegt während des Versuches direkt auf dem oberen Rand des Schmelztiegels auf. Gegenüber dieser Öffnung befindet sich ein Loch mit 10 mm Durchmesser für den Durchblick des Pyrometers auf die Schmelzenoberfläche.

- es ist wesentlich unempfindlicher gegen Wärmespannungen als z.B.  $Al_2O_3$
- es erlaubt ein einfaches Ablösen von Niederschlägen, die sich durch Kondensation der Freisetzungsprodukte an den Wänden bilden.

Mit Hilfe der beiden parallelen Stränge in der Filterstrecke war es möglich, die Freisetzung für jeweils 2 Versuchsphasen zu ermitteln, nämlich

für

- die Aufheizphase (Schmelzguttemperatur 1200°...2200°C)
- und die Hochtemperaturphase (2200°...~2800°C) .

Als Filter wurden Membran-Filter aus Cellulose-Acetat verwendet. Bei den Versuchen mit Wasserdampf-Atmosphäre wurden das Transportsystem und die Filterhalter mittels Heizbändern auf einer Temperatur von ca. 130°C gehalten, um eine Dampfkondensation zu vermeiden. Die Filter bestanden in diesem Fall aus hydrophobiertem Material.

Die wichtigsten Versuchsbedingungen sind in Tabelle 1 wiedergegeben.

Tabelle 1: Angaben zu den Freisetzungsversuchen mit inaktivem Corium

Atmosphäre	Luft	Argon	Wasserdampf
max. erreichte Temperatur	2800°C	2780°C	2550°C
Spannung am Hf-Generator bei T <sub>max</sub> <sup>1)</sup>	6,5 kV	8 kV	7,5 kV
Aufheizgeschwindigkeit <sup>2)</sup>	0,5 kV/4 min	dito	dito
Beaufschlagungsdauer			
- Aufheizphase	20,8 min	25,6 min	18,4 min
- Hochtemperaturphase <sup>3)</sup>	8,1 min	5,8 min	8,2 min
Temperatur am Umschaltpunkt der Filterstrecke	2200°C	2200°C	2200°C
Volumenstrom ltr/min	4,2	3,5	12,0
Filter Schmelzgut <sup>4)</sup>	Membranfilter aus Cellulose-Acetat SM-111Q6 30 g Corium-E		

- 1) Ein Spannungswert von 10 kV entspricht einer Anodenleistung des Generators von 36 KVA
- 2) Die Aufheizgeschwindigkeit wurde wegen der Wärmespannungsempfindlichkeit der ThO<sub>2</sub>-Tiegel klein gehalten. Einer Spannungssteigerung um 0,5 kV entsprach je nach der Phase des Experiments eine Temperatursteigerung von 150-200°.
- 3) Bisher wurde nicht untersucht, ob auch in der Abkühlphase noch eine nennenswerte Freisetzung stattfindet; sollte das der Fall sein, so müsste der entsprechende Anteil von dem Ergebnis für die Hochtemperaturphase subtrahiert werden.
- 4) 30 g Corium E = 3 g Zircaloy + 10,5 g UO<sub>2</sub>  
+ 16,5 g Stahl 1.4550

### Beobachtungen während des Versuchsablaufes

a) Obwohl die Generatorleistung bei allen Versuchen in gleicher Weise gesteigert wurde, ergaben sich im zeitlichen Verlauf der Schmelzgut-Temperatur in Abhängigkeit von der Atmosphäre deutliche Unterschiede: unter Argon erfolgte der Temperaturanstieg zunächst gleichmäßig bis  $2200^{\circ}\text{C}$ , dann aber innerhalb von 70 sec bis auf  $2780^{\circ}\text{C}$ .

unter Luft war ein erster ausgeprägter Temperaturanstieg zwischen  $1780^{\circ}\text{C}$  und  $2040^{\circ}\text{C}$  zu erkennen (innerhalb von 110 sec) und ein zweiter Anstieg von  $2200^{\circ}\text{C}$  auf  $2750^{\circ}\text{C}$  in ca. 90 sec, der von heftigen Verbrennungen und Schmelzgut-Eruptionen begleitet war. Der erste Anstieg ist auf das Einsetzen der Zircaloy-Oxidation zurückzuführen, während der zweite von der Oxidation der Stahlkomponenten Cr und Fe herrührt, die erst bei höheren Temperaturen in stärkerem Umfang stattfindet.

unter Wasserdampf ergab sich trotz konstant gehaltener Hochfrequenzheizung innerhalb von 20 sec ein Temperatursprung von  $1600^{\circ}\text{C}$  auf  $2280^{\circ}\text{C}$  und anschließend noch einmal ein Rückgang auf  $1670^{\circ}$ . Oberhalb von  $2200^{\circ}\text{C}$  waren ebenfalls lebhafte Verbrennungserscheinungen erkennbar, jedoch mit weniger starken Eruptionen als bei dem Luftversuch. Eine Interpretation des Temperatursprunges bei  $1600^{\circ}\text{C}$  ist bisher nicht möglich; eine plötzlich einsetzende Oxidation ist insofern unwahrscheinlich, weil sie mindestens ebenso deutlich bei dem Versuch unter Luft hätte auftreten müssen. Andererseits scheint auch eine exotherme eutektische Reaktion zwischen dem geschmolzenen Stahl und dem noch nicht oxidierten Zircaloy fraglich, denn diese wäre in ähnlichem Ausmaß auch unter Argon zu erwarten gewesen.

b) Auch das Abkühlverhalten der Schmelze war sehr unterschiedlich: Während bei dem Versuch mit Argon-Atmosphäre die Heizleistung schrittweise gesenkt werden mußte, um eine Abkühlung des Schmelzgutes zu erreichen, ging die Temperatur in den beiden anderen Fällen selbständig zurück. Das Schmelzgut koppelte trotz gleichbleibender Hochfrequenz-Energiezufuhr immer schlechter an das Induktionsfeld an, weil durch die Oxidation der Anteil der metallischen Bestandteile des Schmelzgutes stark abnahm.

- c) Zum Erreichen der Maximaltemperatur wurde nicht in allen Fällen die gleiche HF-Leistung (HF-Spannung) benötigt; so genügten beim Schmelzen unter Luft 6,5 kV zum Erreichen von 2800°C, während für fast die gleiche Temperatur bei dem Versuch mit Ar 8,0 kV erforderlich waren. Beim Schmelzen unter Wasserdampf zeigte es sich, daß bei der gewählten Aufheizgeschwindigkeit nur eine Temperatur von 2550°C erreichbar war; auch eine Steigerung der HF-Spannung von 7,5 auf 8,5 kV führte zu keiner weiteren Temperatur-Erhöhung (Grund: zunehmende Schlackebildung, vgl. b).

### Vorläufige Ergebnisse

Die quantitative Auswertung über die Freisetzung der einzelnen Corium-Komponenten liegt bisher noch nicht vor.

Ein wesentliches Ergebnis besteht aber auch darin, daß sich die Versuchsanlage in ihrem jetzigen Stadium für Freisetzungsexperimente mit Schmelzgutmengen von mindestens 30 g als geeignet erwiesen hat (vgl. auch Abschnitt 3), und zwar auch für oxidierende Atmosphären aus Luft und Wasserdampf.

Wie ein zusätzlicher Versuch unter Wasserdampf mit höherer Aufheizgeschwindigkeit gezeigt hat, sind in allen Fällen Temperaturen von 2800°C erreichbar, kurzfristig wahrscheinlich auch ca. 3000°C. Wegen der zu hohen Belastung der Tiegelanordnung und der Gefahr, daß bei auslaufendem Schmelzgut die Induktionsspule zerstört wird, soll jedoch vorläufig auf die Realisierung von Temperaturen >2800°C verzichtet werden.

Gut bewährt hat sich auch das gegenüber den Vorversuchen (1) weiter entwickelte Absaugsystem aus Duranglas. Nach dem Schmelzversuch mit Luft waren zwar an einigen Stellen Schmelzgutpartikel in das Glas eingedrungen, die während der Oxidationsphase aus dem Tiegel herausgeschleudert worden waren; das Glas blieb jedoch mechanisch stabil, d.h. es zeigte weder Sprünge noch Erweichungserscheinungen.

Bei den Versuchen mit Argon und Wasserdampf wurde aufgrund der Absaugung nur ein so geringer Anteil der Freisetzungserzeugnisse im Glassystem abgeschieden, daß es dem visuellen Eindruck nach völlig klar blieb. In dem Luft-Versuch bildete sich dagegen ein ziemlich gleichmäßiger, mit zunehmender Entfernung vom Tiegel schwächer werdender, brauner Niederschlag (vgl. Abb. 4243-2).

Zur quantitativen Bestimmung wird dieser Niederschlag chemisch abgelöst und aktivierungsanalytisch untersucht.

Die Versuche ergaben weiterhin, daß die Filterkapazität bei einem Durchmesser von 50 mm zur Abscheidung der freigesetzten Corium-Produkte ausreicht. Die Niederschläge blieben gut auf den Filtern haften und verursachten keinen zu hohen Druckverlust. Es ist anzunehmen, daß sich dieser Sachverhalt auch bei Anwesenheit von Spaltprodukten im Schmelzgut nicht wesentlich ändern wird.

Die Masse der auf den Filtern abgeschiedenen Freisetzungsprodukte wurde durch Wägung der Filter vor und nach der Beaufschlagung ermittelt. Als wesentliches Ergebnis zeigte sich dabei (vgl. Tab. 2), daß unter Luft eine deutlich höhere Freisetzung auftritt als unter den beiden anderen Atmosphären und daß sich der Hauptanteil der Freisetzung erwartungsgemäß in der Hochtemperaturphase ergibt, auch wenn die Zeitdauer dieser Phase wesentlich kürzer ist als die der Aufheizphase (vgl. Tab. 1).

Tabelle 2: Masse der auf den Meßfiltern abgeschiedenen Freisetzungsprodukte des Coriums

	Atmosphäre <sup>+) </sup>	
	Luft	Argon
Aufheizphase	6,47 mg	8,40 mg
Hochtemperaturphase	63,30 mg	20,25 mg
Gesamt	69,77 mg	28,65 mg
Anteil vom Schmelzgut	0,23 %	0,10 %

<sup>+)</sup>  Für den Wasserdampfversuch kann die auf dem Filter abgeschiedene Masse nicht angegeben werden, da sich die Filter in diesem Fall nicht sauber vom Dichtungsring ablösen ließen.

Im Zusammenhang mit den Aussagen von Tabelle 2 ist noch zu bemerken, daß eine Angabe über die gesamte Freisetzung erst dann möglich ist, wenn auch der Anteil der Ablagerungsverluste im Absaugsystem ermittelt ist. Außerdem ist natürlich die elementspezifische Auswertung von Interesse; sie steht ebenfalls noch aus.

## 2. Entwicklung der Analystechnik

Da Freisetzungsversuche mit schwach aktivem Fissium voraussichtlich erst in der 2. Jahreshälfte 1976 möglich sind, werden bis dahin Versuche mit inaktivem Schmelzgut bzw. aktiviertem Corium durchgeführt. Im folgenden werden die bisherigen Vorbereitungen für die Analyse inaktiver Freisetzungsprodukte beschrieben.

Es hat sich gezeigt, daß sich inaktive Corium-Niederschläge auf Meßfiltern in einfacher Weise aktivierungsanalytisch bestimmen lassen, wenn sie gemeinsam mit den Filtern im Reaktor bestrahlt werden. Die Untersuchung der Frage, in welchem Ausmaß die Filtermaterialien dabei gleichzeitig aktiviert werden und ob sie eine ausreichende Resistenz gegen die Neutronenbestrahlung aufweisen, wurde bereits im letzten Halbjahresbericht (1) geschildert. Inzwischen wurde die Zusammensetzung von weiteren Filtertypen und Klebstoffarten aktivierungsanalytisch bestimmt. (Der Klebstoff dient zur Fixierung der z.T. sehr brüchig werdenden Filter an der Polyäthylen-Umhüllung, damit sich für die  $\gamma$ -Spektrometrie eine einheitliche Meßgeometrie ergibt).

Die Ergebnisse lassen erkennen, daß für die aktivierungsanalytische Bestimmung der Filterniederschläge die Filter aus Teflon und Polyamid sowie der Dekalin-Haftkleber 1188 am geeignetsten sind, weil sie die geringste Aktivierbarkeit aufweisen, vgl. auch (4).

Die Struktur der Teflon-Filter ist gegen Neutronenstrahlung stabil. Bei Teflon-Filtern mit Polyäthylengewebe klebt dieses jedoch zusammen mit dem Teflon an der umhüllenden Folie fest, die sich dabei stark verzieht oder einrollt.

Bei den Freisetzungsversuchen wurden wegen der höheren Temperaturbeständigkeit bisher nur Cellulose-Acetatfilter eingesetzt, die eine ähnlich geringe Aktivierbarkeit besitzen wie die Polyamid-Filter. Ihre Struktur wird allerdings durch die Neutronenbestrahlung zerstört, so daß eine Befestigung mit Dekalin-Heftkleber an der umhüllenden Folie erforderlich ist.

Zur Überprüfung der Meßbarkeit der einzelnen Corium-Komponenten auf den Meßfiltern wurden verschiedene bekannte Stahl- und Zircaloy-Gemische als Lösungen auf Cellulose-Acetatfilter aufgetragen und dann aktivierungsanalytisch bestimmt. Mit Ausnahme von Chrom und Zirkon stimmten alle ermittelten Anteile innerhalb der Fehlergrenzen ( $\leq 5\%$ ) überein. Zusätzlich zu den dort aufgeführten Komponenten konnten im Stahl auch Spurenelemente wie Co, As, Mo, Sn, Sb, Ta, W und Ir bestimmt werden. Die Abweichungen für Cr und Zr sind wahrscheinlich auf Unsicherheiten der Werte für die Wirkungsquerschnitte unter den Bestrahlungsbedingungen des FR2 zurückzuführen. Zur Bestimmung dieser Daten wurde daher mit einigen systematischen Bestrahlungen im FR2 begonnen.

#### Untersuchung von inaktiven Spaltproduktgemischen

Wenn im Corium noch zusätzlich inaktive Spaltprodukt-Elemente enthalten sind, lassen sich diese z.T. nicht mit Hilfe der Aktivierungsanalyse bestimmen. Das gilt z.B. für Se, Y, Nb, Rh, Pd, Sn, I, Pr und Nd.

Es wurde daher untersucht, in wieweit die Röntgen-Fluoreszenz-Analyse (RFA) eine geeignete Methode zur Bestimmung von Spaltprodukt-Elementen in Gegenwart der dominierenden Corium-Komponenten U, Fe, Cr, Ni, Mn und Zr darstellt.

Zu diesem Zweck wurden 3 Filterproben mit simulierten Corium- und Spaltprodukt-Niederschlägen durch Auftropfen entsprechender Lösungen auf Polyamid-Filter vorbereitet. Die Konzentrationen entsprachen dabei einem Spaltproduktgehalt von 0,1 g U nach einem Abbrand von 44 000 MWd/t.

(Diese Konzentration entspricht etwa derjenigen, die man bei einer 3 %igen Freisetzung aus 10 g U mit gleichem Abbrand auf den Meßfiltern erwartet). Als Spaltprodukt-Elemente wurden vorwiegend solche mit hoher Spaltausbeute ausgewählt, nämlich I, Cs, Se, Y, Mo, Ru, Ba und Ce. Vergleichsmessungen mit 2 verschiedenen RFA-Anlagen ergaben zunächst, daß die Verwendung einer Wellenlängen-dispersiven Anlage wegen ihrer höheren Nachweisempfindlichkeit einem Energie-dispersiven Gerät vorzuziehen ist<sup>+)</sup> . Mit beiden Geräten waren zwar die Hauptkomponenten U, Fe, Cr, Ni und Zr bestimmbar, mit dem Wellenlängen-dispersiven Gerät gelang jedoch außerdem die Analyse der Elemente Mn, Se, Cs, Ba, Ce und J (letzteres mit Einschränkungen).

Wenn man davon ausgeht, daß bei der Auswertung der Freisetzungsversuche die Aktivierungsanalyse als primäre Bestimmungsmethode eingesetzt wird, so dürfte also die RFA lediglich für die Analyse von Se und J und ggf. als Methode für Kontrolluntersuchungen von Interesse sein.

#### Auswertung $\gamma$ -spektrometrischer Messungen

Die  $\gamma$ -spektrometrische Meßanordnung wurde an ein PDP-11-Rechnersystem angeschlossen (vgl. Abb. 4243-3), so daß jetzt eine on-line-Auswertung der gemessenen  $\gamma$ -Spektren möglich ist. Zu dem Rechnersystem gehören 16 K Kernspeicher und eine Kasetteneinheit für die Speicherung von Programmen und Daten. Der Dialog mit dem Rechner erfolgt über die Teletype in einer von der Fa. Canberra speziell zur Anwendung der Aktivierungsanalyse entwickelten Sprache CLASS, einer Kombination aus Fortran IV und Basic.

Gemessene Spektren werden auf Magnetband (Kapazität: 90 Spektren zu je 4096 Kanälen), auf Kasette (Kapazität: 8 Spektren) oder auf einen Plotter ausgegeben.

Die Eichung des Meßplatzes kann für maximal 5 Detektoren und 40 Meßgeometrien durchgeführt werden; z.Z. wird mit 16 Geometrien gearbeitet. Die Datenbibliotheken enthalten gegenwärtig 300 Gammalinien für die qualitative und 120 Nuklide für die quantitative Analyse. Sie können mit geringem Aufwand auch wesentlich erweitert werden.

---

<sup>+)</sup>  Die Herstellung bzw. Auswertung der Proben wurde dankenswerterweise von Frau Dr. Schneider/IMF-III und den Herren Berndt und Dr. Gantner/IRCH durchgeführt.



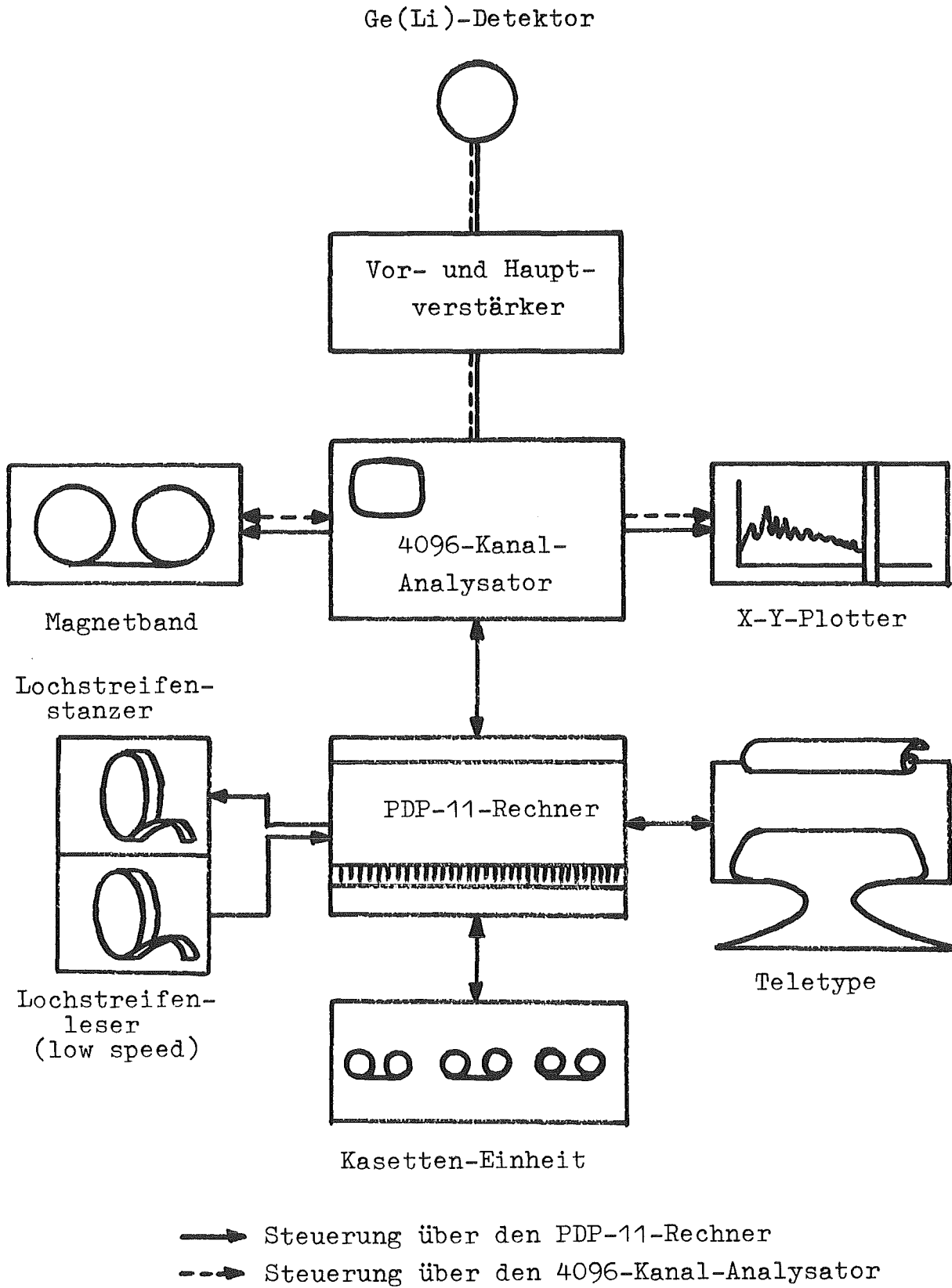


Abb. 4243-3 : Schematische Darstellung zur Rechner-gesteuerten Gammaspektrometrie.

Wegen der z.Z. stark steigenden Tendenz der anfallenden Messungen ist der Austausch der Kassetten-Einheit gegen eine "Floppy-Disc" und eine Vergrößerung des Kernspeichers um 8 K vorgesehen. Danach wird es möglich sein, mit einem sog. Vordergrund-Hintergrund-Programm während der Aufnahme neuer Meßdaten eine automatische Auswertung früherer, auf der Floppy-Disc gespeicherter Daten durchzuführen. Auf diese Weise kann auch über Nacht der Meß- und Auswertungsbetrieb fortgesetzt werden. Bei komplizierten  $\gamma$ -Spektren kommt es mitunter vor, daß das Rechenprogramm nicht alle benötigten Linien identifiziert. Für diese Fälle, und auch bei technischen Defekten des Rechners, steht ein Rechenprogramm zur Verfügung, mit dem die auf Magnetband geschriebenen Spektren auf der hiesigen IBM-370/168-Rechenanlage ausgewertet werden können.

### 3. Versuche zur Ermittlung und Verbesserung des Betriebsverhaltens der Schmelzanlage SASCHA

#### a) Schmelzversuche mit 0,5 kg Corium in Luft

Es sollte untersucht werden, ob die Ausgangsleistung (40 KW) des z.Z. leihweise benutzten Generators ausreicht, um auch Corium-Proben von 0,5 kg Gewicht zu schmelzen. Die Tiegelanordnung war - abgesehen vom Fassungsvermögen - die gleiche wie bei den 30 g-Schmelzversuchen: ein grobkörniger  $\text{ThO}_2$ -Tiegel von 5 cm Durchmesser und 10 cm Höhe wurde in einen äußeren Schutztiegel aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$  eingesetzt und der Zwischenraum mit  $\text{ThO}_2$ -Pulver aufgefüllt.

Zwischen  $2000^\circ$  und  $2200^\circ\text{C}$  setzte erwartungsgemäß eine heftige, von Flammen und Funken begleitete Verbrennung der Metallkomponenten ein. Die Temperatur stieg dabei für einige Minuten auf Werte zwischen  $2300$  und  $2400^\circ\text{C}$  an, konnte dann aber nicht mehr weiter gesteigert werden, weil das Leistungsmaximum des Generators erreicht war.

Aus früheren Versuchen war bereits bekannt, daß in dem erreichten Temperatur-Bereich das  $\text{UO}_2$  durch die Wechselwirkung mit den übrigen Coriumkomponenten gerade zu schmelzen beginnt. Die mit 500 g Corium unter Luft erreichbare Temperatur ist insofern bemerkenswert, als bei den nachfolgend beschriebenen Versuchen mit 500 g Nickel unter Schutzgas nur wesentlich niedrigere Temperaturen möglich waren. Offenbar kommt die Aufheizung des Schmelzgutes oberhalb von  $1500^\circ\text{C}$  hauptsächlich durch die Verbrennungswärme der Metalle zustande.

b) Schmelzversuche zur Leistungsbestimmung mit 0,5 kg Nickel

Experimentell läßt sich die in reinen Stoffen entbundene Wärmeleistung recht genau mit Hilfe der Haltepunkt-Methode bestimmen, die darauf beruht, daß die Temperatur am Schmelzpunkt trotz weiterer Wärmezufuhr über ein gewisses Zeitintervall konstant bleibt. Man bringt die Probe zunächst auf ein Temperaturniveau kurz unterhalb des Schmelzpunktes und steuert dann die Generatorleistung voll aus. Mit Hilfe der Probenmasse, der Schmelzwärme und der Schmelzzeit läßt sich dann unter Berücksichtigung der Strahlungsverluste die induktiv im Werkstück erzeugte Wärmeleistung bestimmen.

Als Schmelzeinsatz wurde ein Nickelzylinder mit einer Masse von 500 g in die unter a) beschriebene Tiegelanordnung eingebracht. Um zu erreichen, daß sich die Probe bei der pyrometrischen Temperaturmessung wie ein schwarzer Körper verhält, wurde sie mit einer 5 mm weiten und 35 mm tiefen Bohrung versehen, auf deren Boden das Quotientenpyrometer ausgerichtet wurde.

Im Laufe des Versuches zeigte es sich jedoch, daß die verfügbare HF-Leistung nicht ausreicht, um die 500 g Nickel auf die Schmelztemperatur von  $1452^{\circ}\text{C}$  zu bringen. Die maximal erreichbare Temperatur lag bei  $1390^{\circ}\text{C}$ . Da auch bei einer Probe aus 500 g Edelstahl keine wesentlich höhere Temperatur erreicht wurde, ist es erforderlich, daß der bisher nur leihweise benutzte HF-Generator zur Herstellung von Coriumschmelzen mit Massen  $\geq 500$  g durch ein Gerät mit höherer Leistung ersetzt wird.

Ein solches Aggregat wurde inzwischen spezifiziert und bestellt. Es soll allen Anforderungen genügen, die sich bei Schmelzversuchen mit kleinen ( $\leq 50$  g), mittleren ( $\sim 500$  g) und großen ( $\sim 5000$  g) Coriumchargen stellen. Der Lieferumfang erstreckt sich auf einen Hochfrequenzgenerator mit außenliegendem Schwingkreis, eine spezielle HF-Stromdurchführung und 3 Induktoren für verschieden große Schmelzanordnungen. Durch eine Umsetzung der Stromdurchführung von dem jetzigen Kesselflansch NW 70 auf den Flansch der Berstsicherung NW 150 wird es möglich, ohne Kesselumbau eine Wärmeleistung im Schmelzgut von mindestens 25 KW zu erzeugen.

c) Schmelzversuche zur Leistungsbestimmung mit einer 30 g Nickelprobe

Nach den unter b) beschriebenen Verfahren wurden erneut Versuche zur Leistungsbestimmung durchgeführt, diesmal mit Nickelproben von 30 g. Die Tiegelanordnung war dabei die gleiche wie bei den Freisetzungsversuchen mit Corium.

Bei insgesamt 3 Versuchen zeigten sich bei voll ausgesteuerter Generatorleistung am Schmelzpunkt jeweils sehr ausgeprägte und nur geringfügig voneinander abweichende Halteplateaus. Mit dem daraus gebildeten Mittelwert errechnet sich die maximale Schmelzleistung zu 905 Watt. Nach Berücksichtigung der Verluste durch Strahlung und Wärmeleitung erhält man als maximale induktiv erzeugte Wärmeleistung in der kleinen Schmelzanordnung 1,2 KW. Die Anodenleistung des Generators nimmt dabei einen Wert von 36 KVA an.

d) Bestimmung der Spulen- und Tiegeltemperatur

Mit 30 g Corium und der gleichen Tiegelanordnung wie bisher wurde unter stagnierender Luft und maximaler Leistungsaussteuerung des Generators ein Versuch durchgeführt, mit dem die maximale Betriebstemperatur des äußeren Schutztiegels und der Induktionsspule ermittelt werden sollte. Die Temperaturbestimmung erfolgte dabei mit sog. Thermocolor-Pulverfarben. Diese bestehen aus Substanzen, die bei bestimmten Temperaturen einen deutlichen Farbumschlag aufweisen. Die mit Alkohol angerührten Farben wurden jeweils dreifach auf der Innenseite der Spule und an der Außenseite des Schutztiegels senkrecht von oben nach unten aufgetragen. Die Farbskala war entsprechend den maximal zu erwartenden Temperaturen festgelegt worden. Ein Zwischentest mit einem leeren Tiegel hatte außerdem ergeben, daß die Farben durch das Induktionsfeld nicht beeinflusst werden.

Bei der Durchführung des Versuches lag die pyrometrisch gemessene maximale Schmelzguttemperatur bei  $2400^{\circ}\text{C}$ . Nach dem Ausbau der Tiegelanordnung waren deutliche Farbumschläge zu erkennen, u.z. für den Schutztiegel bei  $900^{\circ}\text{C}$  und für die Spule bei  $650^{\circ}\text{C}$ . Bei dieser hohen Spulentemperatur wird das als Kühlmedium dienende Thermalöl einer sehr hohen Wärmebeanspruchung ausgesetzt (sein Siedepunkt liegt bei ca.  $400^{\circ}\text{C}$ ), so daß es nach relativ kurzen Betriebszeiten ausgewechselt werden muß.

e) Schmelzversuche mit einem wassergekühlten Induktor

Zur Untersuchung des Verhaltens der Anlage bei intensiver Induktorkühlung wurde die Thermalöl-Kühlung versuchsweise auf Wasserkühlung umgestellt. Während Schmelzversuche unter Luft und Argon auf diese Weise ohne Schwierigkeiten möglich sind, ergibt sich für eine Atmosphäre aus Wasserdampf das Problem der Isolation der Induktionsspule; denn an einer blanken, nicht isolierten Spule findet sehr rasch eine Tropfenkondensation statt, die so stark ist, daß keine Satttdampf-Atmosphäre aufrecht erhalten werden kann.

Als sehr wirkungsvoll erwies sich eine Beschichtung aus organischen Hartschaum. Allerdings kam es im Bereich des oberen Spulenrandes zum Abschmelzen des Schaumstoffes, weil dort die Isolation der direkten Wärmeeinstrahlung vom oberen Rand des Schmelztiegels ausgesetzt war (der Schmelztiegel ragt um ca. 6 mm aus dem Schutztiegel heraus). Eine Isolation der Spule durch Umwickeln mit Asbestband erwies sich als unzureichend, da sich das Band in kurzer Zeit mit Wasser vollsaugte und somit die Kondensation nicht zu unterbinden war. Auch eine Versiegelung der Asbest-Oberfläche mit Wasserglas brachte kein positiveres Ergebnis, denn die Wasserglasschicht wurde durch den Wasserdampf aufgelöst und durch das entstehende Kondensat fast völlig ausgewaschen.

In weiteren Versuchen sollen noch andere Isolationsmöglichkeiten (z.B. mit keramischen Stoffen) untersucht werden. Sollten auch sie negativ verlaufen, so muß die Temperierung der Induktionsspule mit Öl beibehalten werden.

f) Temperaturmessung

Zu der bereits in (1) diskutierten Frage, ob die Pyrometeranzeige durch selektive Eigenschaften der Dämpfe über der Schmelze beeinflusst wird, wurden Versuche mit Fe-, Ni-, Cr- und Coriumschmelzen durchgeführt. Die Schmelzguttemperaturen betragen dabei bis zu 2400°C. Für die zur Temperaturmessung benutzten Wellenlängen von 500 und 580 nm war jedoch in keinem Fall ein selektives Verhalten der Dämpfe festzustellen.

Ein weiteres Problem bei der Temperaturmessung von Coriumschmelzen bestand darin, daß beim Einsetzen der Oxidationsreaktion starke

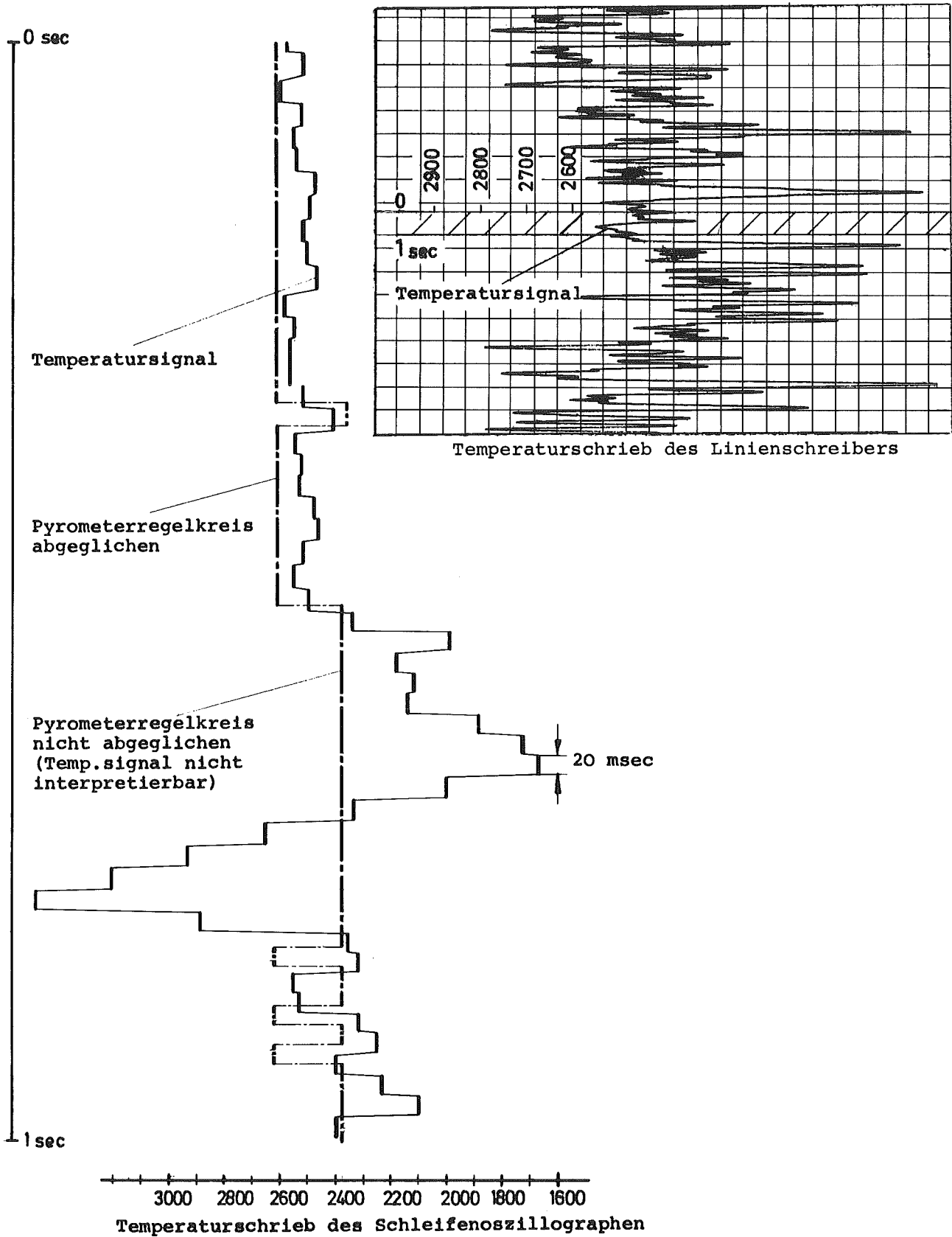


Abb.: 4243-4:Registrierung des Temperaturverlaufes einer Coriumschmelze mit Schleifenzillograph und Linienschreiber

Schwankungen am Schreiberausgang des Pyrometers auftraten, die eine Interpretation der Meßwerte erschwerten. In Abbildung 4243-4 ist oben rechts ein extremes Beispiel für derartige Schwankungen angegeben. Sie lassen sich folgendermaßen erklären;

Das Pyrometer liefert zunächst temperaturproportionale Signale mit einer Frequenz von 50 Hz, die durch die Umdrehungszahl des Choppers festgelegt ist. Der Chopper trägt zwei um  $90^\circ$  versetzte Interferenzfilter, die dem Fotomultiplier und der nachgeschalteten Elektronik die Lichtintensitäten der beiden Referenzwellenlängen um 5 msec versetzt anbietet. Liegt nun die Intensität des Gelbsignals unter einem bestimmten Sollwert, so findet im Regelkreis des Gerätes kein Abgleich statt. Das Temperatursignal am Schreiberausgang nimmt dann undefinierte Werte an.

Durch Verwendung eines Schleifenoszillografen, der das Abgleichsignal und das Schreiberausgangssignal parallel registriert und beide Signale zeitlich gedehnt aufzeichnet, läßt sich die Auswertung wesentlich verbessern. Dann lassen sich nämlich alle "unechten" Temperaturwerte, bei denen der Pyrometer-Regelkreis nicht abgeglichen war, eliminieren (vgl. Abb. 4243-4). Weil der Schreiber des Schleifen-Oszillografen einen sehr schnellen Papiervorschub aufweist, wird z.Z. eine Steuerung vorbereitet, durch die der Schreiber nur dann aktiviert wird, wenn 5 nicht abgeglichene Signale des Pyrometerregelkreises aufeinander folgen.

#### 4. Herstellung von schwach aktivem Fissium

Wie Experimente von L.F. Parsly et al. (5) gezeigt haben, hängt das Freisetzungsverhalten der Spaltprodukte unter Coreschmelzbedingungen nicht nachweisbar davon ab, ob der Brennstoff einen echten, durch Kernspaltungen erzeugten Abbrand aufweist oder einen simulierten Abbrand, der durch Zumischung der Spaltprodukt-Elemente bzw. -Oxide entstanden ist.

Im vorliegenden Versuchsprogramm sollen daher anstelle von hoch aktiven, abgebrannten  $UO_2$ -Pellets sog. Fissium-Pellets verwendet werden, die die wichtigsten Spaltprodukte in schwach aktiver Form (maximal 3 mCi pro Pellet), aber in der einem relativ hohen Abbrand entsprechenden Konzentration enthalten.

Die radioaktiven Tracer erfüllen dabei den Zweck, die meßtechnische Er-

fassung der Spaltprodukte bei Freisetzung, Transport und Ablagerung zu erleichtern.

Die Spezifikation von zwei verschiedenen Fissium-Mischungen sowie die wichtigsten Schritte bei der Herstellung wurden bereits in (1) beschrieben. Inzwischen wurde der Aufbau der Boxenanlage "FIFA", die zur Fissium-"Fabrikation" dient, weiter fortgesetzt und mit der Ausstattung der Boxen begonnen. Es handelt sich um insgesamt 5 gasdichte Boxen, die mit einer Wasserabschirmung von 30 cm Stärke versehen sind und mit Masterslave-Manipulatoren bedient werden. Sie enthalten u.a. Einrichtungen

- zum Dosieren und Wiegen der Fissiumbestandteile
- zum Mischen und Mahlen (Spexmühle)
- zur Herstellung von Pellets (hydraulische Presse)
- zum Sintern der Pellets unter Schutzgas
- zum Einfüllen der Pellets in Zircaloy-Hüllrohr unter Schutzgas
- zum Verschweißen des Hüllrohrs und zur nachträglichen Dichtheitsprüfung.

Weil die Ausgangsprodukte z.T. stark hygroskopisch sind, ist es erforderlich, die Luftfeuchte in den Boxen auf einen Höchstwert von 20 % relativer Feuchte (unter Normalbedingungen) zu begrenzen.

Die Herstellung der ersten Fissium-Pellets kann voraussichtlich im Sommer 1976 erfolgen.

#### Literatur

- (1) 1. Halbjahresbericht 1975 des PNS, KFK-2195, S. 318-337
- (2) 2. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK-2130, S. 251-260
- (3) 1. Halbjahresbericht 1974 des PNS, KFK-2050, S. 216-227
- (4) W. Krause, H. Albrecht: Aktivierungsanalytische Untersuchungen von beaufschlagten Filtermaterialien, Vortrag auf dem 6. Seminar für Aktivierungsanalyse in Jülich, 3./4. Nov. 1975
- (5) L.F. Parsly et al. Release and transport of fission products released from fuel pins irradiated to 20 000 MWD/ton, ORNL-TM-3533 (Febr. 1972)



4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim  
Coreschmelzen

---

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

1. Konstitutionsuntersuchungen

Es wurden experimentelle Untersuchungen in dem Schnitt  $UO_2$ -Zr-Fe des 4-Stoffsystems U-Zr-Fe-O durchgeführt. Dieser Schnitt soll die Phasenverhältnisse des komplexen Systems  $UO_2$ -Zircaloy-Stahl modellmässig wiedergeben. Seine Lage innerhalb des 4-Stoffsystems ist in Abb.4244-1 dargestellt.

Die Glühversuche wurden an homogenisierten Pulverpresslingen im abgeschlossenen System durchgeführt (bei  $1000^{\circ}C$  mit Tantal-Folien umwickelt in Quarzampullen, oberhalb  $1000^{\circ}C$  in mit  $ZrO_2$ -Tiegeln ausgekleideten Tantal kapseln eingeschweisst). Der Phasenbestand der abgeschreckten Proben wurde röntgenographisch und metallographisch festgestellt. Der überwiegende Teil der Proben wurde chemisch analysiert<sup>+)</sup> . Die experimentell ermittelten, z.T. jedoch noch abgeschätzten Phasenverhältnisse für die Temperaturen  $1000, 1500$  und  $2000^{\circ}C$  sind in den Abb.4244-2 bis 4 dargestellt. Der isotherme Schnitt bei  $1000^{\circ}C$  (Abb. 2) enthält eine Anzahl Phasenfelder, in denen  $UO_2$  zusammen mit metallischen Phasen stabil ist, darunter ein 4-Phasenfeld mit den Gleichgewichtsphasen  $UO_2 + \eta$ -Phase ( $Fe_3Zr_6O$ )+ $\alpha$ -Zr(O)+( $\gamma$ -U, $\beta$ -Zr). Die hier angeführte  $\eta$ -Phase ist in diesem Schnitt die einzig nachgewiesene ternäre Phase. Das bei  $1000^{\circ}C$  bereits auftretende kleine Schmelzenfeld weitet sich bei  $1500^{\circ}C$  (Abb.3) aus, ein zweites tritt auf der Fe-reichen Seite hinzu, die Phasenfelder  $\eta$  und  $Fe_3Zr$  verschwinden. Bei  $2000^{\circ}C$  (Abb. 4) existieren nur noch drei Phasenfelder;  $UO_2$ , (metallische) Schmelze und  $(U,Zr)O_{2-x}$ +Schmelze.

Die Punkte 1,2 und 3 repräsentieren die chemischen Zusammensetzungen eines DWR-Brennstabs (Punkt 1) und zweier Proben, die analog zu Corium-A (Punkt 2) bzw. Corium-E (Punkt 3) zusammengesetzt sind, wobei deren Stahlanteil durch Eisen ersetzt ist. Diese drei Punkte besitzen

---

<sup>+)</sup>  Die umfangreichen chemischen Analysen wurden von der Gruppe von Frau Dr.Schneider, IMF I, durchgeführt.

daher Modellcharakter für die entsprechenden Corium-Proben des komplexen Systems der Corekomponenten. Die Pfeile von Punkt 1 über Punkt 2 nach Punkt 3 deuten die Entwicklung einer Coreschmelze in nichtoxidierender Umgebung an, die durch fortgesetztes Auflösen von Strukturmaterialien an Stahl angereichert wird.

Aus diesen Temperaturschnitten ergibt sich, dass bei allen drei Zusammensetzungen 1 bis 3 bei  $2000^{\circ}\text{C}$  eine feste Phase  $(\text{U,Zr})\text{O}_{2-x}$  im Gleichgewicht mit Schmelze vorliegt. Mit fallender Temperatur kristallisieren zunehmend metallische Phasen aus, doch sollten bei  $1500^{\circ}\text{C}$  in allen drei Zusammensetzungen noch geringe Mengen an flüssigen Phasen auftreten. Bei  $1000^{\circ}\text{C}$  schliesslich sind alle drei Zusammensetzungen fest. Aus diesem Schnitt kann man entnehmen, welche Phasen in erstarrtem Corium auftreten sollten, wenn man annimmt, dass die Substitution von Stahl durch Eisen die Phasenverhältnisse nicht entscheidend beeinflusst. Die Zusammensetzung 2, analog zu Corium-A, liegt im 3-Phasenfeld  $\text{UO}_2 + \text{Fe}_{\sim 2}\text{Zr} + \eta$ , wobei der Mengenanteil der  $\eta$ -Phase untergeordnet ist. Daher sind hier hauptsächlich die Phasen  $\text{UO}_2 + \text{Fe}_{\sim 2}\text{Zr}$  zu erwarten. Die Zusammensetzung 3, analog zu Corium-E, liegt im 3-Phasenfeld  $\text{UO}_2 + \text{Fe} + \text{Fe}_3\text{Zr}$ . Die Phase  $\text{Fe}_3\text{Zr}$  bildet sich allerdings erst nach längeren Glühzeiten unterhalb der Temperatur  $T = 1480^{\circ}\text{C}$  (Peritektikum), so dass man an ihrer Stelle die Laves-Phase  $\text{Fe}_{\sim 2}\text{Zr}$ , die bei der Zusammensetzung 3 vor dieser auskristallisiert (vgl. Abb.3), erwarten sollte. Diese Erwartungen wurden durch röntgenographische Phasenbefunde an geschmolzenem Corium-A voll und am geschmolzenen Corium-E teilweise bestätigt. Abweichend von den Gleichgewichtsverhältnissen wird in Corium-E nach vollständigem Durchschmelzen im offenen System (Schutzgas) im allgemeinen kein  $\text{UO}_2$  mehr nachgewiesen, da die Schmelze durch Verdampfung nahezu ihren gesamten Sauerstoffgehalt verliert und dann auch nicht mehr in dem Schnitt  $\text{UO}_2$ -Zr-Fe dargestellt werden kann. Die verdampfungsbedingten Konzentrationsänderungen beschränken sich im wesentlichen auf den Sauerstoffgehalt und auf das Verhältnis  $\text{U+Zr/Stahl}$ , während das Verhältnis  $\text{U/Zr}$  näherungsweise erhalten bleibt. Aus diesem Grund, und um das Phasenverhalten auch bei variablem Oxidationsgrad darstellen zu können, erscheint es zweckmässig, einen Schnitt durch das 4-Stoffsystem zu betrachten, der das entsprechende  $\text{U/Zr}$ -Verhältnis aufweist und zudem die Konzentrationen an Eisen und Sauerstoff als variable Parameter enthält. Die Lage dieses Schnitts im

4-Stoffsystem ist in Abb.4244-5 angedeutet. Dieser Schnitt enthält die zuvor angegebenen Zusammensetzungen 1 bis 3, sie sind in Abb.4244-5 durch Buchstaben A (=1), B (=2) und C (=3) dargestellt.

Experimentell ist dieser Schnitt noch nicht bearbeitet worden, Die Phasenverhältnisse lassen sich jedoch mit Hilfe von Interpolationen zwischen den ternären Randsystemen U-Zr-O, U-Fe-O und Zr-Fe-O grob abschätzen.

Das Ergebnis einer solchen Abschätzung für diesen Schnitt bei 2500°C ist in Abb.4244-6 dargestellt. Hierin sind die Konzentrationsangaben für Eisen und Sauerstoff - anders als in den Konzentrationsdreiecken - unabhängig voneinander angegeben; der Fe-Gehalt bezieht sich nicht auf die Summe aller Komponenten, sondern nur auf die der Metalle (U+Zr+Fe).

Das Phasenfeld der homogenen metallischen Schmelze erstreckt sich nahezu unabhängig vom Fe-Gehalt bis zu etwa 25 - 30 At.% Sauerstoff. Zwischen diesem und dem Feld der homogenen oxidischen Schmelze (je nach Fe-Gehalt oberhalb 30 bis 50 At.% Sauerstoff) liegt eine Mischungslücke, in der beide Schmelzen entmischt nebeneinander existieren. In der Fe-armen, O-reichen Ecke liegt das Feld der festen Mischphase (U,Zr)O<sub>2</sub>. Zwischen diesem und den Schmelzenfeldern liegen drei Übergangsfelder mit festen und flüssigen Phasen. Diese letzten vier Felder würden bei Erhöhung der Temperatur auf 2000°C auf Kosten der drei Schmelzenfelder verschwinden.

In dieses Diagramm sind Versuchspunkte - A bis G - eingetragen. Bei diesen Versuchen handelt es sich um Corium-Proben, die im Lichtbogen bzw. Induktionsofen unter inerten Bedingungen geschmolzen wurden (vgl. Abschnitt II). Obwohl diese Proben anstelle von Fe Stahl enthalten und damit eigentlich nur in einem komplexen System dargestellt werden dürfen, fügen sie sich bezüglich des Phasen- und Mischungsverhaltens gut in dieses Diagramm ein: Corium A (entsprechend Punkt B) besteht aus zwei nicht mischbaren Schmelzen, ebenso wie teilweise oxidiertes Corium E (analog zu Punkt F), während Corium E (entsprechend Punkt D), eine Mischung gleicher Anteile von Corium A+E (entsprechend Punkt C) sowie schwach oxidiertes Corium E (analog zu Punkt E) eine homogene metallische Schmelze bilden, und vollständig oxidiertes Corium E (analog zu Punkt G), eine homogene oxidische Schmelze. In bezug auf das Phasen- und Mischungsverhalten

ten kann dieses System also die Verhältnisse des komplexen Systems (U,Zr)-Stahl-Sauerstoff gut wiedergeben; es kann mit Einschränkungen als Modellsystem hierfür gelten.

Ein überraschender Befund ergibt sich, wenn man das Verdampfungsverhalten der Corium-Proben in Hinsicht auf das Phasenverhalten betrachtet. Die von den Punkten ausgehenden Pfeile geben die Konzentrationsänderungen durch Abdampfverluste während des Schmelzens an. Alle Proben, die im Bereich der metallischen Schmelze liegen, verlieren dabei nahezu ihren gesamten Sauerstoff-Gehalt, während die Verdampfungsverluste der anderen Proben erstens erheblich geringer sind und zweitens zu ganz entgegengesetzten Konzentrationsverschiebungen führen. Somit ergibt sich bei der Entwicklung der Coreschmelze in inerter Umgebung - ausgehend von der Zusammensetzung der reinen Brennstäbe über Corium A zu Corium E - eine plötzliche Änderung des Abdampfverhaltens, sobald die Phasengrenze zum homogenen metallischen Schmelzenfeld überschritten wird. Unter oxidierenden Bedingungen schon zu Beginn dieser Entwicklung würde diese Grenze nicht erreicht werden, sondern die Coreschmelze würde vom flüssig zweiphasigen Zustand direkt in den der homogenen oxidischen Schmelze übergehen.

## 2. Reaktionsuntersuchungen

### 2.1 Reaktionsverhalten von teilweise oxidiertem Corium-E

Während eines Coreschmelzenunfalles wird das Zry teilweise oder vollständig durch den Wasserdampf zu  $ZrO_2$  oxidiert. Zum Studium des Reaktionsverhaltens wurden deshalb Experimente mit teilweise oxidiertem Corium-E durchgeführt. Um definierte Oxidationsgrade simulieren zu können, wurden die Schmelzexperimente unter Schutzgas im Lichtbogenofen und Induktionsofen vorgenommen. Die Proben wurden vor und nach dem Schmelzen chemisch analysiert<sup>+)</sup> , die Ergebnisse sind in Tab.4244-1 dargestellt. Die Gewichtsverluste beim Schmelzen betragen maximal 10%.

Wird das Zircaloy in der Corium-Zusammensetzung vollständig durch  $ZrO_2$  ersetzt, so bilden sich unter Schutzgas die ersten flüssigen Phasen bereits bei  $\sim 1450^\circ C$ , entsprechend dem Schmelzpunkt des Stahles.  $UO_2$

---

<sup>+)</sup>  Die umfangreichen chemischen Analysen wurden von der Gruppe von Frau Dr. H.Schneider, IMF I, durchgeführt.

Tab.:4244-1: Mittlere integrale chemische Zusammensetzung von teilweise oxidiertem Corium-E<sup>+</sup> und seinen beim Schmelzen entmischten Phasen  
(Mittelwerte aus vier Schmelzproben)

Element	Ausgangsmaterial		nach dem Schmelzen			
	Gew. %	At. %	metall. Phase		oxidische Phase	
			Gew. %	At. %	Gew. %	At. %
Fe	37,9	41,2	70,0	69,7	1,2	1,4
Cr	9,3	10,9	16,2	17,3	2,2	2,8
Ni	5,4	5,6	12,0	11,4	<0,2	<0,3
U	30,0	7,6	<0,6	<0,14	61,0	17,2
Zr	9,3	6,2	<0,4	<0,24	19,8	14,6
O	7,5	28,4	<0,2	<0,72	15,1	63,4
C	0,04	0,2	<0,07	<0,32	<0,01	<0,05
Th	-	-	<0,6	<0,14	<0,6	<0,17
Phasenanteil			~50		~50	

<sup>+</sup> Das Zry wurde vollständig durch ZrO<sub>2</sub> ersetzt; der Stahl kam metallisch zum Einsatz

und ZrO<sub>2</sub> reagieren miteinander unter Bildung einer Mischoxidphase, die zwischen 2400 und 2500<sup>o</sup>C schmilzt. Die metallische Schmelze (Stahl) und die oxidische Schmelze (U,Zr)O<sub>2</sub> sind nicht miteinander mischbar, es kommt nur zu geringfügigen chemischen Wechselwirkungen zwischen beiden Schmelzen. Die entmischten Schmelzen im erstarrten Zustand sind in Abb.4244-7 zu erkennen. Bei nur 50%igem Ersatz des Zircaloy durch ZrO<sub>2</sub> findet keine Entmischung mehr statt, die erstarrte Schmelze besitzt metallischen Charakter.

Das ist ein erneuter Beweis dafür, dass die Phasenbildung und damit das Verhalten der Schmelze, d.h. ob Entmischung stattfindet oder nicht, stark von der Konzentration der LWR-Corekomponenten abhängt. Oft genügen bereits geringe Konzentrationsverschiebungen, um ein vollständig anderes physikalisches und chemisches Verhalten der Corium-Proben zu erhalten.

An verschiedenen Corium A- und Corium E-Proben, welche wahlweise im Lichtbogen oder unter Verwendung von hochdichten ThO<sub>2</sub>-Tiegeln im Induktionsofen (600 Torr Ar, 2400 - 2500°C) geschmolzen und teilweise nachträglich homogenisiert (16 h bei 1300°C) worden waren, wurde der Schmelztemperaturbereich ermittelt. Die Schmelzpunktbestimmung von kleinen metallischen und oxidischen Teilen aus grossen Schmelzreguli erfolgte unter 2 bar Argon auf ThO<sub>2</sub>-Unterlagen in einem speziellen Hochtemperaturofen (KFK 2050). Die Versuchsanordnung wurde mit Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- und Mo-Standards geeicht.

In Tab.4244-2 ist die Temperatur des Schmelzbeginns und die des vollständigen Schmelzens der untersuchten Proben angegeben. Interessant ist

Tab.4244-2: Schmelztemperaturbereiche verschiedener Corium-Proben

Probe Nr.	M a t e r i a l	Temperatur	
		d.Schmelzbe- ginns (°C)	d.vollst. Schmelzens (°C)
77 C	Corium E, induktionsgeschmolzen	1260	1970-2050
78 C	" " "	1250-1340	2160
88 C	0,5 Corium A, 0,5 Corium E "	1330	1890
92C/a	Corium E, Ltbg.(5 bar Ar)	1850	2400
93 C/a	Corium E, teilw. oxidiert, Ltbg.,metallische Phase	-	1660
93 C/b	Corium E, teilw. oxidiert, Ltbg.,oxidische Phase	-	2420
94 C/a	Corium A, Ltbg.,metallische Ph.	1750	2180
94 C/b	Corium A, Ltbg.,oxidische Phase	-	2240
95 C/a	vollständig oxidiertes Corium, Ltbg.		1910

der hohe Schmelzbereich von metallischen Corium E-Proben sowie die mit  $1890^{\circ}\text{C}$  relativ niedrig liegende Temperatur des vollständigen Schmelzens der Mischung 0,5 Corium A + 0,5 Corium E.

Die untersuchten Proben wurden zum grössten Teil vor und nach der Schmelzpunktbestimmung metallographisch untersucht. In Abb.4244-8 und 4244-9 sind die Gefügebildungen von einer Corium E-Probe zu sehen. Sowohl vor als auch nach der Schmelzpunktbestimmung ist kein  $\text{UO}_2$ , wohl aber etwas primär ausgeschiedenes  $\text{ZrO}_2$  (dunkel), zu sehen. Die helle Phase besteht aus Fe,Cr und Ni, die graue aus U,Fe,Ni und Zr (KFK 2242, im Druck).

### 3. Metallkundliche Untersuchungen an simulierten LWR-Brennstäben

Abb.4244-10a zeigt eine Übersichtsaufnahme eines Simulationsstabes, der unter Helium bis auf eine Hülloberflächentemperatur von  $1840^{\circ}\text{C}$  aufgeheizt und 1 h bei dieser Temperatur gehalten wurde. Unter diesen Bedingungen bleibt die Brennstoffsäule noch weitgehend intakt. Es kommt jedoch, wie schon früher festgestellt (KFK 2130 und 2167), zu einer Wechselwirkung zwischen Zry-Hülle und  $\text{UO}_2$ -Brennstoff. Diese Wechselwirkung beginnt an der Innenseite des Hüllrohres, d.h. am Kontakt Zry- $\text{UO}_2$ . Aus der Abb.4244-10a wird auch deutlich, dass die Schmelze unter Einfluss der Schwerkraft nach unten wandert. Wie aus Abb.4244-10b zu sehen ist, wird durch die Spalte zwischen den einzelnen  $\text{UO}_2$ -Pellets der Raum zwischen Brennstoff und W-Heizstab mit Schmelze gefüllt. Auch ist erkennbar, dass diese Schmelze den Heizleiter angreift, was u.U. die Ursache für eine frühzeitige Zerstörung des Heizstabes sein kann.

Abb.4244-11 zeigt Übersichtsaufnahmen von Simulationsstäben, welche in Helium und Luft bei verschiedenen Temperaturen aufgeheizt wurden. Ein Vergleich der Stäbe, welche unter oxidierenden Bedingungen aufgeheizt wurden, mit jenen unter Schutzgas (He) bei gleichen Aufheizgeschwindigkeiten, Haltezeiten und Temperaturen, ergibt folgendes: Unter den vorliegenden Aufheizgeschwindigkeiten kommt es zwischen Zry-Hülle und Brennstoff bis zu einer Temperatur (Hülloberfläche) von  $1600^{\circ}\text{C}$  zu keinen nennenswerten Wechselwirkungen, dies gilt sowohl für Schutzgas als auch für Luft. Während es unter Schutzgas bei einer Hülloberflächentemperatur von 1800 bis  $1850^{\circ}\text{C}$  zur Bildung von flüssigen Phasen kommt, ist unter oxidierenden Bedingungen (Luft) selbst bei  $2000^{\circ}\text{C}$  eine

zum grössten Teil formstabile Hülle vorhanden. Durch die Volumenvergrösserung bei der Aufoxidation der Hülle wird diese aufgebläht, so dass der Kontakt zwischen Hülle und Brennstoff verschlechtert wird. Hierbei spielt sicherlich auch das durch den in der Luft vorhandenen Stickstoff gebildete ZrN bzw. Zr(N,O) eine Rolle. In der Tat wurden an aufoxidierten Zry-Hüllen neben dem Oxid  $ZrO_2$  auch noch kleinere Mengen von Oxinitriden  $ZrN_{1-x}O_x$  identifiziert.



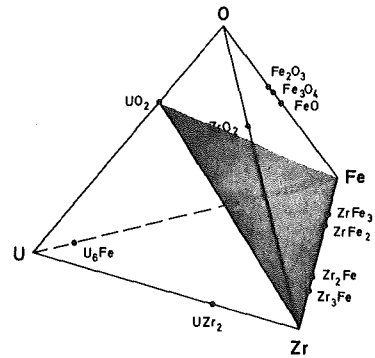


Abb. 4244-1:

Lage des Schnittes  $\text{UO}_2$ -Zr-Fe  
im System U-Zr-Fe-O

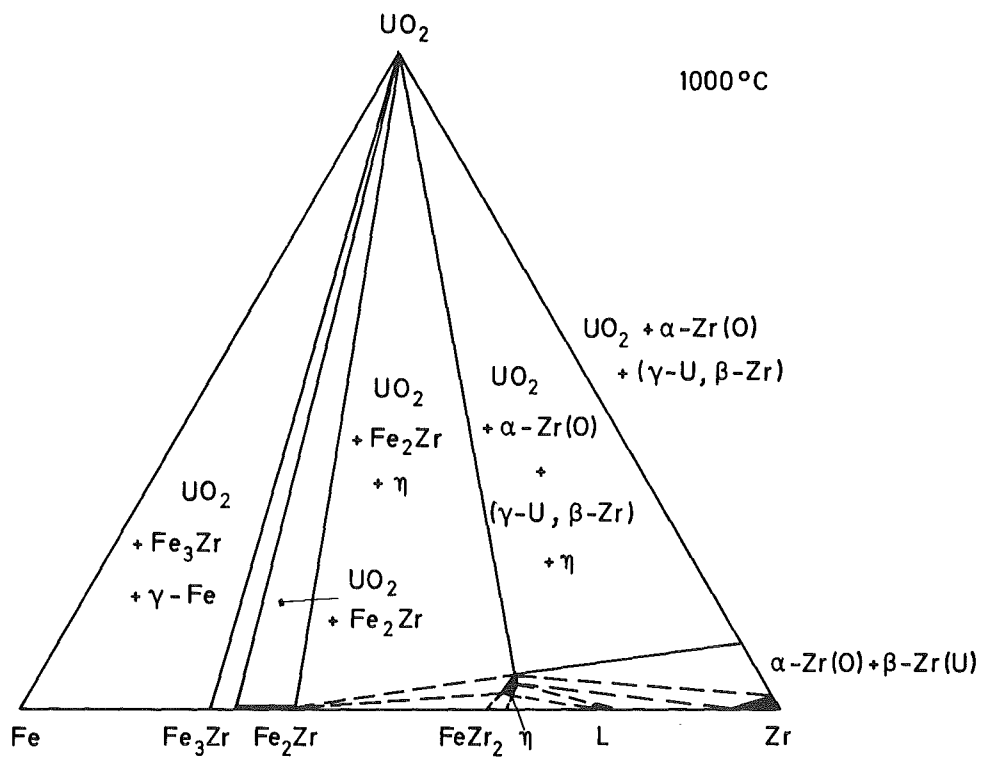


Abb. 4244-2:

Phasenfeldaufteilung des Schnittes  $\text{UO}_2$ -Zr-Fe bei  $1000^\circ\text{C}$

- ① chem. Zusammensetzung eines DWR-Brennstabes
- ② chem. Zusammensetzung analog "Corium A"
- ③ chem. Zusammensetzung analog "Corium E"

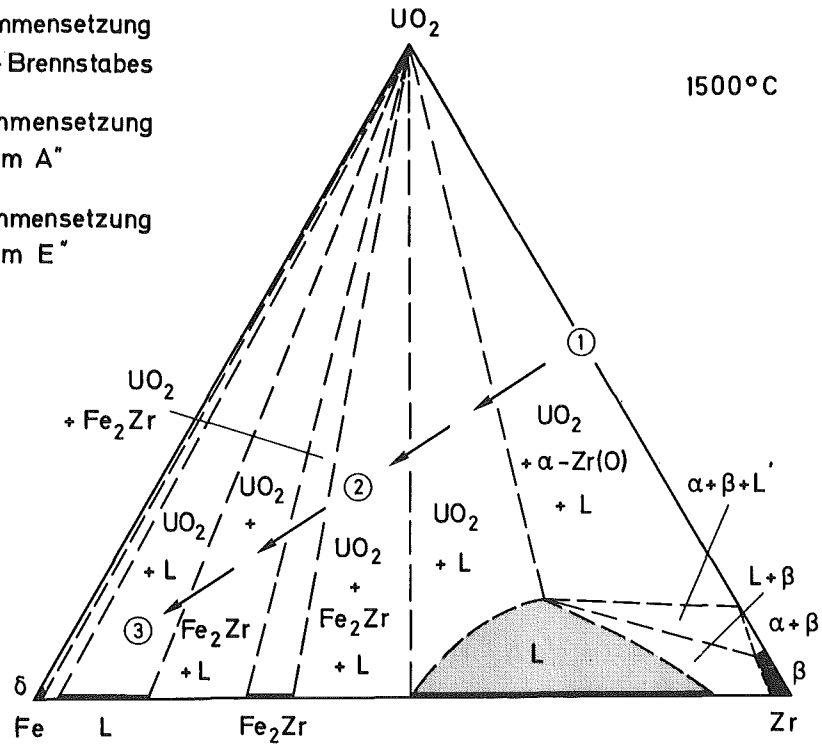


Abb. 4244-3:

Phasenfeldaufteilung des Schnittes  $UO_2$ -Zr-Fe bei  $1500^\circ C$

- ① chem. Zusammensetzung eines DWR-Brennstabes
- ② chem. Zusammensetzung analog "Corium A"
- ③ chem. Zusammensetzung analog "Corium E"

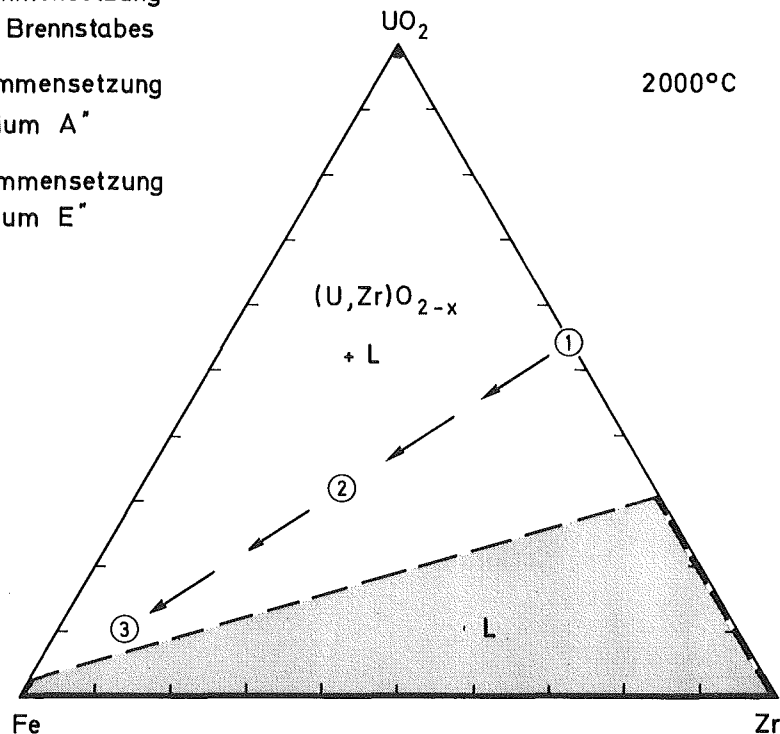
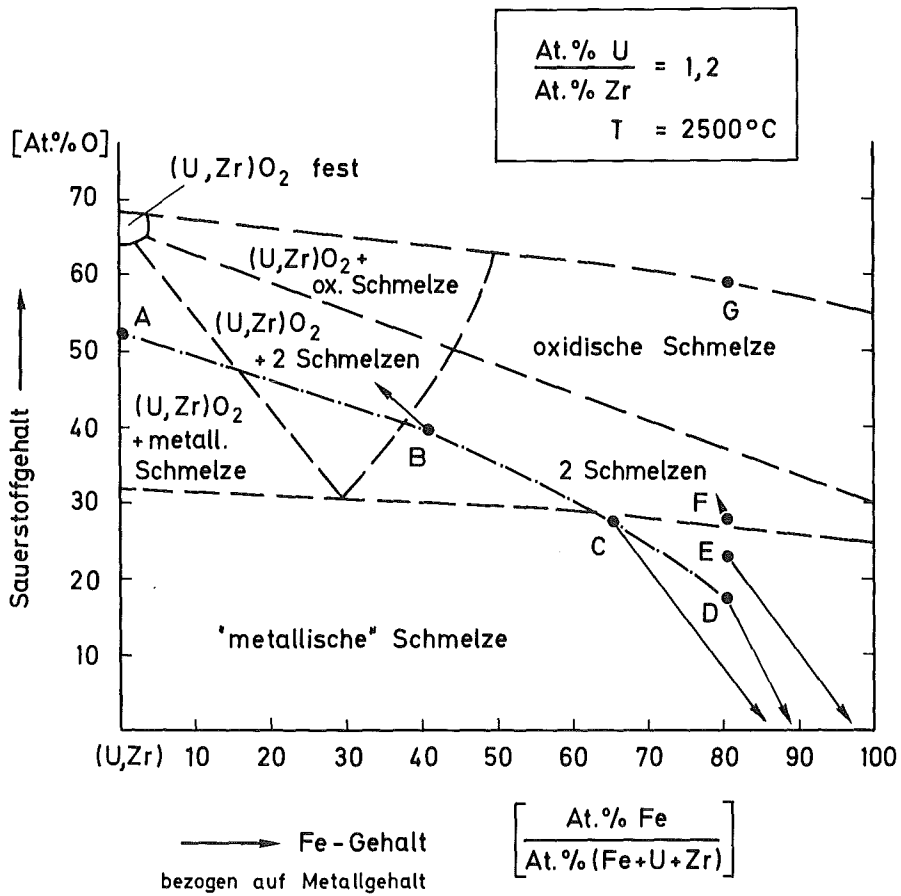
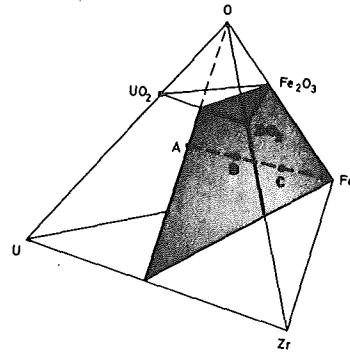


Abb. 4244-4:

Phasenfeldaufteilung des Schnittes  $UO_2$ -Zr-Fe bei  $2000^\circ C$

Abb. 4244-5:

Lage des Schnittes  
 $(U_{0.55}Zr_{0.45})-Fe-O$   
 im System U-Zr-Fe-O



- |                        |                          |
|------------------------|--------------------------|
| A analog Brennstab     | E analog (D + F, 1:1)    |
| B " Corium A           | F " Corium E teilw. ox.  |
| C " Corium A + E (1:1) | G " Corium E vollst. ox. |
| D " Corium E           |                          |

Abb. 4244-6:

Phasenaufteilung des Schnittes  $(U_{0.55}Zr_{0.45})-Fe-O$   
 bei  $2500^\circ\text{C}$  (abgeschätzt)

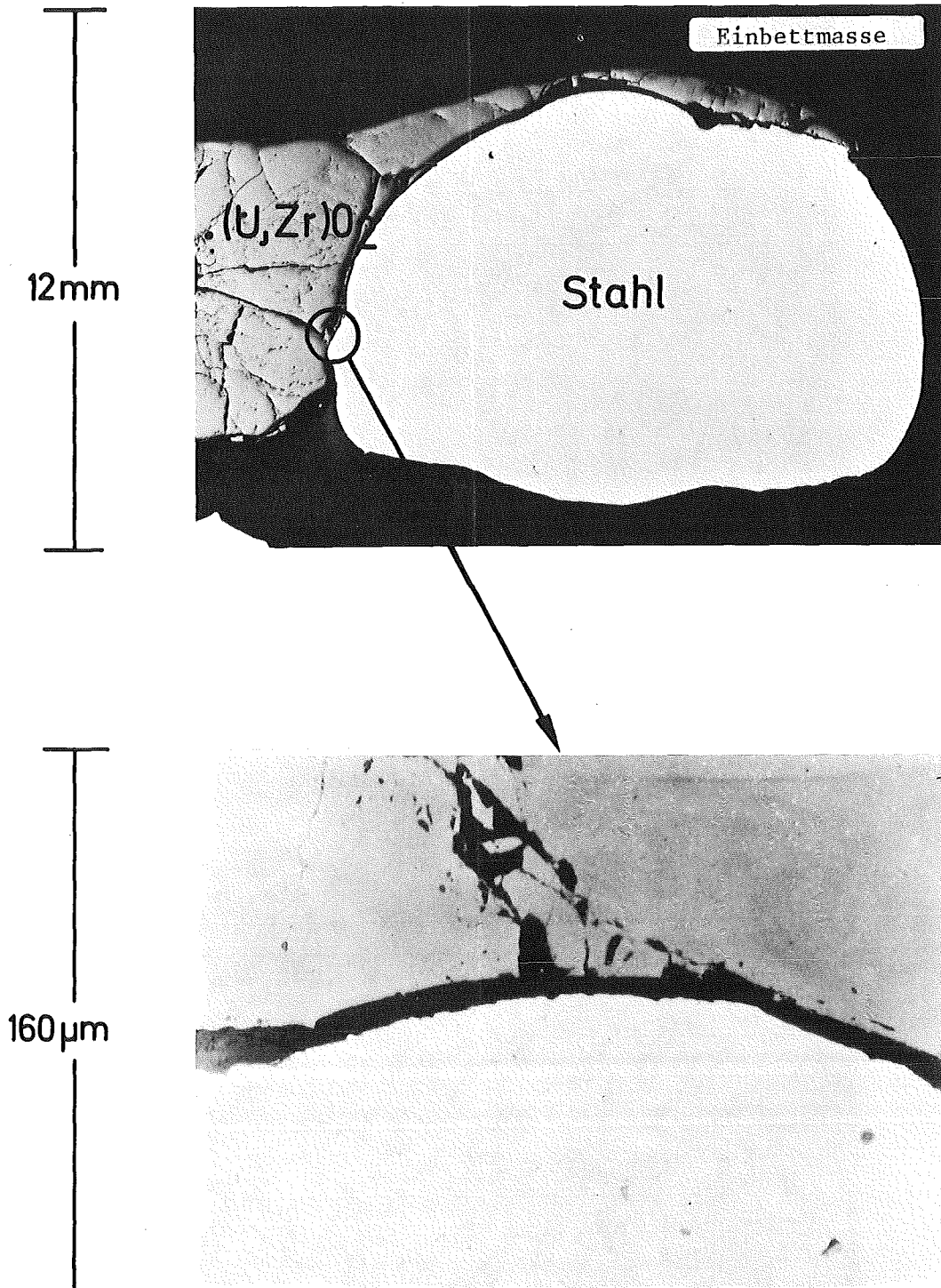


Abb.4244-7: Teilweise oxidiertes Corium-E im Lichtbogenofen geschmolzen  
Zry: oxidisch (ZrO<sub>2</sub>)

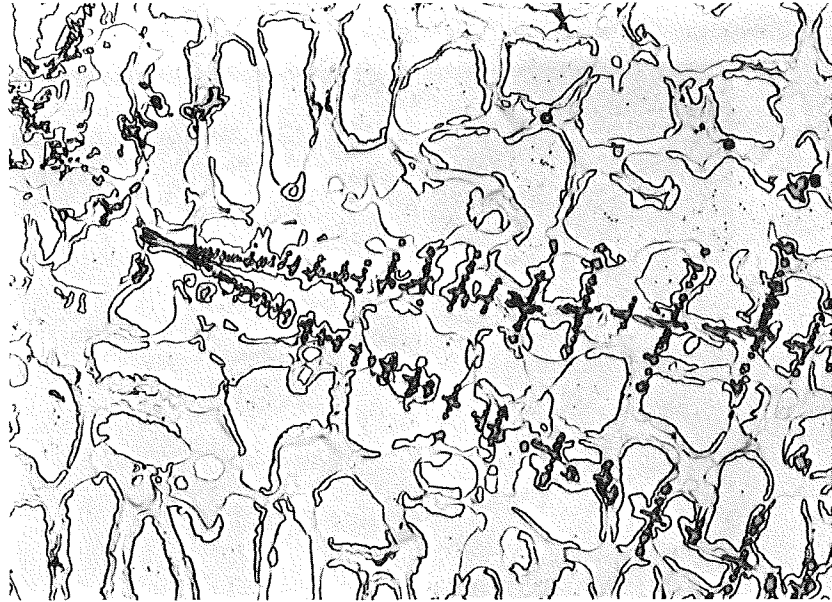


Abb.4244-8: Gefügebildung von Corium-E (Probe Nr.77C) vor der Schmelzpunktbestimmung (hell: Fe,Cr,Ni, grau: U,Fe,Ni,Zr, dunkel/  $ZrO_2$  500x

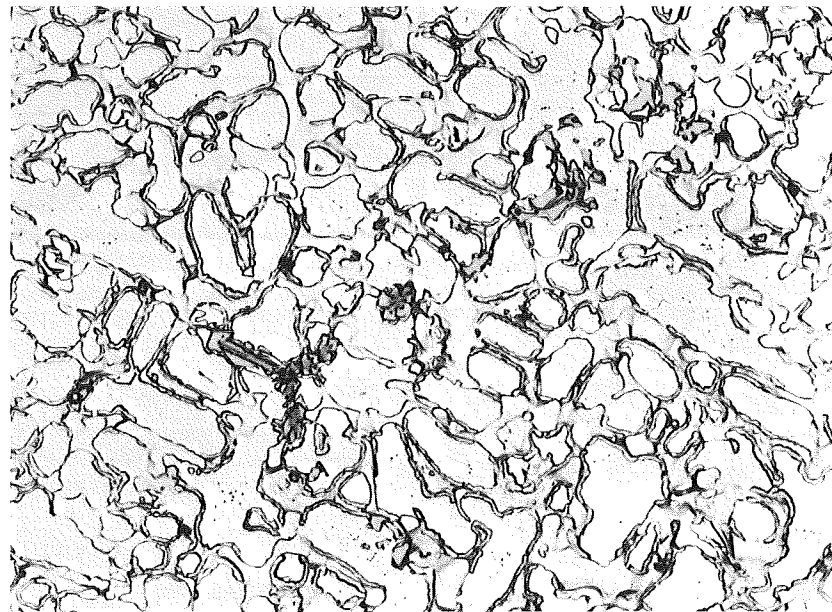
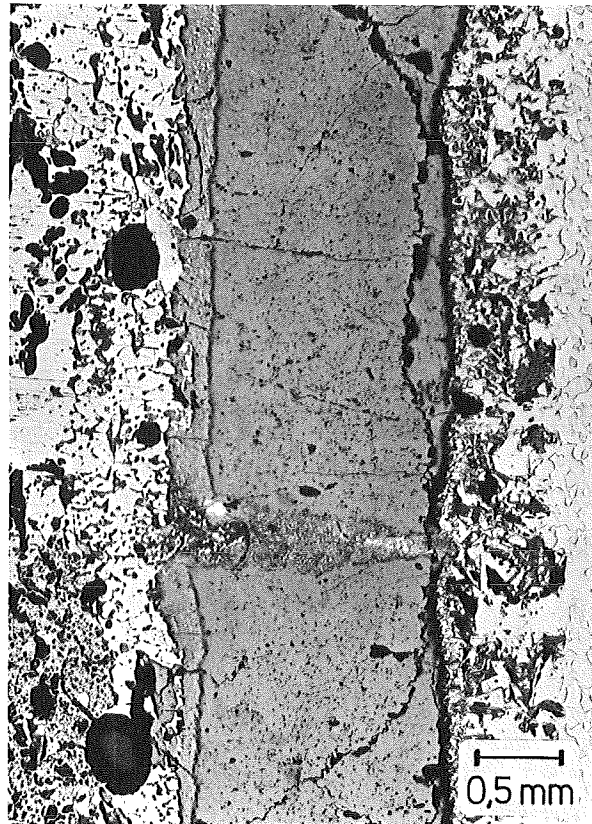


Abb.4244-9: Gleiche Probe wie oben nach der Schmelzpunktbestimmung 500x



a)



b)

Abb.4244-10: Simulationsstab nach 1 h bei 1840°C (Hülloberflächetemperatur) in Helium

a) Längsschnitt

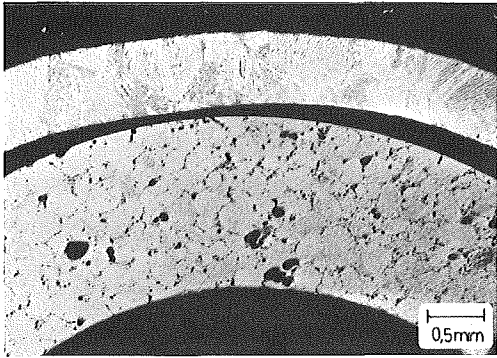
b) Detailaufnahme

Äussere Schmelzzone:  $\alpha\text{-Zr(O)} + \text{UO}_2 + \alpha\text{-U}$

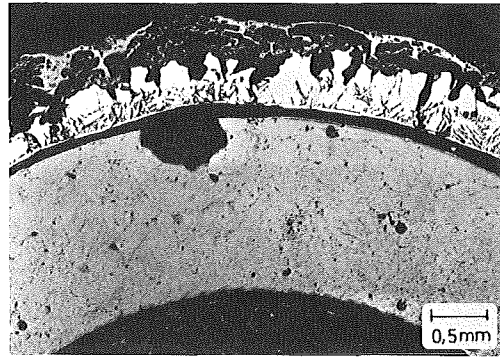
Innere Schmelzzone:  $\alpha\text{-U} + \alpha\text{-Zr(O)} + (\text{Zr,U})\text{O}_2 + \text{W}$

In Helium aufgeheizte Stäbe.

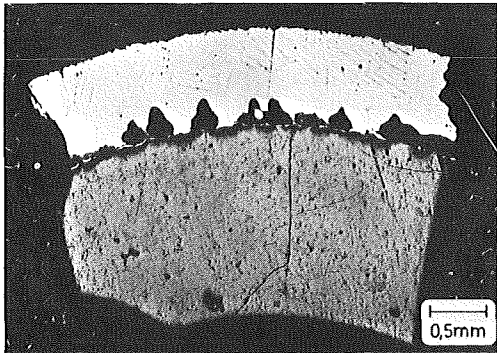
In Luft aufgeheizte Stäbe.



Stab 44  
T = 1600 °C



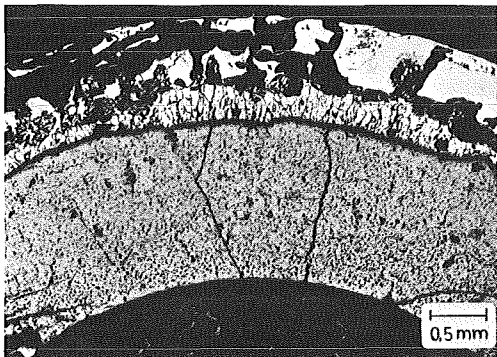
Stab 38  
T = 1600 °C



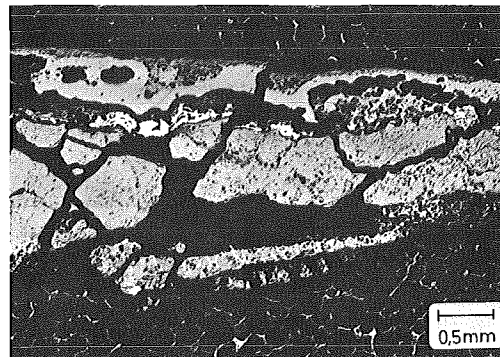
Stab 43  
T = 1700 °C



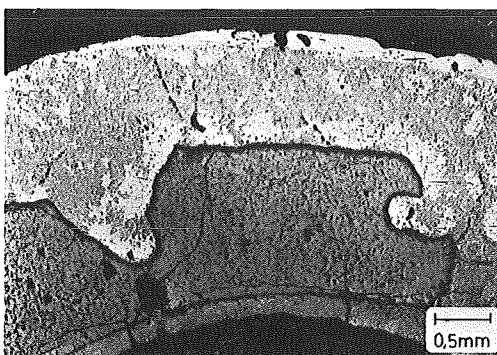
Stab 37  
T = 1700 °C



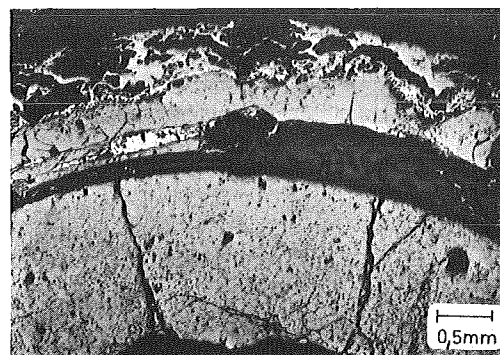
Stab 42  
T = 1800 °C



Stab 36  
T = 1800 °C



Stab 41  
T = 1850 °C



Stab 34  
T = 2000 °C

Abb.4244-11: Teilansichten von Simulationsstäben, aufgeheizt bis zu einer Hülloberflächentemperatur von 1600, 1700, 1800, 1850 und 2000°C unter Schutzgas und an Luft

4245 Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen  
(S. Nazaré, G. Ondracek, B. Schulz, IMF I)

## 1. Einleitung

In die Codes zur Analyse eines Coreschmelzen-Unfalls gehen mit großem Gewicht die Daten zum stofflichen Aufbau und die Eigenschaftskenngrößen einer Kernschmelze ein, sowohl während der Abschmelzphase wie auch im Hinblick auf das Reaktionsverhalten einer Coreschmelze in Wechselwirkung mit dem Reaktordruckbehälter bzw. mit Betonstrukturen [1 bis 4].

In Abb. 1 ist der Zusammenhang im Rahmen des LWR-Coreschmelzenprogramms dargestellt. Der vorliegende Bericht beschäftigt sich mit der Bestimmung jener Eigenschaften, die für den Code zur Beschreibung des Verhaltens des niedergeschmolzenen Cores benötigt werden, nämlich

- spez. Wärme
- Viskosität
- Wärmeleitfähigkeit.

Die geforderte Genauigkeit für diese Eigenschaftswerte ( $\sim 20\%$  /5/) ergibt sich aus der Art und Weise, wie die Eigenschaften im Rechengang des Codes mitgeführt werden.

Die extremen Bedingungen, bei denen ein Core schmilzt, machen Eigenschaftsmessungen schwierig und aufwendig und schränken ihre Genauigkeit ein. In manchen Fällen werden sie sogar unmöglich sein. Deshalb wird in der vorliegenden Arbeit zunächst versucht, diese Eigenschaften abzuschätzen. Voraussetzung für solche Abschätzungen ist die Kenntnis des stofflichen Aufbaus des niedergeschmolzenen Cores.

## 2. Zum Kenntnisstand des stofflichen Aufbaus des niedergeschmolzenen Cores

Die lokal und zeitlich variierenden Zustandsbedingungen im abschmelzenden Core erlauben es nicht, den stofflichen Aufbau des niedergeschmolzenen Cores eindeutig zu definieren. Nach den Ergebnissen bisheriger Arbeiten /1,6-9/ sind jedoch für den stofflichen Aufbau des Coriums Grenzen angebar, die seinen Variationsbereich sinnvoll einengen. Die Grenzen sind gesetzt durch zwei mögliche Ausgangszusammensetzungen - Corium-A und Corium-E - und deren stoffliche Veränderung unter zwei möglichen Atmosphären - nicht oxidierend und oxidierend. In Abb.2 ist dies schematisch dargestellt. Je nach Variation der Ausgangsbedingungen zwischen den angegebenen Grenzen erhält man unterschiedliche Zusammensetzungen des niedergeschmolzenen Cores, die als Corium X bezeichnet werden.



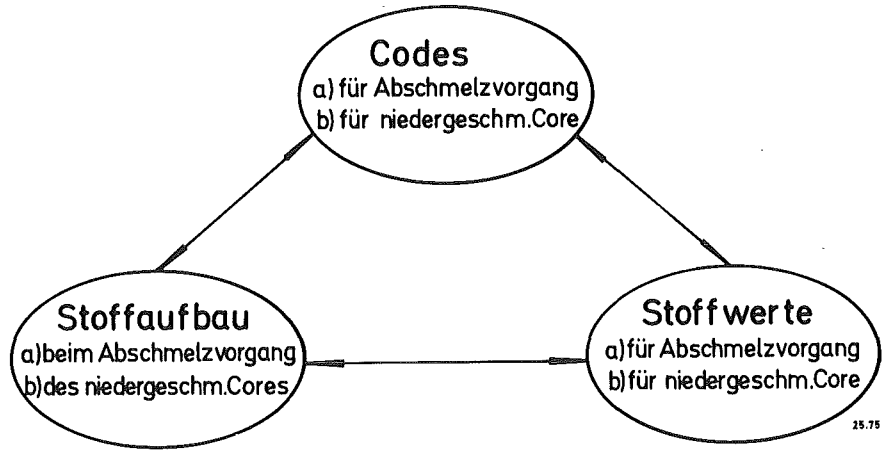


Abb.1: Gegenseitige Verknüpfung zwischen Rechencodes, Aufbau und Eigenschaften einer Coreschmelze

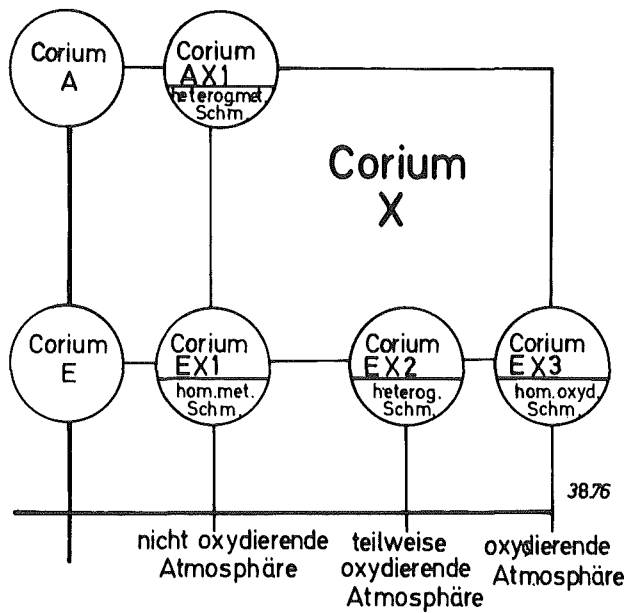


Abb.2: Veränderung von Corium mit Variation der Zustandsbedingungen

Die chemische Zusammensetzung von Corium A ergibt sich aus der Annahme, daß lediglich die Brennelemente sowie die Abstandshalter und die Trägerplatte zusammenbrechen. Beim Corium E dagegen wird angenommen, daß weitere Coreeinbauten aus Stahl im Reaktordruckbehälter hinzukommen. Der stoffliche Aufbau von Corium A und E ist in Tab.I wiedergegeben, wobei nur die Hauptlegierungselemente berücksichtigt wurden.

Tab.I: Zusammensetzung von Corium A und E

Stofflicher Aufbau		Corium A	Corium E
Komponenten (Gew.%)	UO <sub>2</sub>	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

Corium AXI entsteht beim Aufheizen von Corium A unter nichtoxidierenden Bedingungen (Inertgas) und bildet oberhalb  $\sim 2675$  K eine heterogene Schmelze. Die Zusammensetzung der beiden flüssigen Phasen ist aus Tab.II zu entnehmen. Ihr liegt die chemische Analyse der erstarrten Schmelzen zugrunde /8/.

Corium EXI entsteht beim Aufheizen von Corium E unter nichtoxidierender Atmosphäre. Dabei kommt es zu Wechselwirkungen und Abdampfverlusten, insbesondere von Sauerstoff /8/. Corium EXI ist im festen Zustand dreiphasig. Die Dichten ( $\rho_I=7,8$ ;  $\rho_{II}=9,6$ ;  $\rho_{III}=4,4$  g/cm<sup>3</sup>) und mikroskopischen Gefügebilder lassen den Schluß zu, daß sich bei oberhalb etwa 2275 K eine einphasig metallische Schmelze bildet. In Tab.II sind Angaben zur Zusammensetzung der Phasen und ihren Mengenanteilen gemacht. Sie beruhen auf Gefüge- und Mikrosondenanalysen. Aus ihnen wurde die chemische Zusammensetzung der Schmelze in Tab.II errechnet.

Tab.II: Chemische Zusammensetzung von Coriumphasen in festen und flüssigen Zustand

stofflicher Aufbau	CORIUM AX1		CORIUM EX1		CORIUM EX2		CORIUM EX3	
	Phasen	chem.Elemente	Phasen	chem.Elemente	Phasen	chem.Elemente	Phasen	chem.Elemente
fester Aggregat- Zustand	drei metalli- sche und = ( $U_{0,6}Zr_{0,4}$ ) $O_{1,6}$ Phasen (oxidisch)		Cr-Fe (-Ni-O) I 53,8 Gew.% (57,5 Vol.%)  Fe-Ni- -U-Zr- (-Cr-O) II 44,1 Gew.% 38,5 Vol.%  Zr-O III 2,1 Gew.% (4,0 Vol.%)	Cr 24,5 Gew.% Fe 71,4 Gew.% Ni 4,1 Gew.% O <sub>2</sub> Spuren  Cr 3,5 Gew.% Fe 32 Gew. % Ni 14 Gew. % O <sub>2</sub> Spuren U <sup>235</sup> 35,5 Gew.% Zr 15 Gew.%  O 7 Gew.% Zr 93 Gew.%				
flüssi- ger Aggregat- Zustand	oxidische Schmelze ( $T_S=2675K$ )  metalli- sche Schmelze ( $T_S < 2275K$ )	O <sub>2</sub> 12,4 Gew.% (44,3 Mol %) U 69,3 Gew.% (33 At.%) Zr 18,3 Gew.% (22,7 At.%)  Cr 6,3 Gew.% (11,4 At.%) Fe 27,1 Gew.% (46,4 At.%) Ni 4,3 Gew.% (6,9 At.%) U 45,9 Gew.% (18,3 At.%) Zr 16,4 Gew.% (17,0 At.%)	einphasig  ( $T_S=2275K$ )	Gew.% At.%  Cr 14,7 17 Fe 52,4 64 Ni 8,4 9 O 0,1 0 U 15,7 4 Zr 8,7 6	oxidische Schmelze ( $T_S=2675K$ ) 53,2 Gew.%  metallische Schmelze ( $T_S=1825K$ ) 46,8 Gew.%	O <sub>2</sub> 15,8 Gew.% (50 Mol %) U 63,5 Gew.% (27 At.%) Zr 20,7 Gew.% (23 At.%)  Cr 18,7 Gew.% (20 At.%) Fe 70,7 Gew.% (70 At.%) Ni 10,6 Gew.% (10 Mol.%)	einphasig  ( $T_S=2075K$ )	Cr 6.4 At.% Fe 22.6 At.% Ni 3.2 At.%  O 60 At.% U 4,2 At.% Zr 3,6 At.%

Corium EX2 entsteht durch Simulation der Bedingungen, die beim Aufheizen von Corium E in teilweise oxidierender Atmosphäre herrschen würden /1,6,7/. Im Gegensatz zu Corium EX1 liegen oberhalb  $\sim 2675$  K zwei Schmelzen (eine metallische und eine oxidische) nebeneinander vor. Ihre Zusammensetzung und Mengenanteile unter der Annahme, daß Abdampfverluste vernachlässigbar sind, enthält Tab.II. Beim erneuten Aufschmelzen wird bei  $\sim 1825$  K die metallische Phase, bei  $\sim 2675$  K der  $UO_2$ - $ZrO_2$ -Mischkristall flüssig. Die angegebene Zusammensetzung der oxidischen Schmelze entspricht einem Mischkristall  $(U_{0,54}Zr_{0,46})O_2$ , dessen Liquidustemperatur in etwa mit der gemessenen übereinstimmt /10/.

Corium EX3 entsteht, wenn man das Aufheizen von Corium E unter vollständig oxidierender Atmosphäre dadurch simuliert, daß alle metallischen Komponenten in Corium E als Oxide eingesetzt werden. Der Ausgangszustand von Corium EX3 ist daher eine Mischung von  $UO_2$  (27,7 Gew.% = 16,6 Mol %),  $ZrO_2$  (10,7 Gew.% = 13,9 Mol %),  $Fe_2O_3$  (43,9 Gew.% = 44,3 Mol %),  $Cr_2O_3$  (11,9 Gew.% = 12,6 Mol %) und  $NiO$  (5,8 Gew.% = 12,6 Mol %). Beim Aufheizen bildet sich bei  $\sim 2075$  K eine homogene oxidische Schmelze, deren chemische Zusammensetzung in Tab.II wiedergegeben ist und sich formal als  $U_{0,166}Zr_{0,139}Fe_{0,886}Cr_{0,252}Ni_{0,126}O_{2,443}$  darstellen läßt.

### 3. Abgeschätzte Eigenschaftswerte von Corium

#### 3.1 Wärmekapazität

Im folgenden wird die Wärmekapazität bezogen auf das Mol als molare Wärmekapazität ( $C_{pM}$ ), bezogen auf 1 g-atom einer Verbindung  $A_x B_y$  (=1Mol/x+y) als atomare Wärmekapazität  $C_{pA}$  bezeichnet. Für feste kristalline Werkstoffe gilt unter der Annahme, daß rein harmonische Schwingungen der Gitterbausteine oberhalb der Debyetemperatur ( $T > \Theta$ ) erfolgen:

$$C_V = 3 R \quad (1)$$

( $C_V$  = molare spezifische Wärme;  $R$  = Gaskonstante).

Zwischen der molaren spezifischen Wärme ( $C_V$ ) und der molaren Wärmekapazität ( $C_{pM}$ ) gilt die Beziehung:

$$C_{pM} - C_V = \frac{\alpha^2 \cdot V_M \cdot T}{\kappa} \quad (2)$$

( $\alpha$  = Volumenausdehnungskoeffizient;  $\kappa$  = Kompressibilität;  $T$  = abs. Temperatur;  $V_M$  = Molvolumen).

Bei hohen Temperaturen, nahe am Schmelzpunkt, sind bei einigen Substanzen erhebliche Abweichungen vom konstanten Wert für die molare spezifische Wärme festgestellt worden (Ba /11/, Pt /12/,  $\text{UO}_2$  /13/). Diese Abweichungen beruhen auf der Tatsache, daß bei hohen Temperaturen der Anteil der anharmonischen Schwingungen nicht mehr vernachlässigt werden kann. Ob solche Anomalien vorliegen, kann am besten durch Messungen der Wärmekapazität in der Nähe des Schmelzpunktes sichergestellt werden. Dies bedeutet, daß je nach Werkstoff eine Extrapolation der Meßwerte bei tiefen Temperaturen bis zum Schmelzpunkt mit großen Fehlern behaftet sein kann.

Für die komplexen Coriumphasen sind Meßwerte der Wärmekapazität am Schmelzpunkt nicht bekannt. Es liegen aber in der Literatur eine große Anzahl von Messungen der Wärmekapazität im flüssigen Zustand am Schmelzpunkt von intermetallischen Phasen, Metall-Sauerstoffverbindungen, Elementen und Halogenverbindungen vor /11/. Sie sind in Abb.3 für die einzelnen Materialgruppen zusammengefaßt. Insgesamt liegen dieser Darstellung etwa 100 Einzelwerte zugrunde /14/. Bildet man einen gemeinsamen Mittelwert aus allen Daten, so ergibt sich als

$$\text{mittlere atomare Wärmekapazität} = 8,1 \pm 1,4 \frac{\text{cal}}{\text{g-atom K}} .$$

Dieser Wert folgt auch aus einer rein theoretischen Betrachtung mit Hilfe der Fehlordnungstheorie /15/.

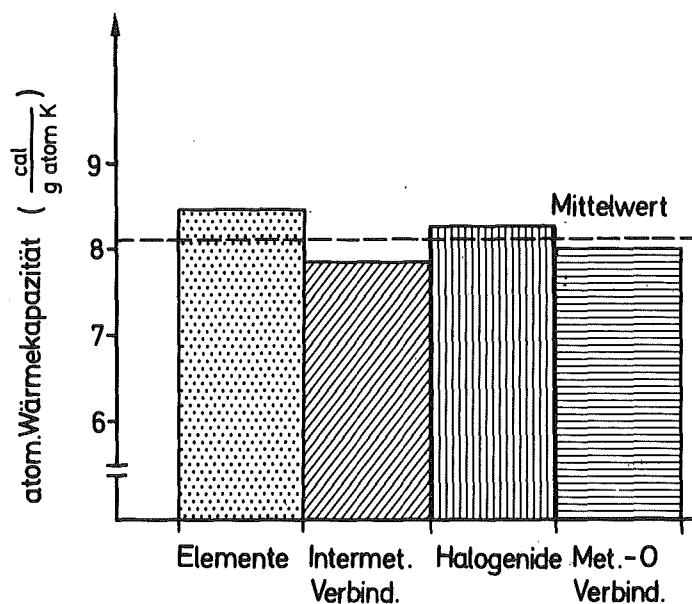


Abb.3: Atomare Wärmekapazitäten von flüssigen Elementen und Verbindungen

Die Standardabweichung der mittleren atomaren Wärmekapazität liegt innerhalb der geforderten Genauigkeit. Daher läßt sich mit Hilfe der chemischen Zusammensetzung die Wärmekapazität der flüssigen Corium-Phasen berechnen. Für zweiphasige Coriumschmelzen ist die metallische Phase bis zum Schmelzpunkt der oxidischen überhitzt; d.h. ihre Wärmekapazität muß für diese - höhere - Temperatur ermittelt werden. Aus experimentellen und theoretischen Ergebnissen folgt jedoch, daß die Wärmekapazität für Temperaturen bis einige hundert Grad über dem Schmelzpunkt in erster Näherung als temperaturunabhängig angesehen werden kann /11,14,15/. Die auf dieser Grundlage ermittelten Wärmekapazitäten von Coriumschmelzen sind in Tab.III zusammengefaßt.

Tab. III: Eigenschaften von Coriumschmelzen

Typ der Coriumschmelze	Schmelzpunkt (K)	spez. Wärme (cal/g K)	Viskosität (cP)	Wärmeleitfähigkeit ( $\frac{\text{cal}}{\text{cm K sec}}$ )
AX1 <u>Metall-Phase</u> Oxid-Phase	~ 2275 ~ 2675	0.085 0.071	5.4 5.7	
EX1	~ 2275	0.129	5.4	0.049
EX2 <u>Metall-Phase</u> Oxid-Phase	~ 1825 ~ 2675	0.146 0.080	5.4 5.7	0.044 0.008
EX3	~ 2075	0.202	4.3	

### 3.2 Viskosität

Zur Abschätzung der Viskosität ( $\eta$ ) geht man von der Vorstellung aus, daß die Viskosität durch Stöße verursacht wird, bei denen der Impuls zwischen Atom-schichten konstanter Geschwindigkeit übertragen wird. Daher sind die Größen, die die Viskosität bestimmen, die Frequenz und die Amplitude der Atomschwingungen und ihre Masse. Auf dieser Basis wurde die Andrade-Gleichung zur näherungsweisen Berechnung der Viskosität am Schmelzpunkt ( $\eta_S$ ) abgeleitet /16/:

$$\eta_S = \frac{6,12 \cdot 10^{-4} \sqrt{T_S \cdot A}}{\sqrt[3]{V_M^2}} \quad (\text{Poise}) \quad (3)$$

( $T_S$  = Schmelztemperatur in K; A = Atomgewicht in g;  $V_M$  = Molvolumen der Schmelze am Schmelzpunkt in  $\text{cm}^3$ ).

Andere Beziehungen /5/ als die Andrade-Gleichung setzen die Kenntnis zusätzlicher exp. Daten voraus, ohne daß eine bessere Übereinstimmung beim Vergleich mit dem Experiment nachgewiesen ist. In Tab.IV sind die experimentellen den nach Gleichung 3 berechneten Werten für die Schmelzen metallischer Elemente, intermetallischer Phasen, binärer Eutektika und ionischer Verbindungen gegenübergestellt /14/. Für eine ingenieurmässige Behandlung besteht ausreichende Übereinstimmung zwischen experimentellen und theoretischen Daten. Geht man daher von der Anwendbarkeit der Andrade-Beziehung aus, so sind die Viskositäten der Komponenten aller Corium X-Typen bekannt oder näherungsweise bestimmbar ( $Cr = 5,1$ ;  $Fe = 5,6$ ;  $Ni = 4,9$ ;  $U = 6,5$ ;  $Zr = 4,2$ ;  $Cr_2O_3 = 3,9$ ;  $Fe_2O_3 = 3,3$ ;  $NiO = 4,6$ ;  $UO_2 = 7,0$ ;  $ZrO_2 = 4,1$  cP)/14/. - Durch Vergleich mit experimentellen Werten von Schmelzen binärer isomorpher und eutektischer Systeme am eutektischen Punkt läßt sich außerdem zeigen, daß sich die Viskosität dieser Schmelzen additiv aus denjenigen ihrer Komponenten ergibt /14,17,18/. In Abb.4 ist dieser Vergleich am Beispiel des Ag-Au-Systems demonstriert. -

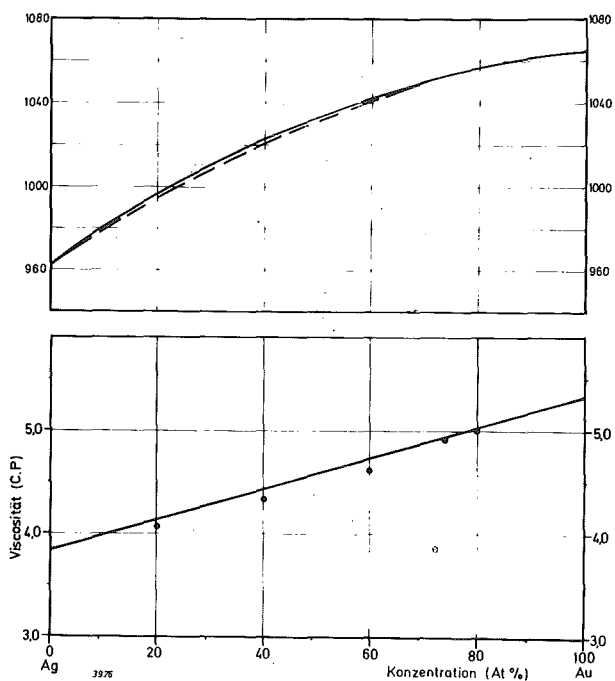


Abb. 4: Verlauf der Viskosität von Au-Ag-Legierungen bei den jeweiligen Liquidustemperaturen /17,18,19/

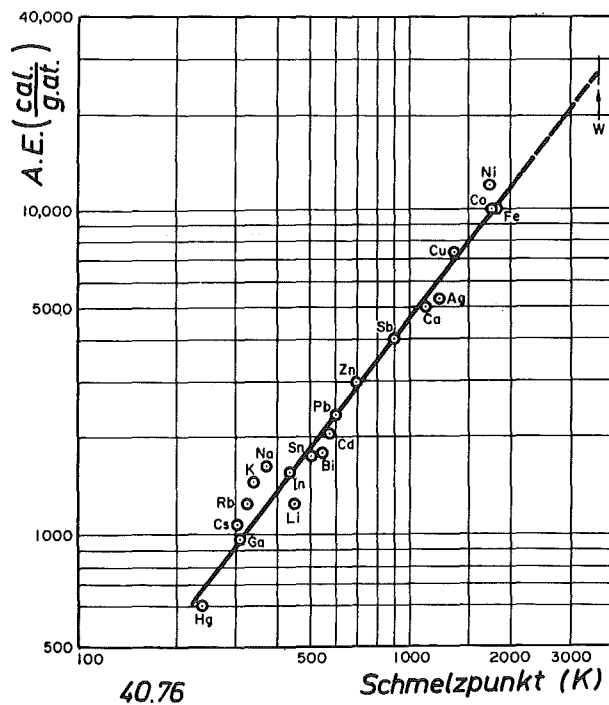


Abb. 5: Aktivierungsenergie der Viskosität von Metallen als Funktion der Schmelztemperatur

Tab.IV: Vergleich zwischen gemessenen und berechneten (Gl.3) Viskositäten

Material	$\eta_S$ gem. (cP)	$\eta_S$ ber.
Ag	3,9	4,1
Cu	4,1; 4,1; 3,8; 5,8	
Cs	0,69; 0,68	0,66
Fe	5,0; 5,6; 6,4	4,9
In	1,9	2,0
Li	0,6; 0,56; 0,59	0,56
Mg	1,32; 1,23	1,5
Na	0,69; 0,68	0,62
Ni	4,6; 4,9; 5,0	5,0
Pb	3,0; 2,52	3,0
Sn	2,1	2,1
U	6,5	6,3
Al (82,7 At.%) - Cu	1,6	2,1
Al (88,7 At.%) - Si	1,1	1,9
Ag (60 At.%) - Cu	5,5	4,1
Sn (96,2 At.%) - Ag	1,8	2,2
Sn (91 At.%) - Mg	2,1	1,9
$Al_3Mg_2$	1,4	1,2
$Mg_2Pb$	2,3	2,1
$Tl_2Te$	$2,3 \pm 0,1$	2,4
AgCl	2,3	2,1
NaCl	1,5	1,4
KCl	1,2	1,3
$Al_2O_3$	82,0	4,2
$UO_2$	$7 \pm 1$ ; 46; 4,3	5,7



Nimmt man die Gültigkeit der Mischungsregel daher auch für die Bestimmung der Viskositäten der Coriumschmelzen an, so ergeben sich diese additiv aus den Komponenten-Viskositäten. In Tab.III sind sie für die vier Grenzfälle des Coriums angegeben. Danach hat die Variation der Zusammensetzung der Schmelzen wenig Einfluß auf die Viskositätswerte. Für zweiphasiges Corium (AX1, EX2) sind die metallischen Schmelzen am Schmelzpunkt der oxidischen stark überhitzt. Da die Viskosität mit der Temperatur abnimmt, muß die Temperaturabhängigkeit der Viskosität der metallischen Schmelzen nach der Gleichung

$$\eta = \eta_0 \cdot \frac{Q}{R \cdot T} \quad (4)$$

( $\eta_0$  = Konstante; Q = Aktivierungsenergie der Viskosität in cal/g Atom; R = universelle Gaskonstante in cal/mol·K; T = Temperatur in K) ermittelt werden. Dazu benötigt man die Kenntnis der Aktivierungsenergie (Q). Für reine Metalle besteht ein Zusammenhang zwischen der Aktivierungsenergie der Viskosität und der Schmelztemperatur  $T_S$ .

$$Q = 0,431 \cdot T_S^{1,348} \frac{\text{cal}}{\text{g} \cdot \text{Atom}} \quad (5)$$

Er ist in Abb.5 wiedergegeben /20/. Gl.5 wurde mit befriedigender Übereinstimmung für Legierungen angewendet /14/. Sie kann daher auch für die metallischen Coriumschmelzen herangezogen werden.

### 3.3 Wärmeleitfähigkeit

Die ohnehin schwierige Messung der Wärmeleitfähigkeit im festen Zustand bei hohen Temperaturen wird im flüssigen Zustand weiter erschwert durch die Notwendigkeit, geringe Temperaturgradienten zu ermitteln und die Geometrie des Probenmaterials während der Messung konstant zu halten. Der Vergleich vorhandener Meßwerte für die Wärmeleitfähigkeit am Schmelzpunkt metallischer Elemente zeigt jedoch, daß das Verhältnis der Wärmeleitfähigkeit am Schmelzpunkt im festen Zustand und derjenigen im flüssigen Zustand charakteristische Werte besitzt /14/ und zwar für Metalle mit der Gitterkoordinationszahl 12

$$\frac{\lambda_{\text{fest}}}{\lambda_{\text{flüssig}}} (T_S) = 2,0 \pm 0,4$$

für Metalle mit der Gitterkoordinationszahl 8

$$\frac{\lambda_{\text{fest}}}{\lambda_{\text{flüssig}}} (T_S) = 1,6 \pm 0,2$$

Eine analoge empirische Beziehung existiert für Ionenverbindungen am Schmelzpunkt /21/:

$$\frac{\lambda_{\text{fest}}}{\lambda_{\text{flüssig}}} = 1,2 \pm 0,2$$

Aus diesen Feststellungen ergibt sich die Extrapolationsmöglichkeit zur Ermittlung der Wärmeleitfähigkeit von Schmelzen: kennt man die Wärmeleitfähigkeit des betreffenden Stoffes am Schmelzpunkt im festen Zustand, so läßt diejenige seiner Schmelze über die bekannten Leitfähigkeits-Verhältniszahlen näherungsweise angeben.

Für Elektronenleiter sind die elektrische ( $\kappa$ ) und die thermische Leitfähigkeit ( $\lambda$ ) durch die Wiedemann-Franz-Lorentz-Beziehung verknüpft (L=Lorentzkonstante):

$$\frac{\lambda}{\kappa} = L \cdot T \quad (6)$$

Diese Gesetzmäßigkeit gilt, weil die mittlere freie Weglänge der Elektronen im Ladungs- und Wärmetransport gleich ist. Demnach sind ähnliche Verhältniszahlen auch für die elektrischen Leitfähigkeiten in festen und flüssigen Zustand zu erwarten. Es ergeben sich folgende Mittelwerte /14/ für Metalle mit der Gitterkoordinationszahl 12:

$$\frac{\kappa_{\text{fest}}}{\kappa_{\text{flüssig}}} = 2,0 \pm 0,2$$

für Metalle mit der Gitterkoordinationszahl 8

$$\frac{\kappa_{\text{fest}}}{\kappa_{\text{flüssig}}} = 1,6 \pm 0,1$$

Diese Verhältniszahlen gelten auch für ein- und zweiphasige Legierungen /14/. Die thermische Leitfähigkeit von Corium EX1 wurde bis 1200 K in einer Longitudinalapparatur gemessen und linear bis zum Schmelzpunkt extrapoliert /22/.

Unter Anwendung von  $\frac{\lambda_{\text{fest}}}{\lambda_{\text{flüssig}}} = 2,0$  erhält man die Wärmeleitfähigkeit von

Corium EX1 im flüssigen Zustand am Schmelzpunkt (Tab.III)

Corium EX2 besteht aus einer metallischen und einer oxidischen Schmelze.

Für die Leitfähigkeit der metallischen Schmelzen wurde für den festen Zustand entsprechend ihrer chemischen Zusammensetzung (Tab.II), die in /21/ empfohlene Temperaturfunktion zugrundegelegt und in den flüssigen Zustand mit Hilfe des o.a. Verhältnisses extrapoliert. Die oxidische Schmelze von Corium EX2 ist nach ihrer Zusammensetzung ein Mischkristall aus  $\text{UO}_2$  und  $\text{ZrO}_2$ .

Auch hierfür liegen keine experimentellen Daten der Wärmeleitfähigkeit im festen Zustand bei hohen Temperaturen vor. Daher wurde unter Anwendung der Beziehung von Abeles /23/, die für Phononenleiter gilt, die Wärmeleitfähigkeit des Mischkristalls bei 2675 K abgeschätzt (für Details der Anwendung s. /24/). Sie ergibt sich zu:

$$\lambda(\text{U}_{0,54}\text{Zr}_{0,46})\text{O}_2 = 0,0091 \text{ cal/cm grad sec } T = 2675 \text{ K}$$

Damit wird für die Schmelze:

$$\lambda(\text{U}_{0,54}\text{Zr}_{0,46})\text{O}_2 = 0,008 \text{ cal/cm grad sec } T = 2675 \text{ K.}$$

Eine Abschätzung der Wärmeleitfähigkeit der Corium AX1 und EX3-Schmelzen konnte nicht vorgenommen werden, weil ungenügende Daten für die Wärmeleitfähigkeit vorliegen.

Zukünftige Arbeiten sind darauf gerichtet, diese Lücken zu schließen.

#### Literatur

- /1/ P.Hofmann, H.Holleck, C.Politis, A.Skokan, KFK-Nachr. 3 (1975), 50
- /2/ SANDIA-Laboratories, SAND 74-0382/UC 78b (1975)
- /3/ USAEC/Rasmussen, Reactor Safety Study WASH-1400 (Draft, 1974)
- /4/ G.Ondracek, K.Splichal, H.Wedemeyer, KFK 2011 (1975) 65
- /5/ D.Heine, G.Neuer, Ber.d.Instituts für Kernenergetik der Universität Stuttgart, IKE-2/21 (1975)
- /6/ M.Peehs, IAEA-Symp. on High Temperature Thermodynamics of Nuclear Materials, International Atomic Energy Agency, Wien (1974)
- /7/ P.Hofmann, C.Politis, Fachberichte der Reaktortagung Nürnberg (1975) 181
- /8/ P.Hofmann, Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe, KFK 2220 (1975)
- /9/ P.Hofmann, H.Holleck, C.Politis, A.Skokan, Halbjahresbericht des Projektes Nukleare Sicherheit im Kernforschungszentrum Karlsruhe, KFK 2130 (1975) 261
- /10/ F.M.Levin, C.R.Robins, H.F. McMurdie, Phase Diagrams for Ceramists, The Amer.Cer.Soc.Columbus Ohio (1964), 70
- /11/ O.Kubaschewski, C.B.Alcock, E.L.Evans, Metallurgical Thermochemistry, Pergamon Press London (1967)

- /12/ C.Affortit, Commissariat Energy Atomic CEA-R-4266 (1972)
- /13/ J.F.Kervisk, D.G.Clifton, Nucl.Techn.16 (1972) 531
- /14/ S.Nazaré, G.Ondracek, B.Schulz, Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe, KFK 2217 (1975)
- /15/ B.Eckstein, Phys.Stat. Sol. 20 (1967) 87
- /16/ E.N.C. da Andrade, Phil.Mag. 17 (1934) 497, 698
- /17/ E.Gebhardt, H.Detering, Z.Metallkunde 50 (1959) 379
- /18/ E.Gebhard, Z.Metallkunde 47 (1956) 689
- /19/ R.P.Elliot, Constitution of Binary Alloys 1st Supplement Mc Graw Hill New York (1965), 3
- /20/ A.V.Crosse, J.Inorg.Nucl.Chem. 25 (1963) 317
- /21/ Y.S.Touloukian, C.Y.Ho, Thermophysical Properties of Matter IFI-Plenum, Vol I (1970)
- /22/ S.Nazaré, H.Schneider, B.Schulz, Fachberichte der Reaktortagung Düsseldorf (1976)
- /23/ B.Abeles, Phys. Rev. 131/II (1963) 1906
- /24/ G.Ondracek, B.Schulz, Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe KFK 1999 (1974)

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

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

4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments

Beschreibung des Rechencodes NAUA-Mod1 und des Versuchsstandskonzepts

(G. Haury, S. Sack, W. Schöck, LAF I)

Für die Beurteilung radiologischer Auswirkungen hat die Menge des in einem hypothetischen LWR-Unfall freigesetzten Aerosols besondere Bedeutung. Das Ausmaß der Aerosolerzeugung hängt vom Unfallgeschehen ab, das Aerosolverhalten im Containment und die Sicherheitseinrichtungen bestimmen dann die Menge der möglicherweise in die Umgebung freigesetzten Aktivität.

Der Aerosolabbau im Containment zwischen Erzeugung und Freisetzung ist als ein die Folgen von Störfällen erheblich mindernder Effekt identifiziert worden. Durch die genaue Beschreibung der Abbaumechanismen können somit unnötige Konservatismen in der Sicherheitsanalyse vermieden werden. Ziel des Programms PNS 4311 ist die modellmäßige Beschreibung des Aerosolabbaus in der Nachunfallatmosphäre (NAUA) im LWR auf der Grundlage eines experimentell abgesicherten Rechenmodells.

Dieser Bericht ist ein Auszug aus einem im Rahmen des Programms erstellten Zwischenbericht [1] über die 1975 durchgeführten Arbeiten.

## 1. Beschreibung der Modelltheorie

### 1.1 Beschreibung des Rechencodes NAUA-Mod1

Die Codeversion NAUA-Mod1 beruht auf dem NAUA-Modell, dessen Teilmodelle NAUCON und NAUPAR in [2] und [3] bereits ausführlich beschrieben sind. Die Struktur des Mod1 wird im folgenden erläutert.

Das Flußdiagramm ist in Abb. 1 dargestellt. Die Teileinheiten NAUCON und NAUPAR benutzen zusätzlich Unterprogramme, die hier nicht aufgeführt sind.

Die Funktionen der einzelnen Einheiten des Codes sind im folgenden beschrieben.

#### READA:

Einlesen aller Eingabedaten  
Definition der Speicherbereiche

#### INDIST:

Bereitstellung der Anfangsverteilung. Dies geschieht entweder innerhalb eines vorgegebenen Radiusbereiches durch Berechnung einer vorgegebenen Funktion (z.B. Log-Normal-Verteilung) an einer vorgegebenen Anzahl äquidistanter Punkte oder durch Interpolation einer als Tabelle eingegebenen Verteilung.

Berechnung verschiedener Momente der Anfangsverteilung.

#### NAUCON:

Berechnung der Änderung der Aerosolgrößenverteilung durch Kondensation bzw. Verdampfung.

Berechnung verschiedener Momente der neuen Verteilung.

#### WATER:

Bilanzierung des Wasserdampfgehaltes aus

- Phasenwechsel (s. NAUCON)

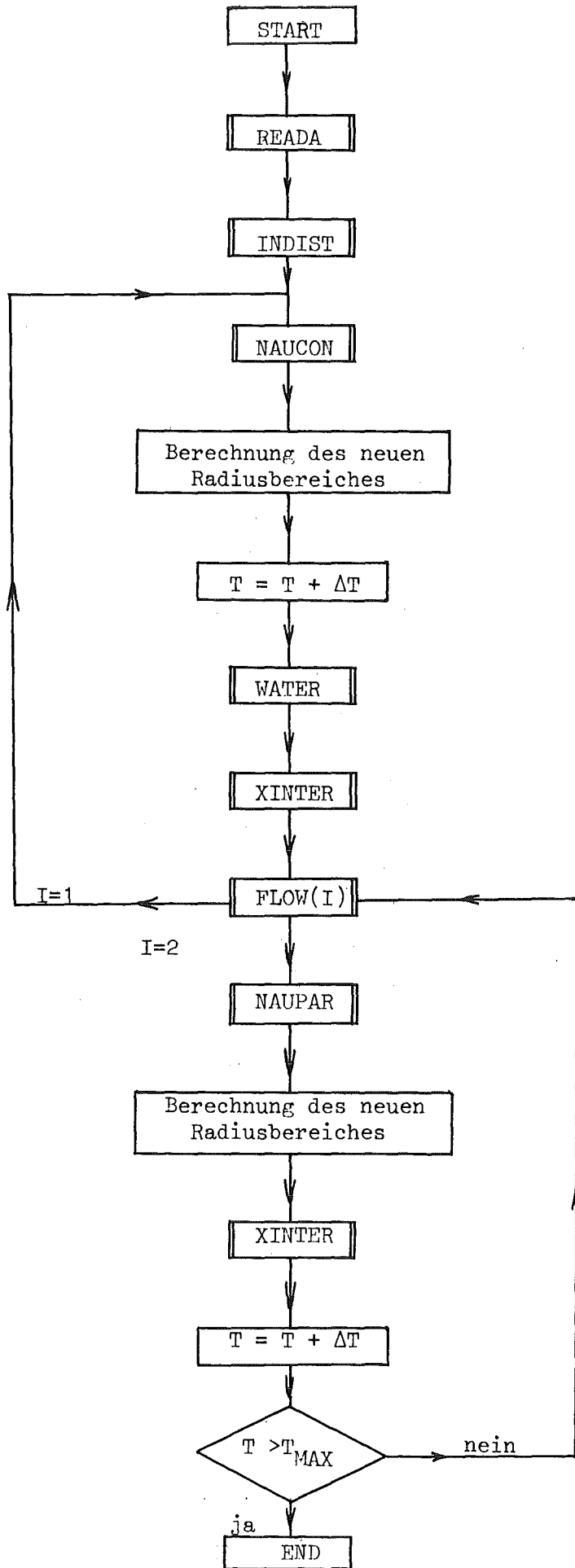


Abb. 1 Flußdiagramm des Codes NAUA-Mod1

- Wasserdampfquelle
- Kondensation an Wänden

#### NAUPAR:

Berechnung der Änderung der Aerosolgrößenverteilung durch Koagulation, Sedimentation, Diffusion und Thermophorese.

Berechnung verschiedener Momente der neuen Verteilung.

#### XINTER:

Transformation der Ausgangsverteilung von NAUCON (die nicht mehr äquidistant ist) in eine für NAUPAR geeignete äquidistante Eingangsverteilung.

Interpolation neuer Verteilungen falls in NAUCON oder NAUPAR unterschiedlich viele Stützpunkte für die Verteilung benötigt werden oder wenn durch Änderung des Radiusbereiches (s. dort) andere Stützpunkte sinnvoll sind.

Abrundung der bei der Benutzung eines "Kritischen Radius" (s. Abschnitt 1.2) in NAUCON entstehenden Flanken rechts und links der Lücke zwischen den beiden Teilen der bimodalen Verteilung. Die Abrundung erfolgt z.Z. nach numerischen Kriterien (Erhaltung der Partikelgesamtmasse oder -gesamtzahl). Die Abrundung nach physikalischen Kriterien, die einer Vermeidung von extrem steilen Flanken von Anfang an entspricht, ist u.a. Gegenstand der geplanten Experimente.

Zur Durchführung von Parameterstudien: Ersetzen bei beiden Peaks der bimodalen Ausgangsverteilung von NAUCON durch eine Massen- oder Partikelzahl-konservative Doppeltgaußverteilung (vgl. Abschnitt 2).

#### FLOW:

Programmsteuerung, d.h. Entscheiden darüber, ob die Zeitschleife beide Untersysteme NAUCON und NAUPAR enthält oder ob wegen stark unterschiedlicher Zeitschrittgröße in diesen beiden Systemen verschiedene Aufruf-Häufigkeiten benutzt werden können. Diese Entscheidung erfolgt nach vorgegebenen Kriterien.



### BERECHNUNG DES RADIIENBEREICHES:

Aufsuchen des für die aktuelle Verteilung optimalen Radienbereiches. Damit wird verhindert, daß am unteren Ende der Verteilung auch dann noch gerechnet wird, wenn dort die Partikeldichte gegen Null gegangen ist, und daß am oberen Ende Partikeln unberücksichtigt bleiben, die größer geworden sind (Koagulation, Kondensation) als die bisherige Obergrenze.

### 1.2 Aktuelle physikalische Probleme in Mod1

#### Mason-Gleichung

NAUCON benutzt zur Berechnung des Tropfenwachstums die von MASON [4] angegebene Beziehung. Die Annahmen, die bei der Herleitung gemacht werden mußten, sind in [2] diskutiert worden. Es wurde deutlich gemacht, daß insbesondere die Verwendung des idealen Gasgesetzes für die mit Wasserdampf gesättigte Atmosphäre einen nicht kalkulierbaren Fehler bei der Berechnung der Wachstumsgeschwindigkeit ergibt.

#### Kritischer Radius

Aus der Form der MASON-Gleichung folgt eine scharfe Grenze - der kritische Radius - zwischen solchen Partikeln, die an der Kondensation teilnehmen, und dem Rest. Eine solche Trennung existiert in der Realität natürlich nur dann, wenn außer dem Radius alle anderen Partikeleigenschaften in den beiden Klassen identisch sind.

Bei Dampfkondensation an Tropfen des gleichen Materials ist dies weitgehend der Fall. Sind die Kondensationskerne jedoch feste Partikeln, die nicht ideal runde Kugeln sind, so kommt außer den Unterschieden in der Oberflächenspannung noch ein Unterschied im Krümmungsradius hinzu.

In der Realität führen diese Unterschiede dazu, daß keine scharfe Grenze, sondern ein breiter Übergangsbereich existiert. An einer theoretischen Behandlung dieses Problems wird gearbeitet, eine endgültige Klärung wird jedoch erst durch Experimente mit realen Aerosolen möglich sein.

### Dichteverteilung

Die luftgetragene Aerosolaktivität ist für ein Aerosol, das ausschließlich aus festen Partikeln besteht, proportional der luftgetragenen Aerosolmasse. Falls das Aerosol eine Mischung von festen Partikeln und Tröpfchen enthält, ist dies nicht mehr der Fall, da in einem Tröpfchen außer dem Kondensationskern eine statistisch verteilte Anzahl von weiteren Partikeln enthalten sein kann, die durch Koagulation aufgenommen wurde.

Für die Aufklärung des zeitlichen Verhaltens der luftgetragenen Aktivität ist daher eine Bilanzierung des Feststoffgehaltes des Tropfenaerosols notwendig. An einem Kompromiß zwischen der rechenzeitaufwendigen Erfassung aller Partikeln in einem Tropfen und dem derzeitigen Weg (über eine mittlere spezifische Dichte aller Aerosolteilchen) wird gearbeitet.

### 1.3 Aktuelle numerische Probleme in Mod1

Numerische Probleme, auch solche der Rechenzeit, betreffen u.a. folgende Unterprogramme:

#### FLOW:

Die Geschwindigkeiten der Vorgänge, die von NAUCON bzw. NAUPAR behandelt werden, sind sehr unterschiedlich. Diese Geschwindigkeiten ändern sich darüber hinaus während des Ablaufs des Gesamtvorgangs in entgegengesetzter Richtung. Eine gleichbleibende Ablauforganisation des Codes ist daher unwirtschaftlich. Das Unterprogramm FLOW steuert den Ablauf des Programms so, daß der Programmteil mit dem kleineren der Zeitschritte (die laufend nach Genauigkeitsalgorithmen neu berechnet werden) solange allein iteriert wird, bis die Gesamtzeit um den Wert des Zeitschritts des anderen Programmteils gewachsen ist.

#### Interpolationsprogramm:

Wegen der unterschiedlichen Struktur von NAUCON und NAUPAR, der andauernden Optimierung des Radienbereiches und für die Integrationen innerhalb von NAUPAR sind eine große Anzahl von rechenzeitintensiven

Interpolationen der Partikelverteilungen notwendig. Durch die starken Unterschiede innerhalb der Verteilung einerseits (insbesondere an den steilen Flanken der Peaks) und sehr flach verlaufenden Abschnitten andererseits (zwischen den Peaks) kann bei der Wahl des Interpolationsverfahrens jedoch nicht allein nach der Rechenzeit optimiert werden. Die Unterprogramme XINTER und YINTER benutzen daher Interpolationsverfahren 0. bis 3. Ordnung, wobei teilweise die Logarithmen der entsprechenden Verteilungen interpoliert werden.

### NAUCON

Im Teilprogramm NAUCON traten neue numerische Instabilitäten auf. Das ist insofern nicht verwunderlich, da zum Problem der Wasserdampfkondensation an Partikeln bisher die wenigsten Erfahrungen vorliegen, während die Berechnung des Partikelabbaus (NAUPAR) durch langjährige experimentelle und modelltheoretische Arbeiten einen wesentlich höheren Entwicklungsstand erreicht hat.

Das neu aufgetretene Problem betraf die Wasserdampfbilanz und die damit zusammenhängende Tröpfchengrößenverteilung. Die in der Wasserdampfbilanzgleichung

$$W = M + S$$

enthaltene Tröpfchenmasse  $M$  (vgl. [3]) wird in NAUCON nach

$$M = \frac{4}{3}\pi \cdot \int_{r_{c,0}}^{\infty} r^3 \cdot n(r) dr$$

berechnet, wobei die in dem Integral enthaltene Partikelzahldichte  $n(r)$  in jedem Zeitschritt neu berechnet wird,  $r_{c,0}$  ist die Schnittstelle der bimodalen Verteilung.

Wegen der Unstetigkeiten in  $n(r)$  führt jede neue Integration zu einer größeren Ungenauigkeit von  $M$ , die sich im nächsten Zeitschritt über die ebenfalls ungenau berechnete Übersättigung  $S$  fortpflanzt. Das führt u.a. dazu, daß die Partikelzahl

$$N = \int_0^{\infty} n(r) dr$$

nicht konstant bleibt und von der Ausgangsgröße  $N_0$  abweicht. Das Problem wurde dadurch gelöst, daß in NAUCON intern die Partikeldichte-

verteilung  $n(r)$  nicht mehr berechnet wird. Da NAUCON keine Abscheide-  
mechanismen enthält, und folglich die Partikelzahlen  $z_i$  jeder be-  
liebigen Klassierung  $i$  konstant sind, kann man die Partikeln identi-  
fizieren und unabhängig von ihrem Zeitverhalten individuell verfolgen.  
Es wird also definiert

$$N_0 = \sum z_i (t=0) = N(t) = \sum z_i(t)$$

weil

$$z_i(t=0) = z_i(t) = z_i \text{ für alle } t.$$

Damit wird

$$M(t) = \frac{4}{3}\pi \cdot \sum r_i^3(t) \cdot z_i$$

Es ist zu beachten, daß die Unterschiede im Verfahren nur numerisch  
sind. Physikalisch, d.h. bei gegen Null gehenden Klassen- und Zeit-  
intervallen, sind beide Verfahren identisch.

Der Erfolg der neuen Methode ist in Abb. 2 zu erkennen. Kurve 1 ist  
mit dem neuen Verfahren berechnet, die beiden anderen mit dem alten,  
und zwar Kurve 2 mit einem geänderten, verschärften Kriterium für  
die Zeitschrittwahl und Kurve 3 mit dem ursprünglichen Kriterium.  
Wichtig ist, daß Kurve 1 unabhängig vom Zeitschritt erhalten wird.  
Wir sehen darin ein Kriterium für den Grenzfall, dem sich die Kurven  
aus dem alten Verfahren bei  $dt \rightarrow 0$  ebenfalls annähern würden. Unend-  
lich kleine Zeitschritte sind aber aus Rechenzeitgründen nicht  
praktikabel. Die Tatsache, daß alle drei Kurven in kurzer Zeit den  
gleichen Grenzwert erreichen, ist insofern trivial, als der Grenz-  
wert durch die Menge des Wasserdampfangebots (in der Abb. gestrichelt)  
festgelegt ist. Alle anderen Parameter unterscheiden sich aber sehr  
deutlich, z.B. die Zahl der gebildeten Tröpfchen sowie deren Radien.  
Die hier auftretenden Unterschiede führen dann wegen der in allen drei  
Fällen gleichen Gesamtmasse zu Unterschieden in den Tröpfchenradien,  
wodurch die Abbauprozesse deutlich beeinflußt werden.

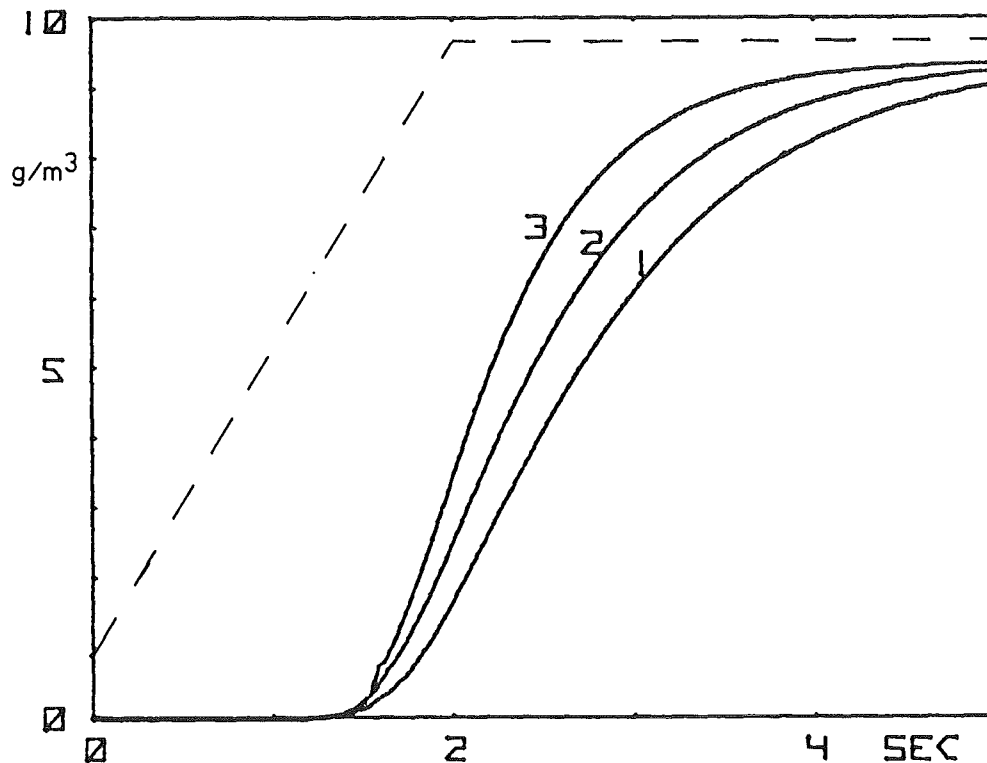


Abb. 2 Massenkonzentration, berechnet mit verschiedenen NAUCON-Versionen

## 2. Ergebnisse der Modelltheorie

Im folgenden wird an Hand eines Beispiels die Arbeitsweise von Mod1 demonstriert und zugleich eine quantitative Bestätigung gegeben für die frühere qualitative Behauptung, daß nach Ausbildung einer bimodalen Verteilung der Peak aus festen Partikeln vom Tröpfchenpeak aufgesaugt wird, ehe die Tröpfchen selbst durch Sedimentation und Diffusion verschwinden.

Für die Abmessungen des Behälters wurde die Geometrie des TUNA-Versuchsstands [6] übernommen, damit die Ergebnisse der Rechnungen wenigstens grob mit den früheren "trockenen" Experimenten (ohne Wasserdampf) verglichen werden können.

Beispiele für die Ausbildung von bimodalen Verteilungen unter der Einwirkung einer kurzzeitigen Wasserdampfquelle sind in [1] bereits ausführlich beschrieben. Während dieser Zeit hat NAUPAR in Mod1 fast keinen Einfluß auf die Rechnung (FLOW steuert vorwiegend NAUCON an). Nach Abschalten der Quelle und Kondensation

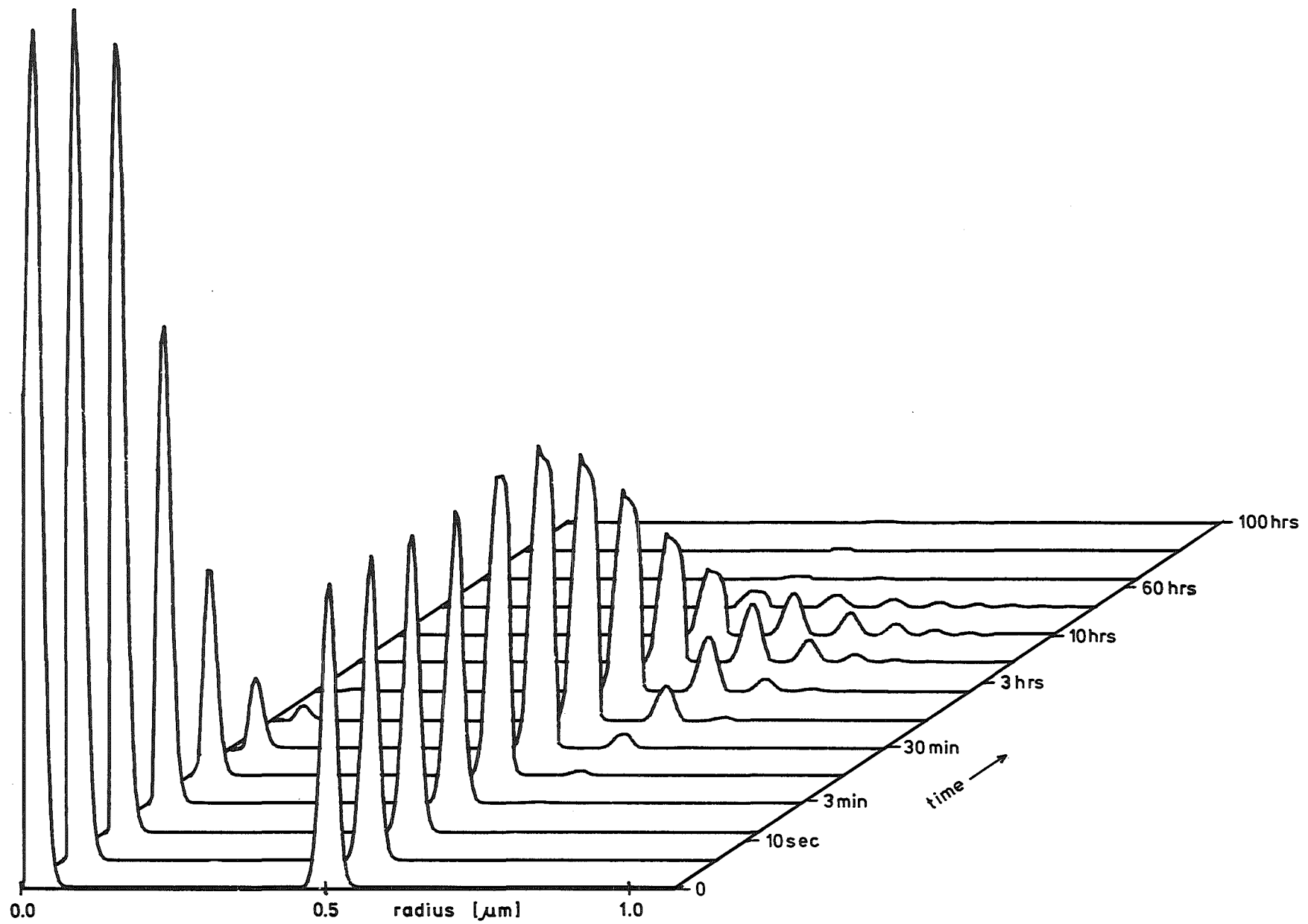


Abb. 3 Beispiel für das Zeitverhalten der Partikelgrößenverteilung,  
berechnet mit NAUA-Mod1

des Wasserdampfs wird, solange sich die Temperatur nicht ändert, hauptsächlich NAUPAR aufgerufen.

Als Beispiel für die dabei berechneten langfristigen Abbauprozesse ist in Abb.3 die zeitliche Entwicklung der Partikel- und Tröpfchengrößenverteilung dreidimensional dargestellt. Dabei ist sowohl die r-Achse als auch die  $n(r)$ -Achse linear unterteilt. Die nach hinten weisende Zeitachse ist nach Rechenschritten, die vom Programm gesucht werden, unterteilt. Die zugehörigen Real-Zeiten sind jeweils angegeben.

Da die Tröpfchenpeaks in der doppelt-linearen Darstellung sehr klein wurden, sind sie, d.h. die rechten Teile ( $r > 0,4\mu$ ) jeder Kurve, mit dem Faktor 10 überhöht.

Aus Abb. 3 geht deutlich sichtbar hervor, daß der (linke) Peak der festen Partikeln innerhalb von 2 Stunden durch Koagulation mit dem (rechten) Tröpfchenpeak sehr stark abgenommen hat. Der Abbau des Tröpfchenpeaks (durch Koagulation, Sedimentation und Diffusion) geht dagegen wesentlich langsamer vonstatten.

Wenn in der hintersten Kurve ( $\cong 100$  h Realzeit) in der Abbildung kein Tröpfchenpeak mehr zu sehen ist, so liegt dies im gezeigten Beispiel an der linearen Darstellung. Die Tröpfchenkonzentration beträgt zu diesem Zeitpunkt  $4 \cdot 10^3$  P/cm<sup>3</sup>.

### 3. Experimentelle Ergebnisse

Im Ablaufplan war 1975 die Konzeption der Meßtechnik und der Instrumentierung des Versuchsstands vorgesehen. Diese Teilaufgabe kann unabhängig von der noch nicht abgeschlossenen Empfindlichkeitsstudie bearbeitet werden, da der Einsatz der einzelnen Meßmethoden für Partikel-, Tröpfchen- und Gasphaseneigenschaften in jedem Fall notwendig wird. Eine Einschränkung dieser Vorausplanung war zu Beginn des Jahres noch dadurch gegeben, daß nicht eindeutig feststand, bei welchem Druck und bei welcher Temperatur die Experimente durchgeführt werden müssen. Durch die inzwischen erzielten Ergebnisse der Modellrechnungen wird jedoch deutlich, daß Messungen unter Containmentbedingungen bei 130°C und 5 Bar unerlässlich sind.

Der Grund dafür liegt hauptsächlich darin, daß das Massenverhältnis von Wasserdampf zu Aerosol bei niedrigerer Temperatur viel zu klein ist, so daß der Kondensationsvorgang sehr verlangsamt abläuft. Dadurch ergibt sich ein Gesamtverhalten des Aerosolsystems, das von dem im Containment so stark abweicht, daß eine Extrapolation auf Containmentbedingungen nicht mehr möglich ist.

Ein weiterer Grund für Experimente bei realistischen Bedingungen liegt in der bereits erwähnten Unsicherheit über die Gültigkeit der Masongleichung bei der gegebenen Zusammensetzung der Containmentatmosphäre. Als zentraler Bestandteil des Modl benötigt die Masongleichung eine experimentelle Bestätigung, da ihre Gültigkeit in einer überwiegend aus Wasserdampf bestehenden Gasphase keineswegs gesichert ist. Andererseits bietet sie gegenüber allgemeineren Kondensationsmodellen so erhebliche numerische Vorteile, daß man nicht von vornherein auf diese einfache Methode verzichten sollte.

Nachdem somit feststand, daß Messungen unter Containmentbedingungen notwendig sind, konnte mit der Konzeption der Meßtechnik begonnen werden. Im wesentlichen handelt es sich dabei darum, die Methoden zur Tröpfchenmessung festzulegen und für die konventionelle Meßtechnik Geräte auszuwählen, die unter den gegebenen Druck- und Temperaturverhältnissen einsetzbar sind.

Zur Tröpfchenmessung wurden Vorversuche durchgeführt, über die in diesem Abschnitt berichtet wird.

### 3.1 Expansionsversuche

Für die Versuche stand vorübergehend ein bis 50°C thermostatisiertes Gefäß zur Verfügung. Ausgehend von relativen Feuchten von > 90% konnte durch Expansion (Abpumpen) kurzfristig eine Temperaturerniedrigung der Gasphase erzielt werden, die eine genügend starke Wasserdampfkondensation bewirkte.

Quantitative Messungen waren aus zwei Gründen nicht möglich

- Der Wasserdampfgehalt am Beginn war nicht bekannt, da der vorhandene LiCl-Feuchtefühler oberhalb 90% rF nicht mehr anzeigt.
- Die ungenügend gleichmäßige Thermostatisierung des Behälters



fürte sehr schnell zu Konvektion und zu Kondensation des Dampfüberschusses an den Fenstern.

Qualitativ konnte jedoch aus Partikelzahlbilanzen die Entstehung der bimodalen Verteilung und aus Messungen mit einem optischen Partikelgrößenspektrometer das Größenwachstum der Tröpfchenfraktion nachgewiesen werden.

Messungen der Transparenz des Nebels wurden zur Bestimmung der notwendigen Leistung der Lichtquelle bei dem einzusetzenden optischen Spektrometer durchgeführt. In Abb. 4 ist die Transmission als Funktion des Drucks bei einem der Expansionsversuche dargestellt. Durch die zunehmende Größe der Nebeltröpfchen nimmt die Transparenz bis auf weniger als 10% des Werts ohne Nebel ab. Die Tröpfchengröße selbst konnte wegen der oben genannten Schwierigkeiten nicht bestimmt werden.

Der aus den Daten berechnete exponentielle Extinktionsfaktor betrug maximal  $1,3 \text{ m}^{-1}$ . Es ist jedoch damit zu rechnen, daß während der beabsichtigten Messungen bei  $150^\circ\text{C}$  mit wesentlich höherem Tröpfchengehalt auch noch größere Extinktionsfaktoren auftreten.

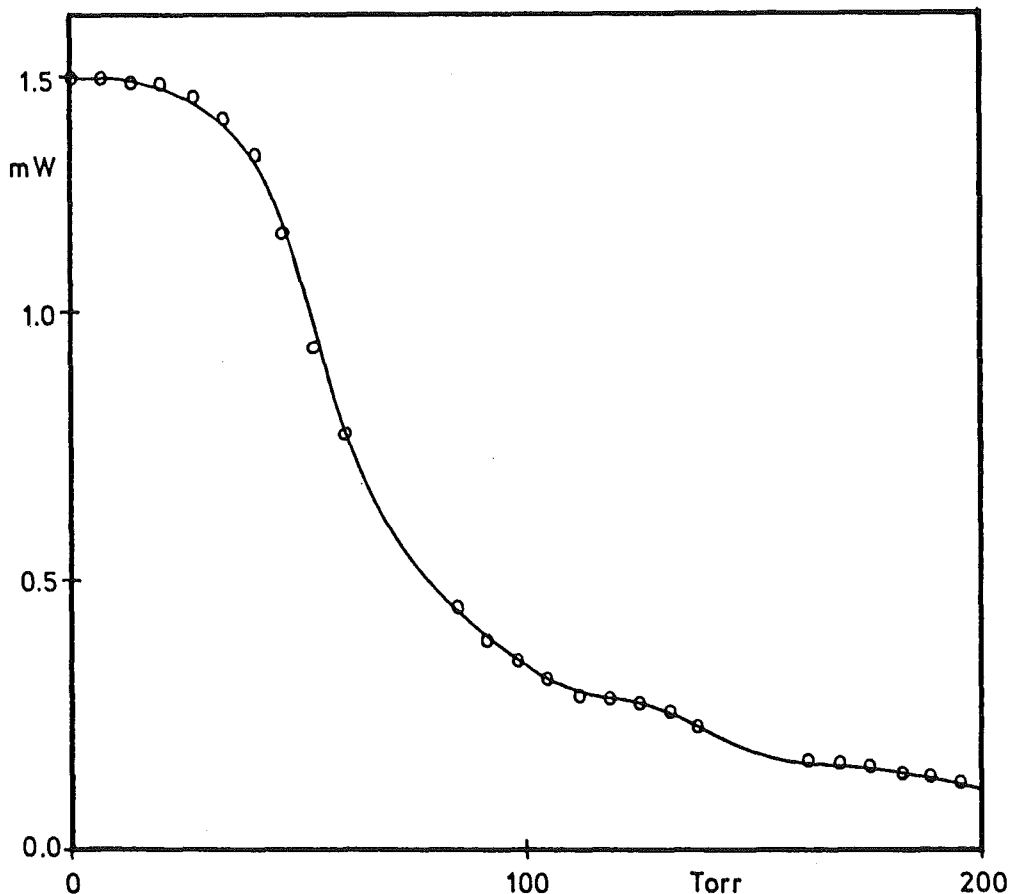


Abb. 4 Transparenz bei einem Expansionsversuch als Funktion des Unterdrucks

An Hand früherer Berechnungen [5] läßt sich abschätzen, daß zur Messung bis 0.5 µm Tröpfchendurchmesser ein Ar-Ionenlaser von 500 mW Ausgangsleistung ausreicht.

### 3.2 Tröpfchengrößenmessung

Nachdem die Grundlagen für das Tröpfchengrößenspektrometer bereits berechnet waren, wurden zur Absicherung dieser Ergebnisse Vorversuche zur Tröpfchengrößenmessung durchgeführt. Dazu wurden aus dem bei 50°C kondensierenden Wasseraerosol Proben abgesaugt und mit dem optischen Partikelgrößenspektrometer OVA-4 gemessen. Die Experimente dienten der Untersuchung der Eigenschaften optischer Meßfeldabgrenzung und des Verhaltens von Wassernebel bei der Absaugung.

Die optische Meßfeldabgrenzung wurde erfolgreich erprobt. Bei den Experimenten war das Volumen des Meßfelds  $1.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^3$ , womit sich bis zu  $10^4 \text{ P/cm}^3$  koinzidenzfrei messen lassen. Eine Verkleinerung des Meßfelds auf  $10^{-6} \text{ cm}^3$  ist möglich, ohne das die Fehler zu groß werden.

Zur Frage der Probenabsaugung ergab sich erwartungsgemäß auch ohne genaue quantitative Messung, daß das Tröpfchensystem beim Durchlaufen der Absaugstrecke erheblich verändert wird. Das führte in einzelnen Fällen so weit, daß das Sepktrometer keine Tröpfchen anzeigte, obwohl im Kondensationsbehälter dichter Nebel war, und umgekehrt.

Dieses Ergebnis war vor dem Hintergrund der Rechnungen mit dem Mod1 nicht verwunderlich. Aufgrund von Druck- und Temperaturdifferenzen in der Ansaugstrecke wird das Tröpfchengrößenspektrum durch Kondensation und Verdampfung verändert. Eine experimentelle Kompensation dieses Effekts ist nicht möglich, auch nicht eine Korrektur der Meßdaten, da dazu das Größenspektrum bekannt sein müßte, das ja gerade gemessen werden soll.

Die Experimente bestätigen somit die Notwendigkeit der in situ-Messung des Tröpfchengrößenspektrums, d.h. die Messung muß im Versuchsbehälter erfolgen. Die Möglichkeit solcher Messungen wurde am Beispiel von Kühltürmen in [6] demonstriert.

Die endgültige Konstruktion des Spektrometers wird abgeschlossen, sobald die Dimensionierung des Versuchsbehälters erfolgt ist.

#### 4. Konzept der Versuchsanlage

Die Phase 1 des experimentellen Programms ist hauptsächlich dafür vorgesehen, die Modellannahmen in Mod1 auf eine experimentell abgesicherte Basis zu stellen.

Vorbehaltlich weiterer Fragestellungen, die sich aus der noch nicht abgeschlossenen Sensitivity Studie ergeben können, handelt es sich hierbei im wesentlichen um folgende Aufgaben:

- Bestimmung des Einflusses der Partikelgrößenverteilung und der Partikelform auf die Wasserdampfkondensation (kritischer Radius, Kondensationsgeschwindigkeit).
- Bestimmung der Auswirkung von Spraysystemen auf den Partikelabbau sowohl durch Abkühleffekt als auch durch Gravitationskoagulation.
- Bestimmung des Einflusses der Wände auf die Abscheidung (Diffusiophorese, Thermophorese, Grenzschichtdicken).
- Bestimmung der Massen- und Dichteverteilung zwischen Partikeln und Tröpfchen (Anteil fester Substanz in den Tröpfchen) als zentrales Problem des NAUA-Modells.
- Bestimmung der Auswirkungen von Abweichungen vom Konzept der homogenen Durchmischung (lokale Quellterme für Partikeln und Dampf).

Um die hier genannten Ziele zu erreichen ist es notwendig, Experimente im Technikumsmaßstab durchzuführen. Die dabei zeitabhängig zu messenden Primärdaten sind folgende

- Partikelgrößenverteilung
- Partikelmassenverteilung
- Partikelform
- Partikelanzahlkonzentration
- Partikelmassenkonzentration
- Tröpfchengrößenverteilung

- Tröpfchenkonzentration
- Wasserdampfgehalt
- Druck, Temperatur der Gasphase

Weiterhin müssen alle Quellterme bekannt sein für

- Aerosol
- Wasserdampf
- Wärme
- Spray

Im folgenden wird kurz das Konzept des Versuchsstands umrissen sowie die Meßmethoden für die erste Gruppe von Meßaufgaben angegeben. Nähere Einzelheiten sind in [1] ausgeführt.

#### 4.1 Auslegung des Versuchsstands

Unabhängig von noch zu klärenden Einzelheiten des experimentellen Programms lassen sich die wesentlichen Eigenschaften des Versuchsstands schon jetzt spezifizieren. Darüber hinausgehende Einzelheiten können noch die Anordnung von Fenstern und Anschlüssen betreffen, jedoch nicht die Auslegungsdaten.

#### Dimensionen

Zylindrischer Versuchsbehälter

- Volumen:  $3 \text{ m}^3$
- Höhe: 1,6 m
- Durchmesser: 1,6 m

#### Auslegungsdaten

- Druck: 5 Bar
- Temperatur:  $150^\circ\text{C}$

#### Thermostatisierung

- Mantelthermostat 100 l
- Leistung > 6 KW
- Wärmekapazität des Versuchsbehälters: 22 Mcal
- Leistung des Abkühlaggregats: 1 Mcal/h·K

### Expansion

- Expansion mit Rollmembran: 100 bis 150 l

### Dampferzeuger

- Energie für Übersättigung von 1% bei 130°C: 24 kcal

## 4.2 Meßtechnik

Aus dem am Anfang gesagten folgt, daß die Parameter Größe, Masse und deren Verteilungen und Konzentrationen für die trockenen Partikel, für die Tröpfchen und für die in den Tröpfchen enthaltenen Partikeln zeitabhängig bestimmt werden müssen. Aus der unregelmäßigen Form der Partikeln folgt ferner, daß die Parameter für Größe und Masse nicht a priori gekoppelt sind und somit getrennt gemessen werden müssen. Hinzu kommen die thermodynamischen Eigenschaften der Gasphase: Temperatur, Druck und Wasserdampfsättigung.

### Partikelgröße

- Thermalpräzipitator
- Stöber-Zentrifuge
- Auswertung mit Elektronenmikroskop und Fourierspektrometer

### Tröpfchengröße

Messung mit dem optischen Tröpfchengrößenspektrometer

- Anfangsphase: am Tröpfchenkollektiv
- Abbauphase : an Einzeltröpfchen

### Massenkonzentration

- Gravimetrie
- Fluorometrie

### Tröpfchenseparation

Die Separation von trockenen Partikeln und Tröpfchen ist über Trägheitskräfte möglich. Die Methode wird in Vorversuchen ausgearbeitet.

### Wasserdampfgehalt

- Messung des H<sub>2</sub>O-Partialdrucks mit Kapazitätsmanometer

### 4.3 Datenerfassung

Die während eines Versuchs anfallende Datenmenge läßt sich aus Gründen der späteren Verarbeitung in zwei Untermengen aufteilen: Tröpfchenspektren und Kontrolldaten. Nach dem Versuch fallen weitere Daten bei der Auswertung von Aerosolproben an, die aber permanent sind und von denen hier nicht die Rede sein soll.

### Tröpfchenspektren

- Meßzyklus: beliebig programmierbar
- Einzelmeßzeit:  $\geq 1$  sec
- Anzahl der Spektren: 4/Zyklus
- Totzeit für Datenausgabe: 30 sec/Spektrum

### Kontrolldaten

Halbautomatische Erfassung von

- Zeitskala
- Druck und Temperatur
- Quelldaten von Dampf und Aerosol
- Einstellparameter

Literatur

- [1] G. Haury, C. Sack, W. Schöck, (1976) unveröffentlicht  
PNS-Arbeitsbericht Nr. 63/76, Januar 1976
- [2] Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht II/1974  
KFK 2130 (1975)
- [3] Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht I/1975  
KFK 2195 (1975)
- [4] B.I. Mason, The Physics of Clouds, Oxford 1971
- [5] W. Schöck, Meßbereichsgrenzen und Auflösungsvermögen bei  
optischen Partikelgrößenspektrometern,  
Kolloquium Aerosolmeßtechnik, 4.3.1975, Aachen
- [6] G. Dibelius und A. Ederhof, Fortschr. Ber. VDI-Z, Reihe 15,  
Nr. 5, S. 28-36

4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole sowie der wahrscheinlichkeitsbewerteten Strahlendosen in der Umgebung nuklearer Anlagen nach Störfällen

(H. Dilger, J. Hiller, W. Hübschmann, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

Die im folgenden beschriebenen Einzeluntersuchungen dienen im Rahmen des übergeordneten Zieles der Entwicklung von Modellen und Anlagen zur Berechnung von Kurzzeitdosen nach einem angenommenen Störfall, der Überprüfung der modellmäßig errechneten Dosiswerte mithilfe von Feldmessungen (Abschnitt 1), der Entwicklung von Diagnose- und Prognosemodellen im Rahmen eines meteorologischen Informationssystems (Abschnitte 2 und 5), der verbesserten Risiko-Analyse von Kernkraftwerken (Abschnitt 3) sowie der statistischen Analyse gemessener meteorologischer Daten im Hinblick auf die Verbesserung der Genauigkeit bei der Berechnung der atmosphärischen Ausbreitung (Abschnitt 4).

## 1. Ausbreitungsversuche

(J. Hiller, H. Schüttelkopf, P. Thomas)

### 1.1 Durchführung eigener Versuche

Im 2. Halbjahr 1975 fanden drei Ausbreitungsversuche statt:

Versuch Nr. 32: Simultane Abgabe von  $\text{CFCl}_3$  und  $\text{CF}_2\text{Br}_2$  in 60 m Höhe vom meteorologischen Mast,

Versuch Nr. 33: Abgabe von  $\text{CF}_2\text{Br}_2$  in 100 m Höhe vom Kamin des FR2,

Versuch Nr. 34: Simultane Abgabe von  $\text{CF}_2\text{Br}_2$  in 100 m Höhe und  $\text{CFCl}_3$  in 60 m Höhe vom meteorologischen Mast.

Die automatische Probenahmetechnik konnte bei den drei Versuchen durch Einsatz von jeweils zwei automatischen Stationen erfolgreich getestet werden. Wegen Lieferungsverzögerungen bei den magnetischen Ventilen kamen die automatischen Probenahmestationen jedoch noch nicht in größerer Zahl wie vorgesehen zum Einsatz; der Personalbedarf war dementsprechend groß. Das begründet auch die geringe Zahl der durchgeführten Versuche.



Der erste Einsatz eines automatischen Probeninjektors verlief zufriedenstellend. Eine statistische Untersuchung über mehrere Größenordnungen der Leitsubstanz-Konzentration zeigte allerdings, daß Querkontaminationen zwischen den verschiedenen Proben in der Anlage nicht ausgeschlossen werden können. An der Beseitigung dieser Schwierigkeit wird gearbeitet. Der Einsatz des digitalen Peakintegrators führte zu einer wesentlichen Erleichterung der Auswertearbeit. Ebenso befriedigte der für die Auswertung benützte programmierbare Tischrechner. Eine Kopplung des Peakintegrators mit dem Rechner ist aber zur Zeit nicht praktikabel. Bei den Experimenten 31 bis 34 wurde zur Emission von  $\text{CFCl}_3$  der vergrößerte Tank für Emissionen bis zu 60 kg/h eingesetzt. Dieser neue Emissionstank hat sich bei allen Experimenten bewährt. Es wurde ein Füllstandsmesser beschafft, der die Emissionsrate auf einfachere Weise bestimmen läßt als durch Wägung des Tanks.

Von den in Auftrag gegebenen 140 Automaten wurden zum Jahreswechsel 70 Stück geliefert. Sie werden zur Zeit auf Funktionstüchtigkeit, Dichtigkeit und Konstanz der Enddruckeinstellung in der ASS/Ch geprüft.

## 1.2 Auswertung

Von den sechs im Jahre 1975 durchgeführten Ausbreitungsversuchen Nr. 29 bis 34 waren nur drei erfolgreich (Nr. 31, 32 und 34). Während der Versuche Nr. 30 und Nr. 33 traten starke Windrichtungsänderungen auf. Die Tracerfahnen lagen daher außerhalb des mit Meßstellen belegten Gebietes. Eine chemische Kontamination im Labor verdarb die Proben des Versuches Nr. 29. Bei Versuch Nr. 34 (simultane Emission in 60 und 100 m Höhe) waren in der Nahzone die Konzentrationen der beiden Tracer naturbedingt sehr verschieden. Auf dem Gaschromatogramm überdeckten die Peaks des in 60 m Höhe emittierten Tracers diejenigen des zweiten Tracers. Die Zahl der Probenahmestationen mit meßbaren Konzentrationen des in 100 m Höhe freigesetzten Tracers ist daher relativ klein, die Auswertung entsprechend schwierig. Der Versuch ergab jedoch wichtige Hinweise, wie die Anordnung der Probenahmestationen und die gaschromatographische Meßtechnik bei der simultanen Abgabe zweier Tracer in unterschiedlichen Höhen noch verbessert werden können.

### 1.3 Ergebnisse

Alle im Jahre 1975 durchgeführten und ausgewerteten Versuche beziehen sich auf eine Emissionshöhe von 60 m. Die ermittelten Ausbreitungsparameter entsprechen denen, die bereits bisher bei einer Emissionshöhe von 60 m für den Standort des Kernforschungszentrums gewonnen wurden und stellen diese auf eine breitere statistische Basis. Über die sechs auswertbaren Versuche mit 60 m Emissionshöhe (Ausbreitungskategorien B bis D) läßt sich folgendes feststellen:

Mit steigender Fluktuation der vertikalen Windrichtung  $\sigma_\phi$ , d.h. mit wachsender atmosphärischer Turbulenz, liegen die Kurven des horizontalen Ausbreitungsparameters  $\sigma_y$  höher und verlaufen, über der Quelldistanz aufgetragen, flacher. Die Kurven des vertikalen Ausbreitungsparameters  $\sigma_z$  liegen ebenfalls höher, wenn  $\sigma_\phi$  wächst; allerdings werden die Kurven steiler. Die Abbn. 4312-1 bzw. -2 und -3 zeigen die Kurven des vertikalen Ausbreitungsparameters  $\sigma_z$ , die aus den Meßwerten der Versuche 32 und 34 ermittelt wurden. Die Kategorie war C, die Fluktuation der vertikalen Windrichtung  $\sigma_\phi$  in 100 m Höhe betrug, über die Versuchsdauer gemittelt, 10,5 und 8,0 Bogengrad.

Ein etwas anderes Bild ergeben allerdings die Versuche 27 und 31. Bei diesen Versuchen lag das Probenahmegebiet in dichtem Hochwald südlich des Kernforschungszentrums. Dort werden stets viele Probenahmestationen so stark gegen die Abluftfahne abgeschirmt, daß sich die Auswertung der Meßwerte äußerst schwierig gestaltet.

Bei der simultanen Abgabe zweier Tracer in gleicher Höhe (Versuch Nr. 31 und Nr. 32) stimmen die für beide Tracer ermittelten Ausbreitungsparameter gut überein. Das zeigen z.B. die vertikalen Ausbreitungsparameter  $\sigma_z$  in den Abbn. 4312-1 und -2, die aus den Meßwerten des Versuches Nr. 32 ermittelt wurden. Die zwei Sammelperioden sind hier zusammengefaßt.

#### 1.4 Auswertung eines Meso-Scale-Experiments

Die Meßwerte eines 1974 im Rhonetal bis zu Entfernungen von über 100 km durchgeführten Ausbreitungsversuches wurden mit demselben Rechenverfahren ausgewertet wie die Meßwerte der Ausbreitungsversuche des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Der Versuch wurde bei der Kategorie C bis D durchgeführt. Die bei der Auswertung ermittelte Kurve des horizontalen Ausbreitungsparameters  $\sigma_y$  entspricht annähernd derjenigen, die für den Standort des Kernforschungszentrums Karlsruhe gefunden wurde, wenn diese bis zu größeren Entfernungen extrapoliert wird. Die Kurve des vertikalen Ausbreitungsparameters  $\sigma_z$  liegt niedriger und verläuft flacher als die entsprechende Kurve des KFZK. Das wird möglicherweise durch Höheninversionen bewirkt, welche die vertikale Ausbreitung in großen Quelldistanzen beeinflussen.

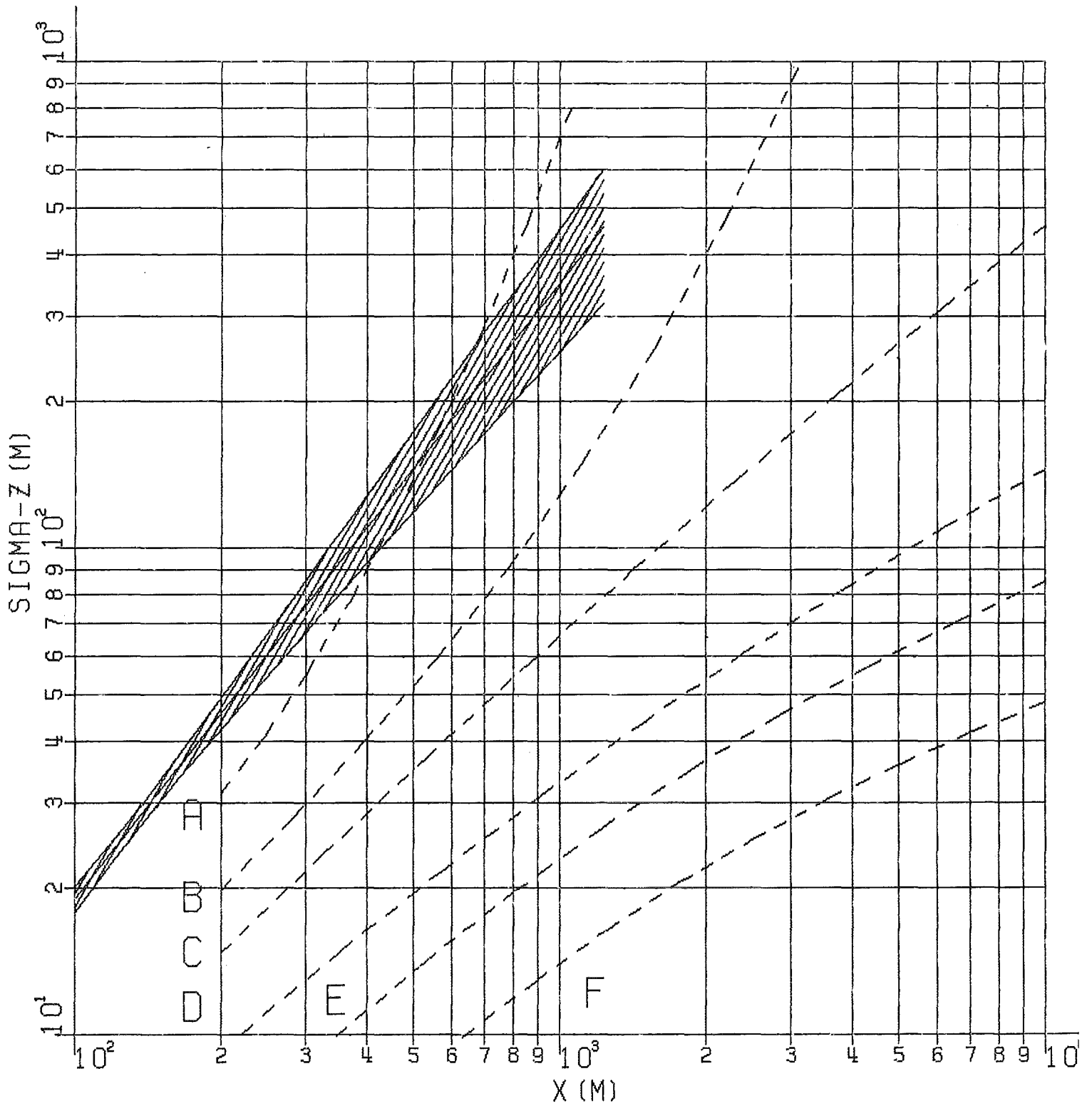


ABB. 4312-1 AUSWERTUNG DER AUSBREITUNGSVERSUCHE  
(---NACH PASQUILL-GIFFORD)  
VERSUCH 32/ $CF_2BR_2$  PERIODE 1 2

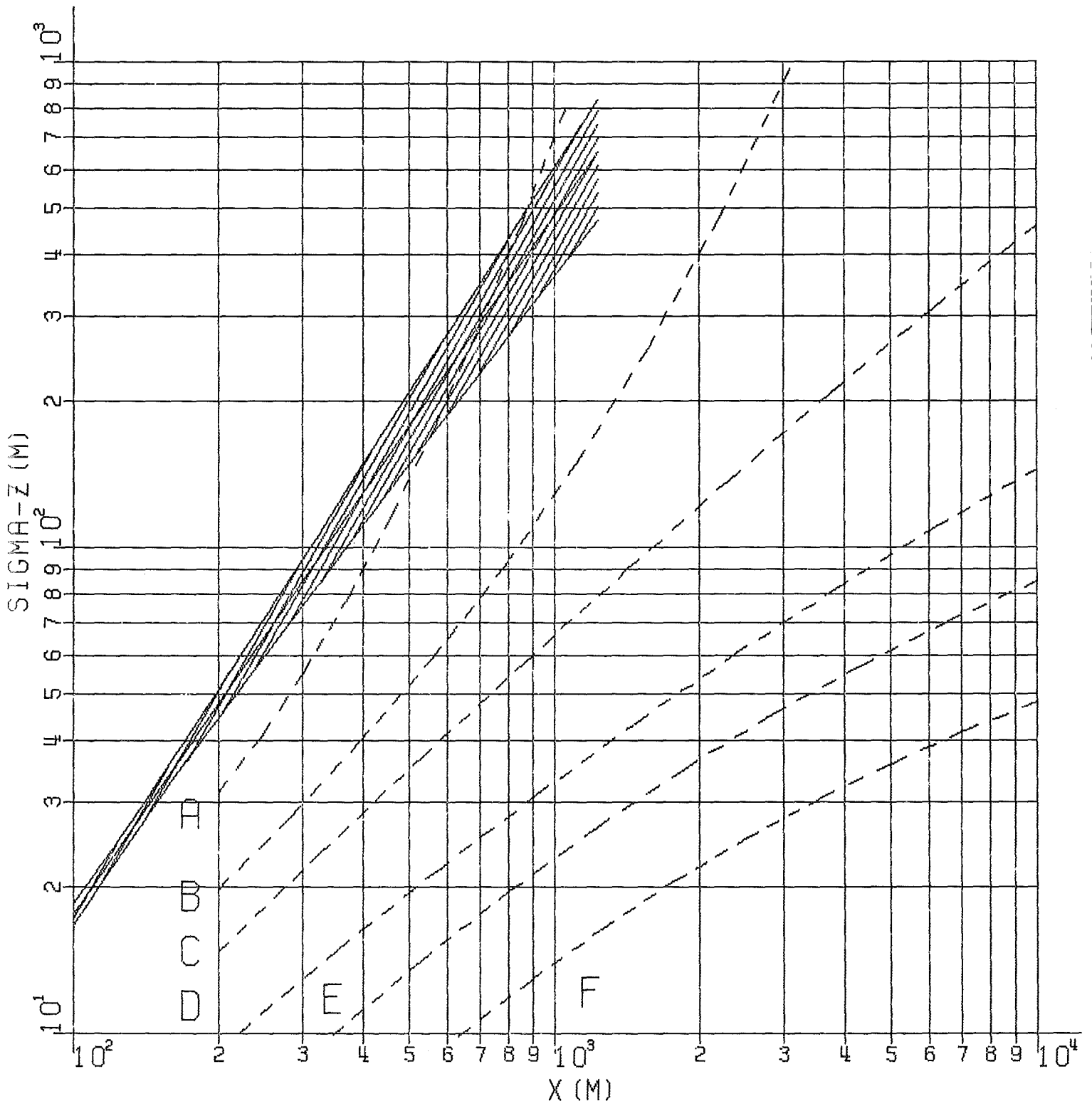


ABB. 4312-2 AUSWERTUNG DER AUSBREITUNGSVERSUCHE

(---NACH PASQUILL-GIFFÖRD)

VERSUCH 32/CFCL<sub>3</sub>

PERIÖDE

1 2

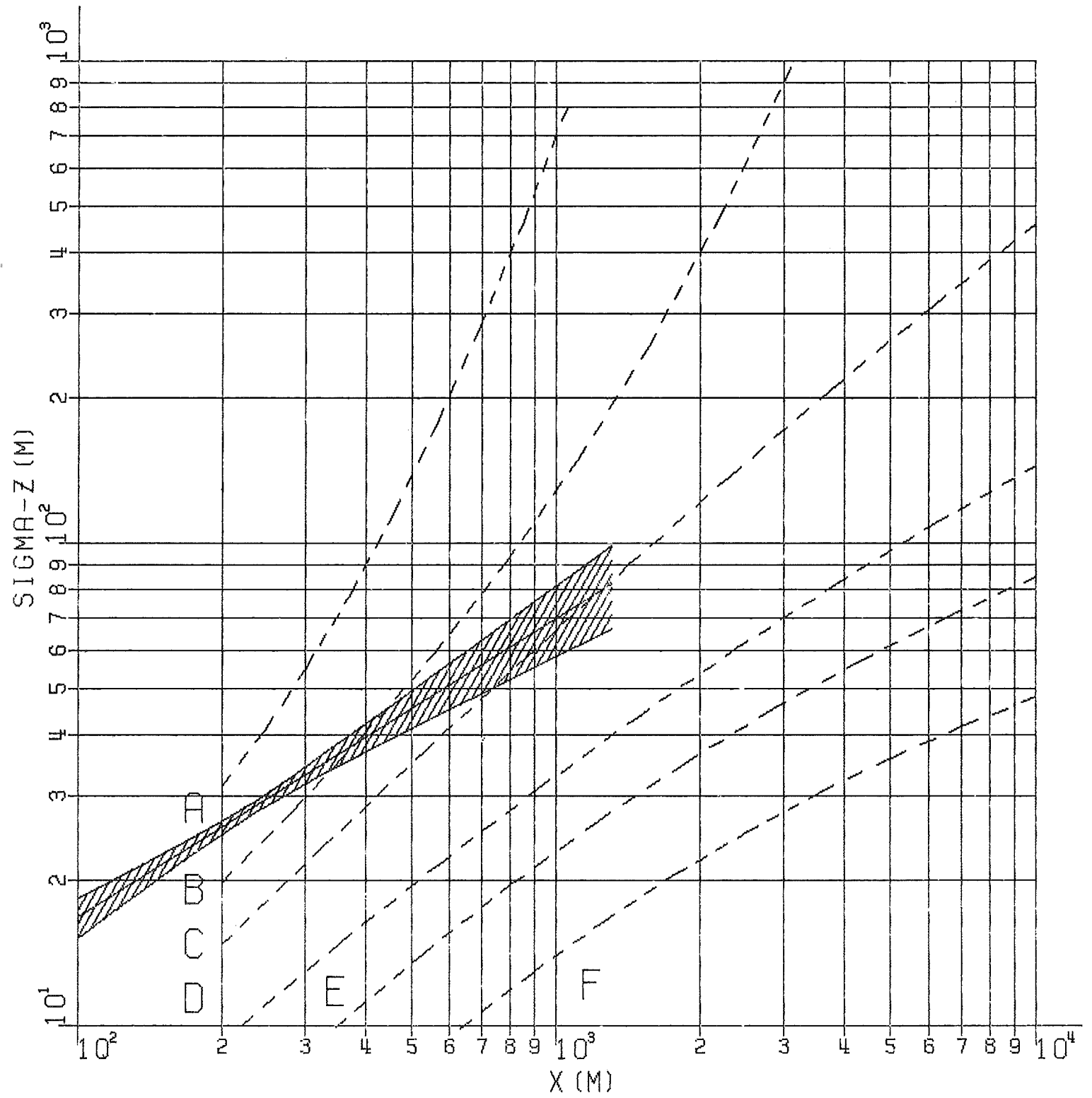


ABB. 4312-3 AUSWERTUNG DER AUSBREITUNGSVERSUCHE

(---NACH PASQUILL-GIFFÖRD)

VERSUCH 34/ $CFCl_3$

PERIODE

1 2

## 2. Prognose der Strahlenbelastung der Bevölkerung bei hypothetischen Störfällen

W. Hübschmann, S. Vogt

Hypothetische Störfälle sind Ereignisse, deren Auswirkungen auf die Umwelt und auf die Bevölkerung, bedingt durch die in die Atmosphäre freigesetzten radioaktiven Spaltprodukte, über die des größten anzunehmenden Unfalls hinausgehen. Solche Störfälle haben nach /1/ nur eine geringe Wahrscheinlichkeit von etwa  $10^{-5}$  bis  $10^{-6}$  pro Jahr, so daß es angesichts der hohen Unwahrscheinlichkeit solcher Unfälle weniger vordringlich erscheint, weitere Gegenmaßnahmen zu ergreifen, die deren Wahrscheinlichkeit nochmals verringern.

Da aber das Gefährdungspotential in diesen Fällen groß ist, sollte eine wirksame Notfallplanung zum Schutze der Bevölkerung vorhanden sein. Vorrangig ist dabei eine möglichst zuverlässige Prognose der Gefährdung der Bevölkerung, damit rechtzeitig Gegenmaßnahmen, wie etwa eine Evakuierung der Bevölkerung, ergriffen werden können.

Diese Prognose sollte enthalten:

- Vorhersage des Gebietes, in welcher das Dosismaximum mit großer Wahrscheinlichkeit zu erwarten ist,
- Vorhersage der wahrscheinlichen oberen Grenze der zu erwartenden maximalen Strahlendosis.

Zu diesem Problemkreis wurden in einer im Dezember 1975 veröffentlichten Arbeit /2/ umfangreiche Untersuchungen angestellt.

Ausgehend von der zu Beginn eines Störfalles herrschenden Ausbreitungskategorie, der Windrichtung, der Windgeschwindigkeit und Tageszeit, ist es möglich, mit den in /2/ angegebenen Diagrammen das gefährdete Gebiet mit 90 %-iger Sicherheit vorherzusagen.

Es handelt sich nicht um eine Prognose im Sinne der Wettervorhersagen des Deutschen Wetterdienstes, sondern die Vorhersagen basieren auf der statistischen Analyse bisher registrierter Wetterabläufe. Dabei sind die ungünstigsten 10 % aller Wetterlagen unberücksichtigt.

Für verschieden lange Emissionszeiträume werden Diagramme wie in Abb. 4312-4 dargestellt. Am Beispiel eines Modellstörfalls sollen wesentliche Ergebnisse und gleichzeitig der Gebrauch der Abb. 4312-4 erläutert werden:

- Um 10.00 Uhr tritt der Störfall ein, der wahrscheinlich 3 Stunden andauert; die Quellstärke wird während dieser Zeit konstant angenommen. Zu Emissionsbeginn herrscht die Kategorie A.

Zuerst werden in Abb. 4312-4 die zur Ausbreitungskategorie A gehörigen übereinander angeordneten Kurven für  $V_D$ ,  $\Delta\phi$  und  $X_T$  aufgesucht. (Obere drei Kurven am linken Rand). Ausgehend von 10.00 Uhr auf der Abszisse ergibt sich:

- In 90 % aller Fälle wird diese Quelldistanz  $X_T$  des Dosismaximums durch die Kategorie A bestimmt. Bei bekannter Emissionshöhe kann damit die Quelldistanz in Meter angegeben werden.
- Die azimutale Lage des Dosismaximums wird in 90 % aller Fälle höchstens  $\pm \frac{1}{2} \Delta\phi = \pm 110^\circ$  von der um 10.00 Uhr herrschenden Ausbreitungsrichtung abweichen.

Darüber hinaus sind mithilfe des Faktors  $V_D$  Aussagen möglich, inwieweit die maximale Dosis von dem Betrag der Dosis abweicht, der unter der Annahme errechnet wurde, daß die zu Emissionsbeginn herrschenden meteorologischen Bedingungen während der Dauer der Emission konstant bleiben.

Insgesamt wurden sieben derartige Diagramme für Emissionszeiten von 3 bis 24 h und verschiedene Quellstärkeverläufe (konstant oder exponentiell abnehmend) berechnet.

Voraussetzung für die Anwendung dieser Programme ist das Vorhandensein eines meteorologischen Informationssystems, s. /3/. Dieses liefert neben den Informationen über Windrichtung und -geschwindigkeit auch eine zuverlässige Angabe der Stabilitätskategorie. Die Werte  $\Delta\phi$  und  $X_T$  können zur Angabe eines Segmentes, in welchem die höchsten bodennahen Aktivitätskonzentrationen während des Emissionszeitraumes  $\Delta T$  zu erwarten sind, zusammengefaßt werden. In Abb. 4312-5 ist dieses Segment auf ein Gebiet erweitert, in welchem mehr als 50 % der Maximalkonzentration zu erwarten sind. In einem solchen Segment müßten bei einer störfallbedingten Freisetzung



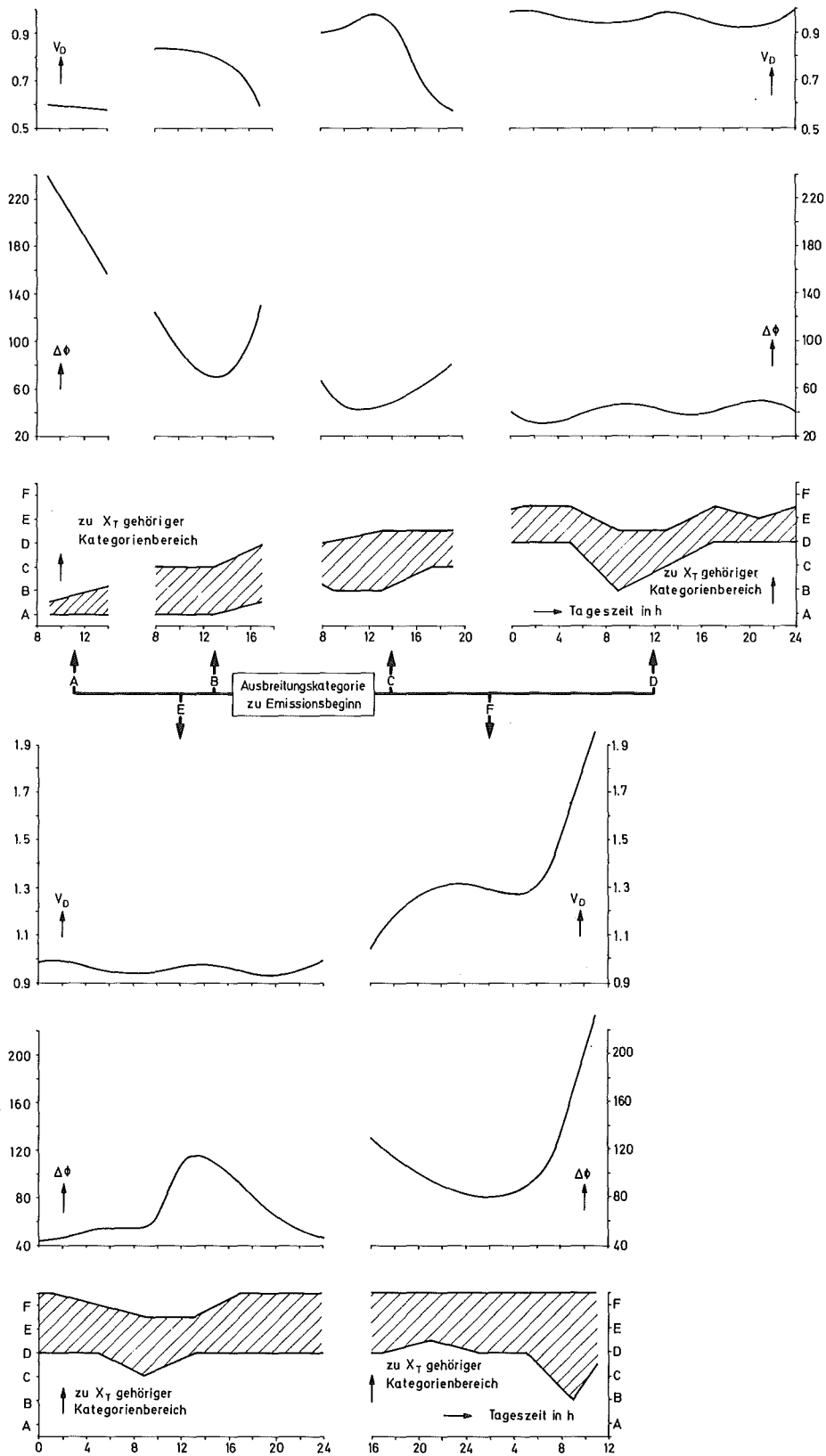
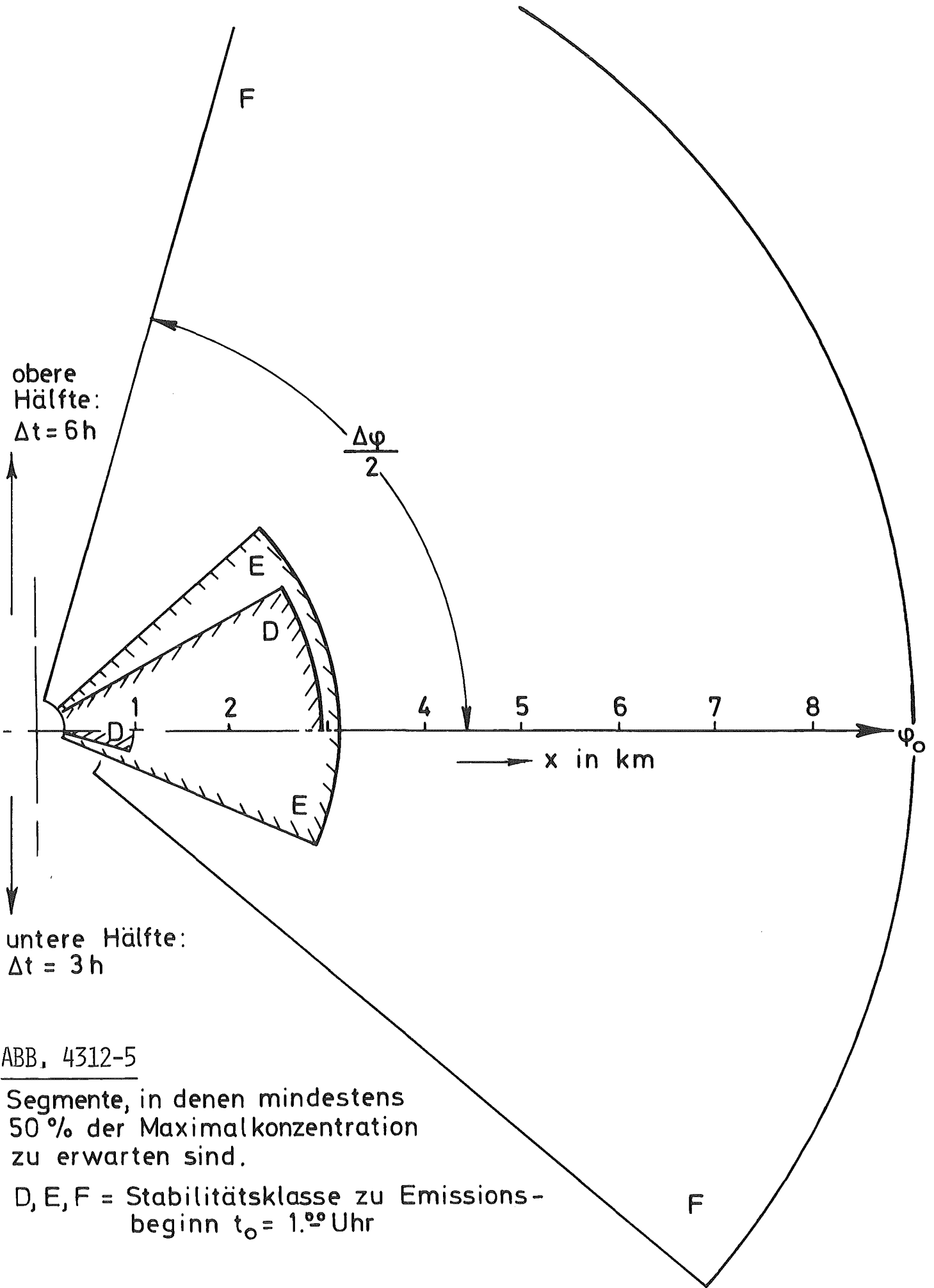


ABB. 4312-4 BESTIMMUNG DER LAGE UND HÖHE DES DOSISMAXIMUMS NACH EINER KURZZEITEMISSION



ABB, 4312-5

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

D, E, F = Stabilitätsklasse zu Emissionsbeginn  $t_0 = 1.00$  Uhr

von einem Überwachungstrupp Strahlungsmessungen vorgenommen werden, um Rückschlüsse auf die tatsächliche Aktivitätsquellstärke und somit auf die Gefährdung der Bevölkerung ziehen zu können. /4/.

### 3. Analyse der Reactor Safety Study ("Rasmussen-Studie")

H. Dilger, W. Hübschmann, S. Vogt

Aufbauend auf der kritischen Würdigung des Modells der atmosphärischen Ausbreitung in der "Rasmussen-Studie" /5/ wurde die Analyse vertieft mit dem Ziel, unvollständige Ergebnisse und fehlende Details der Studie zu ergänzen.

Hierzu wurde das in /1/ beschriebene Modell der atmosphärischen Ausbreitung, der Bevölkerungsverteilung und der Gesundheitsschäden programmiert. Bei der atmosphärischen Ausbreitung werden folgende Einflüsse berücksichtigt:

- Aufstieg der Abluftfahne aufgrund der freigesetzten thermischen Energie und der durch Selbstabsorption der radioaktiven Strahlung entstehenden Energie,
- trockene Ablagerung von Spaltprodukten am Erdboden,
- Auswaschung von Spaltprodukten durch Niederschlag.

Für jeden Aufpunkt in der Entfernung  $x$  ergibt das atmosphärische Ausbreitungsmodell die Aktivitätskonzentration  $\chi$  in  $\text{Ci}\cdot\text{s}/\text{m}^3$ . Das Bevölkerungsmodell geht aus von einer gegebenen Bevölkerungsdichte ( $\text{Personen}/\text{km}^2$ ) und liefert in Abhängigkeit der Ausbreitungskategorie und der Entfernung die Anzahl der von der Abluftwolke betroffenen Personen. Etwaige Evakuierungsmaßnahmen werden durch ein Evakuierungsmodell simuliert.

Die Personen in der Entfernung  $x$  im Einwirkungsbereich der Abluftwolke werden über drei Belastungspfade bestrahlt.

- innere Bestrahlung durch Inhalation der vorüberziehenden Abluft;
- äußere Bestrahlung durch am Boden abgelagerte Aktivität während der Dauer von 24 Stunden;
- äußere Bestrahlung ( $\gamma$ -Strahlung) aus der vorüberziehenden Abluftfahne während der Durchzugszeit.

Die Summe der Strahlendosen aller drei Belastungspfade ergeben die Gesamtdosis. Bezüglich der Ganzkörperdosis wird unterschieden zwischen einer Kurzzeitdosis, welche über 30 d, und einer Langzeitdosis, welche über 50 a integriert wird. Neben der Ganzkörperdosis werden die Organdosen für Lunge, Schilddrüse und Magen-Darm-Trakt, resultierend ebenfalls aus den drei Belastungspfaden, berechnet.

Die gesundheitlichen Schäden in jeder Entfernung  $x$  werden aufgeschlüsselt in:

- akut Strahlentote durch Ganzkörper-Kurzzeit-Dosis
- "                    "          Lungen-Dosis
- "                    "          Magen-Darm-Trakt-Dosis,
- akut Strahlenkranke (überlebend) durch Ganzkörper-Kurzzeit-Dosis,
- Schilddrüsenkrebsfälle bei Kindern durch Schilddrüsen-Inhalations-Dosis,
- Krebsfälle durch Ganzkörper-Langzeit-Dosis.

Die Zahl der Strahlengeschädigten ergibt sich durch Multiplikation der Anzahl der bestrahlten Personen mit der Wahrscheinlichkeit für Tod bzw. für Krankheit. Diese Wahrscheinlichkeit steht in einer linearen Beziehung zur Höhe der Dosis  $D$  im Bereich  $D_u \leq D \leq D_o$ . Oberhalb  $D_o$  ist die Wahrscheinlichkeit gleich 1, unterhalb  $D_u$  ist sie Null.

Mit obigen Modellannahmen wurden einige Testläufe durchgeführt mit folgenden Randbedingungen: Unfallkategorie PWR-2, mittlere Bevölkerungsdichte eines amerikanischen Kernkraftwerksstandortes und mittlere Ausbreitungsbedingungen, simuliert durch 25 Einzelsituationen. Die Ergebnisse dieser Testläufe sind in /6/ ausführlich dargestellt. Die folgenden Punkte sind besonders hervorzuheben:

1. Die Langzeit-Ganzkörper-Inhalationsdosis steigt gegenüber der Kurzzeit-Ganzkörper-Inhalationsdosis nur etwa um den Faktor 2 an. Wesentlich an diesem Anstieg beteiligt sind die Nuklide SR-89, Sr-90, Cs-134, Cs-137, Ce-144 und Pu-238.

2. Während die Strahlung aus der vorüberziehenden Abluftfahne nur mit weniger als 10 % zur Ganzkörper-Dosis beiträgt, ist der Anteil an der Ganzkörper-Dosis durch die am Boden abgelagerte Aktivität etwa 1/3. Diese Zahlenangabe über den Beitrag der abgelagerten Aktivität unterscheidet sich somit wesentlich von den Angaben in /1/.

3. Eine Aufschlüsselung der drei Bestrahlungspfade nach den jeweils fünf bis sechs wichtigsten Nukliden ergibt folgende Rangordnung:

Kurzzeit-Ganzkörper-Inhalationsdosis

J-131, Te-132, Ba-140, J-133, Sr-89, Cs-137

äußere Bestrahlung durch am Boden abgelagerte Aktivität

J-131, J-133, J-135, Te-132, Cs-136

äußere Bestrahlung aus der vorüberziehenden Abluftfahne

J-135, J-133, J-131, Kr-88, J-132, Te-132, Cs-136

Aus dieser Analyse ergeben sich einige vordringliche Verbesserungen am Berechnungsmodell:

- der Aufstieg der Aktivitätsfahne hat, wenn er realistisch beurteilt und entsprechend programmiert wird, einen entscheidenden Einfluß auf die Inhalationsdosis und damit auf die akuten Auswirkungen der Bestrahlung. Die Annahme in der Rasmussen-Studie (Die Abluftfahne "klebt" am Boden) ist daher aufzugeben.
- Die Strahlung aus der abgelagerten Aktivität darf nicht pauschal über 24 h, sondern muß über die gesamte Einwirkungszeit integriert werden, da sie u.U. die Hauptbestrahlungsquelle darstellt.
- Damit gewinnt das Evakuierungsmodell erheblich an Bedeutung. Das amerikanische Modell ist sicher nicht auf deutsche Verhältnisse (höhere Bevölkerungs- und Verkehrsdichte, geringerer Motorisierungsgrad) übertragbar. Die Totzeit bis zum Beginn der Evakuierung wird für die BRD wesentlich größer eingeschätzt.

-Da die Ablagerung bei einem verbesserten Modell an Bedeutung gewinnt, kann das einfache pauschalisierte Ablagerungsmodell nicht beibehalten werden.

Neben diesen Punkten bleiben selbstverständlich die in /5/ zusammengestellten kritischen Anmerkungen weiterhin bestehen. Ein verbessertes und auf deutsche Verhältnisse anwendbares Berechnungsmodell wird im Jahre 1976 erarbeitet.

#### 4. Auswertung meteorologischer Messungen

##### 4.1 Lateraler Ausbreitungsparameter $\sigma_y$

H. Dilger

Für die Ausbreitungsrechnungen werden vielfach die von HILSMEIER und GIFFORD modifizierte, ursprünglich von PASQUILL stammende, Ausbreitungsparameter benutzt /7/. PASQUILL ordnete den Ausbreitungskategorien A-F  $\bar{\sigma}_\theta$ -Werte zu, die aus den Fluktuationen der horizontalen Windrichtung  $\theta$  gewonnen wurden; diese  $\bar{\sigma}_\theta$ -Werte gelten für Sammelperioden von 10-60 min /8/. Anhand der Messungen am Meßmast des KFZK wurde die Zuordnung der  $\bar{\sigma}_\theta$ -Werte zu den Ausbreitungskategorien überprüft und der Einfluß horizontaler Windrichtungsdrehungen auf den lateralen Ausbreitungsparameter  $\sigma_y$  abgeschätzt.

Basis für die Untersuchungen waren die 10-min-Mittelwerte a) der Streuung  $\sigma_\rho$  der vertikalen Windrichtungsfluktuationen einer Vektorfahne, b) der Streuung  $\sigma_\theta$  der horizontalen Windrichtungsfluktuationen einer Schwertwindfahne und c) der horizontalen Windrichtung  $\theta$ . Die Streuung  $\sigma_\rho$  wird analog mit einer Sammelzeit  $T \leq 3$  min berechnet, die Streuung  $\sigma_\theta$  digital aus 150 Momentanwerten. Beide Windfahnen sind in 100 m Höhe am meteorologischen Mast installiert.

Durch Vergleich der Jahressummenhäufigkeiten von  $\sigma_\rho$  und  $\sigma_\theta$  wurden die bei  $\sigma_\rho$  bekannten Grenzen für die Ausbreitungskategorien (vgl. /9/) auf  $\sigma_\theta$  übertragen. In Tab. 4312-1 sind die Kategoriengrenzen für  $\sigma_\rho$ ,  $\sigma_\theta$  sowie  $\bar{\sigma}_\theta$ -Werte für die einzelnen Kategorien nach /8/ aufgeführt.

Kat.	$\sigma_{\emptyset}$ [Grad]	$\sigma_{\theta}$ [Grad]	$\overline{\sigma_{\theta}}$ [Grad]	$\sigma_{\theta}^{10-60}$ [Grad]	$\sigma_{\theta}^{60}$ [Grad]
A	$\sigma > 14,0$	$\sigma > 32,1$	25,0	22,5	43,3
B	$14,0 \geq \sigma > 10,5$	$32,1 \geq \sigma > 22,2$	20,0	12,3	29,7
C	$10,5 \geq \sigma > 7,0$	$22,2 \geq \sigma > 12,9$	15,0	7,7	18,7
D	$7,0 \geq \sigma > 3,0$	$12,9 \geq \sigma > 6,3$	10,0	4,5	11,0
E	$3,0 \geq \sigma > 1,5$	$6,3 \geq \sigma > 4,6$	5,0	6,5	8,2
F	$1,5 \geq \sigma > 0$	$4,6 \geq \sigma > 0$	2,5	7,7	8,1

Tab. 4312-1: Kategoriengrenzen nach  $\sigma_{\emptyset}$  der Vektorfahne und  $\sigma_{\theta}$  der Schwertwindfahne in Karlsruhe in 100 m Höhe im Vergleich zu den  $\overline{\sigma_{\theta}}$ -Werten von PASQUILL, sowie die Drehungsanteile  $\sigma_{\theta}^{10-60}$  und die modifizierten 1 h-Werte  $\sigma_{\theta}^{60}$ .

In den stabilen bis schwach labilen Kategorien liegen die  $\overline{\sigma_{\theta}}$ -Werte nach PASQUILL im entsprechenden  $\sigma_{\theta}$ -Intervall, bei den Kategorien A und B darunter. Die  $\overline{\sigma_{\theta}}$ -Werte von PASQUILL für die Kategorien C-F können somit etwa den  $\sigma_{\theta}$ -Werten von Karlsruhe mit einer Sammelzeit von 10 Minuten gleichgesetzt werden.

Untersuchungen über das Energiespektrum der Lateralkomponente  $v'$  des Windvektors /10/ zeigten, daß oberhalb einer Periodendauer von 15 Minuten größere Energieanteile vorhanden sind. Diese Energieanteile wurden horizontalen Windrichtungsdrehungen zugeordnet. Rechenprogramme, die von stündlichen Mittelwerten der meteorologischen Daten ausgehen, berücksichtigen bei Verwendung der  $\overline{\sigma_{\theta}}$ -Werte diese Windrichtungsdrehungen nicht.

Um diese Drehungen zu erfassen, wurden die Abweichungen der 10 min-Mittelwerte von dem entsprechenden 1 h-Mittelwert berechnet. Diese Richtungsdivergenzen  $|\Delta\theta_{ij}| = |\theta_{ij} - \theta_i|$  wurden gesondert nach Ausbreitungskategorien in Klassen von 5 Grad Breite einsortiert. ( $\theta_{ij}$  ist dabei der einzelne 10-Minutenmittelwert,  $\theta_i$  ist der Stundenmittelwert).

In Abb. 4312-6 sind die Summenhäufigkeiten der Windrichtungsdifferenzen  $|\Delta\theta|$  für die einzelnen Kategorien aufgezeichnet. In Kategorie D sind die Drehungen am geringsten, bei Kategorie A am größten. Die Kategorien C, E und F weisen größere Drehungen als Kategorie D auf und liegen dicht beieinander. Aus den Summenhäufigkeitskurven wurden die  $(\Delta\theta)$ -Werte bei 68,2 % abgelesen (s. Tab. 4312-1, Spalte 5), weil bei einer Normalverteilung diese Werte gleich der Streuung Sigma sind. Diese so gewonnenen  $\sigma_{\theta}^{10-60}$ -Werte entsprechen etwa dem Anteil der Windrichtungsdrehungen im Spektrum von  $v'$  zwischen 10 und 60 Minuten. Langwelligere Schwingungen, die verhältnismäßig große  $(\Delta\theta_{ij})$ -Werte liefern, sollen für die  $\sigma_{\theta}^{60}$ -Werte nicht berücksichtigt werden.

Das für den Zeitraum von 1 h maßgebende  $\sigma_{\theta}^{60}$  kann aus Gleichung (1) berechnet werden.

$$\sigma_{\theta}^{60} = (\overline{\sigma_{\theta}}^2 + (\sigma_{\theta}^{10-60})^2)^{1/2} \quad (1)$$

In Tab. 4312-1 sind die nach Gleichung (1) berechneten  $\sigma_{\theta}^{60}$ -Werte in Spalte 6 aufgeführt. Dabei wurden für die Kategorien C, B und A abweichend von PASQUILL für  $\overline{\sigma_{\theta}}$  Kategorienmittelwerte von den in Karlsruhe gemessenen  $\sigma_{\theta}$ -Werte verwendet und zwar 17,0, 27,0 und 37,0. Der Einfluß der Windrichtungsdrehungen auf  $\sigma_{\theta}^{60}$  ist bei den Kategorien E und F am größten.

Wenn man voraussetzt, daß der Rauigkeitseinfluß des Geländes auf das Ausbreitungsverhalten bei den Kategorien E und F gering ist, so daß der Zusammenhang zwischen  $\sigma_y$  und  $\sigma_{\theta}$  in der nach /7/ angegebenen Weise vorhanden ist, können für die Langzeitausbreitung mit 1 h-Statistiken bei den Kategorien E und F die  $\sigma_y$ -Kurven von Kategorie D verwendet werden. Bei den Kategorien A-D deuten die am KFZ Karlsruhe durchgeführten Ausbreitungsexperimente darauf hin, daß der Zusammenhang von  $\sigma_y$  und  $\sigma_{\theta}$  in der nach /7/ angegebenen Weise für rauhes Gelände nicht mehr gültig ist. Da außerdem der Einfluß von Windrichtungsdrehungen auf  $\sigma_{\theta}^{60}$  gering ist, sollten für mehrstündige Ausbreitung bei den Kategorien A-D die aus den Ausbreitungsexperimenten gewonnenen  $\sigma_y$ -Kurven verwendet werden.



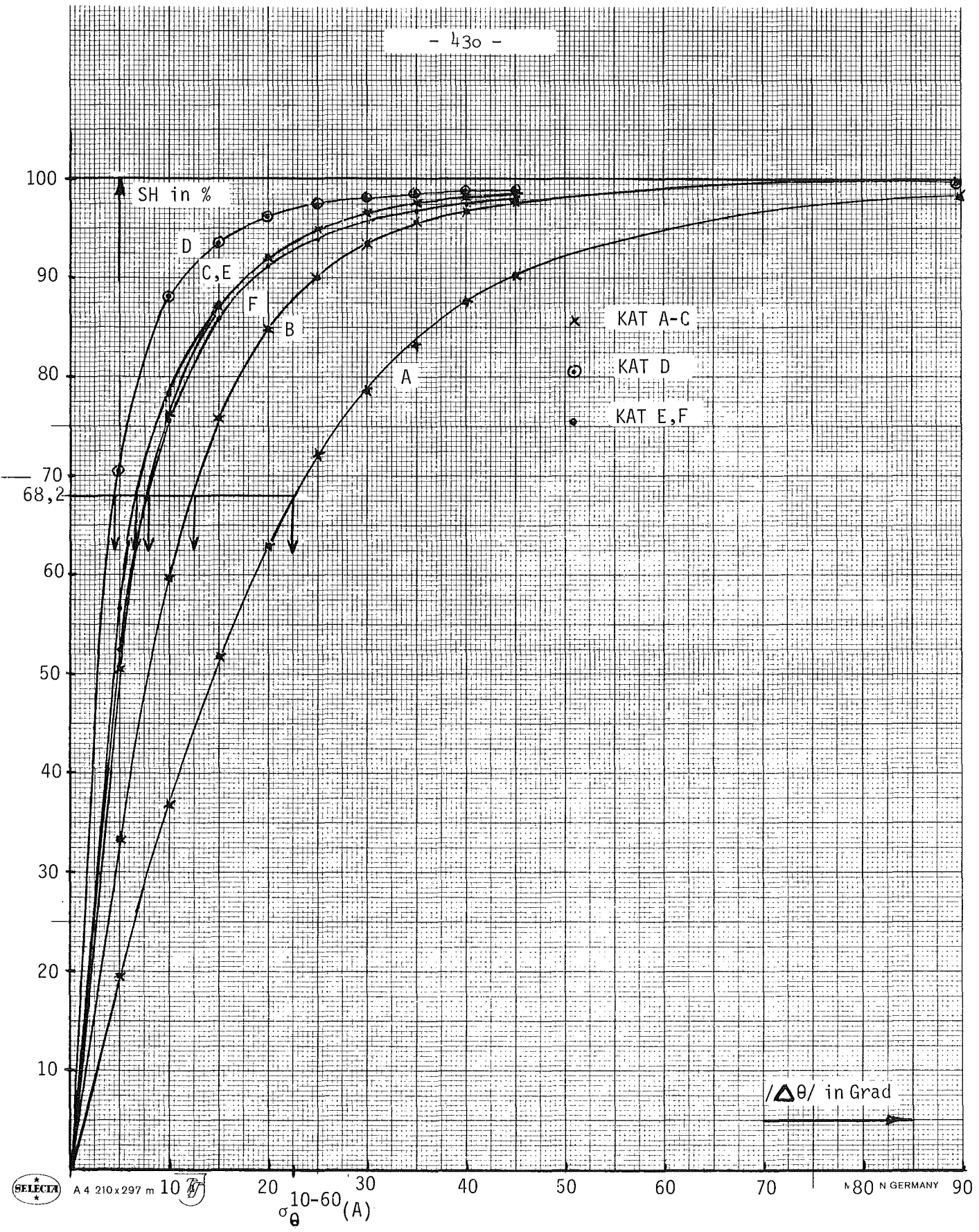


Abb. 4312-6 Summenhäufigkeitskurven der stündlichen Windrichtungsrotationen für die Ausbreitungskategorien A-F

## 4.2 Adiabatisches Windprofil

S. Vogt

Der Rauigkeitsparameter  $z_0$  spielt bei der Ausbreitung von Schadstoffen eine wichtige Rolle/11/. Da es für das Gelände des KFZK wegen der uneinheitlichen Topographie (sowohl Wald als auch Gebäude) schwierig ist, Werte für  $z_0$ ,  $d$  und  $u_*$  in der Literatur zu finden, wurden die Parameter des adiabatischen Windprofils berechnet.

Im Spezialfall einer adiabatisch geschichteten Atmosphäre, d.h. Abnahme der aktuellen Temperatur um 1 K/100 m, kann die Windzunahme mit der Höhe in den untersten Schichten durch folgenden einfachen Ansatz beschrieben werden.

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \ln\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad [\text{m/s}] \quad (2)$$

wobei:

$u_*$  = Schubspannungsgeschwindigkeit in m/s

$k = 0,4$  = von KARMANN'sche Konstante für bodennahe Luftschichten

$z_0$  = Rauigkeitsparameter in m

Durch den Rauigkeitsparameter  $z_0$  wird der Einfluß der Rauigkeit der Erdoberfläche erfaßt. Ein Anemometer in der Höhe  $z = z_0$  würde theoretisch  $v = 0$  m/s anzeigen.

Gleichung (2) gilt jedoch nicht mehr in dieser einfachen Form, sobald das Windprofil über einer Vegetationsdecke, wie etwa einem Getreidefeld oder einem Wald, betrachtet wird. In diesem Fall läßt sich Gleichung (2) nur in abgewandelter Form anwenden, wenn an Stelle der Höhe  $z$ , in welcher die Anemometer angebracht sind, die reduzierte Höhe  $z-d$  gesetzt wird.

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) \quad [\text{m/s}] \quad (3)$$

Die Größe  $d$  entspricht nicht etwa der mittleren Vegetationsoberfläche, sondern kann erst aus dem Windprofil selbst ermittelt werden.

Ausgehend von den auf Magnetband vorliegenden 10-min-Mittelwerten der Windgeschwindigkeit wurden bei adiabatischer Schichtung Stundenmittelwerte gebildet. Mittels eines "least-square-fit"-Verfahrens wurden die gesuchten Größen  $u_*$ ,  $z_0$  und  $d$  bestimmt. Als mittlere, für unser Gebiet repräsentative Werte ergaben sich:

$$z_0 = 1,1 \text{ m}$$

$$d = 7,0 \text{ m}$$

$$u_* = 0,35 \text{ m/s}$$

##### 5. On-line Darstellung der mehrstündigen Aktivitätsverteilung auf einem Bildschirm

P. Thomas

Mit dem meteorologischen Informationssystem des KFZK können zur Zeit nur die halbstündigen Mittelwerte der Aktivitätsverteilung on-line auf einem Bildschirm dargestellt werden /12/. Es handelt sich dabei um Lage und Wert des Maximums und Lage und Kontur der 10 %-Isolinie. Als Input dienen die am Mast des Kernforschungszentrums Karlsruhe gemessenen Werte der Windgeschwindigkeit, der Windrichtung und der Fluktuation der vertikalen Windrichtung. Die Aufbereitung dieser meteorologischen Daten geschieht über CALAS bei ADI.

ADI erhielt den Auftrag, dieses Programm folgendermaßen zu erweitern: Die zeitlich aufeinanderfolgenden 10-min-Mittelwerte der ortsabhängigen Aktivitätskonzentration werden berechnet und aufsummiert. Dieses Zeitintegral der Aktivitätskonzentration wird in Form von Isolinien auf dem Bildschirm dargestellt.

Über die Tastatur des Bildschirms müssen die Emissionshöhe und die zeitlichen Grenzwerte der Summation eingegeben werden. Das Summationsintervall beträgt maximal 72 Stunden.

Das Programm verwendet die am Mast gemessenen Windgeschwindigkeiten und -richtungen derjenigen Höhe, die der eingegebenen Emissionshöhe entspricht. Die Ausbreitungskategorie wird aus den in 100 m Höhe gemessenen Fluktuationen der vertikalen Windrichtung bestimmt.

Das System ist redundant: Fallen einzelne meteorologische Instrumente aus, so verwendet das Programm selbsttätig Meßwerte anderer Geber. Dies wird auf dem Bildschirm angezeigt, da die Aussagekraft der Meßwerte von Ersatzgebern meist geringer ist. Zur Berechnung des Ausbreitungsfaktors werden die am Kernforschungszentrum Karlsruhe experimentell ermittelten Ausbreitungsparameter verwendet. Das on-line berechnete und auf einem Bildschirm dargestellte Zeitintegral der Aktivitätskonzentration soll folgendes ermöglichen: Bei einem Störfall, bei dem Emissionsrate, -höhe und -dauer bekannt sind, kann die Inhalationsdosis in der Umgebung des Emittenten ortsabhängig ermittelt werden. Weiter läßt sich Lage und Höhe der Bodenkontamination durch Fallbut abschätzen und damit die Umgebungsüberwachung entsprechend einsetzen.

Das hier beschriebene Programm soll in ein meteorologisches Informationssystem für Kernkraftwerke /3/ eingegliedert werden.

Literatur

- /1/ Reactor Safety Study, An Assessment of Accident Risiko in U.S.  
Commercial Nuclear Power Plants,  
WASH-1400 (draft) August 1974
  
- /2/ S. Vogt; Statistische Voraussagen für Lage und Betrag der maximalen  
Dosis bei störfallbedingter Emission  
KFK 2215, Dezember 1975
  
- /3/ H. Dilger, W. Hübschmann, P. Thomas;  
Meteorologisches Informationssystem für Kernkraftwerke  
Reaktortagung 1975, Nürnberg
  
- /4/ W. Hübschmann; Zur Prognose der Strahlenbelastung der Bevölkerung bei  
hypothetischen Störfällen  
Vortrag Jahreskolloquium 1975 des Projektes Nukleare  
Sicherheit, 11.11.1975, Karlsruhe
  
- /5/ W. Hübschmann, S. Vogt; Kritische Würdigung des Modells der atmosphä-  
rischen Ausbreitung in der Reaktor-Sicherheits-  
studie ("Rasmussen-Studie") (1975)  
unveröffentlicht
  
- /6/ H. Dilger, W. Hübschmann, S. Vogt;  
Teilanalyse der "Reactor Safety Study";: das Modell der atmosphärischen  
Ausbreitung und die Berechnung gesundheitlicher Schäden (1976)  
unveröffentlicht
  
- /7/ D.H. Slade ed.; Meteorology and Atomic Energy 1968,  
TID-24 190, S. 408
  
- /8/ D.H. Slade ed.; Meteorology and Atomic Energy 1968,  
TID-24 190, S. 102
  
- /9/ H. Dilger, K. Nester; Aufstellung und Vergleich verschiedener Schemata  
zur Bestimmung von Ausbreitungskategorien  
Meteorol. Rdsch. 28, 12-17 (1975)

- /10/ H. Dilger; in PNS-Halbjahresbericht 1975/1, KFK 2195, 379-381
- /11/ K. Nester; in PNS-Halbjahresbericht 1975/1, KFK 2195, 377-378
- /12/ F. Süß, P. Thomas; On-line Datenerfassung und Aufbereitung in  
einer Kopplung meteorologischer Turm-PDP-8/I -  
CALAS-System  
KFK 1934 (1974)

4312-TUH

Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen.

H. Schultz, E. Voelz, C.D. Wüneke  
Arbeitsgruppe für Technischen Strahlenschutz  
der TU Hannover

Dieser Bericht entstand im Rahmen eines Erstellungsauftrages des Bundesministers des Innern.

## Zusammenfassung

### 1. Durchgeführte Arbeiten

Die Erstellung des vollständigen Kreislaufs des Rechenprogramms XPIC zur Berechnung der Ausbreitung von konventionellen und radioaktiven Fremdstoffen in der Atmosphäre mit Hilfe der particle-in-cell-Methode wurde abgeschlossen und dieser Hauptteil erfolgreich getestet.

Zudem wurden Zuliefererprogramme entwickelt, um charakteristische Quellverteilungen eingeben zu können und zeit- bzw. ortsabhängige Diffusionskoeffizienten für Vergleichsrechnungen mit der Gaußmethode zu berechnen. Der mögliche Umfang des Zellensystems und der Anzahl der Teilchen wurde durch Einbeziehung eines zusätzlichen Speichers auf der Rechenanlage erheblich erweitert und eine Behandlung von realistischen Randbedingungen vorbereitet.

### 2. Erzielte Ergebnisse

Zu Testzwecken wurden Ausbreitungsrechnungen für eine anfänglich normalverteilte Schadstoffwolke mit konstanten und zeitabhängigen Diffusionskoeffizienten durchgeführt, die einer Literaturstudie entnommen und dem Rechenprogramm angepaßt wurden. Die berechneten Konzentrationsfelder wurden mit den Rechenergebnissen von Ausbreitungsrechnungen nach der Gaußmethode verglichen. Bei Einhaltung gewisser Anpassungsvorschriften konnte sogar für den bei der particle-in-cell-Methode besonders schwierigen Fall der Vernachlässigung der Advektion gute Übereinstimmung festgestellt werden.

### 3. Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Das Zusammenwirken von Advektion und turbulenter Diffusion soll getestet und der Effekt von Windprofilen und Richtungsscherungen soll untersucht werden. Danach soll das Programm so erweitert werden, daß komplexe Bodenprofile und angemessene Randbedingungen eingegeben werden können. Parallel dazu soll die Methode zur Bestimmung der Diffusionskoeffizienten verbessert werden.

Das Fernziel bleibt schließlich die Einbeziehung chemischer Reaktionen und synergistischer Effekte in das Programm XPIC.



## Abstract

### 1. Activities

The development of the complete loop of the program XPIC for calculating the dispersion of pollutants in the atmosphere with the particle-in-cell-method could be finished and this main part was successfully tested.

Besides additional programs were developed, allowing the input of characteristic source distributions and the calculation of time- and space-dependent diffusion coefficients for comparison with the Gaussian method. The potential range of the cell-system and the number of particles was enlarged by including an additional memory of the computer and the treatment of realistic boundary conditions was prepared.

### 2. Results

For testing purposes dispersion calculations were performed for initial normal-distributed pollution clouds with constant or time dependent diffusion coefficients calculated with help of a formalism, which was taken from a literature study and adapted to this code. The calculated concentration fields were compared with the results of dispersion calculations by the Gaussian method. Considering certain adaption rules approximate conformity of the results could be obtained even for the very difficult case for the particle-in-cell-method, when the advection is omitted.

### 3. Planned activities

The combined effect of advection and turbulent diffusion shall be tested and the influence of wind profiles and wind shears shall be investigated. The program shall be improved in such a way, that complex topographies and suitable boundary conditions can be included. Along with this the method for the calculation of the diffusion coefficients shall be improved.

For the future the task remains to include chemical reactions and synergistic effects into the program.

## Vorbemerkung

Die Arbeiten zur Erstellung des numerischen Rechenprogramms XPIC wurden soweit fortgesetzt, daß Kontrollrechnungen zur Prüfung der rechentechnischen und physikalischen Funktionsweise dieses Programms durchgeführt werden konnten. Das Programm XPIC berechnet den Transport und die turbulente Verdünnung von konventionellen und radioaktiven Schadstoffen in der Atmosphäre mit Hilfe der "particle-in-cell"-Methode, deren Prinzip und Vorteile gegenüber anderen Rechenmethoden in dem vorausgegangenen Halbjahresbericht [1] ausführlich erläutert wurden.

Außerdem wurde zusätzlich eine Methode zur Bestimmung der zeit- bzw. ortsabhängigen Diffusionskoeffizienten  $K_i$  für vorgebbare Diffusionsklassen entwickelt und programmiert, um einen Vergleich mit Rechnungen nach der Gaußmethode vornehmen zu können. Dieses zusätzliche Programm stellt einen ersten Schritt zur Entwicklung eines Rechenprogramms dar, mit dem die Diffusionskoeffizienten aus vorgegebenen meteorologischen und topographischen Daten bestimmt werden könnten. Für diesen Zweck wurde eine Literaturstudie durchgeführt, deren Ergebnis im Teil B dieses Berichts wiedergegeben ist.

### A) Erstellung des Programms XPIC

Nachdem im ersten Halbjahr 1975 das Programm XPIC zunächst nur abschnittsweise mit fiktiven Quellteilchen-Verteilungen getestet werden konnte, wurde jetzt der Hauptteil des Programms als ganzes geprüft. Dabei wurden Quellteilchen-Verteilungen eingegeben, die durch einen Zufallszahlengenerator nach bestimmten Kriterien (z. B. Normalverteilung) erzeugt wurden.

Auf diese Weise wurden zum Vergleich mit Ausbreitungsrechnungen nach der Gauß-Methode Normalverteilungen der Quellteilchen für vorgegebene Standardabweichungen  $\sigma_x$ ,  $\sigma_y$  und  $\sigma_z$  errechnet und als anfängliche Konzentrationsverteilung für eine folgende Ausbreitungsrechnung nach der particle-in-cell-Methode verwendet.

Außerdem konnte durch spezielle rechentechnische Maßnahmen ("common"-Vereinbarung) und durch Einbeziehung eines erweiterten Speichers ("Large-Core-Memory") der Umfang des möglichen Zellensystems und die

Anzahl der Lagrange-Marker-Teilchen fast ohne Erhöhung der Rechenzeit soweit vergrößert werden, wie es für die geplanten Rechnungen zunächst erforderlich erscheint. Damit können in der jetzt vorliegenden Version des Programms XPIC Zellensysteme aus bis zu  $22^3$  Einzelzellen mit Teilchenzahlen bis zu 30.000 behandelt werden.

Falls ein noch größerer Speicherplatzbedarf notwendig werden sollte, besteht die Möglichkeit, auf externe Speicher (Magnetbänder und -platten) auszuweichen.

Lagrange-Marker-Teilchen, die das Zellensystem am Rande verlassen, werden vorläufig lediglich abgetötet. Dabei ist darauf zu achten, daß möglichst wenig Teilchen abgetötet werden, um Rückwirkungen über den Diffusionsprozeß zu vermeiden. Mit einer genauen Studie dieser Zusammenhänge ist bereits begonnen worden.

Um sich schnell einen Überblick über die auftretenden Konzentrationen verschaffen zu können, die über bestimmte vorgegebene Werte hinausgehen, wurde ein entsprechender orts- und zeitabhängiger Ausdruck vorgesehen, der durch eine graphische Markierung angibt, ob der betreffende Wert überschritten (x) wird oder nicht (-). Mit Hilfe dieser Ausdrücke ist auch eine Isoplethendarstellung der Konzentrationsverteilungen möglich, als Beispiel siehe Abb. 3.

Nachdem das Programm zunächst auf seine rechentechnische Funktion durch Eingabe fiktiver Windfelddaten und konstanter Diffusionskoeffizienten getestet worden war, wurden zur Prüfung des Diffusionsprozesses allein Vergleichsrechnungen zu Ausbreitungsrechnungen nach der Gaußmethode ohne Berücksichtigung des advektiven Transports durchgeführt. Eine solche Berechnung der Verdünnung einer Schadstoffwolke mit sehr kleinen Standardabweichungen stellt zugleich einen besonders schwierigen Fall für ein Programm dieser Art dar, da dann fast ausschließlich das Differenzenverfahren zur Berechnung der Diffusionsgeschwindigkeit die Ausbreitungsrechnung bestimmt. Dabei mußten zunächst die Zeitschritte, die Zellengröße und der Umfang des Zellensystems an das vorgegebene Problem angepaßt werden. Als anfängliche Konzentrationsverteilung wurde eine dreidimensionale Gaußverteilung durch bis zu 30.000 normalverteilte Teilchen in einem System von  $16^3$  Zellen nachgebildet. Die zur Festlegung der Gaußverteilung notwendigen Größen (Standardabweichungen,

Mittelwert und Ortskoordinaten des Schwerpunkts der Wolke) wurden mit Hilfe des Unterprogramms ANFANG automatisch errechnet. Die Rechnungen wurden zunächst mit angenommenen konstanten Diffusionskoeffizienten  $K_x = K_y = 5,2 \text{ m}^2/\text{sec}$  und  $K_z = 1,0 \text{ m}^2/\text{sec}$  und dann mit zeitabhängigen Diffusionskoeffizienten gemäß Abschnitt B Fall 1 (Formel 1.3) durchgeführt. Als Beispiel für den letzten Fall sind in Abb. 1 und 2 Ausschnitte der Maschinenausdrucke der Konzentrationsverteilung in der xy-Ebene für  $z = 112,5 \text{ m}$  und in der xz-Ebene für  $y = 187,5 \text{ m}$  bei  $t = 600 \text{ sec}$  aufgeführt, die sich nach drei Zeitschritten bei der Diffusionsklasse D (nach Pasquill) ergeben, wenn als anfängliche Konzentrationsverteilung eine Gaußverteilung eingegeben wird, die nach einer Ausbreitungszeit von  $300 \text{ sec}$  aus einer Punktquelle entsteht. In Abb. 3 ist als Beispiel ausschnittsweise der entsprechende Ausdruck für die Isolethendarstellung in der xz-Ebene wiedergegeben. Außerdem sind in den Abbildungen 4 und 5 die daraus entnommenen Werte der Konzentrationsverteilung auf der horizontalen und vertikalen Achse der Schadstoffwolke vergleichsweise zusammen mit den entsprechenden Gaußkurven nach Pasquill und Gifford bei einer Transportzeit von  $t = 600 \text{ sec}$  aufgetragen.

Wie man erkennt, ergibt die XPIC-Rechnung eine Konzentrationsverteilung, die gut mit den Ergebnissen der Gaußrechnung übereinstimmt. Wahrscheinlich ist die flachere Verteilung im Wolkenzentrum auf eine nicht ausreichende Wiedergabe des Konzentrationsgefälles durch die beim Differenzenverfahren verwendete Wichtung zurückzuführen. Die niedrigeren Absolutwerte an den Rändern entstehen durch Verluste infolge Abtötung an den Rändern. Durch eine Vergrößerung der Zellenanzahl und durch eine bessere Anpassung der Zellenabmessungen werden sich diese Abweichungen ausreichend beheben lassen.

#### Literaturhinweis

- [1] Wüneke, C.-D., H. Schultz  
1. Halbjahresbericht 1975 zum Thema 4312-TUH, KFK 2195  
Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen.

## B) Bestimmung der turbulenten Diffusionskoeffizienten

Bei der "particle-in-cell"-Methode müssen für jede Zelle konstante Koeffizienten  $K$  der turbulenten Diffusion bekannt sein, die jeweils den meteorologischen und örtlichen Gegebenheiten der Zelle angepaßt sein sollen. Es ist untersucht worden, inwieweit realistische  $K$ -Werte ermittelt werden können, damit die Ergebnisse dieser Rechnung mit denjenigen der bisher üblichen Gauß'schen Normalverteilung verglichen werden können.

Die hier geforderten Ausbreitungsrechnungen sollen so ausgelegt werden, daß sie auch kurzfristig durchgeführt werden können. Daher sollten die benötigten  $K$ -Werte entweder direkt oder aus anderweitig vorhandenen Größen einfach und schnell angegeben werden können. Für die Berechnung entsprechender  $K$ -Werte im Entfernungsbereich von etwa 0,1 - 20 km in der planetarischen Grenzschicht findet man in der Literatur verschiedene Methoden:

Fall 1 Durch einen Vergleich der Gauß'schen Normalverteilung bei bekannter Standardabweichung  $\sigma_i$  in der statistischen Theorie mit den Lösungen des Fick'schen Diffusionsansatzes erhält man, siehe z. B. Ott [1973] oder Wippermann [1966]

$$(1.1) \quad K_i(t) = 0,5 \cdot d\sigma_i^2/dt$$

oder unter Verwendung der mittleren Transportgeschwindigkeit  $\bar{u} = x/t$

$$(1.2) \quad K_i(x) = 0,5 \cdot \bar{u} \cdot d\sigma_i^2/dx$$

Die  $\sigma_i$  der Gaußverteilung sind mit dem mittleren Quadrat der Abweichungen  $x_i^2$  eines Teilchens vom Schwerpunkt in der  $i$ -ten Richtung verknüpft, so daß sich aus Annahmen über  $\sigma_i$  oder über  $\overline{x_i^2}$  die  $K$ -Werte errechnen lassen. Dabei erweisen sich letztere im allgemeinen als orts- bzw. zeitabhängig. Trotzdem kann man nach einer sehr langen Diffusionszeit  $t \gg t_1$  in guter Näherung ein konstantes  $K_i$  ansetzen:

$$(1.3) \quad \sigma_i^2(t > t_1) - \sigma_i^2(t_1) = 2 \cdot K_i \cdot (t - t_1)$$

Aus diesem Ansatz lassen sich in modellmäßigen Vergleichsrechnungen kaum neue Informationen gegenüber den Lösungen mit der Gauß'schen Normalverteilung gewinnen, weil die K-Werte über deren Standardabweichungen ermittelt werden. Doch es ist zu hoffen, daß sich mit der "particle-in-cell"-Methode einige Spezialfälle besser auflösen lassen.

Fall 2 Aus Versuchen werden K-Werte ermittelt. Diese sind jedoch häufig für andere Dimensionen wie z. B. für den weltweiten Fremdstoffaustausch, für Atombombenexplosionen oder aber für dünne Grenzschichten durchgeführt worden. Ihre Anwendung wird fast immer durch zusätzliche Bedingungen wie etwa durch eine neutrale Diffusion eingeschränkt, so daß sich die Ergebnisse nicht ohne weiteres auf die atmosphärische Grenzschicht extrapolieren oder übertragen lassen.

Fall 3a Theoretisch läßt sich der vertikale turbulente Diffusionskoeffizient für mechanischen Impuls durch eine zur Oberfläche parallelen Schicht mit einigen idealisierenden Bedingungen ermitteln:

$$(3.1) \quad K_M = -\overline{u_x' \cdot u_z'} / (d\bar{u}/dz)$$

wobei  $u_i'$  die Schwankungskomponente der Windgeschwindigkeit in der entsprechenden Richtung darstellt. Da die Messungen von  $u_i'$  und von  $d\bar{u}/dz$  sehr aufwendig und zeitraubend sind, werden häufig zusätzliche Annahmen über die Mischungsweglänge  $l$  nach Prandtl [1932] eingeführt

$$(3.2) \quad K_M = l^2 \cdot d\bar{u}/dz$$

Doch es ist zweifelhaft, ob sich die gesamte planetarische

Grenzschicht selbst in einem vergleichbaren Fall hiermit beschreiben läßt.

Fall 3b Eine an die gesamte planetarische Grenzschicht besser angepasste Ableitung wird von Blackadar [1962] angegeben. Aus Überlegungen über die Dissipation der turbulenten Energie erhält er wiederum Gleichung (3.2) in der Form

$$(3.3) \quad K_M = l^2 \cdot s$$

wobei für die Windscherung

$$(3.4) \quad s^2 = (du_x/dz)^2 + (du_y/dz)^2$$

und für die Mischungsweglänge

$$(3.5) \quad l = \frac{k \cdot z}{1 + kz/L}$$

gelten soll. Hierbei ist L der Wert, den l in der freien Atmosphäre erreicht. Übereinstimmend mit Messungen wird in einer neutralen Atmosphäre  $L = 0,00027 \cdot \bar{u}_g / f$  gesetzt, wobei  $\bar{u}_g$  die Geschwindigkeit des geostrophischen Windes, f der Coriolisparameter und k die von-Kármán-Konstante ist. Damit lassen sich für viele Fälle die Zahlenwerte für den vertikalen turbulenten Diffusionskoeffizienten angeben. Diese Methode erlaubt bisher noch keine Angaben über die K-Werte in einer stabil oder instabil geschichteten Atmosphäre und über die turbulenten Diffusionskoeffizienten in einer horizontalen Ebene.

Für die geplanten "particle-in-cell"-Rechnungen lassen sich die K-Werte nach Fall 1 und 3b besonders einfach verwenden, weil sie analytisch vorliegen und nur von dem Turbulenzzustand abhängen. Dieser kann festgelegt werden im Falle 1 durch die diffusionsabhängigen Standardabweichungen  $\sigma_i$  und im Falle 3b, der in der bisher vorlie-

genden Fassung allerdings nur für neutrale Diffusion gilt, durch das diffusionsklassenabhängige vertikale Windprofil

$$(3.6) \quad \bar{u}(z) = \bar{u}(z_0) \cdot (z/z_0)^m,$$

wobei  $z_0$  eine Referenzmeßhöhe und  $m$  der Schichtungsparameter ist. Inwieweit jedoch damit die in einem Einzelfall tatsächlich vorliegenden physikalischen Verhältnisse ausreichend erfaßt werden oder wie sie sinnvoll anzupassen sind, muß noch untersucht werden.

Die Bestimmungssysteme sind nach Durchsicht folgender Literatur ausgewählt worden, in der noch weitere Hinweise enthalten sind:

- G.K. Batchelor, Application of the Similarity Theory of Turbulence, Quart. J. Roy. Meteorol. Soc., 76(328), p. 133, 1950.
- A.K. Blackadar, The Vertical Distribution of Wind and Turbulent Exchange in a Neutral Atmosphere, J. Geophys. Research, Vol 67, No. 8, July 1962.
- G. Blässer, K. Wirtz, Nukleare Grundlagen für Standort- und Gebäudewahl von Kernkraftwerken, Nukleonik, Bd3, Heft 5, S. 213, 1961.
- J.A. Businger, J.C. Wyngaard, Y. Izumi, E.F. Bradley, Flux-Profile Relationships in the Atmospheric Surface Layer, J. Atmospheric Sciences, No. 28, p. 181, March 1971.
- K.L. Calder, On the Equation of Atmospheric Diffusion, Quart. J. Roy. Meteorol. Soc., 91(390), p. 514, 1965.
- W. L. Godson, The Diffusion of Particulate Matter ... , Arch. Meteorol. Geophys. Bioklimatol. 10, p. 305, 1958.
- W.F. Hilsmeier, F.A. Gifford Jr., Graphs for Estimating Atmospheric Dispersion, USAEC Report ORO-545, Weather Bureau, Oak Ridge, Tenn., 1962.



- R. Lange, ADPIC - A Three-Dimensional Transport-Diffusion Model, Lawrence Livermore Lab., UCRL-76170, May 1975.
- W. Ott, Ein physikalisch-numerisches Modell ... , Meteorol. Rdschau 26, p. 97, 1973.
- H.A. Panofsky, R.A. McCormick, The Spectrum of Vertical Velocity near the Surface, Quart. J. Roy. Meteorol. Soc., 86, 1960.
- F. Pasquill, Atmospheric Diffusion, von Nostrand 1962.
- L. Prandtl, Meteorologische Anwendung der Strömungslehre, Beitr. Physik der freien Atmosphäre, Bjerknes Festschrift, 188, 1932.
- D.H. Slade (Ed.), Meteorology and Atomic Energy, USAEC, TID 24 190, 1968.
- E. Voelz, Methoden zur Vorhersage von Konzentrationsfeldern radioaktiver Stoffe in der Umgebung von Kernkraftwerken, ATS-TUH-1073, Technische Universität Hannover, 1973.
- J. Walton, Scale-Dependent Diffusion, J. Appl. Meteorology, Vol 12 (3), April 1973.
- F. Wippermann, On Turbulent Diffusion in an Arbitrarily Stratified Atmosphere, J. Appl. Meteorology, p. 640, Oct. 1966.
- F. Wippermann, The Planetary Boundary Layer of the Atmosphere, Annalen der Meteorologie, Deutscher Wetterdienst, Offenbach 1973.

.31E-09	.15E-09	.46E-10	.22E-08	.30E-09	.76E-09	.34E-08	.50E-08	.74E-08	.17E-08	.20E-08	.12E
.92E-08	.18E-07	.15E-07	.24E-07	.28E-07	.36E-07	.43E-07	.29E-07	.28E-07	.18E-07	.15E-07	.76E
.18E-07	.32E-07	.38E-07	.52E-07	.64E-07	.59E-07	.63E-07	.64E-07	.38E-07	.51E-07	.29E-07	.23E
.29E-07	.34E-07	.58E-07	.72E-07	.84E-07	.88E-07	.99E-07	.80E-07	.64E-07	.57E-07	.46E-07	.25E
.56E-07	.61E-07	.84E-07	.11E-06	.12E-06	.12E-06	.14E-06	.13E-06	.12E-06	.71E-07	.49E-07	.33E
.51E-07	.64E-07	.91E-07	.14E-06	.17E-06	.17E-06	.18E-06	.16E-06	.13E-06	.13E-06	.83E-07	.49E
.57E-07	.88E-07	.13E-06	.16E-06	.19E-06	.17E-06	.20E-06	.18E-06	.14E-06	.12E-06	.10E-06	.49E
.69E-07	.87E-07	.14E-06	.16E-06	.19E-06	.20E-06	.22E-06	.19E-06	.16E-06	.13E-06	.90E-07	.61E
.68E-07	.89E-07	.14E-06	.17E-06	.20E-06	.22E-06	.22E-06	.18E-06	.18E-06	.12E-06	.10E-06	.60E
.53E-07	.73E-07	.15E-06	.15E-06	.18E-06	.19E-06	.23E-06	.19E-06	.18E-06	.12E-06	.90E-07	.55E
.59E-07	.77E-07	.98E-07	.14E-06	.16E-06	.16E-06	.17E-06	.14E-06	.14E-06	.95E-07	.73E-07	.49E
.33E-07	.68E-07	.91E-07	.11E-06	.11E-06	.13E-06	.14E-06	.12E-06	.96E-07	.84E-07	.63E-07	.43E
.26E-07	.42E-07	.59E-07	.76E-07	.94E-07	.97E-07	.10E-06	.73E-07	.74E-07	.63E-07	.42E-07	.27E
.13E-07	.39E-07	.30E-07	.53E-07	.59E-07	.64E-07	.71E-07	.57E-07	.58E-07	.32E-07	.31E-07	.18E
.76E-08	.16E-07	.21E-07	.31E-07	.31E-07	.28E-07	.44E-07	.28E-07	.27E-07	.18E-07	.13E-07	.61E
.	.20E-08	.22E-08	.56E-08	.34E-08	.35E-08	.40E-08	.30E-08	.40E-08	.57E-08	.27E-08	.78E

Abb. 4312 - TUH -1

Konzentration  $c$  [ $\frac{1}{m^3}$ ] in der xy-Ebene bei  $z = 112,5$  m und  $t = 600$  sec



Abb. 4312 - TUH -2

Konzentration  $c \left[ \frac{1}{m^3} \right]$  in der xz-Ebene bei  $y = 187,5 \text{ m}$  und  $t = 600 \text{ sec}$

- 148 -

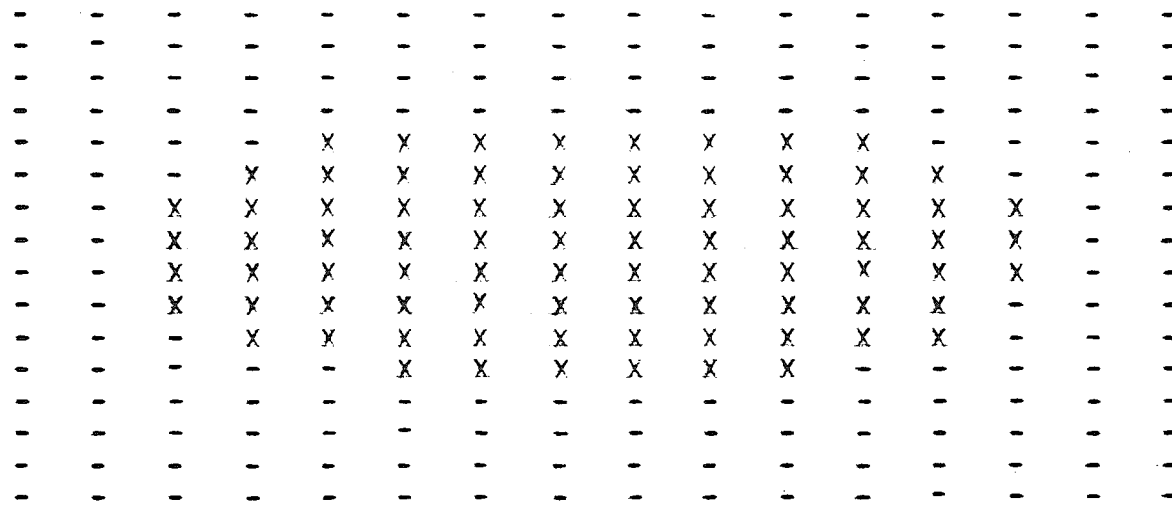
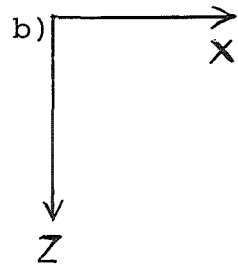
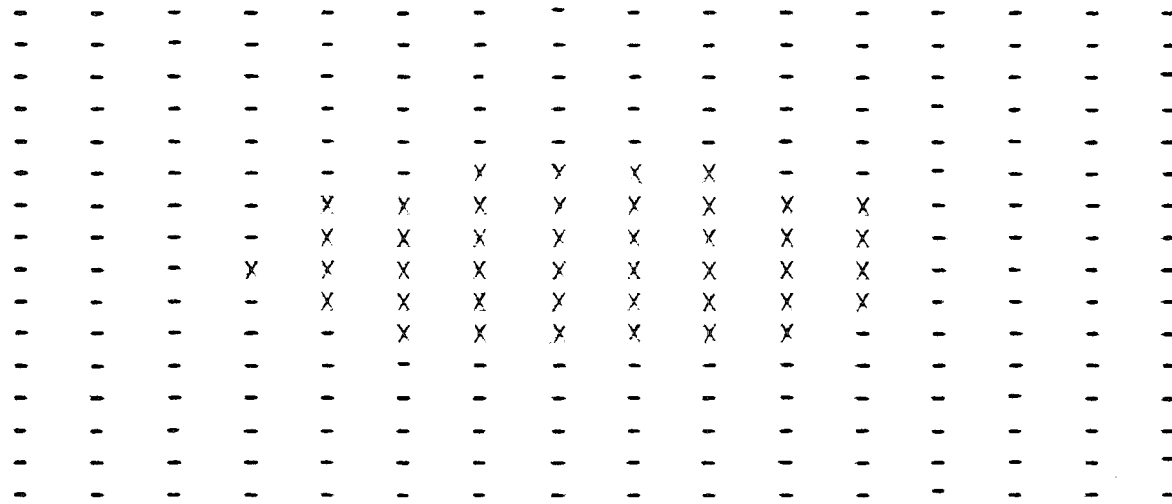
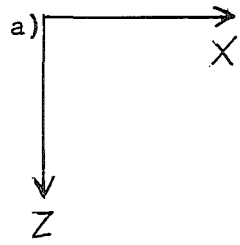


Abb. 4312-TUH -3 Verteilung der Konzentration  $c \left[ \frac{1}{m^3} \right]$

mit Werten über a)  $c = 1,0 \cdot 10^{-7} \left[ \frac{1}{m^3} \right]$  und über b)  $c = 5 \cdot 10^{-8} \left[ \frac{1}{m^3} \right]$

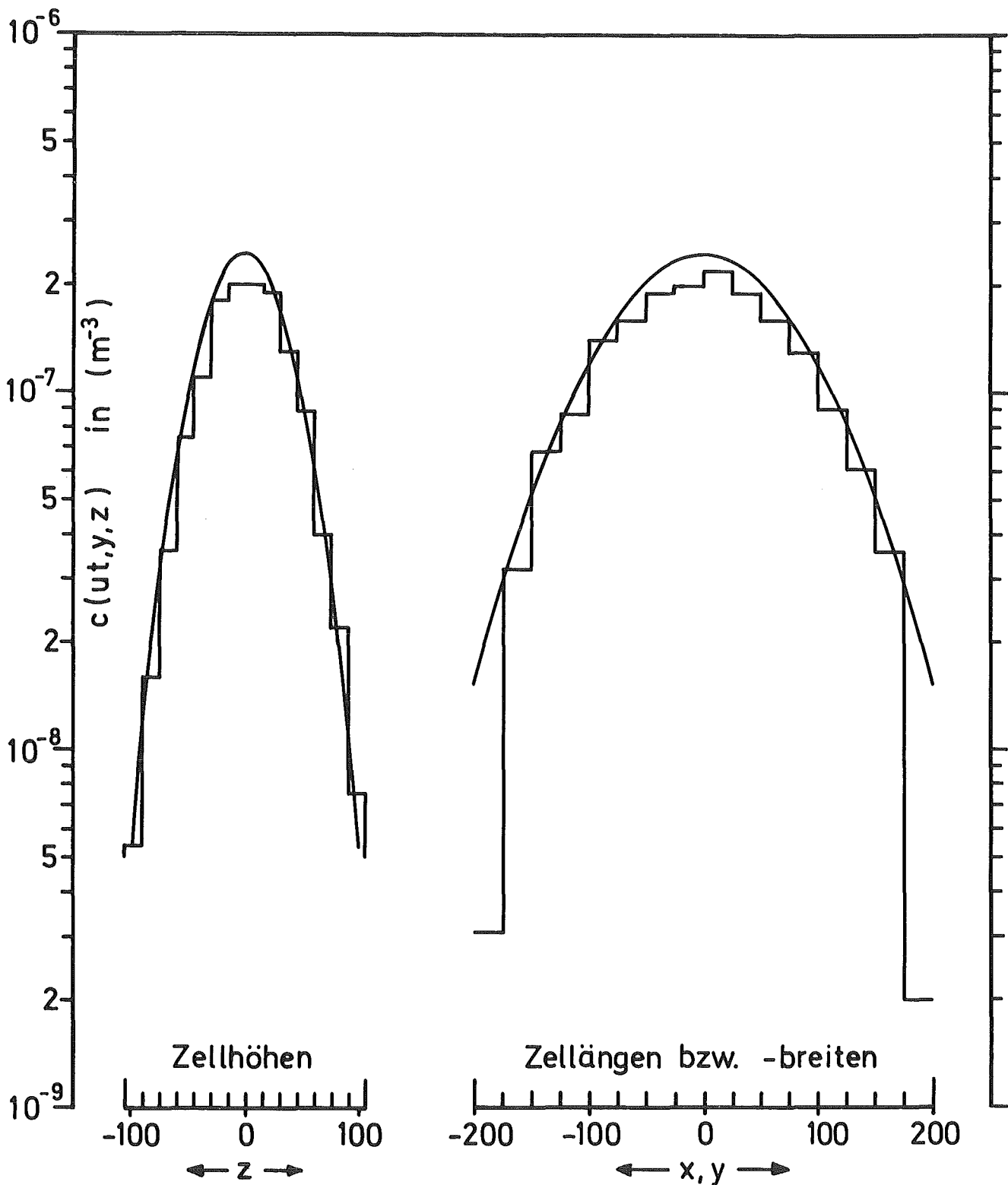


Abb. 4312 - Konzentration  $c(x = ut, y, z)$  auf einem Höhenprofil  $y = 0$  und auf einem Querprofil  $z = 0$  durch den Wolken-schwerpunkt in der Quellentfernung  $ut = 1200$  m nach  $t = 600$  s nach einer normierten Einzelemission einmal nach der Gauß'schen Normalverteilung und einmal nach der "particle-in-cell"-Methode bei einer neutralen Diffusionsklasse.

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖR-  
ANFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren

1. Entwicklung einer Dekontaminationspaste  
(S. Kunze, ABRA)

Die Dekontaminationsergebnisse mit den bisher entwickelten, in den vorausgegangenen Berichten beschriebenen Pasten zeigten, daß man gute Dekontaminationserfolge nur mit salzsäurehaltigen Pasten erzielt und zwar umso besser je höher der Salzsäuregehalt ist.

Wegen der bei der Dekontamination an den Proben auftretenden unerwünschten Korrosion (Lochfraß-Bildung) wurde der Schwerpunkt auf die Verbesserung von beständigen salzsäurefreien Pasten sowie auf die Überwachung und Bewahrung der lizenzierten Paste (siehe Tabelle 4411-1) beim praktischen Einsatz gelegt.

Alle Dekontaminationsuntersuchungen wurden an im Autoklaven (500 h bei 300°C und 88 atü) kontaminierten Edelstahlproben (1.4541) durchgeführt.

Die erzielten Ergebnisse mit Pasten, die auf unterschiedlicher Feststoffbasis wie

Polyäthylen/Titandioxid oder hochdisperssem Material  
mit flockenartiger Struktur

und auf oberflächenspannungsreduzierten Säuremischungen abgestufter Zusammensetzung beruhen, sowie

Industriepasten

sind in Tabelle 4411-1 zusammengestellt. Es lassen sich folgende Tatsachen entnehmen:

- 1) Pasten auf Feststoffbasis Polyäthylen/Titandioxid ergaben immer schlechtere Ergebnisse als Pasten auf Basis hochdispenser Materialien flockenartiger Struktur. (Siehe Ergebnisse Säuregemisch gleicher Pasten I und II). Die Ergebnisse der Industripasten waren teils besser teils schlechter.
- 2) Durch Zusätze von Mineralsäuren (außer Salzsäure) zu salpetersauren Pasten wird die Dekontaminationswirkung verbessert, aber ein überzeugender Erfolg wird erst durch Zugabe von Salzsäure erreicht.
- 3) Entwickelte salzsäurefreie Pasten, die nur hochdisperse Materialien flockenartiger Struktur, Salpetersäure, sowie Flußsäure bis zu 9 Gew. o/o enthalten, zeigen bei allen drei Radionukliden ( $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ) bessere Dekontaminationsergebnisse als die vier untersuchten, teilweise erhebliche Mengen Salzsäure enthaltenden Industripasten.

### Oberflächenuntersuchungen

#### A Oberflächenabtrag

Die Gewichtsverluste von Edelstahlproben (1.4541) durch die Einwirkung der Pasten wurden durch Wägung nach einer Stunde Behandlung ermittelt (siehe Tab. 4411-1).

Als Ergebnisse sind zu nennen:

- 1) Näherungsweise nehmen die Materialabtragungen säurehaltiger Pasten wie folgt ab:  
 $\text{HNO}_3 + \text{HF} + \text{HCl} > \text{HNO}_3 + \text{HF} > \text{HNO}_3 > \text{Säuren} + \text{H}_2\text{SO}_4$ .
- 2) Enthält die Paste mehr Flußsäure als Salpetersäure nimmt der Abtrag ab.
- 3) Je höher der Salzsäuregehalt, desto größer ist der Abtrag.
- 4) Keine Gewichtsveränderung trat bei der Behandlung von Edelstahlproben mit schwefelsäurehaltigen Pasten auf.

Dies ist vermutlich auf eine Umstrukturierung der Oberfläche zurückzuführen.

Aus den Ergebnissen der Abtragsuntersuchungen läßt sich folgern, daß um 50 o/o Aktivität von den Proben zu entfernen ca.  $1 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$  Material gleichmäßig abgetragen werden muß.

### B Metallographische Untersuchungen

Zur Kontrolle der Oberflächenveränderungen durch den Dekontaminationsvorgang wurden Proben, die mit Polyäthylen-Titandioxid-Pasten behandelt wurden in 280-facher Vergrößerung aufgenommen (siehe Abb. 1 bis 5).

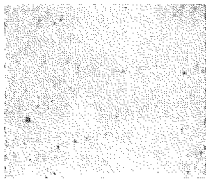


Abb. 1

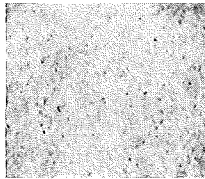


Abb. 2

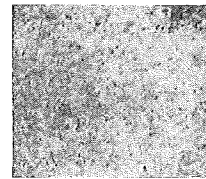


Abb. 3

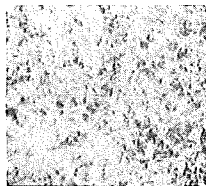


Abb. 4

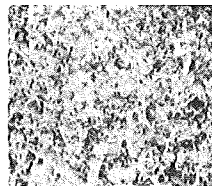


Abb. 5

Aus den Bildern ist deutlich zu erkennen, daß nach der Behandlung mit

- 1) (1)  $\text{HNO}_3$ -, (2)  $\text{HNO}_3/\text{HF}$ - und (3)  $\text{HNO}_3/\text{HF}/\text{H}_2\text{SO}_4$ -haltigen Pasten ein gleichmäßiger Abtrag erfolgt. Es ist keine Korngrenzenkorrosion zu sehen.
- 2) (4,5)  $\text{HNO}_3/\text{HF}/\text{HCl}$ -haltige Pasten zwar ein gleichmäßiger Angriff erfolgt, aber mit steigendem Salzsäuregehalt der Angriff an bestimmten Punkten in die Tiefe zunimmt (Lochfraß-Bildung).



### Eigenschaften und Einsatz der Pasten

Die Homogenität aller Polyäthylen/Titandioxid-Pasten konnte mit den wenigen zur Auswahl stehenden thermisch stabilen und außerdem noch flußsäurebeständigen Verdickungsmitteln nicht verbessert werden. Die Entmischung dieser Pasten läßt sich langfristig aufgrund der kugelähnlichen Gestalt des Polyäthylens und der großen Unterschiede in den Dichten des Polyäthylens und Titandioxids weder mindern noch verhindern.

Hingegen konnte die gute Dekontaminationswirkung der lizenzierten salzsäurehaltigen Paste auch nach 6 Monaten Einsatz in der Gerätedekontamination der ADB an in der Praxis kontaminierten Gegenständen bestätigt werden. Obwohl die Pastenkruste nach der Dekontamination mittels Wasserstrahl leicht abzuspülen ist, bereitet das dann auf dem radioaktiven Abwasser schwimmende Polyäthylen bei der Weiterbeförderung des Abwassers Schwierigkeiten. Außerdem wurden während des Verfestigungsprozesses mittels Bitumen trotz gut befundener thermischer Stabilität bei Arbeitstemperaturen um 180°C beim Einrühren in den Extruder partielle Zersetzungen des Polyäthylens festgestellt.

Aufgrund dieser nicht abzustellenden Nachteile werden in Zukunft die erst zum Ende des Berichtszeitraums entwickelten Pasten auf der Feststoffbasis hochdispenser Materialien flockenartiger Struktur zum Einsatz in der Praxis kommen und nach erfolgreicher Erprobung die Polyäthylen/Titandioxid-Pasten ablösen.

Die Dekontaminationsergebnisse, die bei dieser salzsäurefreien neuen Paste unter anderem durch Steigerung des Flußsäureanteils erzielt wurden, sind besser als alle untersuchten Industripasten mit zum Teil erheblichen Mengen an Salzsäure. Ferner ist zu erwarten, daß die Salzsäurefreiheit keine Korngrenzenkorrosion verursacht.

Die Herstellung der Paste ist ähnlich der bisher lizenzierten, die Materialkosten hingegen liegen bei nur ca. 50 o/o. Aufgrund der flockenartigen Struktur der Feststoffe bleibt die Paste auch nach Wochen homogen. Außerdem ist das hochdisperse Material thermisch stabil und bitumenverträglich.

Durch Zumischen von Salzsäure kann auch bei der neuen Paste die Wirkung erheblich gesteigert werden (siehe Tab. 4411-1), so daß nicht wieder einzusetzende Gegenstände schneller und besser dekontaminiert werden können.

Tab. 4411-1 Dekontaminationsergebnisse mit Pasten an radioaktiv kontaminierten Edelstahlproben

Pasten	Restaktivität in o/o nach						Abtrag mg cm <sup>2</sup> ·l
	1 Stunde			2 Stunden			
	Ce-144	Ru-106	Co-60	Ce-144	Ru-106	Co-60	
<u>I. Polyäthylen-Titandioxid und</u>							
15 o/o HNO <sub>3</sub>	83,3	98	91,7	83,1	92	89,5	0,03
15 o/o HNO <sub>3</sub> +3 o/o HF	74,9	89,6	90,4	69,7	79,2	81,3	0,05
15 o/o HNO <sub>3</sub> +3 o/o HF+12 o/o H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	49,7	86,9	53,1	36,1	82,5	45,6	-
15 o/o HNO <sub>3</sub> +3 o/o HF+3 o/o HCl	55,0	82,1	66,4	40,3	20,2	19,9	11,0
15 o/o HNO <sub>3</sub> +3 o/o HF+4,5 o/o HCl *	0,1	1,2	0,7	0,01	0,01	0,1	16,0
<u>II. hochdisperses Material und</u>							
15 o/o HNO <sub>3</sub> +3 o/o HF	34,2	86,1	50,4	30,5	84,1	39,6	1,6
7,5 o/o HNO <sub>3</sub> +6 o/o HF	47,4	79,5	54,9	40,2	62,1	38,8	8,2
6 o/o HNO <sub>3</sub> +7,5 o/o HF	35,4	57,5	26,8	22,1	30,5	12,3	5,1
6 o/o HNO <sub>3</sub> +9 o/o HF	24,8	51,6	34,6	9,9	20,1	9,8	3,2
15 o/o HNO <sub>3</sub> +3 o/o HF+3 o/o HCl	3,4	6,6	4,3	0,1	0,1	0,1	10,4
<u>III. Industripasten</u>							
Muster 1	17,9	54,9	44,7	10,4	33,5	25	54,0
Muster 2	35,5	78,2	48,7	31,8	72,8	42,3	0,9
Muster 3	41,9	52,1	59,5	32,4	41,3	55,7	16,2
Muster 4	53,4	75,9	70,2	48,2	73,4	68,2	6,1

\*) Lizenzpaste

## 2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschnmelzen (Th. Dippel, D. Hentschel, ABRA)

### Einleitung

Im 1. Halbjahresbericht 1975 (1) wurde eine Flamm-spritzappara-tur beschrieben mit der geschmolzene Salze auf Metalloberflächen aufgetragen werden können. Die Erprobung dieser Anlage an nicht kontaminierten Werkstücken zeigte, daß mit ihr in der vorliegen-den Form aus Korrosionsgründen nur das Kaliumdihydrogenphosphat von den als dekontaminationswirksam eingestuften Salzschnmelzen aufzusprühen ist. Im Berichtszeitraum wurden mit der Flamm-spritzapparat-ur Dekontaminationsversuche durchgeführt.

### Experimentelles

Als Versuchsmaterial dienten wiederum ungeschweißte und ge-schweißte Edelstahlproben (W.-St.-Nr. 1.4541, Größe 25x25x1,5 mm) autoklavenkontaminiert (500 h, 300°C, 88 atü) mit einer  $^{60}\text{Co}$ -,  $^{106}\text{Ru/Rh}$ - und  $^{144}\text{Ce}$ -enthaltenden Lösung. Bei der Dekontamination mußten beide Seiten der Proben nacheinander über die vorgesehene Einwirkzeit mit der Schmelze behandelt werden.

Bei den Versuchen konnten zunächst keine befriedigenden Dekonta-minationsergebnisse erzielt werden. (Restaktivitäten ~50 o/o). Die Untersuchungen ergaben, daß folgende Bedingungen bei der Dekontamination einzuhalten sind, um zufriedenstellende Resulta-te zu erhalten:

- Es ist sicherzustellen, daß das pulverisierte Salz in einem gleichmäßigen Strom aufgetragen wird. Es hat sich gezeigt, daß Kaliumdihydrogenphosphat-Pulver mit einem empirisch ein-zustellenden Teilchengrößenspektrum sich am besten dosieren und transportieren läßt, wenn es bei 80°C eine Stunde lang getrocknet wurde.

- Die Temperatur des Werkstückes darf bei der Behandlung nur wenige Grade oberhalb des Salzschnmelzpunktes liegen, da sonst das überhitzte Dihydrogenphosphat zum Metaphosphat kondensiert, das dann erstarrt und sich nur sehr schwer von der Werkstückoberfläche entfernen läßt. Aus diesem Grund müssen sich die eingesetzten Wärmequellen auf eine möglichst konstante Temperatur einstellen lassen. Bei der Acetylen-/Sauerstoffflamme erfolgt dies über die Regulierung der Gasdrucke und einer Preßluftkühlung. Die gewünschte Werkstücktemperatur von ca. 270°C erhält man durch Variation der Entfernung Flamme-Werkstück, wobei die Überwachung der Temperatur mit Hilfe eines Thermoelementes durchgeführt wird. Wegen der komplizierten Temperaturregelung und der zu hohen Wärmeleistung wurde statt der Flamme ein Heißluftfön als Wärmequelle eingesetzt, bei dem die Temperatur der austretenden Luft ca. 400°C beträgt. Durch die Justierung des Abstands zum Werkstück läßt sich dessen Temperatur relativ einfach anpassen.
  
- Auf der Oberfläche des Werkstückes muß während der Dekontamination ständig eine Salzschrift vorhanden sein. Bei den geschilderten Wärmequellen treffen die Gasströme mit erheblicher Geschwindigkeit auf die Werkstückoberfläche, die das aufgesprühte Salz von den hier verwendeten, relativ kleinen Proben wegblasen. Daher ist es notwendig, während der gesamten Einwirkzeit ständig Material aufzusprühen. Dieser im Labor unumgängliche Salzüberschuß täuscht einen etwa zehnfach höheren Bedarf vor. Der Nachteil, daß das Salz weggeblasen wird, läßt sich umgehen, indem man das Werkstück z.B. von der Rückseite her erwärmt.

Unter Einhaltung der genannten Bedingungen wurde nun das Dekontaminationsvermögen der aufgesprühten Salzschnmelze in Abhängigkeit von der Einwirkzeit und den Wärmequellen untersucht.

Parallel dazu wurde der Materialabtrag und die auf der Oberfläche haftende Salzmenge bestimmt. In der Tabelle 4411-1 sind die erzielten Versuchsergebnisse zusammengefaßt.

## Ergebnisse und Diskussion

Bei den in der Tabelle 4411-2 verzeichneten Versuchsergebnissen handelt es sich um Mittelwerte aus mindestens zwei, meist aber wegen der teilweise stark streuenden Werte aus mehreren Experimenten. Die Streuungen sind auf die unterschiedliche Kontamination der Proben und besonders auf die komplizierte Apparatur und die kleinen Probestücke zurückzuführen, demzufolge die Versuchsbedingungen, wie die gleiche Pulverzufuhr, die gleiche Salzhaftung und die konstante Arbeitstemperatur nur schwierig zu reproduzieren sind. Aus diesem Grund lassen sich aus den Versuchsergebnissen nur begrenzt Schlüsse ziehen. Man kann jedoch folgende Aussagen treffen:

- Eine zehn- bis fünfzehnminütige Behandlung der im Autoklaven kontaminierten Proben mit der Schmelze ist ausreichend, um Restaktivitäten  $< 10$  o/o zu erzielen. Der Materialabtrag ist dabei  $> 0,3$  mg/cm<sup>2</sup>.
- Mit Schweißnaht versehene Proben sind besser dekontaminierbar als gebeizte. Offensichtlich haften die Kontaminationsnuklide in den Schweißnähten nicht so fest wie auf glatten Oberflächen.
- Als Wärmequelle kann sowohl die Acetylen-/Sauerstofflampe als auch ein Heißluftstrahl eingesetzt werden. Beide bewirken einen guten Schmelzfluß auf der Oberfläche.
- Um den Salzbedarf bei der Dekontamination zu reduzieren, d.h. das Wegblasen des Salzes durch die Gasströme zu verhindern, läßt sich das aufgetragene Salz auch schmelzen, wenn man das Werkstück von der Rückseite erwärmt. Die Dekontaminationswirkung wird dabei nicht wesentlich beeinträchtigt.

Zu einer Abschätzung der bei der Dekontamination anfallenden Abfallmengen sollen hier die in der Tabelle 4411-2 angegebenen, auf der zu dekontaminierenden Oberfläche haftenden Salzmengen herangezogen werden, da man annehmen kann, daß nur diese Schicht dekontaminationswirksam ist. Unerücksichtigt bleibt das während

des Auftrags weggeblasene Salz, das normalerweise bei größeren Werkstücken auf noch zu dekontaminierende Flächenbereiche treffen würde. Aus den Laborversuchen ergibt sich, daß zur Dekontamination von  $1 \text{ m}^2$  Oberfläche 0,3 bis 1 kg Salz erforderlich sind (1).

### Schlußbetrachtung

Die Laborversuche ergaben, daß Salzschnmelzen für Dekontaminationszwecke geeignet sind. Anhand des Kaliumdihydrogenphosphats konnte mit Hilfe einer speziellen Apparatur eine Auftragtechnik demonstriert werden, bei der geschmolzene Salze in dünnen Schichten auf Oberflächen haften und gute Dekontaminationwirkung haben.

Um den Nachweis zu erbringen, daß das Verfahren auch geeignet ist, Reaktorkomponenten zu dekontaminieren, wurden Proben aus den Kernkraftwerken Obrigheim und Lingen für Dekontaminationsversuche beschafft.

Erste Ergebnisse an Proben aus Obrigheim zeigen, daß man hier erst nach längeren Einwirkzeiten (ca. 100 Minuten) die Restaktivität  $< 10 \text{ o/o}$  für  $^{60}\text{Co}$  erzielt; andere  $\gamma$ -strahlende Nuklide konnten auf den Proben nicht nachgewiesen werden. Im Vergleich zu den im Autoklaven kontaminierten Proben wird hier etwa die sechsfache Dekontaminationszeit zur Erreichung der gleichen Restaktivität benötigt. In Abbildung 4411-2 ist die Aktivitätsabnahme des  $^{60}\text{Co}$  in Abhängigkeit von der Einwirkzeit bei der Dekontamination sowohl der Reaktor-Proben als auch des Versuchsmaterials verdeutlicht.

Diese Ergebnisse zeigen, daß dieses Verfahren auch in der Praxis einsetzbar ist. Deswegen kann damit begonnen werden eine Anlage für den technischen Einsatz zu entwickeln.

### Literatur

1. Halbjahresbericht 1975, PNS, KFK 2195, S. 427 ff.

Tabelle 4411-2 Versuchsergebnisse bei der Dekontamination von Edelstahlproben mit aufgesprühtem  $\text{KH}_2\text{PO}_4$

Einwirkzeit min je Seite	Wärmequelle	Beheizung *)	Probenmaterial **)	Restaktivität / o/o			Abtrag mg/cm <sup>2</sup>	Haftende Salzmenge mg/cm <sup>2</sup>
				<sup>60</sup> Co	<sup>106</sup> Ru/Rh	<sup>144</sup> Ce		
5	Flamme	d	g	12,1	11,9	5,7	-	-
5	"	d	u	15,4	10,4	8,8	0,2	31,6
10	"	d	g	4,9	5,5	3,5	0,7	24,7
10	"	d	u	6,5	9,5	4,1	0,5	79,6
10	"	i	u	11,3	6,5	12,1	8,4	111,8
10	Fön	d	u	10,1	8,4	12,9	0,7	59,2
15	Flamme	d	g	4,0	4,2	1,9	0,8	61,5
15	"	d	u	6,8	3,6	4,3	0,4	101,7
15	"	i	u	18,5	7,3	9,4	0,4	235,2
15	Fön	d	u	5,3	6,8	5,4	0,8	72,4

\*) d = direkt (= Flamme auf die zu dekontaminierende Oberfläche gerichtet),  
i = indirekt (= Erwärmung von der Rückseite)

\*\*\*) g = geschweißt; u = ungeschweißt

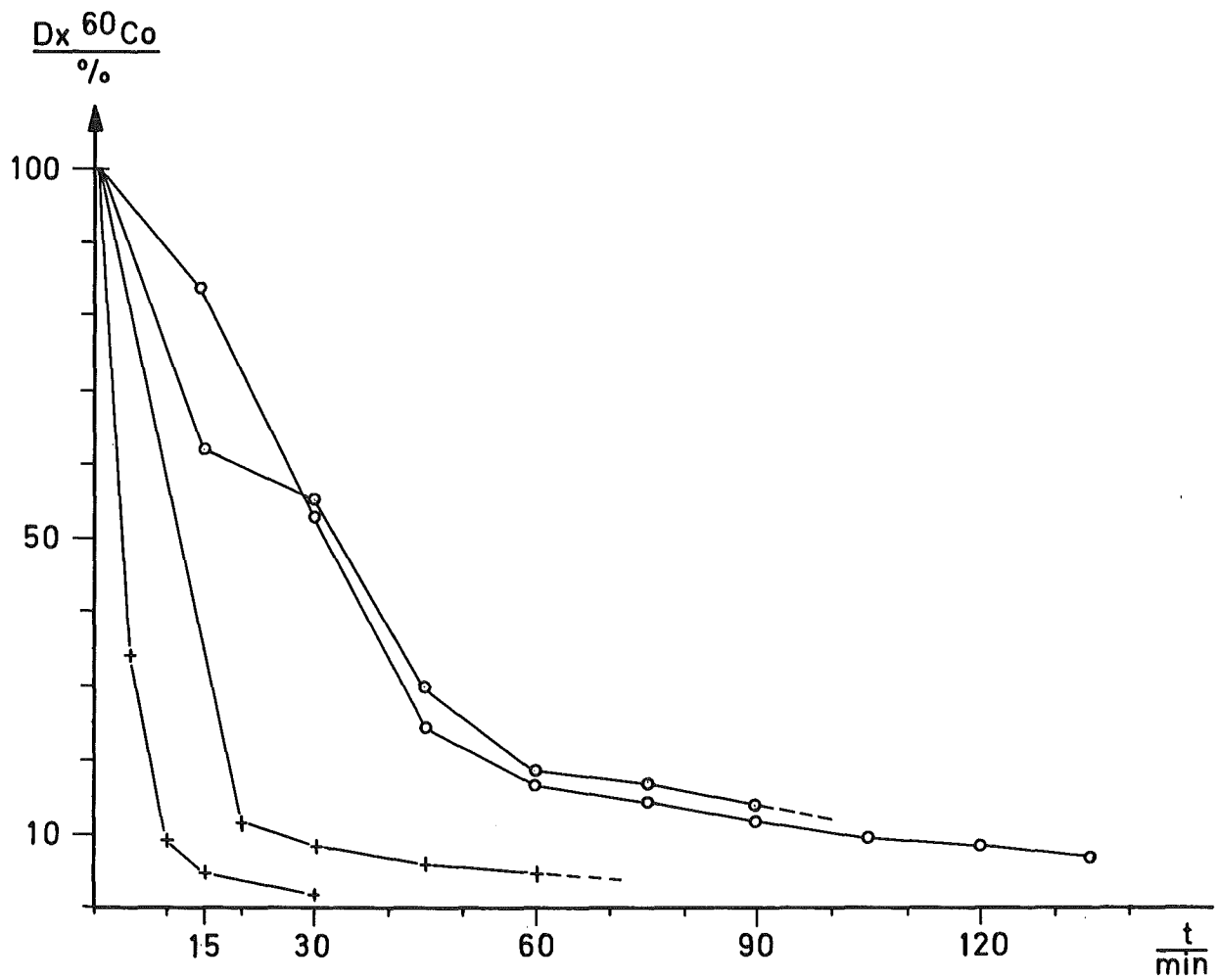


Abb. 4411-1

Abnahme der  $^{60}\text{Co}$ -Aktivität in Abhängigkeit von der Einwirkzeit bei der Dekontamination mit aufgesprühtem  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ .

o Proben aus KWO

+ im Autoklaven kontaminierte Proben



4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241) im Boden und in geologischen Formationen

Wanderung und Verteilung von Plutonium in natürlichen Böden

(A. Jakubick, ABRA)

Am Internationalen Symposium über Transurannuklide in der Umwelt<sup>+</sup>) nahm der Verfasser mit einem Beitrag zur Wanderung und Verteilung von Plutonium in natürlichem Boden teil. Da die Vorbereitung dieses Beitrags - er wird getrennt publiziert - wesentliche Teile des Berichtszeitraumes beanspruchte, wird hier über Auswertung des Symposiums hinsichtlich der geowissenschaftlichen Aspekte berichtet.

Aus der Sicht des Forschungsvorhabens über die Wanderung der Transuranelemente kann als Quintessenz der Tagung folgendes festgehalten werden.

Boden- (bzw. Gesteins-) Systeme hat man von allen Umweltkompartments als das Plutonium-Reservoir mit längster Aufenthaltsdauer erkannt. Im Boden und in den Sedimenten hält sich z.Z. das meiste Fallout-Plutonium auf. Dort wird es voraussichtlich auch eine geraume Zeit akkumuliert bleiben. (Nach Meinung des Berichterstatters). Dieser Sachverhalt prädestiniert die tiefe Lithosphäre zur Endlagerung  $\alpha$ -aktiver Abfälle. Insofern finden in diesem Bericht die ozeanographischen Arbeiten keine Beachtung trotz des wissenschaftlich hohen Niveaus mancher Arbeiten.

Eine prinzipielle Bedeutung kommt dem Verständnis der Mechanismen die die Mobilisation bzw. die Fixierung der Transuranelemente im Boden und Sedimenten bewirken zu. Das wird klar bei Betrachtung der starken Plutonium-Migration, die aus dem burial site Maxey Flats in Kentucky festgestellt wurde. Obwohl unseren Kenntnissen nach Plutonium während Hunderte von Jahren nur im cm-Bereich wandern dürfte, hat man hier meterweite Migration nach etwa 10 Jahren beobachtet. Die Überzeugung des Berichterstatters ist, daß es sich in diesem Fall mehr um eine beispielhaft schlechte Siting handelt als um eine allgemein gültige Regel.

---

<sup>+</sup>) San Francisco, 17. - 21.11.1975

Im Laufe der Tagung hat sich herausgestellt, daß im Allgemeinen ausreichende Informationen zugänglich sind, die laufenden und neue Forschungsvorhaben präzise zu formulieren. Die konventionell verwendeten theoretischen Beziehungen zur Charakterisierung des Stofftransports in der Umwelt sind ohne größere Schwierigkeiten auch bei Berechnung der Redistribution von Plutonium aus dem Fallout oder aus kontaminierten Gebieten durchaus anwendbar. Das gleiche müßte auch bei Beurteilung des äußeren Brennstoffkreislaufs möglich sein.

Zusätzliche Informationen wären wünschenswert über die Plutonium-Chemie unter den gängigen Umweltbedingungen, vor allem über das Plutonium-Verhalten in sehr verdünnten Lösungen, sowie über die Rolle der natürlichen Komplexbildner bei der Mobilisierung. Ein vielversprechender Anfangsschritt zur Klärung der Plutonium-Wechselwirkung mit Komplexbildnern in Böden und natürlichen Wässern wurde in ORNL gemacht. Ein Ansatz zur mathematisch-modellmäßigen Beschreibung der  $\text{PuO}_2$ -Wanderung wurde nur im deutschen Beitrag gegeben. Dieser hat zwar den Nachteil, daß sie die tatsächlichen Bodenverhältnisse sehr stark vereinfacht, bietet jedoch den einzigen z.Z. möglichen quantitativen Zutritt.

Im Folgenden sind die einzelnen Interessengebiete und der heutige Stand der Kenntnisse auf diesem Gebiet aufgelistet.

### Quellen

#### 1. - Fallout

Die Menge des Fallout ist gut bekannt. Die chemische und physikalische Form ist jedoch in der zugänglichen Literatur nur sehr mangelhaft charakterisiert. Sie ist wahrscheinlich heterogen.

#### 2. - Reaktorbetrieb und Wiederaufarbeitung

Die Mengen in flüssigen und atmosphärischen Freisetzungen sind bekannt. Das Verhalten und der Charakter des Plutonium ist heute aber nur mangelhaft aufgeklärt, besonders bei flüssigen

Freisetzungen. Studiert werden z.Z. lediglich die atmosphärischen Freisetzungen.

3. - Endlagerung von festen Abfällen

Die Mengen sind nur mangelhaft bekannt. Verschiedene chemische und physikalische Formen werden als möglich angenommen.

Umweltbedingungen

1. - pH, Austauschkapazität, mineralogische Zusammensetzung der Partikel.

Die Bestimmungsverfahren zu diesen Parametern sind bekannt. Ihre Bedeutung hinsichtlich der Bewegung und der biologischen Aufnahme sind unklar.

2. - Fremdionen (Salz- und organische Komplexbildner)

Die Komplexierung der Transurane ist nicht klar definiert. Studien über dieses Thema sind im Gange.

3. - Plutonium-Verhalten in Bodenlösungen (Polymerbildung) unbekannt.

Transportmechanismen

1. - Erosion

Ihre Bedeutung ist in der Größenordnung gut bekannt. Informationen über den standortspezifischen Einfluß werden in Kürze zugänglich sein. Im übrigen gehört sie zu den wichtigsten Plutoniumtransportmechanismen.

2. - Biologische Aktivität

Das Plutoniuminventar in der Biosphäre dürfte bald als gering bekannt sein. Ihre Bedeutung liegt vor allem darin, daß sie die Vermittlerrolle auf dem Pfad zum Menschen spielt.

3. - Resuspension

Es ist umfangreiches Informationsmaterial zugänglich.  
Die Resuspension ist bedeutend als direkter Pfad zum Menschen.

4. - Diffusion

Sie ist wenig effektiv in kurzen Zeiträumen, aber wahrscheinlich von wichtigem Einfluß auf die Erreichbarkeit des Plutonium durch Pflanzen. Die Untersuchungen hierzu sind noch nicht abgeschlossen.

5. - Frieren und Tauen im Boden

Kleiner Effekt.

6. - Benetzen und Trocknen des Bodens

Wichtiger Mechanismus in Böden, die schwellen und schrumpfen können.

7. - Menschliche Aktivität

Sie ist ein wichtiger Faktor, der die erreichbaren Mengen aus laufenden Handhabungen bestimmt.

Reservoirs

Kurz- und langfristig sind zu betrachten:

- a) Boden
- b) Sedimente (Marine und Süßwasser)
- c) Pflanzen und Tiere (Biosphäre)
- d) Atmosphäre
- e) Wasser
- f) Mensch

Die relative Größe jedes potentiellen Pu-Reservoirs kann definiert werden. Die Transportrate aus einem Kompartiment ins andere kann bestimmt werden.

### Problemgebiete

Offen blieben derzeit und auf Klärung warten die folgenden Probleme:

1. - Anwendbarkeit der Tracer Studien zur Charakterisierung von reellen Situationen; insbesondere das Benutzen definierter Mikrosphären zur Bestimmung der Erreichbarkeit als Funktion der Teilchengröße; Übertragbarkeit von Labordaten ins Feld; Einsatz von Pu-237 als Tracer mit Pu-242 (244) als Masse anstatt Pu-239 bei Versuchen.
2. - Einfluß der Bodenchemie (komplexbildende Agentien) auf die Verfügbarkeit bzw. Nichtverfügbarkeit von Plutonium für den Transport im Boden.
3. - Verhalten von extrem niedrigen Plutonium-Konzentrationen in natürlichen Wässern.

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1975

S. Malang,

Simulation of Nuclear Fuel Rods by Using Process Computer-Controlled Power for Indirect Electrically Heated Rods,  
ORNL-TM-4712, Nov. 1975

D. Schiesser,

Erzeugung und Freisetzung von Sr-85, Sr-90, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-135, Cs-137, Ce-141, Ce 144 durch Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000  
KFK 2153, Aug. 1975

H.Schneider, Ch. Gosgnach,

Zur Bestimmung der Zusammensetzung verschiedener Corium-Schmelzen,  
Dez. 1975, KFK 2227

S. Nazaré, G. Ondracek, B. Schulz,

Über theoretische und experimentelle Möglichkeiten zur Bestimmung der Stoffwerte von Corium - Abschlußbericht Teil II,  
KFK 2217, Okt. 1975

C. Politis,

Untersuchungen im Dreistoffsystem Uran-Zirkon-Sauerstoff,  
KFK 2167, Okt. 1975

1. Halbjahresbericht 1975 des Projekts Nukleare Sicherheit,

KFK 2195, Sept. 1975

M. Fischer,

Das Projekt Nukleare Sicherheit, Stand und Ausblick,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 1-11

R.A. Müller, E.G. Schlechtendahl,

Dynamische Belastung und Beanspruchung von Druckabbausystemen bei Kühlmittelverlustunfällen,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 12-21

R. Löffel, D. Barschdorff, E. Wolf, G. Class, J. Reimann, H. John,  
Entwicklung von Verfahren zur Massenstrommessung instationärer  
Zweiphasen-Strömungen,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 22 - 30

R. Meyder, W. Gulden,  
Die analytische Behandlung des Brennstabverhaltens bei Störfällen,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 31 - 33

M. Bocek, S. Leistikow, P. Hofmann, C. Petersen,  
Zum Materialverhalten von Zircaloy-Hüllrohren bei Kühlmittelver-  
lustunfällen,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 34 - 44

S. Hagen,  
Experimentelle Untersuchung des Abschmelzverhaltens von LWR-  
Brennstäben,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 45 - 49

P. Hofmann, H. Holleck, C. Politis, A. Skokan,  
Konstitutions- und Reaktionsverhalten von LWR-Coreschmelzen,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 50 - 57

J.G. Wilhelm, H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer,  
Entwicklung der Spaltjodabtrennung für Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungs-  
anlagen bei Normalbetrieb und Störfällen,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 58 - 62

R. v. Ammon, W. Weinländer, E. Hutter, G. Neffe, Ch. Leichsenring,  
Entwicklung der Krypton-85-Abtrennung aus dem Abgas der großen KEWA-  
Wiederaufarbeitungsanlage,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 53 - 65

H. Dilger, W. Hübschmann, P. Thomas,  
Meteorologisches Informationssystem für Kernkraftwerke,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 66 - 69

M. Fischer, A. Fiege,  
LWR-Brennstabverhalten bei schweren Reaktorstörfällen,  
Ergebnisse eines Expertentreffens,  
KFK-Nachrichten 3/1975, S. 70 - 71



Jahreskolloquium 1975 des Projekts Nukleare Sicherheit, 11.11.1975 in  
Karlsruhe, KFK 2244, November 1975

K.D. Appelt, J. Kadlec, E. Wolf,

Investigations of the Fluctuating Pressure Field in the Suppression  
Pool of the MARVIKEN Containment during Blowdown.

3. Internat. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology,  
London, September 1-5, 1975

K.D. Appelt, M. Cramer, F. Eberle, B. Goeller, J. Kadlec, B.M. Laursen,  
E.G. Schlechtendahl,

Experimental and Theoretical Investigations on the Dynamic Response of  
the Containment at the BRUNSBUETTEL BWR during Blowdown.

3. Internat. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology,  
London, September 1-5, 1975

J. Kadlec, R.A. Müller,

Dynamic Loading of Containment during Blowdown. Review of Experimental  
Data from MARVIKEN und BRUNSBUETTEL.

Extreme Load Conditions and Limit Analysis Procedures for Structural  
Reactor Safeguards and Containment Structures, Berlin, Sept. 8-11, 1975

B. Goeller, B.M. Laursen, E.G. Schlechtendahl,

Computation of Dynamic Behavior of a Nuclear Reactor Containment  
with Topology and STRUDL-DYNAL.

15. Worldwide ICES Users Group Conference, London, Sept. 25-26, 1975

B. Goeller, B.M. Laursen, E.G. Schlechtendahl,

Results of Calculation of the Dynamic Behavior of Pressure Suppression  
System during Blowdown. Extreme Load Conditions and Limit Analysis

Procedures for Structural Reactor Safeguards and Containment Structures,  
Berlin, Sept. 8-11, 1975

W. Krause, H. Albrecht,

Aktivierungsanalytische Untersuchungen von beaufschlagten Filtermaterialien,

Vortrag auf dem 6. Seminar für Aktivierungsanalyse in Jülich, 3./4. Nov. 1975

S. Vogt,

Statistische Voraussagen für Lage und Betrag der maximalen Dosis bei  
störfallbedingter Emission, KFK 2215, Dez. 1975

INTERNE PROJEKTBERICHTE (beschränkter Verteiler)

H. Schneider, Ch. Gosgnach, A. Schäfer,  
Zur quantitativen chemischen Analyse von Corium-Schmelzen,  
Juli 1975

M. Bocek, G. Class, A. Fiege, M. Fischer, P. Hofmann, E. Karb, R. Meyder,  
K. Wiehr,  
Bericht über das 1. deutsch-amerikanische Experten-Meeting auf dem  
Gebiet "LWR Fuel Behavior Programs" (insbesondere PBF) vom 18. bis  
30.5.1975,  
Juli 1975

G. Hofmann, H. Politzky, K. Rust  
Untersuchungen zum Einfluß der Größe und der Form von Kühlkanalblockagen  
auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverlustunfalles,  
Sept. 1975

P. Thomas, S. Vogt,  
Stellungnahme zur Studie "Kerntechnische Anlagen und Sicherheitspolitik"  
des Amtes für Studien und Übungen der Bundeswehr  
Aug. 1975

P. Thomas,  
Berechnung der Ausbreitungsparameter aus Meßwerten eines im Rhonetal  
durchgeführten Ausbreitungsversuches,  
August 1975

W. Gulden,  
Dokumentation von SSYST - Mod 1,  
Ein Programmsystem zur Berechnung des Brennstabverhaltens bei einem  
Kühlmittelverlustunfall,  
Sept. 1975

L. Caldarola,  
BMFT-Leistungsprüfung - Vergleich von Rechenprogrammen zur Zuverlässigkeits-  
analyse von KKW, RS 172 - Abschlußbericht,  
Okt. 1975

L. Caldarola,  
Calculation of the mean time to failure of a redundant repairable system  
Okt. 1975

St. Müller, G. Thun,

Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung,  
Röntgenanlage für die filmtechnische Erfassung des Aufblähvorganges von Brennstäben in Versuchsständen,

Okt. 1975

K. Wiehr,

Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung,  
Entwicklung der Brennstabsimulatoren,

Juni 1975

He. Schmidt,

Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung,  
Berührungslose Temperaturmessung an der aufblähenden Zircaloy-Hülle mittels Quotientenpyrometer,

Juni 1975

U. Harten,

Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung,  
Aufbau eines Meßdatenübertragungssystems und Verarbeitung der Meßdaten,

Juni 1975

H.J. Neitzel,

Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung,  
Entwicklung und Anwendung von Rechenprogrammen zur thermischen Auslegung der Brennstabsimulatoren,

Juni 1975

M. Cramer,

Bericht über die Meßdatenerfassung bei den KWU-Versuchen in Großwelzheim,  
Sept. 1975

H. Schnauder,

Untersuchungen des Einflusses von Meßfehlern bei Temperatur-, Dichte- und Druckmessung von Dampf-Wasser-Luftgemischen auf den Luftanteil,  
August 1975

U. Schumann,

Instationäre, eindimensionale, inkompressible, zähigkeitsfreie Strömung in einer Lochplatte,  
Sept. 1975

U. Schumann,

Abschätzung des Einflusses der Zähigkeit auf eine stark beschleunigte Bewegung.  
Sept. 1975

U. Schumann,

Über die geeignete Verwendung des Überrelaxationsverfahrens zur Lösung der diskretisierten Poisson-Gleichung für das Druckfeld in inkompressibler Strömung,  
Sept. 1975

E.G. Schlechtendahl,

Spezifikation des Fluiddynamiccodes FLUSTO  
Sept. 1975

E.G. Schlechtendahl,

Modifikation von YAQUI für 2 1/2 dimensionale Probleme,  
Juli 1975

D. Fömpe,

Untersuchungen der Eignung verschiedener Ringpellets für den Simulationsbrennstab des Vorhabens PNS 4236,  
August 1975

G. Class, D. Fömpe,

Berechnung des zentralen, axialen Temperaturprofils im Elektrodenübergangsbereich des Simulationsbrennstabes für PNS 4236.  
Juli 1975

G. Class,

Ermittlung von Wärmeübergangszahlen und Wärmeströmen an das Kühlmedium  
im Blowdown-Experiment PNS 4236,

Juli 1975

Dr. Class, M. Cramer,

True Mass Flow Meter - Ein Meßgerät zur Messung instationärer Zweiphasen-  
massenströme,

Juli 1975

G. Class,

Bereitstellung der Steuer- und Auswerteprogramme für PNS 4236,

Juli 1975

L. Caldarola,

Calculation of the mean time to failure of a redundant repairable system,

Okt. 1975

R. Löffel, W. Golly, D. Wolf,

Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in  
instationären Mehrphasenströmungen, Meß- und Auswertetechnik,

Juni 1975

R. Löffel, H. Meichelböck, W.D. Zeidler,

Markierungs- und Injektionstechnik,

Juni 1975

H. Unger et. al.,

Berichte über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit der GfK für den  
Zeitraum Juli - September 1975 und Oktober - Dezember 1975,

Institut für Kerntechnik und Energiewandlung e.V.

H. Albrecht, W. Krause, H. Wild,

Spaltproduktfreisetzung beim Coreschmelzen,

Sept. 1975