

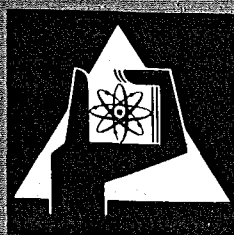
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

November 1976

KFK 2375

Projekt Nukleare Sicherheit

Halbjahresbericht 1976/1



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

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM · KARLSRUHE

KFK 2375

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

9. Halbjahresbericht/ 1. Halbjahr 1976

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 Reaktorentwicklung	IRE
Institut für Radiochemie	IRCH
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 9. Halbjahresbericht 1/76 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 - 61) und englisch (S. 62 - 120), in den über

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

jedes einzelnen Forschungsvorhabens kurz informiert wird.

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

NUCLEAR SAFETY PROJECT

FIRST SEMIANNUAL REPORT 1976

The 9th Project Report 1/1976 is a description of work within the Nuclear Safety Project performed in the first six month of 1976 in the nuclear safety field by GfK institutes and departments and by external institutions on behalf of GfK. It includes for each individual research activity short summaries (pp. 62 - 120)
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	62
DETAILLIERTE BERICHTE	121
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUF- ARBEITUNGSANLAGEN	121
4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen	121
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltjod aus der Sicherheitsbehälteratmosphäre	121
4112.1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederauf- arbeitungsanlagen	128
4112.2 Entwicklung und Bau einer Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen	138
4114 Abluftfilterung an Reaktoren (Alterung und Ver- giftung von Jod-Sorptionsmaterialien, Identifi- zierung von Jodverbindungen in den Abgasen kerntechnischer Installationen)	144
4120 Reduktion der Aktivierung und Kontamination von Reaktorkreisläufen	164
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	170
4132 Untersuchung der ¹²⁹ J-Radioökologie	170
4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung kerntechnischer Anlagen	172
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kern- technischer Anlagen	177
4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen	197
4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraft- werke auf ihre Umgebung	197

	<u>Seite</u>
4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	202
4210 Untersuchung von LWR-Druckabbausystemen, Entwicklung und Anwendung von Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	202
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR Druckabbausystemen	202
4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen	214
4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	221
4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen	231
4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown-Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Druckbehältereinbauten	231
4222 Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dyn. Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche	234
4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid- u. strukturdyn. Codes zur Analyse der dyn. Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen	237
4230 Notkühlung von LWR	241
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnellabschaltung	241
4234 Messung der Nachzerfallswärme von ²³⁵ U im Zeitbereich 10 - 1000 sec	252

	<u>Seite</u>
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten	256
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial	256
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren	284
4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrenn- stoffes auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren	316
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blow- down-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles out-of-pile-Experimente mit elektrisch beheizten Einzelstäben	325
4237.1 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles In-pile-Versuch mit Einzelstäben im Dampf- Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2	329
4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten PNS 4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstab- simulatoren (Einzelstäbe)	334
4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Nieder- druckphase von Kühlmittelverluststörfällen und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüll- rohren und einsetzender Kernnotkühlung	339
4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles	380
4240 Coreschmelzen von LWR	394
4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO ₂ -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung	394
4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	405
4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materia- lien beim Coreschmelzen	415

	<u>Seite</u>
4245 Stoffwerte von LWR Coreschmelzen und Herstellung von Corium-Proben (RS 200)	440
4246 Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen (Durchführbarkeitsstudie)	446
4300 AUSBREITUNGS - UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHAD- STOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	450
4310 Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen	450
4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments	450
4312 Theoretische und experimentelle Untersuchung der Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole sowie der wahrscheinlichkeitsbewerteten Strahlendosen in der Umgebung nuklearer Anlagen nach Störfällen	470
4312 TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechen- programms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen	483
4330 Untersuchung der radiologischen Folgen vonReaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten	497
4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN	501
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	501
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	501
4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241) im Boden und in geologischen Formationen	510
4420 Technik der Störfallfolgenbeseitigung und Stilllegung	514
4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen	514
Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1976	519

KURZFASSUNGEN

KURZFASSUNGEN

- 4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS-
ANLAGEN
- 4110 Luftfilteranlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs-
anlagen
(H. Deuber, H.G.Dillmann, J. Furrer, R. Kaempfer, H. Pasler,
A. Weinert, J.G. Wilhelm, LAF II; K.Jannakos, G. Potgeter, RBT)
- 4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus
der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Aufgrund der theoretischen Ergebnisse über Strahlenbelastung und Temperaturverläufe im Störfallfilter bei Ventilatorausfall wurden die Materialuntersuchungen zu höheren Temperaturen und längeren Standzeiten weitergeführt. Bei Temperaturen von ca. 300 °C und Einsatzzeiten von ca. 100 Stunden zeigte sich ein Nachlassen der Abscheidewirkung von AC 6120. Molsiebe in der Silberform hingegen brachten bei diesen Untersuchungsbedingungen Abscheidegrade > 99,9 % bei 0,4 s Verweilzeit. Über die Strahlenbelastung von Sorptionsmaterialien in Störfallfiltern wurden theoretische Berechnungen angestellt. Dabei wurde die Dosisleistung und Gesamtdosis bei vorgegebener Geometrie als Funktion der Jodfreisetzung und des Volumensstromes durch das Filter ermittelt. Es ergeben sich Dosisleistungen bis ca. 10⁹ rad/h und Gesamtdosen bis zu 10¹¹ rad. In zukünftigen Bestrahlungsversuchen sollten deshalb die Jod-Sorptionsmaterialien mit Strahlendosen von > 10⁹ rad untersucht werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die zukünftigen Arbeiten betreffen vorwiegend die weiteren Komponenten eines Störfall-Umluftfilters.

Zum Ende dieses Berichtszeitraumes wurde ein Tropfenabscheider mit hoher Abscheideleistung auch gegen kleine Tropfen geliefert. Es wird im nächsten Berichtszeitraum geprüft.

In bezug auf die Prüfung der Schwebstofffilter findet z.Z. eine Untersuchung über eine technisch realisierbare Aerosolerzeugung unter erhöhtem Druck

und erhöhter Temperatur statt, deren Ziel es ist, baureife Unterlagen über einen solchen Generator für Prüfstandsuntersuchungen zu liefern.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Durchgeführte Arbeiten

1. Die Untersuchung von Testbetten aus dem hochimprägnierten Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H₁ in den Auflöserabgasen der SAP Marcoule wurde abgeschlossen. Es wurden insgesamt 8 Jodabscheidungsversuche im Auflöserabgas vor und hinter der NO₂-Absorptionskolonne durchgeführt.
2. In Zusammenarbeit mit der WAK wurde die Abscheideleistung des mit AC 6120 ausgestatteten WAK-Betriebsjodfilters im Auflöserabgasstrang bis zu einer Endbeladung entsprechend 60 % der theoretischen Beladungskapazität verfolgt.
2. Eine Filterstrecke zur Abscheidung von Schwebstoffen und Jod einschließlich der Probenahmeverrichtungen wurde für den Headend Auflöser-Teststand des IHCH fertiggestellt. RBT-IT konstruierte und baute das Jodfilter.
4. Für die GWA-prototypische Abgasfilteranlage PASSAT wurde das RI-Fließbild ausgearbeitet. Ein Jodgenerator wurde entworfen. Das fernbediente Jod-Sorptionsfilter wurde in Zusammenarbeit mit RBT-IT entworfen und von dieser Abteilung konstruiert. Die Fertigung wurde begonnen.
Auf einem von RBT-IT errichteten Versuchsstand wurden Untersuchungen zur Abdichtung der Filterkomponenten durchgeführt.
5. In die Messungen zur Ausnutzung des Silbers in anorganischen Jod-Sorptionsmaterialien zur Jodabscheidung unter den Bedingungen des Auflöserabgases wurden Zeolithe des Typs 13 X Ag einbezogen.

Erzielte Ergebnisse

Zu 1.: Die höheren Konzentrationen an Stickoxiden bei Einsatz eines Jod-Sorptionsfilters vor der NO_2 -Absorptionskolonne können mit dem Sorptionsmaterial AC 6120/ H_2 einwandfrei beherrscht werden. Von seiten des Jod-Sorptionsteiles des Filters bestehen daher keine Bedenken gegen eine Jodabscheidung aus dem Abgas vor der Absorptionskolonne, durch die ein Teil des gasförmigen Spaltjodes wieder in die flüssige Phase überführt würde.

Zu 2.: Das Betriebsjodfilter in der WAK zeigte noch nach einer Umsetzung von ca. 60 % des Silbers der Imprägnierung zu Jodverbindungen einen Dekontaminationsfaktor von 10^4 .

Zu 4.: Das vorgesehene Jodfilterkonzept wird nach den bisherigen Versuchen die zu stellenden Forderungen in bezug auf Leckdichtigkeit erfüllen.

Zu 5.: Die Laboruntersuchungen zur Ausnutzung des Silbergehaltes von anorganischen Jod-Sorptionsmaterialien ergaben bei Zeolithen des Typs 13 X Ag eine Umsetzung von 37 %, während bei AC 6120/ H_2 unter gleichen Bedingungen 95 % erreicht wurden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die in der SAP Marcoule beaufschlagten Testbetten werden analytisch auf die Ausnutzung der Silberimprägnierung untersucht. Das Auflöser- und Behälterabgas der WAK wird auf organische Jodverbindungen untersucht. Die Prüfung von Jod-Sorptionsmaterialien in diesen Abgasen wird fortgesetzt.

Am RBT-IT-Versuchsstand wird die Zuverlässigkeit des fernbedienten Filterwechsels erprobt werden. Die Filtertrommel wird zusammen mit dem Filtergehäuse einem längeren Testbetrieb unterworfen.

4114 Abluftfilterung an Reaktoren
Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Die Entwicklung diskriminierender Jodsammler für die Untersuchung der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken wurde fortgesetzt. DSM 10 (ehemals als AC 6111-KJ bezeichnet), das als selektives J_2 -Sorptionsmaterial hergestellt wurde, zeigte in Laborversuchen eine gute Abscheidung von trägerhaltigem $^{131}J_2$ im relevanten Parameterbereich und eine hohe Selektivität. Erste Vor-Ort-Versuche mit diskriminierenden Jodsammlern wurden durchgeführt. In der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken wurde im Bereich niedrigster Konzentrationen ebenfalls eine gute Abscheidung von $^{131}J_2$ an DSM 10 festgestellt. In ungefilterter Raum- und Fortluft wurde ein hoher Anteil an $^{131}J_2$ gefunden ($> 50 \%$).

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Vor-Ort-Messungen werden in ausgewählten Druck- und Siedewasser-Kernkraftwerken fortgesetzt mit dem Ziel, den Anteil der Jodkomponenten in Raum- und Fortluft sowie vor und nach Filtration durch die anlagen-eigenen Jodfilter festzustellen.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen

4123 Reduktion der Aktivierung und Kontamination von Reaktorkreisläufen
(I. Michael, IRB)

Durchgeführte Arbeiten

Nachdem die Metallabgaberrate von INCOLOY 800 Proben in mehreren Versuchsreihen bei $342^\circ C$ und 150 bar und bei unterschiedlichen Sauerstoffgehalten im Ausgangsdeionat untersucht worden war, mußte die protektive Goldschicht auf der Innenwand des Autoklaven I erneuert werden.

Im Berichtszeitraum konnte der ebenfalls goldinnenbeschichtete Autoklav II (gleicher Abmessung wie Autoklav I) nahezu fertiggestellt werden.

Für die Untersuchung der Metallabgabe von normalem Chromnickelstahl an Druckwasser, dem Werkstoff, der etwa 15 % der Innenoberfläche des Primärkreises von Druckwasserreaktoren ausmacht, wurde eine kleine Autoklavenanlage (III) fertiggestellt.

Erzielte Ergebnisse

Die gegenüber der chemischen Absenkung des Sauerstoffgehaltes im Deionat mittels Hydrazin wirksamere Absenkung durch Edelgasspülung wurde in Verbindung mit der Autoklavenanlage I weiterentwickelt. Dabei zeigte sich, daß der für Primärkreiswasser von Druckwasserreaktoren geforderte Niedrigst-sauerstoffgehalt von 0,05 mg/kg etwa um den Faktor 20 nochmals unterschritten werden konnte.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Für die Weiterführung der Untersuchungen werden nunmehr drei Autoklaven zur Verfügung stehen. Dabei wird vor allem dem Verständnis des Transportes in seinen chemisch-physikalischen Teilprozessen besondere Aufmerksamkeit gewidmet werden.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

Durchgeführte Arbeiten

In der ersten Hälfte 1976 wurde ^{129}J in einer Reihe von Prozesslösungen in der WAK bestimmt. In wöchentlichen Milchproben und in monatlich gesammelten Abwasser-Milchproben wurden ^{129}J -Messungen durchgeführt. Die Entwicklung einer analytischen Methode zur Bestimmung von ^{127}J in Luft wurde begonnen.

Erzielte Ergebnisse

Die ^{129}J -Konzentrationen bestätigen die entsprechenden Untersuchungen des Jahres 1975. In Ziegenmilch vom Hauptbeaufschlagungspunkt der Abluftfahne der WAK nahm die ^{129}J -Konzentration trotz Einbau des Jodfilters bisher nicht ab. In den an einem entfernteren Ort gesammelten Kuhmilchproben liegen die ^{129}J -Konzentrationen bei einigen Hunderstel pCi/l. Die Konzentrationen in den Abwässern sind seit Einstellung des Betriebes der WAK wesentlich niedriger geworden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Das bisher durchgeführte Meßprogramm wird noch kurzfristig fortgesetzt. Dann erfolgt die Bestimmung von ^{129}J in einer großen Zahl von Boden- und Pflanzenproben aus der Umgebung der WAK. Die Bestimmung der verschiedenen chemischen Formen des stabilen Jodes in der Umgebungsluft wird an verschiedenen Stellen der Bundesrepublik durchgeführt werden (geplanter Beginn: September 1976).

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Am Programmsystem zur atmosphärischen Ausbreitung wurden einige Modifikationen vorgenommen sowie das Modell der hydrosphärischen Ausbreitung fertiggestellt. Weitere Teilergebnisse wurden erzielt. Bei einer Arbeit über die Freisetzung von Aktivierungsprodukten wurde ein besonderer Schwerpunkt auf C-14 gelegt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Durch eingeschobene Vorarbeiten für die deutsche Risikostudie hat sich eine Verschiebung bei der Erarbeitung der Endergebnisse ergeben, so daß die Fertigstellung der Abschlußberichte Ende 1976 erfolgen wird.

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Komponenten der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage (KRETA) sowie ihrer Versorgungseinrichtungen wurde geliefert und die Montage steht kurz vor dem Abschluß. Die vorzuschaltende Absorptionsanlage zur CO_2 - und H_2O -Entfernung (ADAMO) wurde bestellt und befindet sich in der Konstruktion. Der katalytische Teststand zur O_2 -, NO_x -Reduktion (Durchsatz $30 \text{ Nm}^3/\text{h}$), der am vorhandenen Auflöserteststand installiert werden soll, wurde ausgeschrieben.

Für die Berechnung des Kolonnenverhaltens bei Parameteränderungen wurde ein "statisches" Rechenprogramm zur Nachbildung der Endzustände und ein "dynamisches" Programm zur Erfassung der Zeitabhängigkeit erstellt und getestet. Erste Berechnungen wurden für das Fünfkompontengemisch N_2 -Ar- O_2 -Kr-Xe durchgeführt.

Die Laborversuche zur katalytischen Reduktion von O_2 und NO_x mit H_2 an einer kleinen Durchfluß-Laboranlage (Durchsatz $1 \text{ Nm}^3/\text{h}$) wurden abgeschlossen. Zuletzt standen die Vergiftung der ausgewählten Ru-Kontakte mit Jod und Tributylphosphat (TBP) sowie ihre thermische Belastbarkeit im Vordergrund.

Eine größere Labor-Kreislaufanlage zur Katalysatoruntersuchung (Durchsatz $10 \text{ Nm}^3/\text{h}$), an der vor allem die Messung und Regelung der H_2 -Dosierung studiert werden soll, wurde in Betrieb genommen. Laborversuche zum Studium des Adsorptionsverhaltens der Störkomponenten: CO_2 , NH_3 , N_2O , NO , NO_2 , und der Edelgase an Molekularsieben wurden aufgenommen.

Erzielte Ergebnisse

Die Berechnung des zu erwartenden Konzentrationsverlaufs der Gaskomponenten in der ersten Rektifizierkolonne ergeben eine Abtrennung der Edelgase Kr/Xe mit einem Dekontaminationsfaktor $> 10^4$ vom Trägergas Stickstoff und Aufkonzentrierung im Sumpf bzw. auf den unteren Böden der Kolonne. Der zeitliche Konzentrationsverlauf der Komponenten in der Kolonne wurde berechnet.

Die erhaltenen Werte für den stationären Zustand wurden mit dem Ergebnis des statistischen Berechnungsverfahrens bestätigt.

Die Laborversuche ergaben:

Eine Beaufschlagung des Ru-Katalysators mit TBP oder J_2 vor dem Versuch verringert seine Aktivität gegenüber der NO-Reduktion nur unwesentlich. Ebenso gering ist der Effekt einer kontinuierlichen Zudosierung von J_2 zum Gasstrom. Dagegen verringert sich die Spezifität des Katalysators bezüglich der Bildung von N_2 als Endprodukt. Mit steigender Belegung des Katalysators mit HJ (entstanden durch katalytische Reduktion des J_2 mit H_2) wird mehr NH_3 gebildet. Bei der Sättigungskonzentration von 17 mg J_2 pro g Katalysator beträgt die NH_3 -Konzentration hinter dem Katalysator 450 ppm bei einer NO-Eingangskonzentration von 5000 ppm (entsprechend einer NH_3 -Bildung von 9 %).

Thermische Belastungsversuche, die während mehrerer Tage bei Temperaturen bis zu 1000 °C durchgeführt wurden, ergaben Aktivitätserniedrigungen des Katalysators, die sich in einer Erhöhung seiner Anspringtemperatur um ca. 100 °C bemerkbar machten.

Die Adsorption von NO an Linde-Molekularsieb A5 geht mit einem durchmischten Adsorptionskoeffizienten von ca. 50 bei 20 °C vonstatten. Dieses Gas läßt sich also nur schwer auf adsorptivem Weg aus dem Abgasstrom abtrennen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Die Inbetriebnahme von KRETA und der Nachweis der Garantiedaten ist in der Zeit bis Ende September vorgesehen. Danach beginnt der Versuchsbetrieb. Die Fertigstellung der Molekularsiebanlage ADAMO (Aufbau bis zum Jahresende 1976) läuft termingemäß. Nach einer ersten Versuchsphase mit Einzeltests werden beide Anlagen zusammenschaltet und in Verbund betrieben.

In Verbindung mit dem Betrieb der katalytischen Kreislaufanlage sollen Sicherheitsbetrachtungen beim Umgang mit großen H_2 -Mengen durchgeführt werden.

Die Adsorption der Edelgase sowie der NO_x und des NH_3 in Gegenwart von H_2O wird an säurefesten Molekularsieben untersucht.

4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Meßwerterfassung konnte im ersten Halbjahr 1976 ohne größere Störungen oder Ausfälle betrieben werden. Rechnerausfälle treten seltener als einmal pro 14 Tagen ein, in den Meßstellenumschaltern müssen gelegentlich Relais ausgewechselt werden. Häufigste Störung war ein Festlaufen des Lochstreifens im Stanzer bei der Ausgabe. Jedoch wurde inzwischen eine selbstüberwachende Datenausgabe auf Cassetten in das Betriebssystem eingearbeitet. Diese stellt sicher, daß ab durchgeführter Wartung der Anlage frühestens nach zwei fatalen Cassettenfehlern und Stanzerversagen Protokolle verloren gehen können. Störungsfrei zeichnen die Ausgabemedien 12 Tage lang auf, anschließend wird auf Teletype ausgedruckt. Die Übernahme der Daten auf die Großrechenanlage erfolgt einwandfrei; Sichtungsprogramme werden gegenwärtig erprobt.

Seitens der Meßtechnik war es notwendig, korrodierte Kabel auszutauschen; Sonden und Verstärker zeigen dagegen sehr hohe Zuverlässigkeit, wie eine Generalüberprüfung aller Meßwerte ergeben hat.

Erzielte Ergebnisse

Erste Sichtungen haben gezeigt, daß sich die gemessenen Daten in bezug auf die geplanten Analysen und Statistiken hinsichtlich Auflösung, Genauigkeit und Vielfalt wie erwartet eignen. Daten konnten im Berichtszeitraum zeitlich nahezu lückenlos zu 60 % des maximalen Umfangs gesammelt werden und können

auf der Großrechenanlage von Magnetband in chronologischer Reihenfolge abgerufen werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Das Vorhaben wird gemäß Projektratsbeschluß Ende 1976 aus dem Bereich des Projekts Nukleare Sicherheit ausscheiden. Erste Ergebnisse werden Ende 1976 zu erwarten sein, Rechencodes werden gegenwärtig entwickelt.

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Numerik des Programms WALKÜRE wurde verbessert. Durch eine Modifizierung des Ansatzes für die induzierte Turbulenz wird ein 3-dimensionales Feld für die Diffusionsparameter berechnet. Wie Testrechnungen zeigen, ist die Überlagerung mehrerer Kühlturmfahnen jetzt ebenfalls möglich.

Erzielte Ergebnisse

Aufgrund der Änderungen der Numerik rechnet WALKÜRE jetzt etwa 30 % schneller als zuvor. Durch die Einführung eines 3-dimensionalen Feldes für die Diffusionsparameter konnte der unterschiedlichen Turbulenz innerhalb und außerhalb der Kühlturmfahne besser Rechnung getragen werden. Erste Überlagerungsrechnungen zeigten, daß selbst bei einer Vereinigung der sichtbaren Fahne nach 200 m in 3 km Entfernung von den Quellen der Einfluß der Einzelkühlturmfahnen noch eindeutig feststellbar ist.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Erste Auswertungen der Meßkampagne Neurath II wurden von dem Eidgenössischen Institut für Reaktorforschung zur Verfügung gestellt und weitere im Laufe des Herbstes zugesagt. Mit der "Kalibrierung" von WALKÜRE kann im 2. Halbjahr 1976 begonnen werden. Das Vorhaben wird dieses Jahr beendet.

- 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 Infrarot-Meßeinrichtung für das Marviken II-Projekt wurde in der Anlage installiert und in Betrieb genommen. Bei bisher vier Blowdown-Versuchen wurde die Apparatur mit gutem Erfolg eingesetzt. Die Auswertung der Meßdaten wird parallel in Studsvik (Schweden) und in Karlsruhe am Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe durchgeführt.

Bei den Untersuchungen zum dynamischen Verhalten der Containment-Struktur konzentrierten sich die Arbeiten auf das transiente Verhalten der dünnen Schalen des Containments. Die analytische Untersuchung des Innenzylinders der Brunsbüttel-Kondensationskammer unter vereinfachten Randbedingungen zeigte, daß zur Bestimmung eines dynamischen Response sehr viele Eigenschwingungsformen (einige 100) bis zu hohen Ordnungen berücksichtigt werden müssen, da diese Schale gegen höhere Belastungsordnungen wesentlich weicher ist als gegen niedrigere Belastungsordnungen. Die Forderung nach der Berücksichtigung hoher Ordnungen heißt, daß auch in der Belastung diese hohen Ordnungen bekannt sein müssen, was bei experimenteller Lastermittlung entsprechend viele, dicht beeinanderliegende Meßstellen erfordern würde.

Die Parameterrechnungen mit dem die thermohydraulischen Vorgänge des Kondensationsvorganges beschreibenden Rechenprogramme wurden fortgesetzt.

Im Rahmen einer neuen Versuchsserie im Großkraftwerk Mannheim wurden im Auftrag des TÜV Baden Kontrollmessungen vorgenommen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Infrarot-Meßeinrichtung wird auf eine größere Meßlänge (300 mm) umgerüstet. Hierfür müssen die erforderlichen Interferenzfilter neu geeicht werden.

Die Grundsatzuntersuchung zum transienten Verhalten dünner Schalen wurde an einer Zylinderschale durchgeführt, da sich dieser Schalentyp am leichtesten analytisch beschreiben läßt. Das sicherheitstechnisch wichtigere Bauteil der Kugelschale, das die äußere Wand der Kondensationskammer bildet, soll im kommenden Halbjahr ebenfalls analytisch auf sein transientes Verhalten untersucht werden.

Die Parameterrechnungen zum Kondensationsvorgang werden fortgesetzt, ebenso die Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim. Ebenfalls im Auftrag des TÜV Baden werden Kontrollmessungen bei den nichtnuklearen Vorbetriebstests mit dem Druckentlastungssystem im Druckabbausystem der Anlage Philippsburg ausgeführt werden.

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Installation einer Gasgeschwindigkeitsmeßeinrichtung an einem der 4 Blowdown-Channels und einer Zweiphasengeschwindigkeitsmeßeinrichtung am Blowdownstutzen des Marviken-Reaktors wurde im Januar abgeschlossen. Von Februar bis Mai wurden die ersten 4 Blowdowns durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

In den Blowdown-Channels wurden bei den 4 Blowdowns Geschwindigkeiten von 0 bis 60 m/s gemessen. Die Maximalgeschwindigkeiten weichen bei den einzelnen Blowdowns nur geringfügig voneinander ab. Bei den Blowdowns 18 und 19 wurden starke Geschwindigkeitsschwankungen ab ca. 70 sec nach Blowdownbeginn festgestellt. Im Bruchstutzen lagen die Geschwindigkeiten zwischen 0 und 50 m/s.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Marviken II-Experimente werden mit den übrigen 4 Blowdowns fortgesetzt. Parallel dazu beginnen die Versuche an dem "Gemeinsamen Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren" (RS 145/PNS 4215) des IRB und die Vorbereitungen auf die für 1977 vorgesehenen HDR-Blowdown-Experimente.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Berichtszeitraum konzentrierten sich die Arbeiten auf die Inbetriebnahme des Versuchsstandes. Es wurde die Meßtechnik (Druck, Temperatur, Massenstrommessung) sowie das Regelverhalten der Anlage erprobt bei Drücken von 50 bis 150 at und zugehörigen Sattedampftemperaturen bei verschiedenen Massendurchsätzen und Dampfgehalten. Eine Testserie diente zur Erprobung der Durchsichtstation bei gleichzeitigem Einsatz von zwei Zweiphasensonden, um die Strömungsform zu detektieren. Die Strömung wurde mit einer Hochgeschwindigkeitskamera gefilmt, die Signale der Sonden wurden auf Band gespeichert. Diese Versuche wurden ebenfalls bis zu Drücken von 150 at durchgeführt. Der Vergleich beider Methoden zeigte eine klare Interpretierbarkeit der Sondensignale.

Es wurde ein Konzept erarbeitet, um innerhalb recht kurzer Zeit (≈ 4 Monate ab Bewilligung der Mittel) mit relativ kleinem finanziellem Aufwand (≈ 50 TDM) den Versuchskreislauf für Wasser-Luft-Strömungen auszubauen, um den maximal erreichbaren Massenstrom um den Faktor 7 gegenüber den Wasser-Wasserdampf-Versuchen zu erhöhen. Dies ist deshalb möglich, weil die Luftkompressoren (≈ 4000 Nm/h) des Instituts und eine installierte Wasserpumpe (≈ 150 m³/h) sich in unmittelbarer Nähe des Versuchsstandes befinden. Allerdings beschränkt sich die Erhöhung des Massenstromes auf einen relativ kleinen Bereich des "Dampfgehaltes" ($X \lesssim 0,1$). Eine Abschätzung zeigt, daß dennoch alle Strömungsformen erreicht werden, die bei dem System Wasser-Wasserdampf bei hohen Drücken, sehr viel höheren Dampfgehalten und entsprechend hohen Massenströmen auftreten würden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Fertigung und Einbau der Gamma-Dichtemeßeinrichtung
- Fertigungsreife Entwicklung und Auftragsvergabe für den Luft-Wasser-ausbau des Kreislaufes
- Konstruktion und Berechnung der Komponenten für den Ausbau des Kreislaufes für den instationären Betrieb
- Aufnahme des Experimentierbetriebes.

4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchungen 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

Zentrale Punkte des Vorhabens waren, nachdem zuvor die Zielsetzung der HDR-Versuche eindeutig festgelegt worden war (siehe KFK 2262), die fertigungsgerechte Auslegung und Spezifikation der Druckbehältereinbauten, die Umstellung des Versuchskreislaufes zur Erreichung einer stabilen Enthalpieschichtung und die Planung von Vorversuchen.

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Aufgrund der im vorangegangenen Halbjahr durchgeführten Auslegungsrechnungen wurden Werkstattzeichnungen für den Kernmantel, den Kernmantel-einspannflansch, den unteren Flansch und den Gewichtsring erstellt. Auf der Basis dieser Zeichnungen konnte ein Fertigungs- und Montageauftrag vergeben werden.

Außerdem wurde eine Studie zur Standsicherheit des HDR-Druckbehälters beim Blowdown angefertigt. Es ergab sich, daß es für die Beurteilung der Standsicherheit ausreichend ist, als aufgeprägte, am Druckbehälter angreifende Belastung allein die Rückstoßkraft des austretenden Blowdownstrahles zu berücksichtigen.

Der Kreislauf zur Einstellung von Enthalpie-Schichtung, wie sie für einen Reaktor typisch sind, wurde so umgestellt, daß die Enthalpie-Schichtungen stabil sind. Dies führte zu einer Kaltwasserzufuhr im unteren Plenum, einer Heißwasserzufuhr im oberen Plenum und einer Absaugung des Gemisches im Ringraum. Ferner wurden Kriterien für die Kreislaufregelung festgelegt.

Die axiale Temperaturverteilung, die sich zu Beginn der HDR-Blowdown-Versuche einstellt, wurde ermittelt. Um diese Temperaturverteilung experimentell verifizieren zu können, wurden entsprechende Vorversuche geplant. Der Meßstellenplan für diese Vorversuche ist fertiggestellt. Nach den bisher vorliegenden Ergebnissen scheint eine thermische Isolierung des HDR-Behälters nicht erforderlich zu sein, wenn die Kaminwirkung in der Anlage ausreichend unterdrückt wird.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Zur Überprüfung der Abmessungen für den Kernmanteleinspannflansch ist eine zumindest grobe elastisch-plastische Spannungsanalyse für den Flanschquerschnitt erforderlich. Neben der Klärung verschiedener Detailprobleme, die während des Fertigungsablaufes anfallen, muß zusammen mit dem Projekt PHDR die HDR-Deckelverschraubung unter dem Gesichtspunkt der Anlagensicherheit überprüft werden.

Der Meßstellenplan für den Kernmantel ist zu überprüfen und die genauen Positionen der Meßaufnahmen sind festzulegen.

Ein Konzept für Schwingungsversuche am eingebauten Kernmantel - mit und ohne Wasserfüllung - unmittelbar vor den Blowdown-Versuchen ist auszuarbeiten.

Mit dem Code YAQUI werden (zunächst ohne Berücksichtigung der elastischen Struktur) folgende Vorausberechnungen der Versuche vorgenommen werden:

- a) Abwicklung des Ringraumes mit vorgegebenem Druckzeitverlauf am Stutzen,
- b) wie a, jedoch mit einem - aufgrund einer Potentialtheorie entwickelten und dem Strömungsverlauf angepaßten - krummlinigen Maschennetz,
- c) Stutzen und Übergang in den Ringraum.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Detailkonstruktion der Autoklaven-Testvorrichtung wurde abgeschlossen und mit der Fertigung begonnen. Als Antriebseinheit für die dynamische Kalibrierung der Meßaufnehmer wird ein elektromagnetischer Schwingantrieb verwendet werden, die entsprechende Bestellung wurde erteilt. Mit zwei bereits vorhandenen Taster-Wegaufnehmern und den Zuleitungen wurden erste elektrische und mechanische Tests ausgeführt. Es zeigte sich, daß eine stärkere mechanische Bewegung der Zuleitung sich als Störsignal bemerkbar macht. Von einem weiteren Lieferanten wurden zwei Probestücke von Taster-Wegaufnehmern, die für die vorliegenden Umgebungsbedingungen geeignet sind, bestellt. Außerdem konnten zwei erste Probestücke eines piezo-resistiven Beschleunigungsaufnehmers bestellt werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die vergleichenden Messungen und Tests mit den verschiedenen Fabrikaten von Taster-Wegaufnehmern werden fortgesetzt, zunächst in Luft und später nach Inbetriebnahme des Autoklaven in Wasser unter erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur. Nach Anlieferung und Inbetriebnahme des elektromagnetischen Schwingungsantriebes beginnt die dynamische Kalibrierung. Ein ähnliches Programm ist für die Beschleunigungsaufnehmer vorgesehen. Es ist weiterhin vorgesehen, die in der HDR-Anlage vorliegenden elektrischen Störeinflüsse vor Ort zu untersuchen. Diese Informationen sind für die Auswahl der zu verlegenden Meßkabel von Bedeutung.

- 4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid- und strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen
(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 fluid-struktur-dynamischer Codes, zur Berechnung von Blowdown-Vorgängen insoweit, als sie zur Bestimmung der maximalen Beanspruchung des Kernmantels von Bedeutung sind.

Durchgeführte Arbeiten

Die Programmierarbeiten für das Rechenprogramm CYLDY1, das zur Beschreibung der Strukturmechanik des Kernmantels eingesetzt werden soll, sind abgeschlossen. Ergebnisse mit befriedigender Genauigkeit konnten bisher nicht erzielt werden.

Eine vergleichende Studie über verschiedene Verfahren zur fluid-struktur-dynamischen Koppelung wurde durchgeführt. Es ergaben sich gewisse Vorbehalte in bezug auf die Stabilität der bisher geplanten Verfahren (sukzessive Verfahren). Aus diesem Grunde wurde ein sogenanntes simultanes Koppelungsverfahren vorgeschlagen, bei dem mit Hilfe eines Singularitätenverfahrens das Fluidmechanik-Problem in ein BIE-Problem (Boundary Integral Equation Problem) überführt wird. Die Methode ist auf die Behandlung von 3-D-Problem (z.B. Kernmantel im Inneren mit Wasser gefüllt) zugeschnitten. Auch für zwei andere, in der Fluidmechanik übliche Methoden (Differenzenverfahren, Charakteristikenverfahren) wurden die aus einer Koppelung mit elastischen Strukturen resultierenden Erfordernisse untersucht.

Die theoretischen Arbeiten zur Fluidmechanik konzentrierten sich auf die Untersuchung von Potentialströmungen in HDR-Geometrie, die Erstellung eines 1D-Teilmodells und die Detailspezifikation eines 2D-Teilmodells für den Systemcode FLUST sowie einen Vergleich des YAQUI-Codes mit dem Code REXCO.

Experimentell wurden unter Verwendung der Flachwasseranalogie einige Teilprobleme der Strömung im HDR beim Blowdown untersucht.

Erzielte Ergebnisse

- Ein Bericht über die verschiedenen Koppelungsverfahren und
- eine detaillierte Beschreibung für einen Rechencode, der das Fluidmechanik-Problem mit Hilfe eines Singularitätenverfahrens in ein BIE-Problem (Boundary Integral Equation Problem) überführen soll,

liegen vor.

- Erste positive Ergebnisse mit einem eindimensionalen Teilmodell und die Beschreibung eines zweidimensionalen Teilmodells für den Code FLUSTO1 liegen vor.
- Mit YAQUI wurden erste Ergebnisse für den abgewickelten Ringraum erzielt.
- Die Gleichungen für die Fluid-Strukturkopplung YAQUI-CYCLDY1 liegen vor.
- Mit einer näherungsweise Behandlung des Wassers als inkompressibles Fluid wurden konservative Abschätzungen der Belastung des Kernmantels durchgeführt. Sie deuten an, daß die bisher vorliegenden Lastkurven möglicherweise zu pessimistisch sind.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Es wird erwogen, bei dem Schalendynamik-Rechenprogramm CYLDY1 für das axiale Verformungsprofil den Fourieransatz durch Eigenfunktionen zu ersetzen. Wie neuere Veröffentlichungen zeigen, scheint dies bei der Rechengenauigkeit erhebliche Vorteile zu bringen.

Die Kopplung YAQUI-CYLDY1 ist eine vorrangige Aufgabe für das nächste Halbjahr.

Mit YAQUI werden die Vorausberechnungen für den abgewickelten Ringraum und der Übergang Stutzen/Ringraum ausgeführt.

Entscheidung über Berücksichtigung von 3-D-Fluidodynamik-Effekten demnächst.

4230 Notkühlung von LWR

Untersuchung des Brennstabverhaltens bei Störfalltransienten und der Auswirkung von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung

4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnellabschaltung (ATWS) (R. Meyder, IRE₃, H. Unger, IKE Stuttgart)

Durchgeführte Arbeiten

Im Rahmen der deutsch-amerikanischen Zusammenarbeit über Programmment-

wicklungen zum Brennstabverhalten (SSYST - FRAP) wurde ein ANC-FRAP "Standard Problem" mit SSYST nachgerechnet. Diese Rechnungen ermöglichten es, mit allen wichtigen Modulen von SSYST-Mod 1 einen integralen Test durchzuführen und die Ergebnisse mit denen der FRAP-Rechnungen zu vergleichen.

Wegen Oszillationen der Wärmeübergangszahl an der Brennstaboberfläche bei der Kopplung von ZET-1D und HYDRA wurde ein anderes Lösungsverfahren unter Verschmelzung der beiden Module im Modul ZETHYD aufgestellt.

Die bisher vorliegenden Ergebnisse der Experimente des IRB zum Hüllrohrblähen (PNS 4238) wurden mit dem Deformationsmodell STADEF des Programmsystems SSYST nachgerechnet. Dabei wurden verschiedene in der Literatur bekannte Ansätze zur Beschreibung des zeitabhängig-plastischen Verhaltens von Zircaloy herangezogen. Die Entwicklung eines transienten 2D-Wärmeleitmoduls für r, ϕ - Geometrie zur Berechnung der azimuthalen Temperaturverteilung wurde vorbereitet. Mit der Erstellung eines Programmes zur Beschreibung der Hüllrohrverformung in $r-\phi$ -Geometrie sowie der Beschreibung der Flutphase wurde ebenfalls begonnen.

Für die Nuklearstabversuche (PNS 4237) wurde die Berechnung transienter Hülltemperaturverläufe für insgesamt vier Maximalwerte der Stableistung bei symmetrischer Leistungsverteilung sowie die Nachrechnung der Hauptversuche A 1.1 und A 1.2 vorgenommen. Für den elektrisch beheizten Brennstabsimulator wurden Rechnungen für die Ausführung mit Ringtabletten aus Al_2O_3 (BSS01) und aus UO_2 (BSS02) durchgeführt.

Mit SSYST-Mod 1 wurde eine Sensitivitätsstudie durchgeführt. Dabei zeigte der Modul zur Berechnung der Gasströmung im Spalt unter speziellen Randbedingungen numerisch bedingte Oszillationen. Durch Umformulierung der Problemgleichungen konnten diese beseitigt werden.

Parameter für das Nortonsche Kriechgesetz wurden sowohl aus Zugproben als auch aus Rohrberstversuchen gewonnen. Das Rechenprogramm OPAL zur Optimierung von Diffusionskonstanten in ZrO_2 , α - und β -Zircaloy wurde so erweitert, daß neben dem Schichtstärkenwachstum die Gewichtszunahme infolge Oxidation als weiterer Parameter berücksichtigt werden kann.

Mit RELAP 4-Mod 85 wurden Blowdown-Rechnungen für einen 1000 MW_{el}-Reaktor durchgeführt; sowohl bei der Analyse des Gesamtsystems als auch bei der Heißstabanalyse traten programminterne Fehler auf, die diese Version zur Zeit als unbrauchbar erscheinen lassen. Für die statistische Analyse des Stabverhaltens wurden für die Methoden "Monte Carlo" und "moment matching" Rechenprogramme aufgestellt. Ergebnisse für die Statistik der Hüllrohr-Temperatur wurden ausgewertet und verglichen.

Erzielte Ergebnisse

Das Programmsystem SSYST wurde weiter verbessert. Die Ergebnisse der SSYST-FRAP-Vergleichsrechnungen zeigten gute Übereinstimmung. Bei beiden Programmen setzt z.B. das Aufblähen der Hülle an der heißesten Stelle zum annähernd gleichen Zeitpunkt (ca. 8 s) ein. Die Nachrechnung der Experimente des IRB zum Hüllrohrblähen führte ebenfalls zu einer qualitativ guten Übereinstimmung der experimentell und theoretisch ermittelten Werte.

- Die bisher gewonnenen Parameter für das Kriechgesetz sind quantitativ noch nicht zufriedenstellend.
- Der Gasstrom im Spalt (Blowdown-Phase) gleicht schon bei sehr kleinen Spalten (ca. 5 μ hydraulisch) die axialen Druckdifferenzen aus.
- Die Methode der "Moment matching" für die statistische Analyse benötigt erheblich weniger Rechenzeit als die "Monte Carlo" Methode bei vernachlässigbaren Unterschieden für die Erwartungswerte und Varianzen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

SSYST soll weiterentwickelt werden. Die Darstellung der Thermo- und Fluid-dynamik wird weiter ausgebaut. Durch eine statistische Beschreibung des Stabklassenverhaltens soll eine abgesicherte Aussage über Größe und Anzahl der sich verformenden Stäbe ermöglicht werden. Die Beschreibung des Stab-bündelverhaltens sowie der Fehlerpropagation zwischen Brennstabklassen soll durchgeführt und modular in SSYST integriert werden. Die Entwicklung eines transienten 2D-Wärmeleitmoduls und die Beschreibung der Hüllrohrverformung

in der $r-\phi$ -Geometrie wird weiter verfolgt. Die begleitenden Rechnungen zu den Stabversuchen werden fortgeführt.

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

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Im Berichtszeitraum wurden die Arbeiten am Versuchsaufbau weitergeführt:

Um einen "thermischen Schock" auf das Kalorimeter zu verhindern, muß die Temperatur der Brennstoffproben während der Bestrahlung in der thermischen Säule des FR2 möglichst niedrig gehalten werden. Dazu wurden Rohrpostfahrzeuge mit einer mechanischen Ausklinkvorrichtung entwickelt, in denen eine wirksame Kühlung der Proben (8 - 15 mm Durchmesser, 15 mm Länge) mit nur 10 K Temperaturdifferenz gegenüber dem Kühlmedium (N_2 bei etwa 300 K und 1 bar) bei thermischen Leistungen bis zu 15 W möglich ist. Die Auslegung der Rohrpostfahrzeuge machte die Konstruktion einer neuen Rohrpostanlage nötig, da die vorhandene Rohrpost einen zu kleinen Durchmesser hatte. Das Fahrrohr wurde als Teil eines geschlossenen Kühlkreislaufs ausgelegt, in dem ein Gebläse mit $20 \text{ m}^3/\text{h}$ Förderleistung zusammen mit Wärmetauschern für eine ausreichende Kühlung sorgen. Eine Entladestation, in der beim Auftreffen der Rohrpostfahrzeuge die Proben ausgeklinkt werden und in den Kalorimeterrezipienten fallen, sowie die automatische Steuerung aller für den Transport der Proben vom Bestrahlungsort in den adiabatischen Mantel nötigen Funktionen lassen Zeiten von 2 - 3 Sekunden zwischen "Ende Bestrahlung" und "Anfang Messung" erwarten. Der mechanische Versuchsaufbau ist konstruiert und in Fertigung bzw. schon gefertigt.

Da bis zu 40 % der Nachzerfallswärmeleistung in Form von γ -Strahlung aus den Proben entweichen, ist die Messung des γ -Energiestroms ein wichtiger Bestandteil des Meßprogramms.

Gewöhnliche γ -Detektoren weisen eine charakteristische Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit auf. Daher müssen gemessene Energiespektren mit den Antwortfunktionen des Detektors unter großem rechnerischem Aufwand entfaltet werden, um die Gesamtenergie zu erhalten. Um diese Schwierigkeiten zu umgehen, wurde für die γ -Energiestrom-Messung ein MOXON-RAE-Detektor

ausgewählt und gebaut, dessen Nachweiswahrscheinlichkeit linear mit der Energie ansteigt, so daß die Zählrate, unabhängig vom Energiespektrum direkt ein Maß für den Energiestrom darstellt. Die durch den Dunkelstrom von Photomultipliern auftretenden Probleme des Signal-Zu-Untergrund-Verhältnisses wurden durch die Verwendung zweier Photomultiplier in schneller Koinzidenz eliminiert.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Nach der Fertigstellung des mechanischen Aufbaus sind Kaltversuche im INR geplant, in denen die Funktion der Rohrpost-Steuerung optimiert werden soll. Parallel dazu sollen die Brennstoffproben gefertigt und in Eichmessungen ihre Wärmekapazitäten gemessen werden. Dann kann der Aufbau am FR2 erfolgen.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllmaterial
(M. Boček, IMF II)

Durchgeführte Arbeiten

1. Analyse der Stabilitätskriterien beim Rohrrinnendruckversuch.
2. Kriechverhalten von Zry-4-Flachzugproben in Vakuum.
3. Gefügeuntersuchungen an superplastisch verformten Zry-4-Flachzugproben (Luftatmosphären-Versuche).

Erzielte Ergebnisse

Zu 1.:

Beziehungen wurden abgeleitet zwischen dem Logarithmus der tangentialen Verformungsgeschwindigkeit $\log \dot{\epsilon}_\theta$ und entsprechender Dehnung ϵ_θ auf der einen und bestimmten Materialeigenschaften auf der anderen Seite.

Anhand dieser Beziehungen können aus experimentellen Verformungskurven Rückschlüsse über das Verformungsverhalten gezogen werden.

Drei Versuchsführungen wurden betrachtet, für die in der angegebenen Reihenfolge die Tendenz zum instabilen Verhalten unter sonst gleichen Bedingungen zunimmt: Tangentialspannung σ_{θ} ; Tangentiallast $L_{\theta} = \text{konst.}$ und Innendruck $p = \text{konst.}$

Zu 2.:

Der Übergangsbereich von Kriechkurven im Temperaturbereich 700 - 1000 °C zeigt anormales Verhalten. Auch die aus Lastwechselversuchen bestimmten Geschwindigkeitsexponenten m sind temperatur- und lastabhängig. Im untersuchten Temperaturbereich, für Verformungsgeschwindigkeiten $\approx 10^{-6} \text{ sec}^{-1}$ ist offensichtlich, daß $m \rightarrow 1$.

Soweit Vergleiche angestellt wurden zwischen m -Werten, bestimmt aus unterschiedlichen Verfahren, ist die Übereinstimmung befriedigend.

Zu 3.:

Metallographische, Textur- und Rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen erbrachten eindeutige Beweise, daß im $(\alpha+\beta)$ Phasenbereich der von RACHINGER erstmals erwogene Kernwechselmechanismus für das superplastische Fließen charakteristisch ist. Anhand dieser Mechanismen kann erklärt werden, warum auch Proben mit kleinen m -Werten ($< 0,3$) sich einschnürungsfrei verformen können.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- a) Analyse von Rohrberstversuchen für konstanten Innendruck.
- b) Untersuchung des Kriechverhaltens von Flachzugproben im Bereich sehr kleiner Lasten (zur Existenz einer kritischen Fließspannung). Studium der Verformungsabhängigkeit der m -Werte bei Kriechverformung)
- c) Untersuchung zur Ermittlung der Aktivierungsenergie des superplastischen Fließens im $(\alpha+\beta)$ -Bereich.

- d) Gefügeuntersuchungen an Proben, die außerhalb des $(\alpha+\beta)$ -Bereiches verformt werden.
- e) Verformungsverhalten von Zry-4-Flachzugproben im Temperaturbereich 100 - 1300 °C (Vakuumversuche).

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

Durchgeführte Arbeiten

Die kinetischen Untersuchungen der Zircaloy 4/Wasserdampf-Hochtemperatur-Oxidation wurden in angenähert isothermer und programmgesteuert temperaturtransienter Versuchsführung fortgesetzt. Diese Arbeiten wurden durch Code-Rechnungen mit SIMTRAN I begleitet.

Die vergleichenden Kurzzeitstandversuche in Argon und Wasserdampf zur Untersuchung der Oxidationskinetik unter Spannung und des mechanischen Verhaltens von innendruckbeaufschlagten Rohrkapseln wurden auf den Temperaturbereich 800 - 950 °C ausgedehnt.

Erzielte Ergebnisse

Durch vertiefte und im Umfang stark erweiterte Auswertung von Abbildungen metallographischer Querschliffe der in vorangehenden Untersuchungen angenähert isotherm oxidierten Rohrabschnitte wurden parabolische Beziehungen für das Wachstum der ZrO_2 -Schicht in Abhängigkeit von der Versuchszeit und mit der Reaktionstemperatur als Parameter aufgezeigt. In verbesserter Form wurden die parabolischen bis linearen Verläufe wiedergegeben, die die oxidative Durchdringung (Dicke der Doppelschicht: Oxid + α -Phase) mit und ohne Berücksichtigung der mittleren Tiefe der α -Einwachungen mit der Reaktionszeit und der Temperatur in Beziehung setzen.

Bei angenähert isothermen Dampfoxidationsversuchen (5 min, 1000 und 1200 °C) an in Dampf voroxidierten Zry-4-Rohrabschnitten wurde erkannt, daß die Voroxidation nur in beschränktem Maße den Gesamtumsatz, in starkem Maße aber den Störfallumsatz vermindert. Bei temperatur-transienten Tests wurde die Sauerstoffaufnahme während spezieller Blowdown-Peaks und ver-

schiedener Störfallyerläufe gemessen, zu den umhüllenden Zeit-Temperatur-Verläufen in Beziehung gesetzt und durch Code-Rechnungen angenähert.

Die in Argon bei 800 °C (32,4 - 70,8 kp/cm²) gemessenen Rohrinne-Druck-Zeitstandskurven ergänzten die bei 1000-1300 °C bereits vorgenommenen Untersuchungen für den unteren, störfallrelevanten Temperaturbereich. Die über den gesamten Temperaturbereich von 800 - 1300 °C aufgetragenen maximalen Umfangsdehnungen wies im ($\alpha+\beta$)-Umwandlungsgebiet bei 950 °C ein Dehnungsminimum auf. Die kriechdehnungsbedingte Zunahme des ausgeliterten, inneren Kapselvolumens als Funktion der Standzeit zeigte - gleichsinnig mit der maximalen Umfangsdehnung - bei 800 °C eine weitgehende Dehnungskonstanz, bei 900 °C und 950 °C einen deutlich ansteigenden Verlauf.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die zukünftigen oxidationskinetischen Untersuchungen werden isotherme Versuche bei 700 - 900 °C und störfalltypische Verläufe an voroxidiertem Hüllrohrmaterial beinhalten. Die Kurzzeitstandversuche werden auf solche in Wasserdampf bei 800 - 1300 °C ausgedehnt.

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

Durchgeführte Arbeiten

- Der Einfluß des Sauerstoffpotentials des Oxidbrennstoffes auf das Verformungs- und Bruchverhalten von kurzen Zry-4-Hüllrohren wurde weiter untersucht. Die Experimente erfolgten unter Argon bei gleichzeitiger Druck- und Temperaturmessung. Der Vorinnendruck bei Raumtemperatur variierte zwischen 1 - und 60 bar.
- Um Aufheizgeschwindigkeiten bis zu 150 °C/s realisieren zu können, wurden Versuche mit induktiver Aufheizung (Hochfrequenz) von UO₂-gefüllten Rohrproben durchgeführt. Die Temperaturdifferenz zwischen dem Hüllmaterial und dem Brennstoff wurde in Abhängigkeit der Aufheizgeschwindigkeit bestimmt.

- Die Untersuchung zur Auswahl eines geeigneten Verfahrens zur Bestimmung der Verformungsgeschwindigkeit & der Rohrproben wurden abgeschlossen.

Erzielte Ergebnisse

- Wie die bisherigen Versuchsergebnisse mit UO_2 -gefüllten Zry-Rohrproben zeigen, geht der Einfluß des Sauerstoffpotentials (O/U-Verhältnis: 2,00 bis 2,05) auf das Verformungs- und Bruchverhalten bei hohen Differenzdrücken deutlich zurück. Im Temperaturbereich zwischen 900 und 1000 °C existiert ein Minimum in den Umfangsdehnungen der Hüllrohre. Die maximalen Umfangsdehnungen bzw. Berstdehnungen hängen stark von der Verformungsgeschwindigkeit ab.
- Die Temperaturdifferenz zwischen der Brennstoffzentraltemperatur und der Hüllmaterialtemperatur hängt neben der Aufheizgeschwindigkeit stark von der Gasfüllung der Rohrproben der Versuchsatmosphäre und der Ausgangstemperatur ab. Bei Aufheizgeschwindigkeiten von etwa 150 °C und einer Ausgangstemperatur von ca. 300 °C beträgt bei 1000 °C die Temperaturdifferenz nahezu 700 °C.
- Die Bestimmung der azimuthalen Verformungsgeschwindigkeit der Hüllrohre mittels lichtoptischer Verfahren ist möglich. Die Auswertung der Filme erfolgt über einen Bildanalysator.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Weitere Untersuchungen über den Einfluß des Sauerstoffpotentials von UO_2 sowie von Jod auf das mechanische Verhalten der Zry-Hüllrohre.
- Erprobung bzw. Entwicklung eines Druckmeßverfahrens bei Temperaturen oberhalb 200 °C.
- Experimente unter gleichzeitiger Innen- und Außenkorrosion der Zry-Hüllrohre; Aufbau eines geeigneten Versuchsstandes.

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

Durchgeführte Arbeiten

Der Anlagenaufbau wurde mit Ausnahme des Teststrecken-Mittelteiles abgeschlossen, und im März wurden Inbetriebnahmeversuche aufgenommen. Nach Errichtung von zusätzlichen Schutzwänden wurde eine vorläufige Betriebserlaubnis durch die Überwachungsbehörde erteilt.

Die Teilefertigung für die benötigten druck- und temperaturfesten true-mass-flow-meter konnte zu ca. 80 % durchgeführt werden. Die γ -Dichte-Meßeinrichtung wurde montiert. Die Einrichtung zur optischen Messung der Hüllrohrtemperaturen wurde in einer Eichapparatur erprobt.

Die theoretischen Arbeiten waren auf das Auswertungsrechenprogramm konzentriert.

Erzielte Ergebnisse

Die Inbetriebnahmeversuche der Versuchsapparatur wurden vorläufig abgeschlossen. Die Kreislaufanlage konnte bisher bis 50 bar und 250 °C erprobt werden und ist voll funktionstüchtig.

Einige wichtige Teile des Auswertungsrechenprogramms konnten fertiggestellt und getestet werden. Die thermohydraulischen Interpolationsrechnungen zur Versuchsauswertung sollen mit RELAP 4 erfolgen; allerdings konnte infolge programmtechnischer Schwierigkeiten innerhalb von RELAP 4 Testrechnungen bisher noch nicht durchgeführt werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Nach der Montage des Teststrecken-Mittelteiles werden die Inbetriebnahmeversuche bis zu den vollen Betriebswerten der Anlage ausgedehnt werden. Der Beginn der Blowdown-Vorversuche ist nunmehr für das Ende des Jahres 1976 vorgesehen. Bis zu diesem Termin soll auch das Auswertungsrechenprogramm zur Verfügung stehen.

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

Durchgeführte Arbeiten

Der erste gebeulte Versuchsstab wurde im Berichtszeitraum in den Heißen Zellen nachuntersucht:

- Fotografie des gesamten Stabes, insbesondere der Beulstelle und der TE-Befestigung.
- Vermessung des Stabes (Länge, Durchmesser an mehreren Stellen, exakte Vermessung des Beulbereiches, Rißlänge und -breite)
- Röntgen des Stabes
- Metallografie (Querschliffe vom Beulbereich, vom ungebeulten Bereich sowie von 2 Wand-TE)

Im März dieses Jahres wurde der dritte Vorbestrahlungseinsatz in den FR2-Reaktor eingebracht. Sein Zielabbrand: 20.000 MWd/t_u. Die Bestrahlung der Brennstäbe verlief bei allen drei Einsätzen bis jetzt störungsfrei.

Die letzten Fehler im Datenerfassungssystem wurden Anfang dieses Jahres beseitigt, so daß das System CALAS die vollständige Protokollierung der Meßdaten während eines Versuchs übernehmen kann.

Zur Auswertung der Versuche vom Magnetband wurde ein Rechenprogramm erstellt, das einen Ausdruck und Plot der Meßdaten als Funktion der Zeit erlaubt. Die ersten Versuche sind bereits mit diesem Programm ausgewertet worden.

Eine erste Hauptserie der Thermoelemente (TE) wurde bestellt. Die Beschaffung basierte auf der Spezifikation der TE-Vorserie, die nur in einem wesentlichen Punkt geändert wurde: Statt des TE-Mantels aus Edel-

stahl W.Nr. 1,4541 wird Inconel 600 wegen der besseren Zunderbeständigkeit in Wasserdampf verwendet. Eine erste Teilmenge der TE ist angeliefert.

Zur TE-Befestigung an vorbestrahlte Prüflinge ist eine Widerstandspunkt-Schweißmaschine mit Meßgeräten beschafft worden. Die Meßgeräte zur Messung von Übergangswiderstand, Schweißleistung, Strom- und Spannungswerten sollen helfen, die optimalen Einstellungen für eine reproduzierbare Schweißung unter Heißen-Zellen-Bedingungen (fernbedient!) herauszufinden.

Nach der exakten Vermessung und Eichung der neuen Meßblende zur Messung des Dampfmengenstroms erfolgte Anfang dieses Jahres der Austausch gegen die alte Blende im Kreislauf.

Erzielte Ergebnisse

Die wesentlichen Ergebnisse aus den Nachuntersuchungen des ersten gebeulsten Stabes sind:

- bleibende Längung des Stabes 5,5 mm
- Beulenlänge ca. 60 mm
- größte Umfangszunahme an der Beulstelle 65 %
- Länge des Risses 19 mm
- max. Rißbreite 1,5 mm

Die Gesamtaufnahmen des Stabes zeigen, daß es neben der großen Beule keine weiteren Beulstellen mehr gibt.

Die Röntgenaufnahme läßt im Beulbereich zersprungene Pellets erkennen, wohingegen die Pelletsäule im ungebeulten Bereich unversehrt ist.

Aus den Querschliffen im Übergangs- wie im Maximalbereich der Beule geht hervor, daß die Aufbeulung ziemlich kreisrund ist.

Bei der TE-Fertigung gab es Schwierigkeiten beim Aufhämmern der Platinhülsen: die geforderten Abreißkräfte von mindestens 10 kp konnten nicht erreicht werden. Durch eingehende Untersuchungen der möglichen Einfluß-

größen ergab sich, daß nur die Wandstärke des TE einen Einfluß auf den Hämmervorgang hat. Die besten Ergebnisse wurden mit $s = 0,13$ bis $0,15$ mm erzielt. Es werden deshalb nur noch TE-Kabel mit dieser Wandstärke verarbeitet.

Bei der Eichung der neuen Meßblende ergab sich für die Durchflußzahl α folgendes: Obwohl der Rohrdurchmesser mit NW 10 deutlich unterhalb des Gültigkeitsbereiches von 52 mm bei Normblenden liegt, entsprach der α -Wert beim vorhandenen Öffnungsverhältnis genau dem Tabellenwert der Normblende nach DIN 1952.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Versuche mit nicht vorbestrahlten Versuchen werden weitergeführt.

Das Schwergewicht der Arbeiten liegt im 2. Halbjahr 1976 auf der Vorbereitung der Versuche mit vorbestrahlten Prüflingen. Dazu gehört insbesondere Konstruktion, Fertigung und Erprobung der Hilfseinrichtungen für die fernbediente Montage der Prüflinge in der Abschirmzelle. Die Erprobung dieser Komponenten soll sowohl kalt (außerhalb der heißen Zelle) als auch warm erfolgen.

Das Konzept für den gesamten Ablauf bis zum Versuchsbeginn soll in einer Generalprobe getestet werden.

Die radiologischen Berechnungen zum Sicherheitsbericht werden weitergeführt; sie bilden die Grundlage für die Genehmigung der Versuche mit vorbestrahlten Prüflingen.

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

Durchgeführte Arbeiten

Aus der 1.BSS-Heizstabserie wurden zwei weitere Stäbe mit unterschiedlicher Pelletbestückung (Al_2O_3 , UO_2 angereichert) in umfangreichen stationären und sechs transienten Versuchen auf ihr Versuchsverhalten getestet. Gleichzeitig wurden Untersuchungen zum Leistungsvergleich thermisch/

elektrisch durchgeführt und die Funktion der in den Versuchskreislauf neu eingebauten Meßblende für den Dampf durchsatz erprobt.

Mit einer verbesserten Instrumentierung zur Erfassung stationärer Dampftemperaturen in Prüflingshöhe wurden die thermodynamischen Verhältnisse in Stabnähe überprüft.

Die Regeleinrichtung für die Konstanthaltung der elektrischen Leistung wurde erstmals eingesetzt und unter Versuchsbedingungen getestet.

Vom IKE/Stuttgart wurden begleitende Berechnungen und insbesondere ein rechnerischer Vergleich der Aufheiz- und Abkühlcharakteristik transienter Hüllrohrtemperaturen bei unterschiedlichem Stabaufbau geliefert.

Ein Konstruktionsentwurf für eine beulfähige BSS-Ausführung wurde erarbeitet.

Erzielte Ergebnisse

Die Heizstäbe haben bei allen Versuchen störungsfrei gearbeitet. Ihr Aufbauprinzip kann bei der Auslegung der Referenzstäbe übernommen werden. Die im vergangenen Jahr gewonnenen Erfahrungen über notwendige Einstellzeiten von Reaktor, E-Heizung und Kreislauf sowie über die Instrumentierung und die Meßtechnik der Anlage haben sich erneut bestätigt. Fehlerquellen konnten weitgehend behoben werden. Schwierigkeiten dagegen macht die Bestimmung der thermischen Leistung, die trotz großer Anstrengungen noch nicht in Übereinstimmung mit der gemessenen elektrischen Leistung gebracht werden konnte.

Die Erprobung der elektrischen Leistungsregelung verlief bisher positiv.

Beim Vergleich der aufgezeichneten transienten Hüllrohrtemperaturen mit berechneten Werten liegen die berechneten Kurven durchweg oberhalb der Meßwerte. (Die Unterschiede sind qualitativ erklärbar durch die Art der Anbringung der Thermoelemente, die Effekte müssen noch quantifiziert werden.) Die relativen Kurvenverläufe sind jedoch ähnlich.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Mit Rücksicht auf die Priorität der Nuklearversuche kann im 2. Halbjahr 1976 voraussichtlich nur ein Heizstab aus der 1. Serie eingesetzt werden, der eine Beurteilung der Unterschiede gemessener und "wahrer" Hüllrohrtemperaturen ermöglichen soll. Ferner werden weitere Untersuchungen (z.B. mittels Kalorimeter) zum Leistungsvergleich thermisch/elektrisch angestellt.

Die Auswertung der BSS-Vorversuche wird weitergeführt.

Die Anfertigung eines fortgeschrittenen elektrischen Heizstab-Prototyps ist geplant.

4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase von Kühlmittelverluststörfällen und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung (K. Wiehr, IRB)

Durchgeführte Arbeiten

- Entwicklung und Erprobung der Brennstabsimulatoren
- Entwicklung und Erprobung spezieller Meßverfahren zur Erfassung des zeitabhängigen Verformungsvorgangs der Zircaloy-Hülle
- Aufbau und Funktionsprüfung des Versuchsstandes
- Aufbau und Funktionsprüfung des rechnergesteuerten Datenerfassungs- und -übertragungssystems,
- theoretische Betrachtungen und Berechnungen zum thermischen und gasdynamischen Verhalten der Brennstabsimulatoren
- Vorversuche an verkürzten Brennstabsimulatoren zur Klärung des Aufblähvorganges von Zircaloy-Hüllen.

Erzielte Ergebnisse

Erste Brennstabsimulatoren voller Länge wurden bis zu Hüllrohrtemperaturen von etwa 1000 °C erfolgreich getestet. Die meßtechnische Überprüfung des Heizstabes hinsichtlich gleichmäßiger axialer Temperaturverteilung erbrachte gute Ergebnisse. Eine experimentelle Überprüfung des Brennstabsimulators hinsichtlich Wärmedurchgang vom Heizstab zur

Zircaloy-Hülle sowie Hüllrohrtemperaturenanstieg ergab sehr gute Übereinstimmung mit den rechnerisch ermittelten Werten. Hiermit ist eine gute Simulationsqualität des Brennstabsimulators nachgewiesen.

Die Anlagen zur rechnergesteuerten Meßdatenerfassung und Meßdatenübertragung wurde im Verbund in Betrieb genommen. Meßwerte und Steuerfunktionen wurden erfaßt und übertragen, das System arbeitete hierbei zuverlässig.

Die Entwicklung des Quotientenpyrometers zur berührungslosen Messung der Hüllrohrtemperatur wurde weitgehend abgeschlossen. Die Erzielung verwertbarer Signale ab etwa 500 °C wurde bestätigt. Die Röntgenkine-matographie zur Erfassung der zeitabhängigen Dehnung der Zircaloy-Hülle hat sich bei mehreren Aufblähversuchen bewährt. Die mittels einer Filmkamera vom Röntgenbildverstärker aufgenommenen Bilder lassen den inneren Aufbau des Brennstabsimulators und das Aufblähen der Zircaloy-Hülle deutlich erkennen. Dies ist von großer Bedeutung für die Interpretation des Aufblähvorganges.

Aufblähversuche an verkürzten indirekt beheizten Brennstabsimulatoren ergaben folgende Ergebnisse:

- Bei einem Stabinnendruck von 70 bar ergeben sich Berst-Umfangsdehnungen von etwa 36 %, höhere Stabinnendrucke führen zu niedrigeren Dehnungen,
- die ermittelten Werte für Dehnungsgeschwindigkeit und Temperatur entsprechen einem normalplastischen Verhalten,
- je nach Dehnungsverlauf treten azimutale Temperaturunterschiede auf der Zircaloy-Hülle bis zu 100 K auf,
- das Bersten des Zircaloy-Hüllrohres erfolgt stets an der heißesten Stelle mit größter Verformung, d.h. Wandstärkenverschwächung,
- die Mantellinie des Rohres, auf welcher die Berststelle liegt, verläuft meist gradlinig, z.T. sogar konkav. Sie hebt sich praktisch nicht von der Wärmequelle ab,
- die gegenüberliegende kältere Stabseite zeigt ein ausgeprägtes Abheben des Zircaloy-Hüllrohres ohne Wandstärkenverschwächung,
- das Hüllrohr hebt über eine große Länge ab und führt zu keiner stark ausgeprägten, lokalen Beule.

Erste Berechnungen zur Bedeutung der inneren Gasströmung im Spalt zwischen Pellet und Zircaloy-Hülle von der Plena zum aufblähenden Bereich haben gezeigt, daß bei frischen Brennstäben nur im Falle kleiner Spaltweiten im unverformten Brennstabbereich beträchtliche Druckunterschiede zwischen Plenum und Beule auftreten. Der Einfluß der Spaltweite auf die Reynolds-Zahl und den Massenstrom erwies sich als gering. Die maximal zu erwartenden Reynolds-Zahlen liegen bei etwa 150. Daher werden auch Pellet-Strukturen keine Abweichung von der laminaren Strömung verursachen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Inbetriebnahme des Versuchsstandes
- Erprobung der Brennstabsimulatoren
- Erprobung der Meßverfahren
- Einzelstabversuche voller Länge in Dampfatosphäre
- weitere Vorversuche an verkürzten Brennstabsimulatoren
- Übernahme und Anpassung von SSYST-Moduln
- begleitende theoretische Arbeiten.

4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles
(S. Malang, IRB)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Der Probetrieb des Versuchsstandes und der Teststrecke mit fünf Stäben ohne Blockaden wurde erfolgreich abgeschlossen. Verschiedene Verbesserungen an der Leistungsregelung, dem Sicherheitssystem zur Überwachung der Kurzstäbe und der Datenerfassung wurden vorgenommen. Das Vorspannen der Stäbe mittels Gewichten von ca. 10 kg hat sich bewährt. Alle Heizstäbe waren nach 11 Flutversuchen noch gerade. Trotzdem waren die Abstandshalter im Bereich der höchsten Stableistung bleibend verformt. Die Ursache hierfür ist die große Reibung zwischen Stab und Abstandshalter in den kälteren Zonen, wodurch die Wärmedehnung behindert wurde.

Deshalb wurde beim Einbau der instrumentierten Stäbe der Anpreßdruck der Abstandshalter verkleinert.

Mit dem eigentlichen Versuchsbetrieb wurde begonnen. Nach 3 Flutversuchen sind die Abstände zwischen den Heizstäben noch gleichmäßig.

Während aller Vorversuche, dem Probetrieb und dem Versuchsbetrieb traten keine Heizstabschäden auf. Lediglich während des Probetriebes kam es durch Wasserleckage im Bereich der Stromanschlüsse zu einem Kurzschluß, wobei 3 Thermoelemente beschädigt wurden. Durch Verbesserung der Isolierung sowie des Sicherheitssystems wurde diese Fehlermöglichkeit ausgeschlossen.

An einer getrennten Vorversuchsstrecke wurde die Filmtechnik zur Erfassung der Zweiphasenströmung verbessert sowie die Auswirkungen einer Beheizung der Kastenwand untersucht. Die Ergebnisse dieser Vorversuche sind:

- Durch Beheizen der Kastenwand kann erreicht werden, daß die Benetzungsfront an der Kastenwand mit annähernd der gleichen Geschwindigkeit wie bei den Heizstäben fortschreitet.
- Durch Wahl eines geeigneten Scheibenmaterials sowie der Beheizung der Scheiben und der Kastenwände bleiben die Beobachtungsfenster bis kurz vor dem Eintreffen der Benetzungsfront trocken. Eine Absenkung der Stabtemperatur im Bereich der Scheiben kann vermieden werden.
- Eine Blitzlichteinrichtung mit einer Einzelblitzdauer von ca. 20 ns und von der Kamera gesteuerten Blitzfolge ermöglicht scharfgezeichnete Filmaufnahmen, die einer detaillierten Auswertung zugänglich sind. Dabei zeigte es sich, daß die größte Tropfenhäufigkeit unter 1 mm Durchmesser liegt.
Es wurden wenige Tropfen mit einem Durchmesser zwischen 1 und 3 mm beobachtet. Dagegen treten häufig Wasserfahnen und Tropfen mit bizzaren Formen auf.
- Durch eine vom Datenerfassungssystem gesteuerte elektronische Einrichtung, welche Lichtmarken auf dem Film anbringt, ist eine eindeutige Zuordnung der Bilder zu den aufgezeichneten Meßwerten möglich.

Ein Programm zur Reduktion der Meßdaten wurde erstellt und befindet sich in der Testphase. Zur Berechnung der Wärmeübergangszahlen aus den Meßdaten wurde ein vorhandenes Rechenprogramm (HETRAP) angepaßt. An diesem Rechenprogramm wurden verschiedene Verbesserungen vorgenommen. Unterprogramme zur Berechnung der Materialdaten für alle in Brennstäben und elektrisch beheizten Stäben verwendeten Werkstoffe wurden erstellt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Nach einer Reihe von Basisversuchen mit unblockierten Kanälen werden an 5 Stäben der Stabreihe Blockadekörper angebracht.

Zur Verringerung des Wandeinflusses wird an der Teststrecke eine externe elektrische Heizung angebracht.

Versuche mit einem 5 x 5 großen Stabbündel werden vorbereitet.

4240 Coreschmelzen von LWR

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

Durchgeführte Arbeiten

Im 1. Halbjahr 1976 wurden die Untersuchungen zum Abschmelzverhalten von LWR-Brennelementen durch Experimente an Einzelstäben mit und ohne Abstandshalter fortgesetzt. Die Stäbe ohne Abstandshalter untersuchten wir in Wasserdampf bei verschiedenen Aufheizgeschwindigkeiten. Zum Einfluß des Abstandshalters auf das Abschmelzverhalten der Brennelementstäbe haben wir Experimente in Inertgas und Wasserdampf durchgeführt.

Beim normalen Betrieb eines Druckwasserreaktors bildet sich auf den Brennstäben eine im Mittel 20 µm starke Oxidschicht(1). Ein Brennstab, der sich nach einem LOCA mit versagender Notkühlung aufheizen würde,

hätte auch beim völligen Fehlen von Wasserdampf mindestens diese Oxidschicht. Abschmelzversuche in Helium an Stäben mit Abstandshaltern, die in Wasserdampf voroxidiert wurden, sollten den Einfluß dieser Schicht klären helfen. Die Schichtdicke betrug 10 - 15 μm .

Um den Brennstab ohne zentralen W-Stab aufheizen zu können, wurde ein Einsatz für den Versuchskessel konstruiert, der es gestattet, den Stab durch Strahlung von außen zu erwärmen. Mit dem Bau dieses Einsatzes wurde begonnen.

Erzielte Ergebnisse

Die Versuche in Wasserdampf ergaben, daß die Dicke der Oxidschicht mit zunehmender Aufheizgeschwindigkeit abnimmt. Bei 0,75 $^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ oxidierte ca. 80 % und bei 3,5 $^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ knapp 40 % der Zircaloy-Hülle. Selbst die dünneren Oxidschichten sind noch in der Lage, die sich im Innern bildende Schmelze eingeschlossen zu halten, bis sich bei einer Oberflächentemperatur von ca. 1900 $^{\circ}\text{C}$ kleine Löcher bilden, durch die ein Teil der Schmelze austritt.

Die Experimente mit Abstandshalter zeigen, daß das Abschmelzverhalten der Brennelementstäbe entscheidend durch die Wechselwirkung zwischen dem Inconel des Abstandshalters und dem Zircaloy des Brennelementstabes beeinflusst wird. Der Abstandshalter bewirkt in allen Fällen ein früheres Abschmelzen des Brennstabes.

Extrem macht sich diese Erscheinung bei den Versuchen in Inertgas bemerkbar. Hier beginnt die Wechselwirkung bei ca. 1000 $^{\circ}\text{C}$. Sie führt schon bei 1250 $^{\circ}\text{C}$ zu merklichen Abschmelzerscheinungen. Bis 1750 $^{\circ}\text{C}$ ist das Hüllrohr über große Bereiche abgeschmolzen. Beim Aufheizen in Wasserdampf wird die Wechselwirkung durch die Oxidschicht wesentlich reduziert. Die erste leichte Veränderung der Oberfläche an der Berührungsstelle Abstandshalter/Hüllrohr macht sich bei 1250 $^{\circ}\text{C}$ bemerkbar. Bei 1450 $^{\circ}\text{C}$ findet man eine Verformung des Steges und bei 1550 $^{\circ}\text{C}$ eine Verformung des gesamten Abstandshalters. Der Schmelzbeginn liegt unterhalb 1700 $^{\circ}\text{C}$. Bei ca. 1800 $^{\circ}\text{C}$ ist der Abstandshalter zusammengeschmolzen. Das erstarrte Schmelzgut hat ein lockeres, bröckeliges Aussehen. Vom Hüllrohr wird nur das Stück angegriffen, das sich im Bereich des Abstandshalters be-

findet.

Die Versuche an Stäben mit Abstandshaltern, die in Wasserdampf voroxidiert wurden, zeigen, daß schon verhältnismäßig dünne Oxidschichten die Wechselwirkung Inconel/Zircaloy vermindern. Schon eine ca. 10 µm starke Oxidschicht erhöht den Beginn der Schmelzerscheinungen auf ca. 1350 °C. Bei ca. 50 µm hat der Schmelzbeginn sich bereits auf knapp 1700 °C verschoben und liegt damit im gleichen Bereich wie bei den in Wasserdampf aufgeheizten Stäben. Während bei den 10 µm starken Oxidschichten noch ein merklicher Anteil der Hülle bis zum Erreichen von 1800 °C abfließt, ist bei den 50 µm voroxidierten Stäben ein Abschmelzen der Hülle bis zu diesen Temperaturen noch nicht festzustellen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

An Einzelstäben mit und ohne Abstandshaltern wird der Einfluß der Voroxidation weiter untersucht. Um die Folgen der Dampfverknappung in verschiedenen Corebereichen zu erfassen, werden wir das Abschmelzverhalten bei unterschiedlichem Dampfangebot betrachten. Die Abhängigkeit dieser Einflüsse vom örtlichen Temperaturanstieg und von der radialen Temperaturverteilung soll geklärt werden.

In der 2. Hälfte des nächsten Halbjahres wird mit der Erprobung der Bündelanordnung begonnen:

Literatur

(1) R. Holzer, H. Knaab, KERNTECHNIK 14, Nr. 11, Seit 519 (1972).

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

Durchgeführte Arbeiten

Nach dem Abschluß der Vorversuche an der Schmelzanlage SASCHA wurde eine Reihe von insgesamt 21 Freisetzungsversuchen mit inaktivem Schmelzgut

durchgeführt, die der Beantwortung folgender Fragen dienen sollten:

a) Welche Abhängigkeit besteht zwischen der Freisetzung der Corium-Komponenten Fe, Cr, Ni, Mn, Co, Mo, Zr, Sb und U und den Parametern

- Atmosphäre (Luft, Argon, Wasserdampf)
- Temperatur (1700...3000 °C)
- Druck (1...2 bar)
- Durchsatz des Transportgases (1...10 l/min).

Die genannten Elemente treten beim Coreschmelzen als Aktivierungsprodukte auf, sie sind z.T. aber auch mit wichtigen Spaltprodukten identisch (Mo, Zr). Nach der Freisetzung bilden sie eine Wolke aus Kondensationspartikeln über der Schmelze, von deren Zusammensetzung und Dichte das physikalisch-chemische Verhalten der zusätzlich freigesetzten Spaltprodukte stark beeinflusst wird.

b) Was läßt sich über das Transport- und Ablagerungsverhalten der freigesetzten Stoffe aussagen? Wie verteilen sich diese Produkte

- auf die Wände des ≤ 400 °C heißen Glaskolbens unmittelbar über dem Schmelzetiegel
- auf die Rohrwände der ca. 1 m langen Transportstrecke
- auf die Membranfilter, die am Ende der Transportstrecke zur Sammlung aller noch gasgetragenen Partikeln installiert sind?

Die Versuche wurden mit jeweils ca. 30 g Corium-E in Tiegeln aus ThO_2 durchgeführt. In 2 Fällen war der Zircaloy-Anteil vorher durch Glühen bei 1200 °C in Luft vollständig oxidiert worden.

Die quantitative Bestimmung der Freisetzungsprodukte erfolgte aktivierungsanalytisch. Die Niederschläge an den Glasteilen des Transportsystems wurden dazu mit halbkonzentrierter, kochender Salpetersäure abgelöst, die Lösung eingedampft und nach Auftropfen auf Teflon-Filter im FR2 bestrahlt. In ähnlicher Weise wurden auch die Niederschläge auf den Membranfiltern (hier wurde Zellulose-Azetat verwendet) durch gemeinsame Bestrahlung mit den Filtern analysiert.

Erzielte Ergebnisse

Von den erwähnten 21 Freisetzungsversuchen wurden 13 unter Luft, 5 unter Wasserdampf und 3 unter Argon durchgeführt. In den meisten Fällen wurden davon bisher nur die beaufschlagten Membranfilter analysiert. Ergebnisse für die Niederschläge in den 3 Glasrohrteilen des Transportsystems liegen erst von 4 Versuchen vor. Zu den auffälligsten Beobachtungen während der Freisetzungsversuche gehörte das unterschiedliche Verhalten des Schmelzgutes unter den verschiedenen Atmosphären. Unter Luft kommt es oberhalb von 2400°C zu heftigen Oxidationsreaktionen, zum Auswurf glühender Schmelzpartikeln mit Massen bis zu ca. 1 g und zur Bildung von dichten Rauchschwaden über der Schmelze. Das Schmelzgut steigt im Tiegel hoch und bildet schlackeartige Krusten, die bis zum oberen Tiegelerand reichen. Unter Wasserdampf verläuft die Aufheizung bei geringer Flammenbildung sehr ruhig; die Tiegellinnenwand bleibt im oberen Bereich fast unbenetzt. Unter Argon neigt die Schmelze noch stärker als unter Luft dazu, im Tiegel hochzusteigen, besonders bei niedrigem Systemdruck. Die Flammentätigkeit ist lebhaft, es kommt jedoch nicht zum Verspritzen von Schmelzgut.

Als Folge dieses unterschiedlichen Verhaltens ergab sich, daß die Freisetzung der Corium-Komponenten unter Wasserdampf deutlich am niedrigsten lag. Bei Luft war sie durchschnittlich um eine Größenordnung, bei Argon mindestens um den Faktor 3 höher.

Weitere vorläufige Ergebnisse:

- a) Von wichtigem Einfluß auf die Freisetzung ist neben der Atmosphäre besonders die Temperatur. Für die meisten Elemente ergab sich, daß bei einem Temperaturanstieg der Schmelze um 500°C die Freisetzung um etwa eine Größenordnung zunimmt.
- b) Eine Abhängigkeit der Freisetzung vom Atmosphärendruck und vom Gasdurchsatz ließ sich bisher nicht ermitteln.
- c) Die ersten integralen Ergebnisse zeigen, daß bei den Versuchen unter Luftatmosphäre zwischen 1 und 3 Gew.% der eingesetzten Schmelzgutmasse freigesetzt werden, wenn die Schmelztemperatur mindestens 2700°C beträgt.
- d) Die höchsten relativen Freisetzungswerte ergaben sich für die Elemente Mn und Sn mit 5-15 %, die höchsten absoluten Werte wurden jedoch für

Fe und Zr ermittelt, da diese Elemente (neben U) die Hauptbestandteile des Coriums bilden.

- e) Die Freisetzungsergebnisse verteilen sich zu 15-30 % auf die Membranfilter, zu ca. 50-60 % auf die Glasglocke über dem Schmelztiegel und zu ca. 20 % auf die übrigen Teile des Transportsystems.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Als wichtigste Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- Fortsetzung der quantitativen Auswertung der bisherigen Freisetzungsergebnisse mit inaktivem Corium,
- Durchführung von Vorversuchen mit aktivem Schmelzgut, das aktivierten Stahl und/oder aktiviertes Zircaloy enthält,
- Installation eines Ge(Li)-Detektors direkt am Transportsystem zur kontinuierlichen Messung der freigesetzten Stoffe während des Versuches,
- Fertigstellung der Anlage zur Herstellung schwach aktiver Fission-Pellets (diese Pellets enthalten Zusätze der wichtigsten Spaltprodukt-Elemente in einer Konzentration, die einem Abbrand von ca. 40 000 MWd/t entspricht),
- Durchführung erster Freisetzungsergebnisse mit 30 g Corium-Proben, bei denen die UO_2 -Pellets durch Fission-Pellets ersetzt werden.

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

Durchgeführte Arbeiten

- a) Konstitutionsuntersuchungen:

Im Konzentrationschnitt UO_2 - α -Zr(O)-Fe wurden bei 1000, 1500 und 2000 °C experimentelle Untersuchungen zur Ermittlung der Phasenverhältnisse durchgeführt.

b) Reaktionsuntersuchungen:

Es wurden Corium-E- und Corium-A-Proben z.T. mit zugemischten Spaltprodukten bei unterschiedlichen experimentellen Bedingungen sowie vollständig oxidierte Corium-E-Proben (d.h. alle Bestandteile wurden als Oxide eingesetzt) unter Schutzgas geschmolzen. Weiterhin wurden Schmelzversuche zum Studium der chemischen Wechselwirkungen einer Coreschmelze mit aufgeschmolzenem Beton (mit Silikat-Zuschlag) unter Schutzgas durchgeführt, wobei zunächst die Zusammensetzung der Corium-Proben und das Mischungsverhältnis Corium/Beton variiert wurde.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben:

Es wurden phasenanalytische Nachuntersuchungen an LWR-Simulationsstäben durchgeführt, die an Luft bis zu 2000 °C bzw. in Wasserdampf bis zu 1900 °C aufgeheizt worden waren.

Erzielte Ergebnisse

a) Konstitutionsuntersuchungen:

Der Schnitt UO_2 - α -Zr(O)-Fe stellt ein Modell des komplexen Systems UO_2 -Stahl-Zry unter sehr schwach oxidierenden Bedingungen dar. Die wichtigsten Phasenfelder sind

- bei 1000 °C:
 - $UO_2 + ZrO_2 + \gamma Fe + Fe_3Zr$
 - $UO_2 + ZrO_2 + Fe_2Zr$
 - $UO_2 + ZrO_2 + Fe_2Zr + \eta$
 - $UO_2 + ZrO_2 + \eta + \alpha-Zr(O)$

- bei 1500 °C:
 - $UO_2 + ZrO_2 + \text{Schmelze (Fe-reich)}$
 - $UO_2 + ZrO_2 + Fe_2Zr$
 - $UO_2 + ZrO_2 + \text{Schmelze (Zr-reich)}$
 - $UO_2 + ZrO_2 + \alpha-Zr(O) + \text{Schmelze (Zr-reich)}$

- bei 2000 °C:
 - $(U,Zr)O_{2-x} + \text{Schmelze}$
 - Fe-reiche Schmelze
 - Zr-reiche Schmelze

b) Reaktionsuntersuchungen:

Abdampfverhalten und Konstitution der Schmelzen hängen empfindlich von den Versuchsparametern ab. Die Abdampfverluste von Corium-E-Schmelzen werden schon durch geringfügige Oxidation erheblich verringert. Die Verteilung der Spaltprodukte in den Schmelzen hängt stark vom O_2 -Partialdruck in der metallischen bzw. oxidischen Schmelze ab; während die Seltenen Erden nur in der Oxidschmelze und die Platinmetalle nur in der Metallschmelze nachgewiesen wurden, traten z.B. Sc, Mo und Zr (bedingt durch den hohen Zry-Gehalt der Schmelze) je nach Versuchsparametern in unterschiedlicher Verteilung in beiden Schmelzen auf.

Beim Schmelzen von vollständig oxidiertem Corium-E wurden erste flüssige Phasen ab $\sim 1400^\circ C$ beobachtet, oberhalb $\sim 1900^\circ C$ waren die Proben vollständig geschmolzen. In der erstarrten Probe wurden im wesentlichen drei Phasen analysiert, die homogen über den Probenquerschnitt verteilt sind:

- zwei (Fe, Ni)-Mischoxidphasen mit unterschiedlichen Cr-Anteilen,
- eine (U, Zr)-Mischoxidphase.

Die Schmelzversuche an (Corium+Beton)-Proben ergaben vollständiges Aufschmelzen im Temperaturbereich $\sim 1700 - 1900^\circ C$. Der Schmelzbeginn wurde bei $\sim 1300 - 1350^\circ C$ beobachtet und stimmt in etwa mit den Schmelztemperaturen von Beton überein. Die Haltezeit von max. 5 min reichte zur vollständigen Oxidation des Zry durch die Beton-Bestandteile H_2O und evtl. CO_2 aus. In allen Versuchen wurde eine Trennung in eine metallische Schmelze (Stahl) und eine oxidische Schmelze (Beton+ UO_2+ZrO_2+Fe -Oxide) beobachtet.

c) Metallkundliche Untersuchungen an Abschmelzstäben:

Die an Luft sowie auch die in Wasserdampf aufgeheizten Stäbe wiesen im Gegensatz zu den unter inerten Bedingungen aufgeheizten Stäbe bis zu den Maximaltemperaturen (2000 bzw. $1900^\circ C$) eine formstabile Hülle auf. Im Vergleich zu den an Luft aufgeheizten Stäben zeigen die unter Wasserdampf aufgeheizten Stäbe eine scharfe Trennung der Komponenten Hülle und Brennstoff. Das ist auf die Abwesenheit von Schmelzen an der Kontaktstelle Hülle/Brennstoff zurückzuführen. Eine Mischkristallbildung UO_2-ZrO_2 wurde unter den Bedingungen ($1900^\circ C$, Wasserdampf, 1 h) nicht beobachtet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- a) Konstitutionsuntersuchungen im sauerstoffreichen Teil des Systems U-Zr-Fe-O und im Schnitt ($U_{0,55}Zr_{0,45}$)-Stahl (1.4550)-Sauerstoff des komplexen Systems.
- b) Weitere Untersuchungen zur Spaltprodukt-Verteilung in den Schmelzen, zum Abdampfverhalten und zur chemischen Wechselwirkung der Coreschmelze mit Beton.
- c) Phasenanalytische Nachuntersuchungen an Stäben, die isotherm im Temperaturbereich 1800 - 2400 °C in Wasserdampf aufgeheizt werden, sowie an Stabbündeln.

4245 Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen,
 Herstellung von Corium-Proben (RS 200)
 (S. Nazaré, G. Ondracek, B. Schulz, IMF I)

Durchgeführte Arbeiten

- a) Herstellung von Corium EX1-Proben zur Messung der thermischen Ausdehnung und der Wärmeleitfähigkeit im festen Zustand
- b) Herstellung der in Corium-EX1 (erstarrter Zustand) vorhandenen Phasen
- c) Messung der thermischen Ausdehnung und der Wärmeleitfähigkeit an Corium-EX1

Erzielte Ergebnisse

Zu a)

Ausgehend von den Materialien Zircaloy 4, UO_2 und Stahl (1.4550) wurde in ThO_2 -Tiegeln unter Schutzgas (400 Torr Argon) in einer Mittelfrequenzinduktions-Schmelzanlage geschmolzen. Diese für Corium-EX1 typische Mikrostruktur weist drei verschiedene Phasen auf:

- Eine Fe-Cr-Ni-Phase ($\sim 71,4$ Gew.% Fe, 24,5 Gew.% Cr, 4,1 Gew.% Ni)
- Eine U-Zr-Fe-Cr-Ni-Phase ($\sim 35,5$ Gew.% U, 15 Gew.% Zr, 32 Gew.% Fe, 3,5 Gew.% Cr, 14 Gew.% Ni). Sie ist eine Lavesphase des Typs $MgCu_2$ (C15) mit dem Gitterparameter $6,998 \pm 0,005 \text{ \AA}$.

- Eine Zr-O-Phase (93 Gew.% Zr, 7 Gew.% O₂).

Das Schmelzgut wurde in einer Scheibenschwingmühle zerkleinert (Partikelgröße < 90 µm) und anschließend in Graphitmatrizen mit Al₂O₃ als Diffusionsbarriere druckgesintert (1275 K, 400 Torr He, Sinterdauer 10 min., Druck 35 MN/m²). Dabei wurde unter diesen Bedingungen praktisch die theoretische Dichte (8,3 g/cm³) erreicht.

Die chemische Analyse des Schmelzgutes nach der Zerkleinerung sowie die Anteile der Phasen nach der Verdichtung zeigt Tab. 1:

Elemente (Gew.%)				Phasen (Vol.%)			
Fe	52,35	U	18,3	C	0,2	Fe-Cr-Ni	60
Cr	13,45	Zr	4,4	Th	1,95	U-Zr-Fe-Cr-Ni	37
Ni	7,0	O	0,56			Zr-O	3

Tab. 1: Chemische Analyse der zerkleinerten Schmelze und Phasenanteile nach der Verdichtung in Corium-EX1

Zu b)

Die in Corium-EX1 auftretenden Fe-Cr-Ni- und U-Zr-Fe-Cr-Ni-Phasen wurden schmelzmetallurgisch hergestellt. Während die Fe-Cr-Ni-Phase in reiner Form dargestellt werden konnte, enthält die Lavesphase noch etwa 9 Vol.% einer zweiten Phase, die ebenfalls aus Fe-Cr-Ni besteht. Bei der Lavesphase war es notwendig, das Schmelzgut durch Zerkleinerung und anschließendes Drucksintern in geeignete Formkörper zu überführen.

Zu c)

Die thermische Ausdehnung von festem Corium-EX1 wurde bis 1175 K gemessen. Sie ist in diesem Temperaturbereich nahezu linear mit einem mittleren linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von $15,6 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$.

Die Wärmeleitfähigkeit von Corium-EX1 wurde bis 1200 K gemessen. Die auf den Schmelzpunkt von Corium-EX1 ($T_S = 2125 \text{ K}$) extrapolierte Kurve ergibt, den Sprung der Wärmeleitfähigkeit beim Übergang vom festen in den flüssigen Zustand mitberücksichtigt, eine Wärmeleitfähigkeit von 0,15 W/cm K für flüssiges Corium-EX1.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Herstellung von Corium-EX3-Proben für Eigenschaftsmessungen. Messung der Wärmeleitfähigkeit von Corium-EX1 für Temperaturen > 1200 K. Messungen der Eigenschaften (therm. Ausdehnung, Wärmeleitfähigkeit) an den in Corium-EX1 vorhandenen Phasen.

4246 Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen
(Durchführbarkeitsstudie)
(D. Perinic, RBT)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Anfang 1976 wurde die Zielsetzung dieses Teilvorhabens festgelegt. Es soll eine Studie erstellt werden zur Durchführbarkeit von Experimenten mit simulierten großen Kernschmelzen. Die Experimente haben folgende Zielsetzung:

- Untersuchung des wechselseitigen Einflusses der Thermohydraulik und des Reaktionsverhaltens sowie deren Einfluß auf die Aktivitätsfreisetzung.
- Untersuchung des Einflusses der Schmelzbadtiefen und der Schmelzbadbewegung auf die Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten.
- Untersuchung über das Fortschreiten der Schmelzfront.
- Untersuchung über die Schichten- und Krustenbildung sowie das Siede- und Abdampfverhalten der Schmelze.
- Untersuchung der Phasen und Phasenverteilung der Schmelze sowie Verteilung der Spalt- und Aktivierungsprodukte in der Schmelze.
- Untersuchung über das Oxidationsverhalten der Schmelze durch die Atmosphäre an der Oberfläche und durch die aus dem Beton freigesetzten Gase im Innern der Schmelze.

- Untersuchung zum Langzeitverhalten und zur Kühlbarkeit von Kernschmelzen in Beton oder in Kernauffangbehältern.
- Untersuchung über Entstehen, Ausbreitungs- und Ablagerungsverhalten von aus einer Kernschmelze freigesetzten Aerosolen.
- Untersuchung über Entstehung einer Kernschmelze mit verschiedenen Wandmaterialien.

Zur Erreichung der Versuchsziele wird eine Schmelzanlage benötigt, mit deren Hilfe volumenbeheizte CORIUM-Schmelzen bei Siedetemperaturen des Stahls ($\approx 2800\text{ }^{\circ}\text{C}$) in Tiegeln aus Beton bzw. aus hochtemperaturbeständigen Materialien (ThO_2) unter LWR-spezifischen Unfallbedingungen gehalten werden können. Es soll untersucht werden, ob Durchführung von Schmelzexperimenten an der gleichen Anlage unter spezifischen Unfallbedingungen von schnellen Brutreaktoren möglich ist.

Ein ausführliches Arbeitsprogramm wurde abgefaßt, das die erforderlichen Arbeiten spezifiziert und die bearbeitenden Stellen sowie die Termine vorgibt.

Das zentrale Problem stellt die Simulierung der Beheizung einer Kernschmelze dar. Es wurden die bekannten Heizverfahren (Lichtbogen, Widerstandsheizung, Induktion, direkter Stromdurchgang, Plasmastrahl, Elektronenstrahl, Laser, Sonne) auf Anwendbarkeit untersucht. Es zeigte sich, daß für die Experimente zur Aktivitätsfreisetzung, zur Oxidation der Schmelzbadoberfläche, zur Krustenbildung, zu Siede- und Verdampfungsvorgängen nur diejenigen Verfahren in Frage kommen, die natürliche Temperaturgradienten der Oberfläche nicht stören. Diese sind die Induktionsheizung und die Heizung durch direkten Stromdurchgang.

Die begleitenden Schmelzversuche an einem vorhandenen Induktionsofen mit CORIUM-Massen bis 500 g in Betontiegeln zeigten, daß es zu einer raschen Separation der Metall- und Oxidphase der Schmelze kommt. Die Oxidphase schwimmt dabei oberhalb der Metallphase.

Die Behizung einer großen Zweiphasenschmelze ist mit direkter Induktionsankoppelung möglich, allerdings muß nach einer technischen Lösung zur besseren Simulation der Wärmequellenverteilung in der Schmelze gesucht werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Arbeiten konzentrieren sich auf die im Arbeitsprogramm vorgezeichneten Aufgaben. Das sind im einzelnen:

- Spezifikation der Experimentierprogramme durch die beteiligten Institute und Abteilungen
- Auswahl und Untersuchung über Schmelzverfahren
- Spezifikation des Schmelzgutes
- Entwicklung von Schmelzriegeln
- Auswahl und Entwicklung der Meßtechnik
- Experimentiereinrichtungen
- Begleitende Rechenmodelle zur Schmelzbadbewegung, Schmelzfrontausbreitung, Oxidationsverhalten und Aktivitätsfreisetzung
- Versuchshalle mit Nebenanlagen
- Genehmigungsverfahren
- Informationsaustausch

Bis Ende 1976 sollen die Experimentierprogramme spezifiziert sein und die Entscheidung über das Heizverfahren getroffen werden. Die Durchführbarkeitsstudie soll in der endgültigen Fassung Ende 1977 vorliegen.

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHAD-
STOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

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

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

Durchgeführte Arbeiten

Mit der Version Mod 1-A des NAUA-Codes wurde eine Parameterstudie durchgerechnet, um unter den Einflußparametern und Modellannahmen jene zu identifizieren, deren Relevanz eine vorrangige experimentelle Untersuchung erfordert. Den Rechnungen wurden soweit wie möglich realistische Daten zugrundegelegt, die der Rasmussen-Studie und eigenen früheren Arbeiten entnommen wurden.

Zur Konstruktion des Versuchsstandes wurden mit der vorgesehenen Lieferfirma detaillierte Verhandlungen geführt. Ein Angebot ist ausgearbeitet. Die Bestellungen der größeren Komponenten für die Meßtechnik sind erteilt, einige Geräte wurden bereits geliefert.

Erzielte Ergebnisse

Die Parameterrechnungen (Sensitivity-Studie) erwiesen sich als nützlicher Test für das NAUA-Modell. Eine Abänderung des numerischen Konzepts der Koagulationsberechnung war notwendig, um die Fälle mit Containmentspray-system berechnen zu können. Die so erzeugte Version Mod 1-A wurde für alle Langzeitrechnungen der Sensitivity-Studie verwendet.

Die Berechnungen zur heterogenen Wasserdampfkondensation ergaben eine sehr starke Abhängigkeit von der Kondensationsgeschwindigkeit, die insbesondere eine Funktion der Aerosoleigenschaften Anzahl, Größe, Form und Material ist. Die Bestimmung der Kondensationsgeschwindigkeit ist ein wichtiger Bestandteil des experimentellen Programms, ebenso wie die Messung der Aufteilungsfaktoren für Kondensation an Wänden,

am Aerosol und an Spraytropfen. Diese Messungen werden noch dringender durch die Ergebnisse der Rechnungen mit Spray, bei denen sich ein erheblich schnellerer Aerosolabbau als im Fall ohne Spray ergab. Diese Ergebnisse bedürfen jedoch noch der experimentellen Absicherung, da gerade die Wirkung des Spraysystems auf das Aerosol im Modell nur mit Hilfe zahlreicher Annahmen über physikalische Einzelprozesse berechnet werden kann.

Die Konstruktion des Versuchsstandes ist soweit fortgeschritten, daß die Bestellung erfolgen kann. Zur Zeit wird noch geprüft, ob die Auslegungsdaten Druck und Temperatur bei den höchsten Spitzenwerten der Blowdownrechnungen angesetzt werden sollten oder ob es ausreicht, die Experimente bei 130 °C zu beginnen. Unabhängig davon sind die Größe und die Komponenten des Versuchsstandes festgelegt, um einerseits physikalische Einzelprozesse isoliert zu messen und andererseits integrale Langzeitabläufe zu untersuchen.

Die Probleme hinsichtlich der Messung verschiedener Aerosol- und Dampfeigenschaften sind gelöst, die entsprechende Instrumentierung wurde entworfen und in Auftrag gegeben.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

In der Zeit zwischen Bestellung und Lieferung des Versuchsstandes werden die ersten experimentellen Serien zur Untersuchung der Wasserdampfkondensation vorausberechnet und der Aufbau der Meßsysteme durchgeführt. Nach Lieferung und Inbetriebnahme des Versuchsstandes werden die Experimente der ersten Phase des Versuchsprogramms (Untersuchung von Einzelprozessen zur Absicherung der Modellannahmen) begonnen.

4312 Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole und der wahrscheinlichkeitsbewerteten Strahlendosen in der Umgebung nuklearer Anlagen nach Störfällen

(H. Dilger, W. Hübschmann, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, ASS)

Durchgeführte Arbeiten

Für den Nahbereich (bis ca. 15 km) wurden 3 Ausbreitungsversuche mit

chemischen Tracern durchgeführt. Die Tracer wurden in 60 m und 100 m Höhe am meteorologischen Turm emittiert; bei den letzten beiden Versuchen wurden sie gleichzeitig in beiden Höhen abgegeben. Bei allen drei Versuchen wurden ausschließlich automatische Probesammler eingesetzt. Die letzten vier Versuche waren nächtliche Versuche bei stabiler Luftschichtung.

Im Rahmen der Untersuchungen im Bereich über 10 km Entfernung wurde eine Füllstation für Tetroons (gewogene freifliegende Ballone) eingerichtet. Erste Versuche mit solchen Tetroons dienten der Vorbereitung eines radarverfolgten Tetroonfluges.

Erzielte Ergebnisse

Die Auswertung der Ausbreitungsversuche mit 60 m Emissionshöhe ergänzt das noch zu geringe Datenmaterial der Ausbreitungsparameter für diesen Emissionshöhenbereich. Weitere Experimente sind notwendig, um eine σ_z -Parameterschar für die Emissionshöhe 60 m mit statistisch gesicherter Basis angeben zu können. Die Ergebnisse der Versuche mit 100 m Emissionshöhe wurden dagegen in einer umfangreichen Dokumentation veröffentlicht (KFK 2285 und 2286).

Durch Analyse der meteorologischen Messungen wurden diejenigen Situationen aussortiert, auf welche das übliche Ausbreitungsmodell (Gauß-Verteilung) nicht anwendbar ist: Windrichtungsscherung, Turbulenzschichtung, Niederschlag, Nebel, schwache Windgeschwindigkeit. Die weitere Analyse dieser Situationen dient der Entwicklung realistischer Ausbreitungsmodelle.

Die "final version" der Reactor Safety Study WASH 1400 ("Rasmussen-Studie") wurde hinsichtlich des Modells atmosphärischer Ausbreitung und gesundheitlicher Schäden analysiert. Im Rechencode, welcher in Anlehnung an die "draft version" entwickelt wurde, wurde ein realistisches Modell des thermischen Aufstiegs der radioaktiven Wolke, ein verbessertes Modell der Berechnung gesundheitlicher Schäden und der Strahlung der abgelagerten Aktivität aufgenommen. Vergleichsrechnungen zeigen den Einfluß der verschiedenen Belastungspfade, insbesondere den starken Einfluß der abgelagerten Aktivität.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Ausbreitungsversuche werden fortgeführt. Der Schwerpunkt dieser Versuche wird im 2. Halbjahr 1976 bei stabilen Wetterlagen liegen, um die Ausbreitungsparameter $\sigma_y(x)$ und $\sigma_z(x)$ im stabilen Bereich zu vervollständigen.

Für die Untersuchung des Ausbreitungsverhaltens über größere Entfernungen (d.h. 10 - 100 km) werden Tetroon-Experimente vorbereitet, welche gemeinsam mit dem CEA und dessen Tracerexperimenten im Rhonetal durchgeführt werden sollen. Dazu muß noch ein Verfahren entwickelt werden, welches es erlaubt, die Tetroons über so große Entfernungen mit Radar zu verfolgen. Vor Einsatz im Rhonetal werden "Pfadfinderexperimente" in der Karlsruher Gegend durchgeführt.

4312-TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen
(C.D. Wüneke, E. Voelz, H. Schultz, Arbeitsgr. f. Technischen Strahlenschutz der TU Hannover)

Durchgeführte Arbeiten

Das particle-in-cell-Programm XPIC zur Berechnung der atmosphärischen Ausbreitung chemischer und radioaktiver Schadstoffe wurde um zusätzliche Programmteile erweitert, die das vertikale Windprofil, die Randbedingungen an der Erdoberfläche und innerhalb der Atmosphäre und die vertikale Verteilung der turbulenten Diffusionskoeffizienten berücksichtigen. Außerdem wurden Vorschriften zur Optimierung der Zelldimensionen und Zeitschritte im Programm entwickelt.

Für Punktquellen in einer neutral geschichteten Atmosphäre wurden die Diffusions-Koeffizienten K auf vier verschiedene Weisen abgeleitet. Diese beruhen auf der statistischen Theorie, auf Blackadar's Mischungslängenhypothese, auf Wippermann's vollständiger numerischer Lösung der Navier-Stokes'schen Gleichungen und auf deren Lösung mit einfacheren Annahmen.

Erzielte Ergebnisse

Vergleichsrechnungen zum Gauß'schen Wolkenmodell mit Vernachlässigung der Advektion bewiesen, daß der Diffusionsprozeß innerhalb der Wolke und am Rand korrekt wiedergegeben wird.

Bei Anwendung der nach den vier Methoden bestimmten K-Werte findet man die beste Übereinstimmung mit dem Gauß-Modell erwartungsgemäß bei der statistischen Theorie, bisher scheinen die anderen Methoden zu größeren oder kleineren Verdünnungen zu führen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Das Programm soll so erweitert werden, daß Zeitintegrale der Konzentration radioaktiver Stoffe und komplexe Topographien berechnet werden können. Außerdem soll die Eignung des Programms zur Berechnung der Schadstoffausbreitung bei mehreren Punktquellen studiert werden.

Bei den Lösungen der Navier-Stokes'schen Gleichung und der Mischungslängenhypothese soll der Einfluß der zugrunde gelegten meteorologischen Parameter und die Übertragung auf nicht neutrale Diffusionfälle untersucht werden.

Das Fernziel bleibt die Einbeziehung chemischer Reaktionen und die Entwicklung eines weiteren Programms zur Bestimmung der Windfelddaten aus meteorologischen Beobachtungen.

4330 Untersuchungen der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen
 unter probabilistischen Gesichtspunkten
 (A. Bayer, M. Schückler, INR)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Es wurden die Modelle zur Berechnung der Schäden nach Reaktorunfällen in der Entwurfsfassung und der endgültigen Fassung der Rasmussen-Studie analysiert und einander gegenübergestellt. Außerdem wurden verschiedene Möglichkeiten der Darstellung von Schaden und Risiko erarbeitet und zusammengestellt. Daran schloß sich eine Studie der Möglichkeiten einer schadens- und risikospezifischen Standortbewertung

für Kernkraftwerke an.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Es werden die für die deutsche Risikostudie benötigten Bevölkerungsdaten zusammengestellt. Die Dosisfaktoren kurzlebiger Spaltprodukte, wie sie im Störfall zu erwarten sind, werden überarbeitet und zusammengestellt. Es werden Vorüberlegungen für Fehlerbetrachtungen und Sensitivity-Studien angestellt.

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 flußsäurebeständigen, hochdispersen Barytmaterialien mit oberflächenspannungsreduzierten Säuregemischen (Flußsäure, Salpetersäure und teilweise Salzsäure) wurden Pasten hergestellt und deren Dekontaminationswirkung an im Autoklaven kontaminierten austenitischen Stahlproben (1.4541) geprüft.

Erzielte Ergebnisse

Barytmaterialien enthaltende Pasten ergaben an im Autoklaven kontaminierten Edelstahlproben bei Verwendung gleicher Säuremischungen regelmäßig erheblich bessere Dekontaminationswerte als Pasten auf Basis Polyäthylen-Titandioxid-Mischungen (siehe PNS 2. Halbjahresbericht 1975, KFK 2262).

Die Dekontamination von zerkleinerten Anlagenteilen aus zwei Kernkraftwerken verlief ähnlich, wobei die Wirkung um so besser je höher der Salzsäuregehalt der Paste war.

Gleichwertige Resultate wurden mit salzsäurefreien Pasten im Gegensatz zu salzsäurehaltigen Pasten erst nach mehr als der doppelten Einwirkzeit erreicht.

Aufgrund der Reduzierung der Säurekonzentrationen in den Barytmaterialien enthaltenen Pasten konnten im Gegensatz zu den Polyäthylen-Titandioxid enthaltenden Pasten der Oberflächenangriff auf den zu dekontaminierenden Werkstoff und der Abfall an radioaktiven Abfall herabgesetzt werden.

Dadurch, daß kein Polyäthylenpulver mehr in der Paste ist, konnte die thermische Stabilität der Paste verbessert und die Schwierigkeit bei der Weiterbeförderung und Aufarbeitung des radioaktiven Abwassers beseitigt werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Entwicklung der bereits lizenzierten Dekontaminationspaste ist damit abgeschlossen.

Die Entwicklung einer optimalen, maschinellen Auftragstechnik ist gemeinsam mit der Fa. Kraftanlagen Heidelberg AG aufgenommen worden.

2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschnmelzen

Durchgeführte Arbeiten

Mit der früher beschriebenen Laborapparatur zur Dekontamination von Oberflächen mit geschmolzenen Salzen wurden Versuche mit Kaliumdihydrogenphosphat an kontaminierten Edelstahlproben durchgeführt, die aus den Kernkraftwerken Obrigheim bzw. Lingen stammten. Dabei wurde auch die tatsächliche Aktivitätsabnahme bei der Dekontamination bestimmt. Weiterhin kam als Dekontaminationsmittel geschmolzenes Natriumperoxid zur Anwendung.

Nach den Laborexperimenten wurde eine Empfehlung für den Bau einer Dekontaminationsanlage für den praktischen Einsatz ausgearbeitet.

Erzielte Ergebnisse

Auf den Proben aus KWO und KWL wurden nur ^{60}Co als γ -strahlendes Nuklid nachgewiesen. Die Oberflächenaktivität betrug vor der Dekontamination 0.5 bis 1.5 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ je nach Art der Probe. Bei der Dekontamination konnten Restaktivitäten von ca. 5 % (KWO) bzw. 1 % (KWL) erzielt werden. Die dazu erforderlichen Einwirkzeiten waren ca. 2 Stunden (KWO) und 1 Stunde (KWL). Sie liegen also bedeutend höher als die Einwirkzeiten für die Dekontamination von Proben, die im Autoklaven kontaminiert wurden (s. PNS 2. Halbjahresbericht 1975,

KFK 2262). Mit Natriumperoxid als Dekontaminationsmittel konnten an den KWL-Proben die gleichen Ergebnisse wie mit Kaliumdihydrogenphosphat erreicht werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Laborversuche zur Dekontamination mit Salzschnmelzen sind abgeschlossen. Mit der Entwicklung und Beschaffung einer Dekontaminationsanlage für den technischen Einsatz wurde die Fa. Kraftanlagen Heidelberg AG betraut. Eventuell notwendige Versuche werden bei ABRA durchgeführt.

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

Geowissenschaftliche Aspekte der Wechselwirkung zwischen Transuranen und Umwelt

Durchgeführte Arbeiten

Für den späteren Vergleich mit Labordaten wurde mit der Bestimmung der Verteilung des Fallout-Plutoniums im Boden begonnen. Als erstes mußten geeignete Stellen zur Entnahme von Bodenproben gefunden werden. Diese Aufgabe war dadurch erschwert, daß an die Standorte spezifische Anforderungen gestellt waren.

Auf der Probeentnahmestelle wurde die Vegetation (Gras) auf 2-3 cm abgeschnitten und ein länglicher Schacht (L: 90 cm, B: 60 cm, T: 60cm) ausgegraben. Eine Wand des Schachts wurde vertikal zur Oberfläche geglättet. Von dieser Stelle aus wurden dann 2 cm dicke Schichten abgetragen. Im Labor wurden die Proben getrocknet und nach den Regeln der Probenvorbereitung aufbereitet. Bei den einzelnen Prozeduren war äußerste Sorgfalt notwendig, damit es durch Memory-Effekte zu keiner Kontaminationsverschleppung und durch Aerosolbildung zu keiner zusätzlichen Querkontamination der low-level-Proben kommen konnte. Die Proben konnten schließlich zur Analyse weitergeleitet werden.

Erzielte Ergebnisse

Die Auswertung der Unterlagen und die Besichtigung der Standorte erbrachte zehn geeignete Entnahmestellen zur Fall-out-Plutonium-Bestimmung. Für die Probeentnahme wurde ein Standort mit Bodenverhältnissen ausgewählt, in denen man hinsichtlich der Aktivitätsverschleppung relativ gefahrlos arbeiten konnte. Dabei wurden die Proben so entnommen, daß das Gewicht und die Schichtdicke des Bodenmaterials direkt in Beziehung zur Tiefe gesetzt werden konnte. Jede Probe repräsentierte eine Fläche von 15 x 15 cm und enthielt ca. 3kg Boden. Vorläufige Messungen der ersten Proben zeigen eine Pu-239, 240-Konzentration von:

Tiefe im Profil in cm	Pu-239, 240-Konzentration in Zpm/g
0 - 2	0,029 ± 0,002
2 - 4	0,024 ± 0,001
4 - 6	0,011 ± 0,001
6 - 8	0,007 ± 0,001

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Die Feldarbeiten werden fortgesetzt, bis reproduzierbare Angaben zur Verteilung des Fallout-Plutoniums zur Verfügung stehen. Dabei ist geplant verschiedene Bodensorten zu entnehmen, um einen Vergleich der unterschiedlichen Verteilungsprofile vornehmen zu können. Mit diesen Daten wird dann die mittlere Verweilzeit von PuO₂ in den definierten Bodenschichten berechnet.

Für die Laborarbeiten ist eine Handschuhboxenlinie im Aufbau. Die Inbetriebnahme ist für den Herbst 1976 geplant.

- 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

Für die Planung der Konditionierung von Reaktorgroßkomponenten werden folgende Teilgebiete bearbeitet:

- Untersuchung der Ausbaumöglichkeiten von Reaktor-Großkomponenten aus dem Reaktorgebäude
- Ergänzung und Vervollständigung der Pläne von Konditionierungsanlagen,
- Untersuchung der thermischen Trennverfahren für die Anwendung in kerntechnischen Anlagen insbesondere bei größeren Materialdicken,
- Auswahl von mechanischen Trennwerkzeugen für heiße Zerlegezellen.

Erzielte Ergebnisse

Es wurden die Ausbaumöglichkeiten von Großkomponenten aus modernen großen DWR und SWR unter Berücksichtigung der besonderen Probleme, die sich durch Aktivierung und Kontamination der Komponenten ergeben, untersucht.

Verschiedene Möglichkeiten von Transport und Verladung von Großkomponenten, sowie deren Einschleusung in die Konditionierungsanlage und die Auflagerung in der heißen Zerlegezelle wurden bearbeitet und Vor- und Nachteile einzelner Varianten diskutiert.

Durch Eintragen aller notwendigen Nebenräume wurden die Entwürfe der Konditionierungsanlagen vervollständigt.

Für die Komponenten-Konditionierung am KKW vor Ort wurden Untersuchungen für den jeweils günstigsten Standort einer Konditionierungsanlage durchgeführt.

Zwei der verschiedenen thermischen Trennverfahren, das autogene Brennschneiden und das Plasmaschmelzschneiden, die beide für den Einsatz bei der Zerlegung von Reaktorkomponenten gut geeignet sind, wurden näher überprüft und insbesondere die Möglichkeiten und Anwendungsgrenzen speziell beim Schneiden von Komponenten großer Wanddicken untersucht.

Von mechanischen Trennwerkzeugen wurden einige ausgewählt, die sich besonders für den Einsatz in einer heißen Zerlegezelle eignen.

Die Ergebnisse der durchgeführten Untersuchungen sind in einem internen Arbeitsbericht zusammengefaßt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Im kommenden Halbjahr wird eine Gesamtanalyse sicherer Stilllegung und Endbeseitigung von KKW durchgeführt, um eine kritische Zusammenfassung aller Ergebnisse zu erhalten, die auf diesem Gebiet im In- und Ausland bisher erzielt worden sind. Außerdem sollen in der Analyse die noch offenen Probleme bei der Stilllegung und Endbeseitigung als Grundlage und zur Zieldefinierung noch durchzuführender F+E-Arbeiten, herausgestellt werden.

4500 SICHERHEITSTECHNISCHE BEURTEILUNG KERntechnischer ANLAGEN

4530 Risiken und Zuverlässigkeit von Kernkraftwerken
(L. Caldarola, IRE)

Zielsetzung

- Erstellung eines analytischen Rechenprogramms zur Auswertung von Fehlerbäumen
- Erstellung eines Rechenprogrammes zum automatischen Bau von Fehlerbäumen.

Durchgeführte Arbeiten

- Beginn der Erweiterung des bestehenden Rechenprogramms zur Auswertung von Fehlerbäumen:
 - (a) Aufnahme der abhängigen Komponenten
 - (b) Aufnahme der Komponenten deren Ausfall nur bei Anforderung erkannt wird
 - (c) Möglichkeit Mehrphasen-Analyse durchzuführen.

Erzielte Ergebnisse

- Punkte "a" und "b" der durchgeführten Arbeiten sind im Programm eingebaut aber noch nicht völlig getestet.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Fertigstellung der begonnenen Arbeiten des Rechenprogramms zur Auswertung von Fehlerbäumen,
- Überlegungen zur Anwendung der Theorie der "Prime Implicants" auf das Rechenprogramm,
- vorbereitende Arbeiten zur Erstellung des Rechenprogramms zum automatischen Bau von Fehlerbäumen werden aufgenommen, sobald die Voraussetzungen dafür geschaffen sind.

S U M M A R I E S

4100 ENVIRONMENTAL IMPACT OF NUCLEAR POWER STATIONS AND REPROCESSING PLANTS

4110 Fission Product Iodine Removal in Nuclear Power Plants and Reprocessing Plants
(H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer, R. Kaempffer, H. Pasler, A. Weinert, J.G.Wilhelm, LAF II; K. Jannakos, G. Potgeter, RBT)

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

Work Completed and Essential Results

On the basis of the theoretical results obtained with respect to the radiation exposure and the temperature development in a post-accident filter under failed blower conditions the material studies were carried on in the direction of higher temperatures and longer periods of use. At temperatures of approx. 300 °C and periods of use of approx. 100 hours a decrease of the removal efficiency of AC 6120 was found. However, under the same experimental conditions molecular sieves of the silver type resulted in removal efficiencies of > 99,9 % at residence times of 0,4 s. Theoretical calculations were made of the radiation exposure of sorption materials in post-accident filters to determine the dose rate and the total dose at a given geometry as a function of the iodine release and the volume flow through the filter. Dose rates were found to range up to approx. 10^9 rad/h and total doses up to 10^{11} rad. For this reason, future irradiation experiments will be concerned with studies of the sorption materials at radiation doses of > 10^9 rad.

Plans for the Near Future

Future activities will relate primarily to the other components of post-accident recirculation air filters.

At the end of the period under review, a drop separator was supplied which has a high removal efficiency also with respect to small droplets.

It will be examined in the following period under review.

As far as aerosol filters are concerned, there is a study going on of a technically feasible scheme of aerosol generation under increased pressure and at elevated temperature with the purpose of drafting the design documents of this type of generator for experiments in a test bed.

4112 Development of Exhaust Air filters for Reprocessing Plants

Work Completed

(1) The examination of test beds consisting of the highly impregnated AC 6120/H₁ iodine sorption material in the dissolver off-gases of SAP Marcoule was concluded. A total of eight iodine removal tests were carried out in the dissolver off-gas upstream and downstream of the NO₂ adsorption column.

(2) In cooperation with WAK, the removal efficiency of the WAK plant iodine filter in the dissolver off-gas train, which is equipped with AC 6120, was traced up to a final loading of a level corresponding to 60 % of the theoretical loading capacity.

(2) A filter section for the removal of aerosols and iodine including the sampling device was completed for the head end dissolver test rig of the IHCH. The iodine filter was designed and built by RBT/IT.

(4) The RI flowsheet was elaborated for the PASSAT off-gas filter system which is a prototype for the GWA plant. The remotely operated iodine sorption filter was designed in cooperation with RBT/IT and built by that department. Construction has been started.

Studies concerned with sealing of the filter components were carried out on a test rig set up by RBT/IT.

(5) 13 X Ag type zeolites were included in the measurements concerned with the utilization of silver in inorganic iodine sorption materials for iodine removal under dissolver off-gas conditions.

Essential Results

Ad (1). The higher concentrations of nitric oxides encountered when using an iodine sorption filter upstream of the NO₂ adsorption column can be safely controlled by the AC 6120/H₁ sorption material. Hence, as far as the iodine sorption part of the filter is concerned, there are no objections against iodine removal from the off-gas upstream of the adsorption column, which would return some of the gaseous fission product iodine into the liquid phase.

Ad (2). The plant iodine filter in the WAK plant showed a decontamination factor of 10⁴ after a conversion into iodine compounds of some 60 % of the silver contained in the impregnation.

Ad (4). According to the test results the planned iodine filter will meet the leak tightness criteria.

Ad (5). Laboratory studies of the utilization of the silver content of inorganic iodine sorption materials showed a conversion of 37 % for type 13 X Ag zeolites, while 95 % was attained by AC 6120/H₁ under the same conditions.

Plans for the Near Future

The best beds exposed at SAP Marcoule are examined analytically for the utilization of the silver impregnation. The dissolver and vessel off-gases of WAK are examined for organic iodine compounds. Tests of iodine sorption materials in these off-gases are continued.

The reliability of the remotely controlled replacement of filters will be tested in the RBT/IT test rig. The filter drum together with the filter housing will be subjected to prolonged test operation.

- 4114 Exhaust Air Filtration in Reactors.
Aging and Poisoning of Iodine Sorption Materials.

Work Completed and Essential Results

The development of discriminating iodine collectors for studies of the exhaust air and the waste air of nuclear power stations was continued. DSM 10 (formerly designated as AC 6111-KI), which had been prepared as a selective I₂ sorption material, showed good removal of non-carrier free ¹³¹I₂ in laboratory tests in the relevant range of parameters and also exhibited good selectivity. First in situ tests were carried out on discriminating iodine collectors. In the exhaust air and the waste air of nuclear power stations also good removal of ¹³¹I₂ was found on DSM 10 in the range of very low concentrations. Unfiltered room air and waste air were found to have high contents of ¹³¹I₂ (> 50 %).

Plans for the Near Future

In situ measurements will be continued in a number of selected PWR and BWR nuclear power stations to ascertain the iodine components contained in the room air and the waste air both before and after filtration by the integral iodine filters of the plant.

- 4120 Release, Transport and Deposition of Activation Product in Reactor Circuits and their Decontamination
- 4123 Reduction of Activation and Contamination of Reactor Circuits (I. Michael, IRB)

Work Completed

After investigation of the metal loss rate of INCOLOY 800 samples by several test series performed at 342 °C and 150 bar with different oxygen contents in demineralized water (deionate), the protective gold plating applied on the inner side of the first autoclave system had to be renewed.

Within the period of reporting the second autoclave system (same dimensions as the first autoclave system) also provided with an inner gold

plating was nearly completed.

Also a small sized third autoclave system has been completed which allows to study the metal loss rate to pressurized water of standard stainless steel, the material making up 15 % of the inner surface of a primary reactor circuit.

Essential Results

Reduction of the oxygen content in deionate by noble gas sweeping, which is much more effective than chemical reduction by hydrazine, was improved in combination with the first autoclave system. Apparently the minimum oxygen content of 0,05 mg/kg required for primary loop water of pressurized reactors can still be lowered by the factor of 20.

Plans for the Near Future

Three autoclave systems will be available to continue the investigations. Special attention will be paid to understand the chemico-physical partial processes involved in transportation.

4130 Long-Term Radiological Burden of the Environment

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

Work Completed

During the first half year of 1976 ^{129}I was assessed in a number of process solutions from the WAK Reprocessing Plant. The ^{129}I content was measured in milk samples taken once a week and in mixed waste water samples collected once a month. We started developing an analytical method for ^{129}I determination in the air.

Essential Results

The ^{129}I concentrations confirmed the corresponding investigations made in 1975. Despite the installation of the iodine filter, the ^{129}I concentration has not decreased in the milk of goats sampled at the principal point of exposure of the WAK exhaust air plume. ^{129}I concentrations reach some hundreds of pCi/l in samples of cow milk collected at a more distant location. Since the WAK operation has been discontinued, the concentrations in effluent waters have essentially decreased.

Plans for the Near Future

The previous program of measurements will be carried on for another short period. Afterwards, ^{129}I will be determined in a great number of soil and plant samples from the environment of WAK. The different chemical states of stable iodine in the ambient air will be assessed at different places in the Federal Republic of Germany (scheduled beginning: September 1976).

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

Work Completed and Essential Results

Some modifications of the program system of the atmospheric transport were introduced and the model of the hydrospheric transport completed. Some more partial results are obtained. Within an investigation about the release of activation products, particular emphasis was laid upon C-14.

Plans for the Near Future

Inserting some work for the German risk study results in a delay in the completion of the final results so that the final report will be completed until the end of 1976.

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

Work Completed

The components of the low-temperature rectification pilot plant (KRETA) as well as the auxiliary equipment have been delivered and their assembly nearly completed. The adsorption unit for the separation of CO_2 and H_2O preceding the cryogenic part (ADAMO) has been ordered. The catalytic unit for the reduction of O_2 and NO_x ($30 \text{ Nm}^3/\text{h}$), which is to be mounted at the site of the existing head-end pilot plant has been opened for bids.

Computer programs were developed and tested for the calculation of the influence of parameter variations on column performance; A "static" program for the simulation of the steady state of the column, a "dynamic" one for the simulation of its time dependence. Calculations were conducted for the five-component system N_2 -Ar- O_2 -Kr-Xe.

The laboratory tests on the catalytic reduction of O_2 and NO_x with H_2 using a small once-through apparatus ($1 \text{ Nm}^3/\text{h}$) were completed. At last the poisoning of selected Ru-catalysts by iodine and tri-butylphosphate (TBP) and their thermal resistivity was investigated.

A recycling loop of larger dimensions ($10 \text{ Nm}^3/\text{h}$) for the testing of catalysts was put into operation. The measurement and control of H_2 will be studied mainly with this equipment.

A laboratory study on the adsorption of the minor gas components: CO_2 , NH_3 , N_2O , NO , NO_2 , and of the rare gases on molecular sieves was started.

Essential Results

The calculation of the concentration profiles to be expected of the gas components in the first column indicates a decontamination factor of Kr/Xe from the carrier gas N_2 of $> 10^4$ at the column head, whereas the rare gases are concentrated in the bottom and the lowest stages of the column. The time dependent concentration profiles of the components in the column were also calculated. The data obtained for the steady state were verified by the results of the statistical mode of calculation.

Results of the laboratory studies:

If the surface of the Ru-catalyst is partially loaded with TBP or J_2 before the test, its activity towards the NO-reduction remains almost unchanged. The same effect is observed upon a continuous dosage of J_2 to the gas-stream. However, the specificity of the catalyst towards the formation of N_2 as end-product decreases substantially: an increasing coverage of the catalyst surface with HJ (formed by catalytic reduction of J_2 with H_2) results in an increasing formation of NH_3 .

High temperature tests carried out up to $1000^\circ C$ during several days resulted in a decrease of the catalyst activity causing the temperature at which the reaction starts to rise by about $100^\circ C$.

The absorption of NO on molecular sieves Linde 5A is very poor (dynamic adsorption coefficient $K = 50 \text{ Nml/g}$ at $20^\circ C$). Thus, this gas is hardly to be separated by adsorptive methods.

Plans for the Near Future

Immediately following the verification of the guaranteed performance data, the experimental program with the cryogenic unit KRETA will be started. The completion of the adsorption unit ADAMO is going on according to plans (mounting at the beginning of 1977).

In combination with the operation of the 10 Nm³/h catalytic recycling loop, safety studies concerning the handling and controlling of Hydrogen will be carried out.

The adsorption of the rare gases as well as of NO_x and NH₃ in the presence of H₂O on acid-resisting molecular sieves will be studied in a laboratory scale unit.

4150 Waste Heat Problems Associated with Nuclear Facilities

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

Work Completed

The numerical part of the WALKÜRE program was improved. A three-dimensional field for the diffusion parameters is calculated by modifying the setup for the induced turbulence. As test calculations have shown, the superposition of the plumes of several cooling towers is now also possible.

Essential Results

Because of the changes in the numerical part, WALKÜRE, now calculates about 30 % faster than before. The differences in turbulence within and outside the plume of a cooling tower have been taken into account more accurately by the introduction of a three-dimensional field for the diffusion parameters. First superposition calculations have shown that even in cases where the visible plume combines after 200 m, the influence of the individual cooling tower plumes can still be pinpointed accurately after a distance of 3 km from the sources.

Plans for the Near Future

First evaluations of the Neurath II measuring campaign have been made available by the Swiss Institute of Reactor Research, others have been announced for the course of this autumn. "Calibration" of WALKÜRE can be started in the second half of 1976. The project is finished by the end of this year.

4200 SYSTEM BEHAVIOR OF NUCLEAR FACILITIES DURING INCIDENTS

4210 Dynamic Load of Components and Systems

4211 Dynamic Load of LWR Pressure Suppression Systems
(R.A. Müller, IRE)

Work Completed and Essential Results

The infrared measurement equipment for the Marviken II Project was installed in the plant and started operation. In the four blowdown tests carried out so far the equipment has performed successfully. The measured data are being evaluated in parallel at Studsvik (Sweden) and at the Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) of Karlsruhe University.

Studies on the dynamic behavior of the containment structure concentrated on the transient behavior of the thin shells of the containment. The analytical investigation of the inner cylinder of the Brunsbüttel wetwell performed under simplified boundary conditions showed that a variety of vibrational modes (some hundred) up to high orders have to be taken into account to determine a dynamic response, since this shell is much softer with respect to higher order loads than in case of low order loads. The requirement of considering such high orders implies that these high orders must be known also for the load, which in experimental load evaluation would call for a correspondingly high number of measurement positions located closely to each other.

Parameter calculations with the computer code describing the thermo-hydraulic events of condensation were continued.

Within the framework of a new test series carried out in the conventional power station "Großkraftwerk Mannheim" control measurements were performed on behalf of TÜV Baden (Technical Inspectorate).

Plans for the Near Future

The infrared measurement equipment will be converted to have a greater length of measurement (300 mm). The necessary interference filters will have to be recalibrated accordingly.

The basic study relative to the transient behavior of thin shells was performed at a cylindrical shell because this type of shell can be most conveniently described by analysis. The more important component as to plant safety, i.e. the spherical shell forming the outside wall of the wetwell, will be subjected also to analysis in the next half year in order to study its transient behavior.

The parameter calculations on condensation will continue and likewise the control measurement in Großkraftwerk Mannheim. Also on behalf of TÜV Baden control measurements will be performed during the non-nuclear preoperational tests on the pressure relief system in the pressure suppression system of the Philippsburg reactor facility.

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

The installation of a gas velocity measurement device mounted at one of the four blowdown channels and of a two-phase velocity measurement device provided at the rupture pipe of the Marviken reactor was completed in January. The four first blowdown tests were performed from February until May.

Essential Results

In the blowdown channels velocities from 0 to 60 m/s were measured during the four blowdowns. The maximum velocities in the individual blowdowns deviate slightly from each other. In the blowdowns 18 and 19 strong

variations in velocity were found beginning some 70 seconds after the start of blowdown. In the rupture pipe the velocities ranged from 0 to 50 m/s.

Plans for the Near Future

The Marviken II experiments will be continued by the remaining four blowdowns. In parallel tests will be started at the IRB "Joint Test Rig for Testing and Calibrating of Different Two-Phase-Mass Flow Measuring Techniques" (RS 145/PNS 4215) and preparations will begin for the HDR blowdown experiments scheduled for 1977.

4215 Joint Test Rig for Testing and Calibrating of Different
 Two-Phase-Mass Flow Measuring Techniques
 (J. Reimann, G. Arnold, H. Hahn, H. John, St. Müller, IRB)

Work Completed and Essential Results

During the period of reporting work was concentrated on preliminary tests of the test rig. The measure- and control-system (pressure, temperature mass-flow-measurement) has been checked and the control-behaviour has been studied at working conditions of 50 to 150 atm, the corresponding saturated steam temperatures at different mass-flows and at different qualities of the steam-water mixture.

Some tests have been made with a special pipesection for visualization of the flow and the electrical probes are stored on tape for further analysing. The comparison of both methods showed a good correlation between the results. Conceptional work has been done to extend the test loop for operation with air-water-mixtures.

In this secondary effort the working range, with regard to the mass flow, will be enlarged easily by a factor of 7, compared with steam-water flow range.

A multiple gamma-ray-densitometer with only one detector has been developed and will be incorporated soon.

Plans for the Near Future

- Construction and installation of a multi-beam gamma densitometer;
- Developing and procurement of equipment for air-water enlargement of the loop;
- Design and calculation of performance and safety requirements for the additional components for further enlargement of the test loops for tests under transient conditions;
- Start of experimental work.

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

4221 Design and Pre-calculation of the HDR-Blowdown-Experiments on Dynamic Loading, Stresses and Deformations of Reactor Vessel Internals
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

After the targets of the HDR tests had been clearly defined the task centered around design problems: constructions in conformity with fabrication requirements, specification of pressure vessel internals, modification of the test loop so as to achieve stable temperature distributions, and planning of preliminary tests.

Work Completed and Essential Results

Based on design calculations performed during the preceding half year, working drawings were made for the core barrel, the core barrel clamping flange, the lower flange and the weight ring. These drawings were the basis of an order for fabrication and assembly.

Moreover, a study was prepared on the stability of the HDR pressure vessel in case of blowdown. It appeared that it is sufficient for stability evaluation to take into account exclusively the reaction force of the escaping blowdown jet as an imposed load attacking the pressure vessel.

The loop for generating enthalpy distributions, which are typical for a PWR-reactor, was modified such that the process becomes stable. This implied the supply of cold water into the lower plenum, hot water feed into the upper plenum, and suction of the mixture in the annular space. Besides, some criteria were defined for loop control.

The axial temperature distribution was determined, which takes place at the beginning of the blowdown tests. For experimental verification of this temperature distribution, appropriate preliminary tests

has been prepared. According to available results thermal insulation of the HDR vessel does not seem necessary in case that a possible chimney effect in the facility is adequately suppressed.

Plans for the Near Future

An at least coarse elastic-plastic stress analysis of the core barrel clamping flange is required for an improved design verification. In addition to settling different detail problems arising in the course of core barrel fabrication, the HDR cover bolts must be investigated under the aspect of plant safety in cooperation with the PHDR Project.

The diagram of measurement points for the core barrel and the fluid annulus must be reviewed and the precise locations of the transducers must be fixed.

A concept must be specified for vibration tests to be performed at the installed core barrel - with and without water filling - immediately before the blowdown tests.

Using the YAQUI code (first not taking into account the structural flexibility) the following preliminary calculations of tests will be made:

- a) Simulation of the annular space between pressure vessel and core barrel by a plane fluid layer with a given transient pressure at the nozzle.
- b) The same as (a) but using a curvilinear network generated by potential theory.
- c) Flow within the nozzle and transition to the annular space.

4222 Experimental Data Acquisition and Processing of the Dynamic Behavior of the Pressure Vessel Test Internals under the HDR-Blowdown-Experiments
(R.A. Müller)

Work Completed and Essential Results

The detail design of the autoclave test system was completed and fabrication started. An electromagnetic vibration generator will be used for dynamic calibration of the transducers, which has been already ordered. First mechanical tests were performed with two displacement transducers and the supply lines already available. Considerable mechanical movement of the supply line appeared as an interfering signal. Two specimens of displacement transducers were ordered with another manufacturer, which are suitable for the ambient conditions prevailing here. Moreover, orders have been placed for two specimens of a piezo-resistive acceleration transducer.

Plans for the Near Future

The comparison measurements and tests with different types of displacement transducers will be continued, initially in air and later-on, after commissioning of the autoclave system, in water at elevated pressure and temperature. After delivery and commissioning of the electromagnetic vibration generator the dynamic calibration will start. A similar program is envisaged for the acceleration transducers. It is further planned to investigate in situ the electrical interferences observed at the HDR facility. This information will be significant for the selection of measuring leads to be laid.

4223 Development and Verification of Coupled Fluid-Structural-Dynamic Codes for Stress and Deformation Analysis of Reactor Vessel Internals under Blowdown Loading
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

The task includes theoretical work accompanying the HDR blowdown tests (PNS 4221, PNS 4222), especially the development of computer codes in

coupled fluid-structural-dynamics. The goal is to compute blowdown events in such way as they are significant to determine the maximum stress of the core barrel.

Work Completed

Programming work for the CYLDY1 computer program to be used for the structural dynamics of the core barrel has been terminated. Results of satisfactory accuracy have not yet been obtained.

A comparison study on several methods in coupled fluid-structural dynamics was performed. Some reservations had to be made with respect to the stability of methods planned in the past (step-by-step methods). For this reason, a so-called simultaneous coupling technique was proposed by which the fluid-dynamics problem is transformed into a boundary integral equation (BIE) problem, using a singularity method. This later method is especially able to deal with three-dimensional problems (e.g. core barrel interior filled with water). Also two other methods currently used in fluid dynamics (finite difference method, method of characteristics) had been investigated and requirements for coupling with an elastic structure were established.

Theoretical work on fluid dynamics was concentrated on the investigation of potential flows in HDR geometry, the development of a one-dimensional part model and the detailed specification of a two-dimensional part model for the FLUST code. Furthermore a comparison between the YAQUI code and the REXCO code had been performed.

With the help of the shallow-water-analogy some special blowdown flow problems arising in the HDR-project were investigated experimentally.

Essential Results

- A report about the different methods in coupled fluid structural dynamics.
- A detailed description for a computer code which is to transform the fluid dynamic problem into a BIE problem by means of a singularity method.

- First positive results with a one-dimensional part model and description of a two-dimensional part model for the FLUST 01 code.
- First results by means of the two-dimensional fluid dynamics code YAQUI, for the fluid layer between core barrel and reactor vessel.
- By approximation of water as an incompressible fluid, conservative estimates were made of the core barrel loading. They indicate that the load curves used in the past might be too pessimistic.

Plans for the Near Future

To improve the CYLDY1 computer program for shell dynamics it is in discussion to describe the axial strain profile by eigenfunctions instead of using simple Fourier series. Recent publications show that this seems to enhance substantially the accuracy of computation.

Coupling of YAQUI with CYLDY1 will be the main task in the half year to come.

YAQUI will be used in preliminary fluid dynamics calculation for the annular space between core barrel and reactor vessel and for the transition region between the nozzle and the annular space.

The decision will be taken shortly about an appropriate consideration of three-dimensional fluid-dynamic effects.

- 4230 Fuel Behavior under Accident Conditions
- 4231 Theoretical Investigations of Fuel Behavior during
LOCA and ATWS
(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE/Stuttgart)

Work Completed

Within the framework of the German-American cooperation on program development of fuel rod behavior (SSYST - FRAP) an ANC-FRAP "Standard Problem" has been solved using SSYST. These calculations were an integral test of all the important modules of SSYST-Mod 1 and a comparison of the results with those of FRAP-calculations.

Because of oscillations of the heat transfer coefficient which occurred on the surface of the fuel pin when ZET-1D and HYDRA were coupled together another procedure for the solution has been chosen by means of unification of the two modules into a new module ZETHYD.

The experimental results of IRB on ballooning, which were available until now have been checked by means of calculations with the module STADEF of the program system SSYST. For these calculations, several methods, known from the literature for the description of the time-dependent plastic behavior of Zircaloy, have been applied.

The development of a transient 2D-heat transfer module for r, ϕ - geometry has been started in order to calculate the two-dimensional temperature distribution. Modules in order to calculate the clad deformation in $r-\phi$ -geometry as well as to describe the reflood phase are being developed also.

For the nuclear heated (inpile) pin experiments (PNS 4237) the calculation of transient clad temperature curves for four maximum values assumed for the pin power (symmetric power distribution) as well as the calculation of the main experiments A 1.1 and A 1.2 has been performed. For the electrically heated fuel pins calculations for Al_2O_3

(BSSO1) and UO_2 (BSSO2) ring pellets were made.

A sensitivity study was performed with SSYST-Mod 1. The first calculations showed some numerical oscillations of local internal pressure caused by the formulation of the physical problem. By rewriting this part the problem was solved.

Parameters in Nortons creep law were determined both from tensile and burst tests. The Computer program OPAL, for optimizing the diffusion coefficients in ZrO_2 , α -and β -Zircaloy, was extended to include besides the layer growth data also the additional integral information of increase in weight caused by oxidation.

With RELAP4-mod85 blowdown calculations were performed for a 1000 MW_{el}-reactor; in the analysis for the primary system as well as in the hot rod analysis program errors occurred. Therefore this program will not be used in the near future.

Computer programs have been written for the statistical analysis of fuel rod behavior; the methods used are "Monte Carlo" and "Moment Matching". Results of statistic cladding temperature have been evaluated and compared.

Essential Results

The program system SSYST has been improved. The results of the SSYST-FRAP comparison calculations showed good agreement. In both programs, for instance, ballooning at the hottest spot occurs almost at the same time (appr. 8 s). The calculation of the experiments of IRB on ballooning led also to a qualitative good agreement of experimental and theoretical results.

- The parameters in Nortons creep law are quantitatively not yet satisfactory
- Gas gap flow equalizes axial pressure difference already at small gaps.

- The method of "Moment Matching" for the statistical analysis needs considerably less computer time than "Monte Carlo" method, and differs only slightly in expected values and variances.

Plans for the Near Future

The development of SSYST will be continued. The modeling of the thermo- und fluiddynamic part will be improved. By means of a statistic description of the behavior of different classes of pins a reliable prediction of size and number of the ballooning pins is anticipated.

The description of the fuel pin bundle behavior as well as the failure propagation between different classes of fuel pins shall be continued and integrated in SSYST by means of new or improved modules. The development of a transient 2D-heat transfer module and the description of the clad deformation in $r-\phi$ - geometry is pursued further on. Back-up calculations for the pin experiments will be continued also.

4234 Decay Heat Measurement of ^{235}U in the Time Region from
 10 to 1000 Seconds
 (K. Baumung, INR)

Work Completed, Essential Results

In order to provide a good cooling of the fuel samples during irradiation in the thermal column of the FR2 reactor, vehicles for a pneumatic transfer system were developed and constructed which keep the fuel temperature at about 10 K above the temperature of the cooling gas (N_2 at 1 atm and about 300 K). For these "rabbits" a new transport system has to be designed. Together with the mechanical system inside the vacuum vessel, which contains the calorimeter, the samples can be transferred from the irradiation position into the adiabatic jacket automatically within 2 to 3 seconds.

For the measurement of the decay energy escaping the samples as γ -radiation, a MOXON-RAE-type detector was constructed. As its

sensitivity increases linearly with the energy of the γ -quanta detected, this counter directly measures the energy flux of an unknown γ -spectrum.

Plans for the Near Future

In parallel to the completion of the mechanical set up, the samples shall be canned electrochemically and their heat capacity measured. Then cold test runs are planned in the INR before installing the equipment at the reactor.

4235 Studies on Material Behavior During LOCA and ATWS

4235.1 Investigations of the Mechanical Behavior of Zircaloy-4
 Cladding Material at high Temperatures (M. Boček, IMF II)

Work Completed

1. Analysis of stability criteria for tube burst tests.
2. Creep behavior of Zr-4-tensile specimens in vacuum.
3. Structure investigations on superplastic deformation of Zr-4-tensile specimens (tests in air atmosphere).

Essential Results

ad 1:

Relationships were derived which exist between the logarithm of the tangential deformation rate $\log \dot{\epsilon}_\theta$ and the corresponding strain ϵ_θ , on the one hand, and certain material properties, on the other hand.

Using these relationships conclusions can be reached on the deformation behavior from experimental deformation plots.

Three test runs were considered in which the tendency towards instable behavior increases in the sequence stated below with the other conditions remaining constant: hoop stress σ_θ ; hoop load $L = \text{const.}$, and internal pressure $p = \text{const.}$

ad 2:

The transient range of creep curves in the temperature range from 700 to 1000 °C shows an anomalous behavior.

Also the rate exponents m determined from load cycling tests are dependent on the temperature and load.

Within the range of temperatures under consideration and for deformation rates $\dot{\epsilon} = 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, it is obvious that $m \rightarrow 1$.

In cases where comparisons were made between m -values determined by different methods the agreement is satisfactory.

ad 3:

Investigations by metallographic techniques, of texture and by scanning microscope yielded clear evidence that in the ($\alpha + \beta$)-phase region the grain switching mechanism is characteristic for superplastic flow. It can be explained by these mechanisms why also specimens having low values of m ($< 0,3$) can deform without necking.

Plans for the Near Future

- a) Analysis of tube burst tests at constant internal pressure.
- b) Investigation of the creep behavior of tensile specimens in the range of low loads (relating to the existence of a critical yield stress); study of the deformation dependence of m -values during creep deformation.
- c) Investigations for the determination of the activation energy of superplastic flow in the ($\alpha + \beta$)-range.
- d) Structural examinations on specimens deformed outside the ($\alpha + \beta$) range.
- e) Deformation behavior of Zr-4-tensile specimens in the temperature range from 100 to 1300 °C (tests in vacuum).

4235.2 Investigation of the High Temperature Steam Oxidation
of Zircaloy-4 Cladding Tubes
(S. Leistkow, IMF II)

Work Completed and Essential Results

The induction heating system for program-controlled LOCA-similar time-at-temperature steam exposure of tube sections and the experimental set-up for stress-rupture testing of internally pressurized tube capsules in argon and steam were successfully operated.

LOCA-similar experiments were performed in exposing tube sections to steam oxidation attack at program controlled temperatures and exposure time. Oxygen take-up was measured as function of various blow-down peak temperatures (950 - 1200 °C) and PWR-LOCA shaped time-at-temperature functions (900 - 1200 °C). Furthermore stress-rupture experiments were performed in argon (800 - 950 °C) as second part of comparative tests in argon and steam.

The exposures under different blowdown-temperature conditions (peaking at 950 - 1200 °C) resulted in weight gains of 50 - 200 mg/dm². Typical LOCA conditions (≤ 900 °C, 180 sec) caused weight gains of ≤ 100 mg/dm², corresponding to calculated < 6,7 μm ZrO₂. LOCA similar exposures with holding time at 1000 - 1200 °C showed weight gains of 200 - 540 mg/dm² which were at all temperatures about 33 % lower than the corresponding isothermal ones. The temperature-transient tests were accompanied by SIMTRAN I-Zircaloy-Oxidation Code calculations.

The tube capsule stress-rupture tests established the initial tangential stress/time-to-rupture relationships for 800 - 1300 °C, 2-70 at, 20 sec to 40 min in argon. The maximum circumferential elongation was plotted as function of temperature, the creep rate was given as function of initial tangential stress.

Plans for the Near Future

The next steps will be:

- Isothermal oxidation of tube sections in steam 700 - 900 °C to check whether parabolic or cubic rate laws are governing oxidation kinetics,
- exposure of preoxidized specimens to temperature-transient steam oxidation conditions,
- exposure of pressurized tube capsules to steam under creep conditions (800 - 1000 °C) to establish quantitatively the gain in strength and loss of ductility by oxidation.

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

- Investigations continued of the influence exerted by the oxygen potential of oxide fuel on the strain and rupture behavior of short Zry-4 cladding tubes. The experiments were performed under argon. The pressure and temperature were measured continuously. The initial pressure differential varied between 1 and 60 bar at room temperature.
- To be able to achieve heating temperature up to 150 °C/s tests were carried out with inductive heating (high frequency) of UO₂ filled tube specimens. The temperature difference between the cladding material and the fuel was determined as a function of the heating rate.
- Investigations were terminated relative to the selection of suitable methods for the determination of the strain rate $\dot{\epsilon}$ of the tube specimens.
- Determination of the reaction behavior of UO₂ and Zry at temperature between 900 and 1300 °C under argon.

Essential Results

- It is evident from test results obtained for UO_2 filled Zry tube specimens that the influence of the oxygen potential (O/U ratio: 2,00 to 2,05) on the strain and rupture behavior clearly decreases at high differential pressure. Within the temperatures range between 900 and 1000 °C a minimum exists in the circumferential strains of the cladding tubes.
- The temperature difference between the central fuel temperature and the cladding material temperature depends on the heating rate and also quite considerably on the gas filling of the tube specimens, on the test atmosphere, and on the initial temperature. At heating rates of about 150 °C/s and an initial temperature of about 300 °C the temperature difference is almost 700 °C at 1000 °C.
- The circumferential strain rate of the cladding tubes can be determined by use of light optical methods. The films are evaluated by a picture analyzer.
- The chemical interactions between UO_2 and Zry and the resulting reaction products are strongly temperature dependent. UO_2 will be reduced by the Zry; $\alpha\text{-U}$, a (U, Zr)-alloy, and $\alpha\text{-Zr(O)}$ are formed.

Plans for the Near Future

- Investigations will continue of the influence of the UO_2 oxygen potential and of iodine on the mechanical behavior of Zry cladding tubes.
- Testing and development, respectively, of a method of pressure measurement above 200 °C.
- Experiments will be performed where the Zry cladding tubes are subjected to inner and outer corrosion; set up of an appropriate test rig.

- Additional UO_2/Zry -annealing experiments, determination of the diffusion coefficients, electron probe micro analysis.

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

Work Completed

Erection of the facility was completed except for the central part of the test section and startup experiments begun this March. Several blow-down events were initiated in the equipment. After additional protective walls had been provided, the control authorities granted a preliminary license for operation.

The fabrication of elements for the required pressure and temperature resistant true-mass-flow-meters was completed up to about 80 %. The gamma density measurement devices were installed. The instrument for optical measurement of the cladding temperature was tested in a calibration apparatus.

Theoretical work was concentrated on the computer program for evaluation.

Essential Results

The startup tests with the test equipment have been terminated for the time being. The loop was tested up to 50 bar and 250 °C.

Some significant parts of the computer program for evaluation were completed and tested. It is intended to use RELAP 4 in the thermodynamic interpolation allowing the evaluation of tests. However, due to technical difficulties with the program RELAP 4, test computations could not yet be made.

Plans for the Near Future

After assembly of the central part of the test section startup tests will be extended to the maximum operating data of the facility. Preliminary blowdown tests are now scheduled to begin at the end of 1976. It is expected that the computer program for evaluation will also be available at this time.

- 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 FR2 Reactor
(E. Karb, L. Sepold, RBT-IT)

Work Completed

The first ballooned test rod was subjected to post-examination in the Hot Cells during the period of reporting:

- Photography of the entire rod, especially of the ballooned part, and of the TC attachments.
- Measurement of the rod (length, diameter at several points, exact measurement of ballooned zone, length and width of crack)
- Radiography of the rod.
- Metallography (cross-sectional micrographs of the ballooned zone, of the non-ballooned zone and of 2 wall thermocouples).

This March the third pre-irradiated rig was introduced into the FR2 Reactor with a target burnup of 20.000 MWd/t_u. The irradiation of fuel rods has been undisturbed so far in all three rigs.

The remaining errors in the data acquisition system were eliminated early this year so that the CALAS system is able to perform complete logging of measured data during an experiment.

To evaluate tests from the magnetic tape a computer program was

established which allows printing and plotting of measured data as a function to time. The first tests were already evaluated using this program.

A first main series of thermocouples was ordered on the basis of the specification of the TC preliminary series which was modified in one essential point only: The thermocouple sheath made of stainless steel W.No. 1.4541 is replaced by Inconel 600 because of the better resistance of scaling in water vapor of the latter material.

For TC attachment at pre-irradiated specimens a resistance spot welder has been bought together with measurement instruments. The measurement instruments for measurement of the contact resistance, welding capacity, current intensity and voltage are to help in finding the optimum setting for reproducible welding under hot cell conditions (remote handling!).

After exact measurement and calibration of the new orifice for measurement of the vapor mass flow the old orifice in the loop was exchanged early this year.

Essential Results

These are the significant results from the post-examinations of the first ballooned rod:

- remained elongation of the rod 5,5 mm,
- length of ballooning about 60 mm,
- maximum circumferential increase at the ballooning 65 %
- length of crack 19 mm,
- maximum crack width 1,3 mm.

The general pictures of the rod show that there are no more other ballooned zones besides the great ballooning.

The radiograph exhibits burst pellets in the ballooned zone whilst the pellet stack in the non-ballooned zone is unaffected.

It appears from the cross-sectional micrographs in the transition and in the maximum ranges of the ballooning that the ballooning is approximately circular in shape.

In thermocouple attachment difficulties were encountered during forging of the platinum jackets: The required shear forces of at least 10 kp were not achieved. In-depth studies of the possible influencing factors showed that only the wall thickness of the thermocouple exerts an influence on forging. The best results were obtained for $S = 0,13$ to $0,15$ mm. For this reason, only thermocouple cables having this wall thickness are used for fabrication.

Calibration of the new orifice yielded the following information for the flow number α : Although the 10 NW tube diameter lies clearly below the range of validity of 52 mm for standard orifices, the α value for the existing ratio of aperture corresponded exactly to the value indicated in the table for the standard orifice according to DIN 1952.

Plans for the Near Future

The tests with specimens not exposed to pre-irradiation will be continued.

Work in the 2nd half year of 1976 will center in the preparation of tests with pre-irradiated specimens. This includes above all the design, fabrication and testing of auxiliary devices for remote assembly of specimens in the shielded cell. These components will be tested both in the non-active zone (outside the Hot Cells) and in the active zone.

The concept of the total program until the beginning of the experiments will be tested in a general testing campaign.

The radiological calculations for the safety report will be carried on; they will form the basis of the authorization of tests with pre-irradiated specimens.

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

Work Completed

From the first series of fuel rod simulators another two rods filled with different types of pellets (Al_2O_3 , UO_2 enriched) were tested in extensive steady-state and in six transient tests to find out their behavior under test conditions. At the same time, investigations were made to compare thermal and electrical power determination and the performance was tested of the orifice-type steam flow transducer recently installed in the test loop.

The thermodynamic conditions near the rods were examined with the help of an improved instrumentation allowing to record steady-state steam temperatures at the specimen level in the outer flow annulus.

The control unit maintaining the electric power at a constant level was used for the first time and tested under experimental conditions.

IKE Stuttgart performed the accompanying calculations and, above all, a computational comparison of the heating and cooling characteristics of transient cladding tube temperatures for different rod structures.

A design concept was worked out for a fuel rod simulator version with the potential of ballooning by internal overpressure.

Essential Results

The heater rods were faultless in all tests. The basic layout of these rods can be used in the design of reference rods. Experiences gathered last year on necessary details regarding the reactor, the electrical heating, and the loop as well as on the instrumentation and measurement technology of the facility have been reconfirmed. Sources of error were largely eliminated. However, difficulties were encountered

in the determination of thermal power which, despite many efforts, has not yet been brought to agree with the electrical power measured.

Testing of electrical power control has yielded positive results.

Intercomparison of transient cladding tube temperatures recorded and their comparison with the calculation values concurrently show differences between Al_2O_3 and UO_2 filled rods. For the same power and within in the interesting range of temperatures the heat up rate is lower in the rod containing Al_2O_3 ring pellets than in the rod with UO_2 ring pellets.

In all cases measured cladding temperatures are lower than the calculated values. (The differences can be explained by the type of thermocouple installation; the effects still wait for quantification.) Principally, however, calculated and measured temperature histories are similar.

Plans for the Near Future

Considering the priority of nuclear tests, only one heater rod from the first series can probably be used in the second half year of 1976, which is to allow an assessment of the differences of measured and "true" cladding tube temperature. Further tests (e.g. using a calorimeter) will be made to compare thermal and electrical power.

The evaluation of preliminary tests on fuel rod simulators will continue.

It is planned to fabricate an advanced prototypes of an electrical heater rod.

4238 Investigations of the Fuel Rod Behavior in the Low Pressure Phase of a LOCA and of the Interaction between Ballooning Zircaloy Claddings and Emergency Core Cooling
(K. Wiehr, IRB)

Work Completed

- Development and testing of fuel rod simulators.
- Development and testing of special measuring techniques for the assessment of time dependent straining of the zircaloy cladding.
- Construction and functional check-out of the test rig.
- Construction and functional check-out of the computer controlled data acquisition and transmission system.
- Theoretical studies and calculations of the thermal and gas dynamics behaviour of the fuel rod simulators.
- Preliminary experiments on shortened fuel rod simulators to assess the ballooning of zircaloy claddings.

Essential Results

The first full length fuel rod simulators were tested successfully up to cladding temperatures of approximately 1000 °C. Verification by measurement of the uniform axial temperature distribution of the heater rod produced good results. Experimental check-out of the fuel rod simulator with respect to the heat transport from the heater rod to the zircaloy cladding and the transient increase in the cladding tube temperature showed excellent agreement with the values calculated. This is proof of the good simulation capability of the fuel rod simulator.

The systems for computer controlled fast data acquisition and transmission were started up in an integrated mode. Measured data and control function were collected and transmitted, the system functioned reliably. The development of the two-colour pyrometer for contactless measurement of the cladding tube temperature has largely been completed. The generation of signals capable of further processing above approxi-

mately 500 °C was conformed. X-ray cinematography to assess expansion as a function of time of the zircaloy cladding has proved to work satisfactorily in a number of ballooning tests. The pictures taken off the X-ray pictures amplifier by a film camera clearly show the internal structure of the fuel rod simulator during the ballooning of the zircaloy cladding. This is very significant in the interpretation of ballooning.

Ballooning experiments on shortened, indirectly heated fuel rod simulators brought the following results:

- At an internal rod pressure of 70 bar circumferential burst strains in the order of 36 % were found; higher internal rod pressures result in lower strains.
- The values determined for the strain rate and temperature correspond to normal plastic behavior.
- Depending on the development of straining, there may be azimuthal temperature differences on the zircaloy cladding of up to 100 K.
- The zircaloy cladding always bursts at the hottest spot with the highest strain, i.e., the most pronounced weakening of the wall thickness.
- The surface line of the cladding tube on which the point of rupture is located in most cases is a straight line; it practically does not raise above its heat source.
- The opposite colder side of the rod shows a marked lifting of the zircaloy cladding tube without any weakening of the wall thickness.
- The cladding tube is detached over a long section and does not result in a pronounced local balloon.

First calculation of the significance of the inner gas flow in the gap between the pellets and the zircaloy cladding from the plenums to the ballooning area of the fuel rod simulator have indicated that there

are major pressure differentials between the plenum and the balloon in the unstrained region of the fuel rod only in the case of small gap widths. The influence of the gap width upon the Reynolds number and the mass flow turned out to be small. The maximum Reynolds numbers to be expected are around 150. For this reason, also intact pellet structures will not give rise to any deviation from the laminar flow.

Plans for the Near Future

- Commissioning of test rig.
- Testing of fuel rod simulators.
- Testing of measuring techniques.
- Additional preliminary tests on shortened fuel rod simulators.
- Full length rod experiments in steam atmosphere.
- Incorporation and adaptation of SSYST modules.
- Supporting theoretical work.

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

Work Completed and Essential Results

The shake down of the loop and the test section including 5 rods without blockages has been completed successfully. Several improvements were made concerning the power control, the safety system for the protection of the heater rods, and the data acquisition.

Prestressing of the rods using weights of about 10 kg each has given satisfactory results. After 11 flooding tests the rods have been still straight. Nevertheless in the region of the highest rod power the spacers were permanently deformed. The reason for that is, that the thermal expansion of the rods was restrained by the high friction force between the rod and the spacer in the colder zone. Therefore during the assembling process of the instrumented rods the contact pressure was reduced.

The actual experimental work was started. After 3 reflood tests the distance between the heater rods are still uniform.

During all preliminary tests, the shake down period, and the experimental work no heater rod has been damaged. During the shake down a short circuit occurred due to a leakage of water in the region of the current connectors. Hereby 3 thermocouples were damaged. To avoid that problem the insulation as well as the safety system were refined.

At a separate preliminary test section the film techniques for the observation of the two phase flow was refined and the influence of a shroud heating was investigated. The results of these preliminary considerations are :

- The heating of the test housing leads to a velocity of the quench front at the test housing which is nearly as high as at the heater rods.
- The observation window can be kept dry until a short time before the arrival of the quench front. The conditions therefore are:
The selection of a suitable window material and the heating of the observation window as well as the test housing. The same measures avoid a decrease of the rod temperature in the region of the window.
- A flash light equipment with a single flash time of about 20 ns and with a flashing sequence controlled by the camera leads to microscopic sharp movies which allow a detailed analysis. The diameter of the most droplets is less than 1 mm.
Few droplets with a diameter between 1 and 3 mm were observed. On the other hand filaments of water and droplets bizarrely shaped appear frequently.
- A specially developed equipment which places marks on the movies controlled by the data acquisition system correlates the movies with the recorded data.

A program for the reduction of the measured values was developed and is in the testing phase. An available computer code (HETRAP) was modified for the calculation of heat transfer coefficients using the measured values. Some improvements in that computer codes were made. A subroutine was written for the calculation of the physical properties of all materials, which are used for fuel rods and heater rods respectively.

Plans for the Near Future

After a series of base line experiments with unblockaged subchannels blockages are fixed at 5 rods of the rod row. To reduce the influence of the test housing an external electrical heating will be installed at the test section. Experiments with 5 x 5 rod assembly will be prepared.

- 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

In the first half year of 1976 we have continued our investigations on LWR fuel elements by experiments on single rods with and without spacers. Rods without spacers were investigated at different heating rates in steam. In order to see the influence of spacers on the meltdown behavior we have done experiments in inert gas and steam.

During normal operation of a LWR an oxide layer with a mean value of 200 μm thickness is formed. Thus a fuel rod heated after a LOCA would have this oxide layer even for the case that there is no steam in the surrounding atmosphere. Melting experiments in He on preoxidized rods

with spacers, should show the influence of thin oxide layers. The thickness of layers used was 10 - 50 μm .

In order to have the possibility of heating the fuel rod simulator without central tungsten rod, we have designed a furnace for fitting into our vessel. It allows heating the rod by radiation from outside. We have started the construction of this furnace.

Essential Results

The experiments in steam show that the thickness of the oxide layer is inversely proportional to the rate of temperature rise. At 0,75 $^{\circ}\text{C}/\text{s}$ roughly 80 % and at 3,5 $^{\circ}\text{C}/\text{s}$ less than 40 % of the Zircaloy can is oxidized. Also the thinner oxide layers are able to contain the melt in the inside. At a surface temperature of 1900 $^{\circ}\text{C}$ little holes are formed, through which melt pours out.

The experiments with spacers show, that the meltdown behaviour of the fuel rods is significantly influenced by the interaction between the Inconel of the spacers and the Zircaloy of the rod. The spacer leads in all cases to melting at lower temperatures.

Especially we have found this in experiments in He. Here the interaction starts at 1000 $^{\circ}\text{C}$ and at 1250 $^{\circ}\text{C}$ the spacer is molten. With increasing temperature the melt runs down the rod thereby melting the can below the spacer region.

In experiments in steam the interaction is strongly reduced by formation of oxide layers. The first small effects were found at the spacer can-contact at 1250 $^{\circ}\text{C}$. The spacer began to deform at 1450 $^{\circ}\text{C}$ and at 1550 $^{\circ}\text{C}$ the entire spacer was deformed.

The begin of melting accours below 1700 $^{\circ}\text{C}$. Roughly at 1800 $^{\circ}\text{C}$ the spacer is molten. The refrozen melt is heavily oxidized and has a rough and brittle surface. The interaction is limited to the region of the spacer.

Experiments on rods with spacers, preoxidized in steam, show that relatively thin oxide layers diminish the interaction between Inconel and Zircaloy. Already a 10 μm thick oxide layer changes the beginning of melting to 1350 $^{\circ}\text{C}$. With ca. 50 μm initial melting was increased to less than 1700 $^{\circ}\text{C}$.

While with a 10 μm oxide layer a large part of the can is molten, during heat up to 1800 $^{\circ}\text{C}$, meltdown of the can does not occur with a 50 μm preoxidized can.

Plans for the Near Future

On single rods with and without spacers the influence of preoxidation will be further investigated. To study the influence of steam starvation in the different regions of the core, we will investigate the meltdown behaviour with different amounts of steam. The dependence of these influences on temperature rate and the radial gradient should be investigated. At the end of next half year we will start testing the bundle arrangement.

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

Work Completed

A series of 21 release experiments have been carried out in the melting facility SASCHA with 30 g samples of inactive Corium. The main objectives were:

- a) to determine the release fractions of the elements Fe, Cr, Ni, Mn, Co, Zr, Mo, Sb and U as a function of the parameters
 - atmosphere (air, argon, steam)
 - temperature (1700 - 3000 $^{\circ}\text{C}$)
 - pressure (1-2 bar)
 - gas flow rate (1-10 l/min).

The above mentioned elements form significant activation products during reactor operation and some of them are also identical with important fission products (Mo, Zr).

- b) to investigate the transport and deposition behavior of the release products; that means in the present case to measure the distribution of the elements deposited on
- the walls of the glass exhaust system directly above the melting crucible
 - on the walls of glass and steel tubes of the transport line (~ 1 m of length)
 - on the membrane filter system which is installed at the end of the transport line for collection of all gasborne particles.

The quantitative determination of the release products was made by activation analysis. The deposits were dissolved from the walls of the glass system in boiling HNO_3 . From the results it was concluded that the fraction deposited in the steel tubes was not higher than about 5 % of the total release. Thus the analysis of this fraction seemed not to be necessary.

Essential Results

In the experiments conducted the most attention was applied to investigate the release behavior in air atmosphere. The test series in argon and steam have not been completed, and the evaluation of data of these tests is still in progress; thus, only preliminary results can be reported for these atmospheres.

During the release experiments, a very different behavior of the melt was observed for these three atmospheres. In air, vigorous oxidation reactions accompanied by the formation of dense smoke and the ejection of glowing droplets (up to 1 g in mass) from the melt occurred at temperatures above 2200 °C. In contrast, the heatup in steam and argon was relatively quiet; no melt ejection and only faint flames were observed. In argon the melt appeared to wet the crucible walls more rapidly than in oxidizing atmospheres; in one case the melt reached the top of the crucible.

As a result of this different reaction behavior, much lower release was found in steam than in air: about one order of magnitude or even less

for some elements. The limited data indicate a somewhat lower release in argon than in air and also an increase of release with decreasing pressure, but additional experiments are needed for confirmation.

Additional preliminary results are:

- a) Besides the atmosphere the maximum temperature of the melt is a parameter of strong influence on the release. It was found for the most elements that a temperature increase of 500 °C is followed by an increase of release of at least one order of magnitude.
- b) The release fractions vary widely for different elements with maxima ranging from 5-12 % for Mn to 0.2-0.5 % for U (both values determined for air atmosphere).
- c) The total release in air was 1.2 wt% of the melt; the highest absolute values were found for Fe and Zr which is due to the high concentration of these elements in the melt.
- d) The average mass distribution within the collection system was 74 % on the walls and 26 % on the filters.

Plans for the Near Future

The next phase of the experimental program will include test with specimens of slightly active Corium. These will contain (a) activated steel and Zircaloy and (b) fission pellets which consist of a homogeneous mixture of UO_2 and the most important fission products. The application of direct gamma spectrometry for the analysis of deposits on the filters and in the transport system will have several practical advantages compared to the activation analysis. In addition, the release rates as a function of temperature and time will be determined by continuous gamma ray measurement during the experiments.

4244 Constitution and Reaction Behaviour of LWR Materials at
Core-Melting Conditions

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

Work Completed

a) Phase equilibrium studies:

Experimental investigations were performed at 1000, 1500 and 2000 °C
in the section UO_2 - α Zr(O)-Fe.

b) Reaction studies:

Corium E and Corium A samples with and without fission products
as well as completely oxidized Corium E were melted down under different
experimental conditions. The interaction of Corium with concrete
(silicate) was studied in argon, varying the composition of Corium
and the mixing ratio Corium/concrete.

c) Metallurgical examinations of molten rods:

Phase analytical studies on simulated LWR-rods, heated up in air and
water vapor up to 2000 °C were performed.

Essential Results

a) Phase equilibrium studies:

The section UO_2 - α -Zr(O)-Fe is a model for the complex system UO_2 -
Zircaloy-Steel in weakly oxidizing conditions. The main phase fields
are:

at 1000 °C : $UO_2+ZrO_2+\gamma$ -Fe+ Fe_3Zr
 $UO_2+ZrO_2+Fe_2Zr$
 $UO_2+ZrO_2+Fe_2Zr+\eta$
 $UO_2+ZrO_2+\eta+\alpha$ -Zr(O)

at 1500 °C : UO_2+ZrO_2+melt (Fe-rich)
 $UO_2+ZrO_2+Fe_2Zr$
 UO_2+ZrO_2+melt (Zr-rich)
 $UO_2+ZrO_2+\alpha$ -Zr(O)+ melt (Zr-rich)

at 2000 °C : (U,Zr)O_{2-x}+melt
 Fe-rich melt
 Zr-rich melt

b) Reaction studies:

The vaporization behaviour and the constitution of the melts are extremely dependent on the parameters of investigation. Weight losses by vaporization of Corium E melts are diminished by a slight oxidation. The oxygen partial pressure in the metallic and oxidic melt influences the distribution of the fission products. The rare earth and Sr are observed in the oxidic melt, the platinum metals and most of Mo in the metallic melt. Zr and in some case also Mo are distributed in the metallic as well as in the oxidic phase.

During heating up completely oxidized Corium E liquid phase occur at ~1400 °C. Above ~1900 °C the samples are completely molten. From this melt three phases crystallize:

- two (Fe, Ni)-mixed oxide phases with different Cr-content
- one (U, Zr)O₂ Phase.

In the melting experiments with samples containing Corium+concrete the first melts are observed at 1300 - 1350 °C (melting temperature of concrete). Complete melting occurs between 1700 and 1900 °C. In 5 minutes all the Zry was oxidized by the H₂O and CO₂ of the concrete. In all experiments a separation in one metallic melt (steel) and one oxidic melt (concrete+UO₂+ZrO₂+Fe oxides) are observed.

c) Metallurgical examination of molten rods:

The rods heated up in air or water vapor retained, in contrast to the behaviour in inert atmosphere, up to temperatures of about 2000 °C a stable clad. The rods heated up in water vapor showed a distinct separation between fuel and clad.

Plans for the Near Future

- a) Phase equilibrium studies in the oxygen rich part of the system U-Zr-Fe-O and in the section: $(U_{0.55}Zr_{0.45})$ -steel (1.4550)-oxygen.
- b) Melting experiments with fission products, vaporization studies and experiments to the interaction between Corium and concrete.
- c) Examination of fuel rods heated up in water vapor as well as examination of bundles of fuel rods.

4245 Properties of LWR-Core-Melts and
 Preparation of Corium Samples (RS 200)
 (S. Nazaré, G. Ondracek, B. Schulz, IMF I)

Work Completed

- a) Samples of Corium EX1 were prepared for the measurements of thermal expansion and thermal conductivity in solid state.
- b) Preparation of the phases being present in Corium EX1 (solid state).
- c) Measurement of the thermal expansion and thermal conductivity of Corium EX1

Essential Results

- a) Starting with Zircaloy 4, stainless steel (1.4550), UO_2 , the mixture was melted in ThO_2 -crucibles (400 Torr Argon) in an induction furnace. The following three phases are present in the solidified Corium EX1.
 - An Fe-Cr-Ni-phase
 - An U-Zr-Fe-Cr-Ni-phase, which is a Lavesphase of type $MgCu_2$ (C 15) with a lattice parameter of $6.998 \pm 0.005 \text{ \AA}$
 - An Zr-O-phase

The ingot was chemically analyzed. By powder metallurgical techniques one gets high densified (\approx theoretical density) samples for property measurements. The volume fraction of the several phases were measured with an electronic image analyser.

- b) The above mentioned Fe-Cr-Ni and the Lavesphase were prepared by melting of the constituent elements. The Fe-Cr-Ni-phase is pure, while the Lavesphase contains about 9 Vol.% of a second phase (Fe-Cr-Ni.) Samples of the Lavesphase were prepared by powder metallurgy techniques.
- c) The thermal expansion of solidified Corium EX1 was measured as a function of temperature ($RT < T < 1175$ K). It is nearly linear with a mean linear thermal expansion coefficient of $15.6 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. The thermal conductivity of Corium EX1 was measured up to 1200 K. Extrapolation to the melting point of Corium EX1 ($T_S = 2125$ K) including the decrease of thermal conductivity at the melting point yields a value of 0,15 W/cmK of liquid Corium EX1.

Plans for the Near Future

Preparation of Corium EX1 samples for property measurements > 1200 K.
Measurement of thermal expansion and thermal conductivity of the phases being present in solidified Corium EX1.
Preparation of Corium EX3 samples.

4246 Experiments with Simulated Large Core Melts
(D. Perinic, RBT/IT)

Work Completed and Essential Results

At the beginning of 1976 the established goals of this program were determined. A feasibility study for simulating large core melts has been started. The experiments have the following goals:

- Investigation of combined influences of the thermohydraulics and the reaction behaviour and their influence on the activity release.
- Investigation of the influence of pool depth and circulation on the fission and activation product release.
- Investigation of the penetration of the melting front.
- Investigation of layer and crust formation, boiling and evaporation of the melt.
- Investigation of phases and phase distribution in the melt as they are related to the distribution of fission and activation products.
- Investigation of atmospheric oxidation at the surface of the melt and internal oxidation from the gases released from concrete decomposition.
- Investigation of long time behaviour and possibilities for cooling of the melt within the concrete or in a corecatcher.
- Investigation of formation, diffusion and sedimentation behaviour of aerosols released from the melt.
- Investigation of hydrogen generation and limitation of danger of explosion.
- Investigation of interaction of core melt with various core materials.

To achieve these goals a facility will be needed which can internally heat CORIUM-melts up to the boiling temperature of steel (≈ 2800 °C) in crucibles of concrete and high temperature resistant materials under LWR accident conditions. In addition, the possibility for using this facility for fast breeding reactor melting experiments should be investigated.

A detailed programm schedule has been written, which specifies the work required and the completion time.

The central problem is the simulation of the heating of the core melt. The applicability of the known methods of heating was investigated (arc, resistance, induction, direct electrical heating, plasma, electron beam, laser). It was found that for the experiments of the activity release, oxidation on the surface, crust formation, boiling and evaporation processes only methods are applicable which do not disturb the natural temperature gradients of the surface. These are induction heating and direct electrical heating.

The heating of a large two phase melt by direct induction coupling is possible, but a technical solution for better simulation of heat source distribution in the melt is needed.

Plans for the Near Future

The primary tasks are described below:

- Specification of experimental programs by the participating institutes and divisions
- Selection and investigation of the heating method
- Specification of the melt charge
- Development of crucibles
- Selection and development of measuring techniques
- Specification and development of experimental facilities.
- Computational models for melt circulation, penetration, oxidation behaviour and activity release
- Experimental laboratory and nearby facilities

- Approval and licensing

- Information exchange

The experimental programmes should be specified and the heating method selected by the end of 1976. The feasibility study should be completed by the end of 1977.

- 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 Hydros-
phere Following Major Incidents
- 4311 Investigations on the Interactions of Fission Products and Aero-
sols in LWR-Containments.
Parameter Study with the NAUA Model
(G. Haury, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

Work Completed

A parameter study has been done with the version Mod1-A of the NAUA code to identify those parameters and assumptions which must be investigated experimentally. In the calculations realistic data have been used as far as possible, that were taken from the Rasmussen study and from previous experiments.

The design of the experimental vessel is in progress. The major components of the instrumentations have been ordered.

Essential Results

The parameter study has been most valuable for testing the NAUA model. A modification of the numerical method had to be used in order to be able to calculate the cases with containment spray system. The resulting version Mod1-A was then used for all calculations of the study.

The calculations of the heterogeneous steam condensation showed a very strong dependence of the condensation velocity on the aerosol properties number, size, form and material. The measurement of the condensation velocity will be an important part of the experimental program as well as the determination of the splitting factors for condensation on walls, aerosol and spray droplets. The importance of these experiments is emphasized by the results of the calculations with containment spray, which show an enhanced removal of airborne particles. These results, however, need experimental

verification, because of the many assumptions which were necessary to describe the spray action in the model.

The design of the experimental vessel has advanced so far that the construction will be started. The facility will be useable for measuring physical single processes as well as integral long term aerosol behavior. The problems concerning the instrumentation have been solved. The components have been ordered.

Plans for the Near Future

Until the facility will have been set up and tested, the first experimental series on steam condensation will be calculated in advance and the implementation of the measuring systems will be done. After that the experiments of the first phase of the experimental program (investigation of single processes and verification of model assumptions) 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, J. Hiller, W. Hüschemann, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

Work Completed

In the short range (up to 10 km) six diffusion experiments were carried out using chemical tracers. The tracers were emitted from the meteorological tower at heights of 60 and 100 m; during the last five experiments the tracers were emitted at both heights simultaneously. Automatic sampling stations were operated throughout all these experiments, the last four of which were carried out at night in stable stratification.

In preparation of the studies of long-range diffusion (> 10 km distance), a filling station for tetroons (weighted balloons) has been installed and first tetroon flights have been undertaken.

Essential Results

The evaluation of the diffusion experiments with 60 m emission height supports the results of previous experiments from the same emission height. Further experiments are necessary to establish the σ_z family of curves for 60 m emission height. The diffusion experiment results with 100 m emission height on the other hand, have been published in a comprehensive documentation (KFK 2285 and 2286).

Analysis of the meteorological measurements has revealed conditions which do not fit the usual diffusion model (Gaussian distribution): wind direction shear, turbulence changes with height, precipitation, fog, and low wind velocity. Further analysis of these conditions will help to develop realistic diffusion models.

The final version of the WASH-1400 Reactor Safety Study ("Rasmussen-Study") has been analyzed with respect to the atmospheric dispersion and health effects model. The following features have been incorporated into the computer codes developed in close relation to the draft version:

- realistic model of the buoyant rise of the cloud
- improved health effects model
- improved calculation of the dose rate due to the activity deposited on the ground.

Test calculations show the relative influence of the different exposure pathways, especially the strong influence of the deposited activity.

Plans for the Near Future

The tracer experiments will be continued. In the second half of 1976, these experiments will be concentrated on stable diffusion categories in order to complete the knowledge of the diffusion parameters $\sigma_y(x)$ and $\sigma_z(x)$ for this stratification.

For the investigation of the meso scale (10 - 100 km) diffusion behaviour Tetron experiments are under preparation, which will be done in co-operation with the CEA and parallel to their tracer experiments in the Rhone valley. For this a technique must be developed permitting to trail the Tetrons by Radar through such high distances. Preliminary experiments will be undertaken in the Karlsruhe area.

4312 TUH Modelling of the Diffusion of Pollutants in the Atmosphere
under Varying Conditions in Large Cultivated Regions
(H. Schultz, E. Völz, C.D. Wüneke, TU Hannover)

Work Completed

The particle-in-cell code XPIC for the calculation of the atmospheric dispersion of chemical and radioactive pollutants was extended by additional program parts concerning the vertical windprofile, the boundary conditions at the surface and within the atmosphere and the vertical distribution of the turbulent diffusion coefficients. Furthermore rules were derived for the optimization of cell-dimensions and time intervalls used in the program.

For a point source in a neutral stratified atmosphere the diffusion coefficients K were derived with four methods. These are based on the statistical theory, on Blackadar's mixing length hypothesis, on Wippermann's complete numerical solution of the Navier-Stockes'-Equation and on a solution of this equation with simpler presumptions.

Essential Results

Calculations neglecting the advection showed by comparison with the Gaussian plume model that the code is capable of reproducing correctly the diffusion process inside the plume and at the boundaries.

Using the four methods for the determination of the K-values best agreements with the Gaussian plume model are naturally found with the statistical theory. In the present state the other methods seem to lead to less or the higher dilution.

Plans for the Near Future

The code will be extended in such a way, that the time integral of the concentration of radioactive pollutants can be calculated, and that complex topographies can be included. Additionally the capability of the code will be studied for calculating the dispersion of pollutants from several point sources.

Concerning the solutions of the Navier-Stokes'-Equation and of the mixing length hypothesis the influence of the assumed meteorological parameters shall be investigated and the procedures are to be transferred to other conditions than the neutral diffusion. For the future the task remains to include chemical reactions and to develop a suitable program to derive the wind field data from meteorological observations.

4330 Investigation of the Radiological Impact of Reactor Accidents
under Probabilistic Aspects
(A. Bayer, M. Schückler, INR)

Work Completed and Essential Results

The various models, which are used to calculate the health effects of reactor accidents in the draft and final version of the Rasmussen-Study have been analyzed and compared. Moreover, the various possible presentations of detriments and risks have been investigated and made up. Finally a study has been made to show the various possibilities of

representing detriments and risks with respect to the evaluation of sites.

Plans for the Near Future

The population data that will be needed for the German risk study will be collected and evaluated. The dose factors of the short lived fission products will be evaluated and made up. Finally it is planned to make considerations concerning sensitivity studies.

4400 CONFINEMENT AND ELIMINATION OF THE CONSEQUENCES OF INCIDENTS

4410 Isolation and Removal of Contamination

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

Development of a Cleansing Paste

Work Completed

Different cleansing pastes have been prepared by mixing combinations of HF, HNO₃ and HCl with a hydrofluoric acid resistant, highly dispersed baryte type material. Some surface active additives had been tested with contaminated stainless steel samples during the experiments. Finally the effectiveness has been proved with samples taken from the power stations Obrigheim and Lingen.

Essential Results

Baryte material based pastes show in all experiments and application tests the better effectiveness than pastes based on polyethelene-titanium-oxid mixtures (1.2. Semiannual Report 1975, PNS). The same results are found with samples from nuclear power stations, in which the decontamination results show a tendency to depend from the concentration of the hydrochloric acid. Pastes without hydrochloric acid have similar effectiveness, but the decontamination time is longer about twice as much.

By reduction of the hydrochloric acid concentration in the baryte material based pastes, the attack of the surface by acid corrosion could be minimized.

Because of the absence of the polyethelene powder the thermal stability of the pastes has been improved. Also difficulties in the transportation of the waste waters, from decontaminations with pastes, caused by this powder could be eliminated.

Plans for the Near Future

The chemical development of the decontamination pastes is finished. In cooperation with an industrial company the development of an optimal application technique for the pastes has been started.

Decontamination of Metallic Surfaces with Molten Salts

Work Completed

With a laboratory apparatus decontamination experiments have been carried out with KH_2PO_4 and stainless steel samples taken from the power reactor stations Obrigheim and Lingen. In this context the residual activity on the surface actually present has been determined. As another decontaminating agent sodium peroxide was applied.

After completion of the laboratory experiments a recommendation for the construction of a decontamination apparatus for technical purposes was worked out.

Essential Results

It could be demonstrated, that on the samples from the power reactor stations mainly Co-60 was present. Prior to decontamination the surface activity was about 0,5 to 1,5 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ depending from the type of the sample. After decontamination the residual activity was about 5 % for the Obrigheim samples and about 1 % for the Lingen samples respectively. Decontamination times were two hours for the first and one hour for the latter samples. These times are definitely longer than those gained with stainless steel samples, which have been used in the laboratory experiments. Sodium peroxide shows similar decontamination results as KH_2PO_4 .

Plans for the Near Future

Laboratory experiments with molten salts have been completed. The development of an apparatus for technical purposes has been started in cooperation with an industrial company. Decontamination experiments

necessary in this context will be carried out in the ABRA laboratories.

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

Work Completed

For later comparison with laboratory data, the determination of the distribution profil of the fall-out-plutonium in the soil has been started. At first suitable positions for the extraction of soil samples had to be found. This was a difficult problem, because these positions had to fulfill certain conditions. At the positions selected, the grass had been cut off to a length of 2 to 3 cm and a trench has been digged out (Length: 90 mm, Width: 60 cm, Depth: 60 cm). One of the side walls was adjusted vertically with respect to the surfaces. From this area two centimeter thick layers have been taken out as soil samples.

In the Laboratory these samples have been dried and made up according to the rules of sample preparation. In the various detail procedures one had to work very carefully to avoid any cross contamination of these low-level samples by memory effects or by the formation of aerosols. Finally the samples were sent to the analytical laboratory.

Essential Results

The evaluation of documentated data and the inspection of sample positions in the open field, lead to the selection of ten positions. For sampling the position where selected as to have a type of soil from which no spread of contaminated material could be expected. Samples are taken in that way, that the weight and the thickness of the layer can be directly related to the depths of the layers. Each sample represents a surface area of 15 x 15 cm and has about 3 kg in weight. Preliminary measurements of some of the samples show a Pu-239, 240-concentration as follows:

Depth in the Profil (cm)	Pu-Concentration (dpm/g)
0 - 2	0,029 \pm 0,002
2 - 4	0,024 \pm 0,001
4 - 6	0,011 \pm 0,001
6 - 8	0,007 \pm 0,001

Plans for the Near Future

The field work is continued as long as reproducible informations on the distribution of the fallout-plutonium are available. It is planned to take samples from different soil types, in order to compare the different distribution profiles. With these data the average residence time of PuO₂ will be estimated for the soil layers.

Regarding experimental work, a glove box line is in completion. The start of this work is scheduled for fall 1976.

4420 Techniques of Clearing and Disassembly Work

4421 Development of Methods and Techniques for Decommissioning
and Ultimate Disposal of Nuclear Facilities

(G.W. Köhler, J. Weppner, W. Hennhöfer, RBT/IT)

Work Completed

For planning the conditioning of large reactor components the following studies were made:

- Investigation of the possibilities of dismantling and removing large reactor components from reactor buildings.
- Transport, loading, bagging-in and support of components.
- Supplementation and completion of the plans of conditioning plants.
- Studies of thermal cutting techniques and their application in nuclear plants especially cutting materials of large thicknesses.
- Choice of mechanical cutting tools for hot disassembly cells.

Essential Results

The possibilities of dismantling and removing large components from modern PWR and BWR plants were studied with respect to the problems arising from the activation and contamination.

Various possibilities of shipment and loading of large components and their bagging into the conditioning plant and support in the hot disassembly cell were investigated and the pros and cons of the several techniques were discussed.

The design drafts of conditioning plants were completed by entering the necessary auxiliary rooms.

Concerning the "in situ conditioning" investigations were made, to find out the best places for the conditioning plant in a power reactor site.

Two thermal disassembly techniques, i.e., autogenous torch cutting and plasma fusion cutting, which lend themselves to the disassembly of reactor components, were examined in more detail and investigated especially with respect to the conditions and constraints of application as cutting devices of heavy reactor components with large wall thicknesses.

Mechanical disassembly tools were selected which are particularly suitable for use in a hot disassembly cell.

Plans for the Near Future

In the next six months, an overall analysis of safe decommissioning and ultimate disposal will be made, to compile a summary of all results achievable in Germany and in other countries.

Beyond, that summary will figure out those problems which are still unsolved and so it will also constitute a basis for R&D efforts still needed.

DETAILLIERTE

BERICHTE

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

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

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

Zur schnellen Abscheidung von Spaltjod und radioaktiven Schwebstoffen aus der Atmosphäre von Reaktorsicherheitsbehältern können Störfall-Umluftfilter eingesetzt werden. Diese Filter sollen sowohl nach kleinen Betriebszwischenfällen mit relativ geringer Aktivitätsfreisetzung als auch nach großen Störfällen betrieben werden.

Untersuchung zur Druckabhängigkeit des Abscheidegrades eines Störfall-Umluftfilters

Die Versuche zur Ermittlung der Druckabhängigkeit der Abscheideleistung von Jod-Sorptionsfiltern wurden fortgesetzt. Wegen der geringen zulässigen Toleranzen bei der Einhaltung der wesentlichen Parameter mußten die Experimente am technischen Filterprüfstand durchgeführt werden.

Da die benötigte Menge an Jod-Sorptionsmaterial in diesem Fall relativ groß ist, wurde aus Kostengründen eine Materialfüllung AC 6120 in mehreren Versuchsreihen bei konstanter relativer Luftfeuchte von 70 %, Temperaturen von 30 und 120°C und verschiedenen Drücken eingesetzt. Die Meßreihe bei 120°C beginnt wegen des bei dieser Temperatur bereits hohen Wasserdampf-Partialdruckes bei 2 bar. In Tab. 4111-1 sind die Ergebnisse aufgetragen. Eine Verringerung der Abscheideleistung bei steigendem Druck ist deutlich erkennbar.

Materialuntersuchung, Langzeitbeständigkeit

Die unter GaU-Bedingungen möglichen Betriebszustände eines Störfall-Umluftfilters wurden in KFK 2195, S. 101, wiedergegeben. Bei normaler Funktion des Filters, einem Durchsatz von 20.000 m³/h und einer Abscheidung von 25 %

des Spaltjodes und 0,5 % der Feststoffe im Filter (Angabe in % vom Core-Inventar) werden Temperaturen zwischen 160 und 200°C erreicht. Diese Bedingungen können mit dem Filtermaterial AC 6120 beherrscht werden.

Tab. 4111-1: Untersuchungen zur Druckabhängigkeit des Abscheidegrades

Material : AC 6120, eine Füllung
 Durchsatz : 800 m³/h
 Verweilzeit : 0,2 s
 rel. Feuchte: 70 %
 Prüfmedium : ca. 5 mg CH₃J + 1 mCi CH₃¹³¹J

Temperatur [°C]	Druck [bar]	Abscheidegrad [%]
30	1	99,5 +)
30	3	99,4
30	5	97,4 +)
120	2	99,998 ⁺)
120	5	99,95

+) Mittelwert aus mehreren Versuchen

Bei einem Störfall einer Umluftfilteranlage, z. B. beim Versagen des Ventilators in einem Zeitraum von 2 - 10 Stunden nach der Spaltproduktfreisetzung, kann aufgrund der Zerfallswärme der abgeschiedenen Radioisotope jedoch eine Grenztemperatur überschritten werden, oberhalb derer eine relativ schnelle Zersetzung der Imprägnierung des AC 6120 und damit ein erheblicher Verlust an Abscheideleistung eintritt. Unter den bereits angegebenen sehr pessimistischen Annahmen zur Filterbelastung durch abgeschiedene Spaltstoffe und einer Kaminhöhe des Störfallfilters von 20 m wird bei ausschließlicher Wärmeabfuhr durch Thermokonvektion eine obere Grenztemperatur von 300°C im Filter erreicht. Es wurden Untersuchungen zum Langzeitverhalten verschiedener anorganischer Jod-Sorptionsmaterialien bis zu dieser Temperatur durchgeführt.

Um den Einfluß von Zersetzungsprozessen deutlich erkennen zu können, wurden Einwirkungszeiten von 5 h (Mindestzeit zur Vorkonditionierung) und ca. 100 h gewählt. Da eines der untersuchten Materialien aus Molekularsieben besteht und die Gitterstruktur von Molekularsieben durch erhitzten Wasserdampf zerstört werden kann, wurde der im Sicherheitsbehälter und damit in der Filterzuluft größtmögliche Wasserdampf-Partialdruck eingestellt. In Tab. 4111-2 sind die Ergebnisse der Abscheidungsuntersuchungen nach Einwirkung von Heißdampf bei höheren Temperaturen und Druck wiedergegeben.

Tab. 4111-2: Abscheideverhalten von AC 6120 und Ag-Molsieben nach längerer Einwirkung von Dampf bei erhöhter Temperatur und Druck

Prüfmedium : ca. 1 mg CH₃J/g Sorptionsmaterial mit ca. 1 mCi CH₃¹³¹J
 Durchsatz : ca. 440 l/h
 Medium : Heißdampf unterschiedlicher Feuchte
 Nachströmzeit: 2 h
 Einleitzeit : 5 min

Sorptionsmaterial	Temperatur [°C]	Taupunkt- Temperatur [°C]	Vorströmzeit [h]	Druck [bar]	Abscheidegrade in %	
					Bett-Tiefe in cm	
					2,5	5,0
					Verweilzeit in s	
					0,1	0,2
AC 6120	300	151	5	5	82,4	99,5
AC 6120	300	151	96	5	18,6	39,2
Ag Molsieb	150	105	5	1,2	99,24	99,99
"	150	105	96	1,2	99,90	99,99
"	160	151	5	5	96,0	99,77
"	160	151	96	5	95,88	99,75
"	160	151	96	5	94,77	99,66
"	300	151	5	5	97,0	99,90
"	300	151	5	5	98,5	99,88
"	300	151	5	5	97,6	99,85 +)
"	300	151	96	5	83,9	97,4

+) 95 h Nachströmzeit

Bei 300°C zeigte AC 6120 nach 95 Stunden langer Einwirkungszeit von Heißdampf mit der für einen Störfall maximalen Taupunkt-Temperatur von 150°C ein starkes Nachlassen des Abscheidegrades von 99,5 auf 39,2 %. Unter gleichen Bedingungen wurde bei der Prüfung eines Molsiebes in der Silberform eine Veränderung der Abscheideleistung von 99,9 auf 97,4 % festgestellt. Zur Herstellung dieser Molsieb-Formkörper wurde ein anderer Binder benutzt als bei dem in KFK 2262 auf S. 110 angegebenen Material, das unter gleichen Bedingungen ein starkes Absinken der Abscheideleistung zeigte.

Mit dem vorliegenden Molsieb können im Gegensatz dazu auch nach langer Einwirkungszeit von Heißdampf hohe Abscheidegrade erreicht werden.

Filterwirksamkeit von Störfall-Umluftfiltern

Problemstellung

Für die Situation in einem Containment nach einem GaU sind Berechnungen durchgeführt worden, die Aussagen über Druck, Temperatur und Aktivitätsfreisetzung machen. Diese Freisetzung muß, um Leckagen in die Umgebung zu verhindern, schnell reduziert werden. Dabei ist besonders die Reduzierung der Jodaktivität zu berücksichtigen. Dies kann z. B. in einem gewissen Rahmen durch Spraysysteme geschehen. (K. Köberlein, Untersuchungen zur Wirksamkeit eines Gebäudesprühsystems bei der Auswaschung von Jod-131 aus der Containmentatmosphäre nach einem Kühlmittelverluststörfall bei DWR (1975) unveröffentlicht). Besser ist die Kombination von Störfall-Umluftfiltern mit Spraysystemen, die nacheinander ablaufen.

Für das Störfall-Umluftfilter wurde die Filterwirksamkeit unter bestimmten Annahmen berechnet und mit der Wirksamkeit von Spraysystemen nach dem oben angegebenen LRA-Bericht verglichen.

Parameterbereich

Für alle Rechnungen wurde ein Gebäudevolumen von 60.000 m³ angenommen.

Das Jod wird z. Z. $t = 0$ nach dem Störfall ohne Zeitverzögerung freigesetzt. Die Jodmenge wird zwischen 5 und 25 % variiert. Beide Bedingungen dürfen als sehr konservativ betrachtet werden, da eine verzögerte Freisetzung zu kleineren Dosiswerten und leichter beherrschbaren Bedingungen für die Filteranlagen führen.

Der Durchsatz durch das Störfall-Umluftfilter wurde im Bereich 5.000 bis 30.000 m³/h variiert, wobei mit einer stetigen Vermischung der Filterabluft

mit der Containmentatmosphäre gerechnet wird.

Für das Jodfilter wurde ein Abscheidegrad von 90 % angenommen. Dieser Wert ist leicht erreichbar. Für ein Umluftfilter ist auch mehr nicht erforderlich, da die Filterwirksamkeit nur unwesentlich verbessert wird, aber auf der Rohluftseite eine wesentliche Erhöhung der Dosisleistung und der Gesamtdosis durch eine höhere Aktivitätskonzentration auf der ersten Filterschicht erfolgt.

$$\text{Filterkonstante } \lambda = \frac{\dot{V}}{V} \cdot \eta$$

\dot{V} = Volumenstrom durch das Filter

V = Gebäudevolumen

η = Abscheidegrad

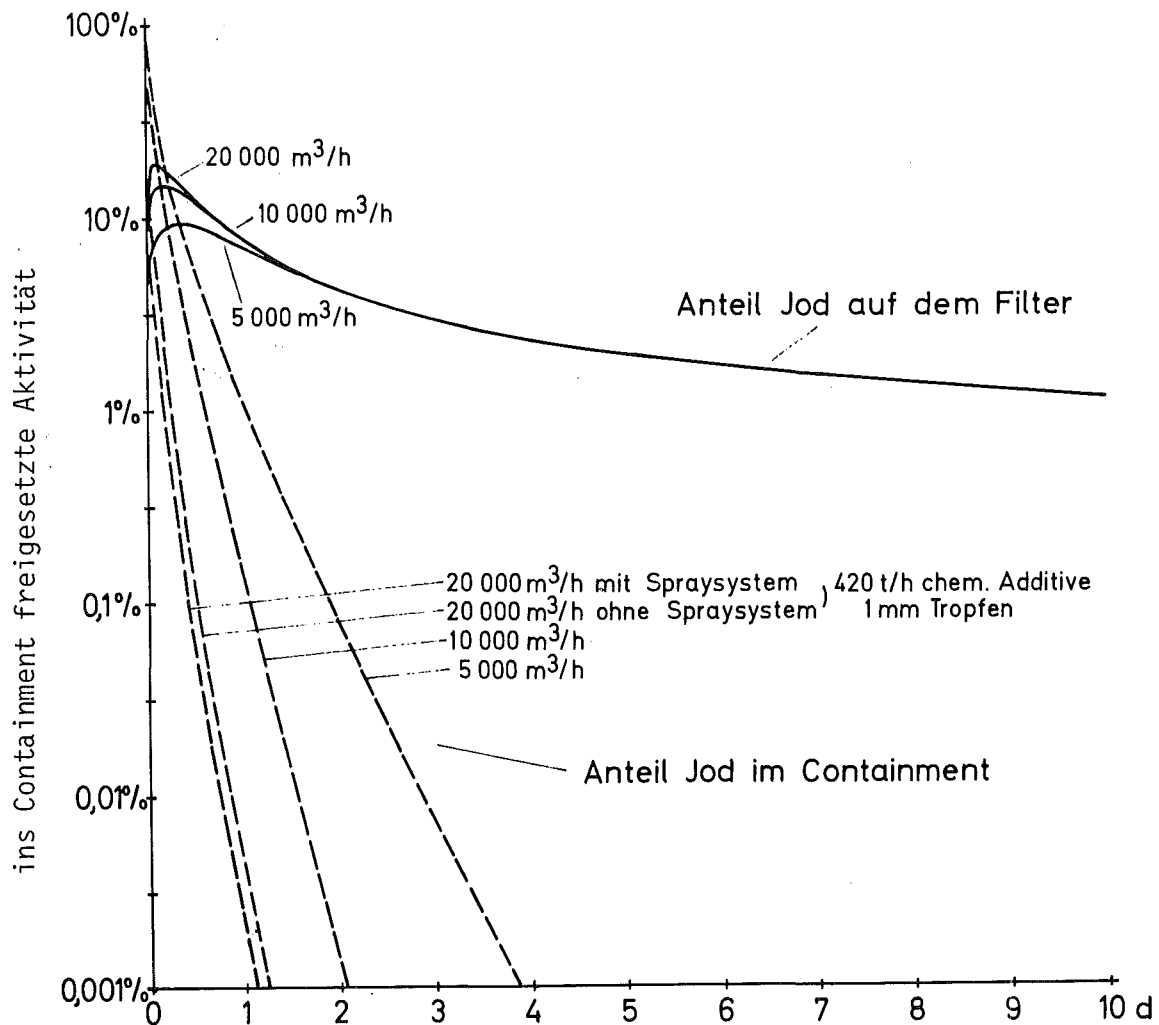


Abb. 4111-1: Vergleich Störfall-Umluftfilter Spraysysteme

Eine Verbesserung des Abscheidegrades von 90 auf 99 % ergibt eine Verbesserung der Filterkonstanten um 10 %.

Vergleich mit Spraysystemen

Ein Störfall-Umluftfilter erreicht bei 20.000 m³/h eine Filterkonstante von ca. 0,3 h⁻¹ über lange Betriebszeiten. Hierbei gelten diese Filterkonstanten auch für Jodverbindungen wie z. B. Methyljodid.

In dem zuvor zitierten Bericht des LRA (München TU) wurde die Wirksamkeit von Spraysystemen theoretisch untersucht.

Dabei liegen die vergleichbaren Auswaschkonstanten bis auf wenige Ausnahmen weit unter den Werten von Störfall-Umluftfiltern. Diese Ausnahmen sind bei Verwendung extrem hoher Wassermengen mit chemischen Additiven gegeben. Aber auch diese Kombination hat mehrere Nachteile, denn unabhängig von Korrosionsproblemen werden:

1. Jodverbindungen nicht mit so hohen Auswaschkonstanten in der Containment-Atmosphäre abgereichert. Es wurde in den Rechnungen des LRA nur elementares Jod berücksichtigt.
2. Die höheren Auswaschkonstanten wurden nur für 2 h angenommen.
3. Es werden keine Aussagen über Jod-Desorption im Sumpf gemacht, die bei Überschreiten der Gleichgewichtskonzentrationen eintreten muß und verzögert doch wieder zur Freisetzung führt.
4. Es wurde gerechnet, als ob dauernd Frischwasser als Spraywasser eingebracht wird.

Schlußfolgerungen

Das Filtermaterial von Störfall-Umluftfiltern sollte aufgrund von Berechnungen im unbeladenen und beladenen Zustand bis zu ca. 10⁹ rad untersucht werden, um Aussagen über die Strahlenbeständigkeit bei hohen Dosen und Dosisleistungen zu erhalten. (Bericht in Vorbereitung).

Störfall-Umluftfilter können entweder allein oder in Verbindung mit Spraysystemen nach deren Einsatz angewandt werden. Spraysysteme bringen kurzzeitig unter bestimmten Voraussetzungen hohe Reinigungswerte, aber bei Zeiten größer 1 bis 2 Stunden verlieren sie ihre Wirksamkeit, da Methyljodid und org. Jodverbindungen mit Spraysystemen ohne Zusatz von aggressiven Chemikalien nicht wirksam ausgewaschen werden können.

Eine Jod-Konzentration von 10 % des Ausgangswertes (Methyljodidanteil nach RSK-Richtlinien für DWR) kann daher allein durch Spraysysteme nicht unterschritten werden. Der Zeitraum größer 2 Stunden ist nur mit Störfallfiltern abzudecken, die eine langdauernde Reinigungseffektivität über Wochen haben können und keine Desorption zeigen.

Für alle Berechnungen wurden folgende Jodisotope berücksichtigt:

Isotop	Halbwertszeit
J-130	12,36 h
J-131	8,04 d
J-132	2,38 h
J-133	20,8 h
J-134	52,0 min
J-135	6,59 h

Die höheren Jodisotope sind so kurzlebig, daß sie keinen nennenswerten Beitrag zur Containment- und Filterbelastung erbringen.

4112-1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Jod-Abscheidung im aktiven Head end-Auflöserabgas einer WA

(J. Furrer, R. Kaempffer)

Untersuchungen zur Eignung des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H₁, das zur Abscheidung des in den Auflöserabgasen auftretenden Spaltjodes in einer WA verwendet werden soll, wurden im aktivem Head end-Abgas vorgenommen. Während der Auflösung von Brennelementen mit einem mittleren Abbrand von 5.000 MWd/t U wurden das gesamte Auflöserabgas im Zeitraum der Einzeluntersuchungen über das Jod-Sorptionsfilter mit dem hochimprägnierten Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H₁ geleitet. Durch Umschaltung konnte das Auflöserabgas vor und hinter der NO₂-Absorptionskolonne entnommen werden. Insgesamt wurden acht Versuche durchgeführt, wobei bei drei Versuchen der Anschluß des Jodfilters hinter dem Kondensator des Auflösers vorgenommen wurde.

Vor und hinter dem Jod-Sorptionsfilter unter Test, das zweistufig aufgebaut wurde, befanden sich Probenahmestellen (Roh- und Reingasseite) zur Überwachung der Abscheideleistung. Zur Erhöhung der ¹³¹J-Aktivität im Abgas und Lösungen wurden zusammen mit lang gekühlten auch kurzgekühlte Brennelemente aufgelöst. Um eine hohe Beladung der einzelnen Testbetten zu erreichen, wurde zusätzlich während der Auflösungen eine Lösung von K¹²⁷J der Brennelementlösung zugesetzt.

Jede Probenahmestelle bestand aus vier aufeinanderfolgenden Betten aus AC 6120 mit einer Bett-Tiefe von 2,5 cm. Die Verweilzeit des Abgases betrug 0,6 s.

Die insgesamt gemessenen Abscheidegrade werden in tabellarischer Form in Tab. 4112-1 aufgeführt.

Tab. 4112-1: Abscheidung von Jod aus dem Auflöserabgas der Wiederaufarbeitungsanlage SAP Marcoule durch AC 6120/H₁

Bett-Tiefe: 35 cm; Temperatur des Abgases und des Test-Bettes: 150°C;
 Verweilzeit: 1,6 s. Konzentration des Jodes im Auflöserabgas, gemittelt über die Auflöseperiode: $\sim 4,5 \text{ mg/m}^3$

Versuchs-Nr.	Beladungszeit [h]	Abgas-Volumen [m ³]	K ¹²⁷ J Zugabe zur Auflöserlösung [g]	Position des Testbettes zur NO ₂ -Absorptionskolonne	Abscheidegrade für ¹³¹ J [%]
1	2	3	44,5	hinter	99,998
2	7 (9) ⁺	10,5	42	vor	99,9992
3	6,5 (15,5)	9,75	52	vor	99,994
4	6,5 (21,75)	9,4	0	hinter	99,995
5	8,5	12,75	52	hinter	99,96
6	8,5 (17,0)	12,75	52	hinter	99,996
7	6,75(23,75)	10,1	52	vor	99,999
8	7,0 (30,75)	10,5	52	hinter	99,994

⁺) eingeklammerte Werte: kumulierte Beladungsdauer aufeinanderfolgende Beladep perioden des gleichen Test-Filters

Die Differenz der Durchlässigkeiten 2×10^{-3} und 8×10^{-4} von $1,2 \times 10^{-3}$ liegt innerhalb der Versuchsgenauigkeit. Der Vergleich der Abscheidegrade von AC 6120/H₁ beim Einsatz vor bzw. hinter der Absorptionskolonne zeigt keine Abhängigkeit von der Vorbehandlung der Auflöserabgase.

Vergleich der Kapazitätsausnutzung bei Jod-Sorptionsmaterialien für Wiederaufarbeitungsanlagen

J. Furrer, R. Kaempffer

Bei der Jod-Rückhaltung aus dem Abgas von Wiederaufarbeitungsanlagen durch Überführung des Spaltjodes in eine Silberverbindung ist der Verbrauch an Silber ein kostenbestimmender Faktor. Es muß ein Material zur Chemisorption

verwendet werden, das eine optimale Ausnutzung des vorhandenen Silbers gewährleistet. In KFK 2165 wurde über Kapazitätsuntersuchungen mit dem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H₁ in Luft bei 120 und 150⁰C und 1, 2,5 und 5,0 Vol.% Anteilen Stickstoffdioxid berichtet. Zum Vergleich der Silberausnutzung wurde das in den USA zur Jodsorption aus Abgasen angebotene "Type III Silver Zeolithe" von CT Nuclear Labortesten unter entsprechenden Bedingungen unterworfen.

Diese Silberform eines Molekularsiebes vom 13 X Typ wird wie AC 6120 kugelförmig mit Kugeldurchmessern von 1 - 2 mm hergestellt. Bei Behandlung mit konzentrierter Salpetersäure bildet sich eine gallertartige Masse. Bei kurzzeitigem Anströmen mit 5 Vol.% NO₂ in Luft wird noch keine merkliche Zersetzung des Materials festgestellt. Der Silbergehalt beträgt 34 ^w/_o.

Durch den hohen Silberanteil der Molekularsiebe mußten große Mengen an gasförmigem, getracertem elementarem Jod zur Bilanzierung und Bestimmung der Silberausnutzung eingesetzt werden. Mit dem im LAF II entwickelten modifizierten Einleitungsverfahren für elementares Jod konnten diese Anforderungen beherrscht werden.

In Tab. 4112-2 bis 4112-6 werden Kapazitätsausnutzungen in den Einzelbetten für eine für die große Wiederaufarbeitungsanlage vorgeschlagene Bett-Tiefe angegeben.

Tab. 4112-2: Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, 0 % NO₂ im Trägergas bei 150°C

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: Silber-Zeolith (34 ^W/₀ Ag-Gehalt), CT-Nuclear, 10 - 16 mesh

Trägergas: Luft + 0 % NO₂, Taupunkt-Temperatur: 30°C

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

Beladung : 36,2 g J₂, vermischt mit 1,41 mCi ¹³¹J₂

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	17,3	6273	1	6273	5333	56,4
13,1	33,6	12162	2	5889	5006	53,0
19,7	48,8	17667	3	5505	4679	49,5
26,3	62,9	22802	4	5135	4365	46,2
32,9	75,6	27377	5	4575	3889	41,1
39,5	86,5	31329	6	3952	3359	35,5
46,0	94,7	34294	7	2965	2520	26,7
52,6	99,1	35894	8	1600	1360	14,4
59,2	99,9992	36199	9	306	260	2,8
65,8	99,9999	36200	10	0,3	0,3	3 · 10 ⁻³
72,3	> 99,9999 ⁺⁾	-	11	-	-	-
78,9	> 99,9999 ⁺⁾	-	12	-	-	-
85,5	-	-	-	-	-	-
92,1	-	-	-	-	-	-
100,0	-	-	-	-	-	-

⁺⁾ Nachweisgrenze unterschritten

Tab. 4112-3: Hochbeladungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, 1 % NO₂ im Trägergas bei 150°C

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: Silber-Zeolith (34 ^W/₀ Ag-Gehalt), CT-Nuclear, 10 - 16 mesh

Trägergas: Luft + 1 % NO₂, Taupunkt-Temperatur: 30°C

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

Beladung : 18,1 g J₂, vermischt mit 1,41 mCi ¹³¹J₂

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	28,1	5082	1	5082	4323	45,7
13,1	52,6	9525	2	4438	3773	39,9
19,7	73,3	13265	3	3740	3179	33,6
26,3	88,6	16042	4	2778	2361	25,0
32,9	97,4	17624	5	1581	1344	14,2
39,5	99,897	18081	6	458	389	4,1
46,0	99,9999	18100	7	19	16	0,07
52,6	> 99,9999	-	8	-	-	-
59,2	> 99,9999	-	9	-	-	-
65,8	-	-	10	-	-	-
72,3	-	-	11	-	-	-
78,9	-	-	12	-	-	-
85,5	-	-	13	-	-	-
92,1	-	-	14	-	-	-
100,0	-	-	15	-	-	-

Tab. 4112-4: Hochbelastungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, 2,5 % NO₂ im Trägergas bei 150°C

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: Silber-Zeolith (34 ^W/_O Ag-Gehalt), CT-Nuclear, 10 - 16 mesh

Trägergas: Luft + 2,5 % NO₂, Taupunkt-Temperatur: 30°C

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

Beladung : 18,1 g J₂, vermischt mit 1,46 mCi ¹³¹J₂

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	29,0	5256	1	5256	4468	47,3
13,1	52,6	9522	2	4266	3626	38,4
19,7	71,7	12976	3	3454	2936	31,1
26,3	86,4	15635	4	2658	2260	23,9
32,9	95,8	17349	5	1715	1458	15,4
39,5	99,6	18033	6	684	581	6,1
46,0	99,998	18099	7	66	56	0,6
52,6	99,9995	18100	8	2,7 · 10 ⁻⁴	2 · 10 ⁻⁴	0,002
59,2	> 99,9995	-	9	-	-	-
65,8	> 99,9995	-	10	-	-	-
72,3	-	-	11	-	-	-
78,9	-	-	12	-	-	-
85,5	-	-	13	-	-	-
92,1	-	-	14	-	-	-
100,0	-	-	15	-	-	-

Tab. 4112-5: Hochbelastungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, 2,5 % NO₂ bei 150°C

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: Silber-Zeolith (34 ^W/_O Ag-Gehalt), CT - Nuclear, 10 - 16 mesh

Trägergas: Luft + 2,5 % NO₂, Taupunkt-Temperatur: 30°C

Vorströmzeit: 20 h, Beaufschlagung: 4 h, Nachströmzeit: 16 h

Beladung : 36,2 g J₂, vermischt mit 1,44 mCi ¹³¹J₂

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	16,8	6085	1	6085	5173	54,7
13,1	33,3	12041	2	5956	5063	53,6
19,7	48,2	17441	3	5400	4590	48,6
26,3	62,0	22463	4	5022	4269	45,2
32,9	74,4	26944	5	4481	3809	40,3
39,5	84,8	30711	6	3767	3202	33,9
46,0	92,8	33614	7	2903	2467	26,1
52,6	97,9	35452	8	1838	1562	16,5
59,2	99,89	36163	9	711	604	6,4
65,8	99,9998	36200	10	40	34	0,4
72,3	> 99,9999	-	11	-	-	-
78,9	> 99,9999	-	12	-	-	-
85,5	-	-	13	-	-	-
92,1	-	-	14	-	-	-
100,0	-	-	15	-	-	-

Tab. 4112-6: Hochbelastungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung, 5 % NO₂ bei 150°C

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: Silber-Zeolith (34 ^w/_o Ag-Gehalt), CT - Nuclear, 10 - 16 mesh

Trägergas: Luft + 5 % NO₂, Taupunkt-Temperatur: 30°C

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

Beladung : 18,1 g J₂, vermischt mit 1,57 mCi ¹³¹J₂

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	21,6	3909	1	3009	3323	35,2
13,1	44,0	7972	2	4063	3454	36,5
19,7	63,6	11518	3	3546	3014	32,0
26,3	81,0	14657	4	3139	2668	28,2
32,9	93,6	16949	5	2292	1948	20,6
39,5	99,6	18028	6	1079	917	9,7
46,0	99,9994	18100	7	72	61	0,6
52,6	> 99,9995 ⁺)	-	8	-	-	-
59,2	> 99,9995 ⁺)	-	9	-	-	-
65,8	-	-	10	-	-	-
72,3	-	-	11	-	-	-
78,9	-	-	12	-	-	-
85,5	-	-	13	-	-	-
92,1	-	-	14	-	-	-
100,0	-	-	15	-	-	-

⁺) Nachweisgrenze unterschritten

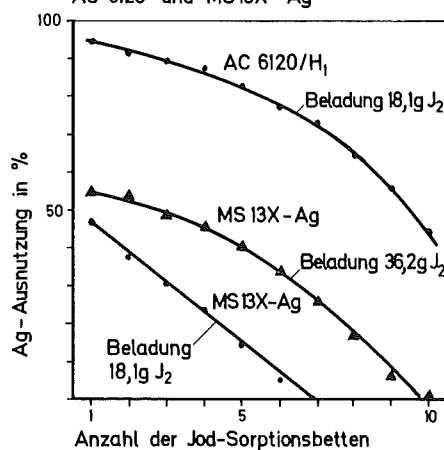
In KFK 2130 und KFK 2195 wurden die mit AC 6120/H₁ erzielten Versuchsergebnisse angegeben, die bei Hochbeladungsversuchen eine Silberausnutzung von 75 bis 94 % bei Beaufschlagung mit gasförmigem elementarem Jod zeigen.

Aus den Tab. 4112-2 bis 4112-6 sind die für das "Type III Silver Zeolithe" bei Hochbeladungsversuchen ermittelten Werte zu entnehmen. Das Molekularsieb vom Typ Linde 13 X Ag hat eine erheblich niedrigere Silberausnutzung. Unter gleichen Bedingungen reagierten maximal nur 35 - 47,3 % des im Molekularsieb gebundenen Silbers mit dem zugegebenen getracerten Jod. Bei Verdoppelung des J₂-Dampfdruckes im Trägergas wurde maximal 56,4 % des Silbers umgesetzt.

In Abb. 4112-1 werden drei Beladungskurven gezeigt. Die Jod-Sorptionsmaterialien wurden in 2,5 Vol.% NO₂/Luft-Gemischen bei 150°C mit elementarem Jod beladen. Wegen des höheren Silbergehaltes des Molekularsieves (34 W/o Ag gegen 12 W/o Ag bei AC 6120) wurde die aufgegebene Jodmenge in einem Versuch verdoppelt. Zum Vergleich der Silberausnutzung dienten die ersten zehn Einzelbetten.

Aus Abb. 4112-1 ist die beim Molekularsieb wesentlich geringere Ausnutzung des vorhandenen Silbers zu entnehmen.

Abb. 4112-1: Ag-Ausnutzung als Funktion der Bett-Tiefe, im Vergleich die Jod-Sorptionsmaterialien AC 6120 und MS13X-Ag



Betriebsverhalten eines Jod-Sorptionsfilters zur Reinigung der Auflöserabgase der WAK

J.G. Wilhelm, J. Furrer (GfK); E. Schultes (GWK)

In der WAK wurde im September 1975 aufgrund von behördlichen Auflagen ein Jod-Sorptionsfilter mit AC 6120 zur betriebsmäßigen Reinigung des Auflöserabgases installiert. Die Abb. 4112-2 zeigt ein Fließschema des WAK-Abgasreinigungssystems und der Probenahmestellen zur Überwachung des Jod-Sorptionsfilters.

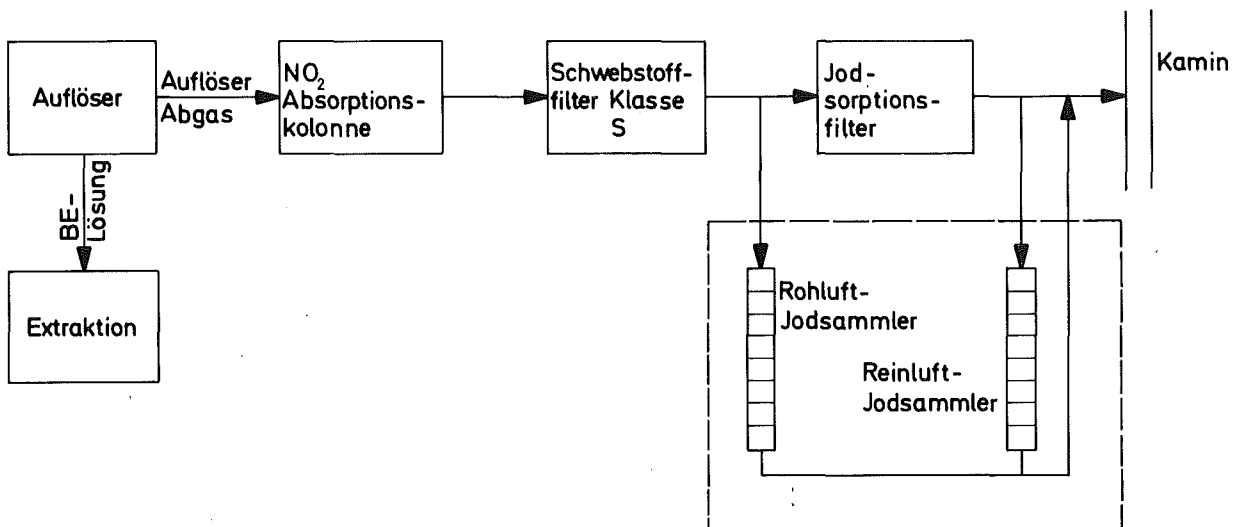


Abb. 4112-2 Fließbild des WAK Auflöser-Abgassystems

Das Filterbett bestand aus 26 kg des niedrig imprägnierten AC 6120 (7 % Ag), da zu diesem Zeitpunkt ausreichende Mengen des hochimprägnierten AC 6120/H₁ noch nicht verfügbar waren. Bei einem mittleren Volumenstrom des Auflöserabgases von 148 m³/h betrug die Verweilzeit 1,0 ± 0,4 s bei einer Betriebstemperatur von 130°C. Die NO_x-Konzentration im Abgasstrom lag, gemittelt über die Gesamtzeit eines Auflöseprozesses, bei ≤ 2 Vol.%; kurzzeitig auftretende Konzentrationsspitzen bis zu 20 Vol.% an Stickoxiden sind anzunehmen. Während des Einsatzes des Jod-Sorptionsfilters wurde LWR-Brennstoff mit einem mittleren Abbrand von 25.000 MWd/t U aufgearbeitet. Das im Brennstoff enthaltene Spaltjod wurde zu mehr als 99,5 % in das Dissolverabgas überführt. In der feed-Lösung konnten am Ende des Auflösevorganges nur Anteile < 0,5 % des theoretischen ¹²⁹J-Gehaltes des Brennstoffes (berechnet

mit dem ORIGEN-Code) gefunden werden (Privatmitteilung H. Schüttelkopf, persönliche Mitteilung).

Der dem Jod-Sorptionsfilter vorgeschaltete Wäscher wurde neutral bis 3 m salpetersauer gefahren und erreichte einen Abscheidegrad für ^{129}J von ca. 1 %. Die Wäscherlösung wurde chargenweise in den Auflöser zurückgeführt.

Der Dekontaminationsfaktor des Jod-Sorptionsfilters wurde aus dem Verhältnis der ^{129}J -Konzentration in Roh- und Reingas bestimmt und lag während der gesamten Einsatzzeit des Jodfilters von 120 Tagen zwischen $(1,0 \pm 0,4) \cdot 10^4$ und $(2,0 \pm 0,5) \cdot 10^4$. Am Ende des Filterbetriebes war ein Spaltjodgemisch mit 172 mCi ^{129}I , entsprechend einer Gesamtjodmenge von ca. 1,3 kg J_2 abgeschieden worden, das entspricht ca. 60 % der Kapazität des Jod-Sorptionsfilters.

Die Abb. 4112-3 zeigt die Abscheidungsprofile eines Roh- und Reingasprobensammlers zur Überwachung des in die WAK eingebauten Jod-Sorptionsfilters. Aufgetragen wurde die ^{129}I -Aktivität gegen die Nr. der aufeinanderfolgenden Einzelbetten. Die Probensammler wurden mit jeweils 8 aufeinanderfolgenden 2,5 cm tiefen Filterbetten aus AC 6120 ausgestattet und bei $110 \pm 10^\circ\text{C}$ mit einem Teilstrom von ca. 440 l/h beaufschlagt. Die Verweilzeit des Auflöserabgases in einem Probensammler betrug ca. 0,8 s. Im Abscheidungsprofil des Rohgas-Probensammlers in Abb. 4112-3 können deutlich zwei verschiedene Jodverbindungen unterschieden werden, die mit stark abweichender Abscheideleistung zurückgehalten werden. Im Reingas tritt nur noch die schwerer abscheidbare Komponente auf. Zum Zeitpunkt dieser Probenahme (Abb. 4112-3) war das Jod-Sorptionsfilter mit ca. 70 mCi ^{129}J entsprechend 24 % der theoretischen Kapazität beladen. Während der Beaufschlagungsdauer der abgebildeten Probensammler wurden 420 kg Brennstoff mit einem theoretischen ^{129}J -Gehalt (nach ORIGEN-Code) von 12 mCi aufgelöst.

Entsprechend einer Auflage der Genehmigungsbehörde wurde das Jod-Sorptionsfilter über die gesamte Betriebsdauer lückenlos überwacht, die Probensammler wurden nach der Auflösung von 3 bis 5 Brennstoff-Chargen zu jeweils 140 kg Brennstoff ausgewechselt. Nachdem ca. 60 % des Silbers des Jod-Sorptionsfilters durch Spaltjod umgesetzt worden waren, wurde es auflagegemäß ausgebaut. Die Oberflächendosisleistung des Filters betrug am Ende der Einsatzzeit 80 mrem/h.

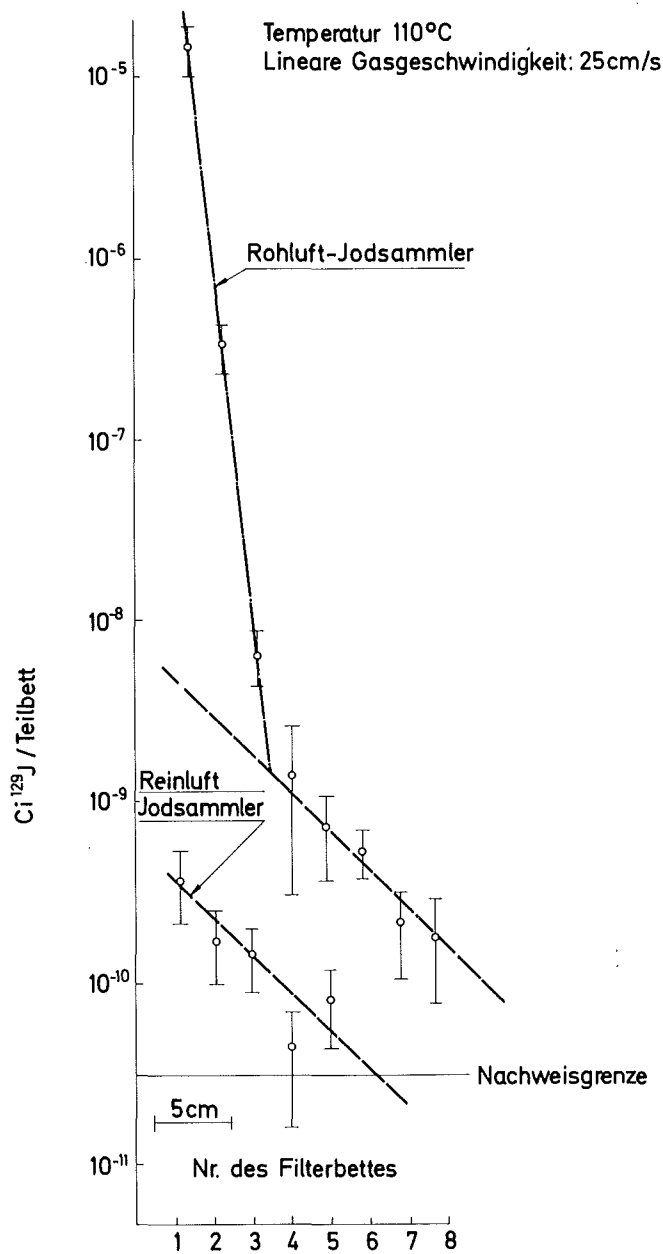


Abb.4112-3 Aktivitätsprofil von ¹²⁹J in AC 6120 Jodsammlern in der Roh- und Reinluft des Auflöserabgasfilters der WAK

Das Jod-Sorptionsfilter wurde also nach einer Einsatzzeit von 120 d demon-
tiert. Das AC 6120 zeigte eine ausgezeichnete Rieselfähigkeit und nur ge-
ringe gelbe und graue Verfärbung.

Sämtliche ¹²⁹J-Bestimmungen zum WAK-Jod-Sorptionsfilter wurden durch Direkt-
messung unter Anwendung eines Low Energy Photon Spectrometers (LEPS) durch-
geführt, nachdem die Genauigkeit und Brauchbarkeit des Verfahrens durch Ver-
gleich mit den Ergebnissen der Aktivierungsanalyse nachgewiesen worden war.

Die Übereinstimmung der Meßwerte mit dem nach dem ORIGEN-Code berechneten ^{129}J -Ausbeuten innerhalb einer Toleranz von 10 % kann als experimentelle Bestätigung des Meßverfahrens angesehen werden.

4112-2 Entwicklung und Bau einer Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen
(K. Jannakos, W. Apenberg, H. Hoffmann, H. Jochim, W. Lange, W. Mendel, H. Mock, G. Potgeter, G. Zabel, RBT-IT; J. Furrer, J.G. Wilhelm, LAF II)

1. Prototyp-Abgasfilteranlage PASSAT

Das RI-Fließbild der PASSAT (Nenndurchsatz $250 \text{ Nm}^3/\text{h}$) sowie die Spezifikationen und Auslegung der Hauptkomponenten und der Überwachungs- und Regelungstechnik wurden ausgearbeitet. Mit der Anfrage zur Beschaffung von Komponenten bzw. der Anlage wurde begonnen.

Das Stahlgerüst für die Befestigung der Komponenten der Filteranlage mit der Raumeinteilung in Filterzelle, Geräte- und Schleusenraum wurde in Auftrag gegeben.

Die zu erwartenden Druckverluste an den Komponenten der Prototyp-Abgasfilteranlage bei einer Durchsatzmenge von $250 \text{ Nm}^3/\text{h}$ betragen:

Gerät	Druckverlust	Anzahl	gesamt
Vorfilter	50	1	50
Kühler	150	2	300
El.-Erhitzer	12	4	50
Fangrillen-Abscheider	100	1	100
Brink-Tropfenabsch.	300	1	300
Schwebstofffilter	150	1	150
Jodfilter	2250 (2 Trommeln)	1	2250
Sich.Schwebstofffilter	50	1	50
Leitungsverluste			200
Durchflußmeßstellen	100	4	400
Ges.Druckverlust der PASSAT-Anlage			3850 mm WS

Gebläuseauslegung: Druckdifferenz	4000 mm WS bei 250 Nm ³ /h
Ansaugtemperatur	30 °C
Ansaugdruck	0,6 bar
Austrittsdruck	Atmosphäre

2. Versuche zur Entwicklung von Komponenten für die Prototyp-Abgasfilteranlage

2.1 Druckverluste an der Filtertrommel des Jodfilters

Abb. 4112-4 zeigt die Druckverluste an der Filtertrommel in Abhängigkeit vom Eintrittsdruck und Durchfluß. Die Versuche wurden mit Luft von 150 °C durchgeführt. Die Korngröße des frischen Sorptionsmaterials in der Filtertrommel lag zwischen 1 und 2 mm.

2.2 Messung der Temperaturverteilung nach dem Gaserhitzer

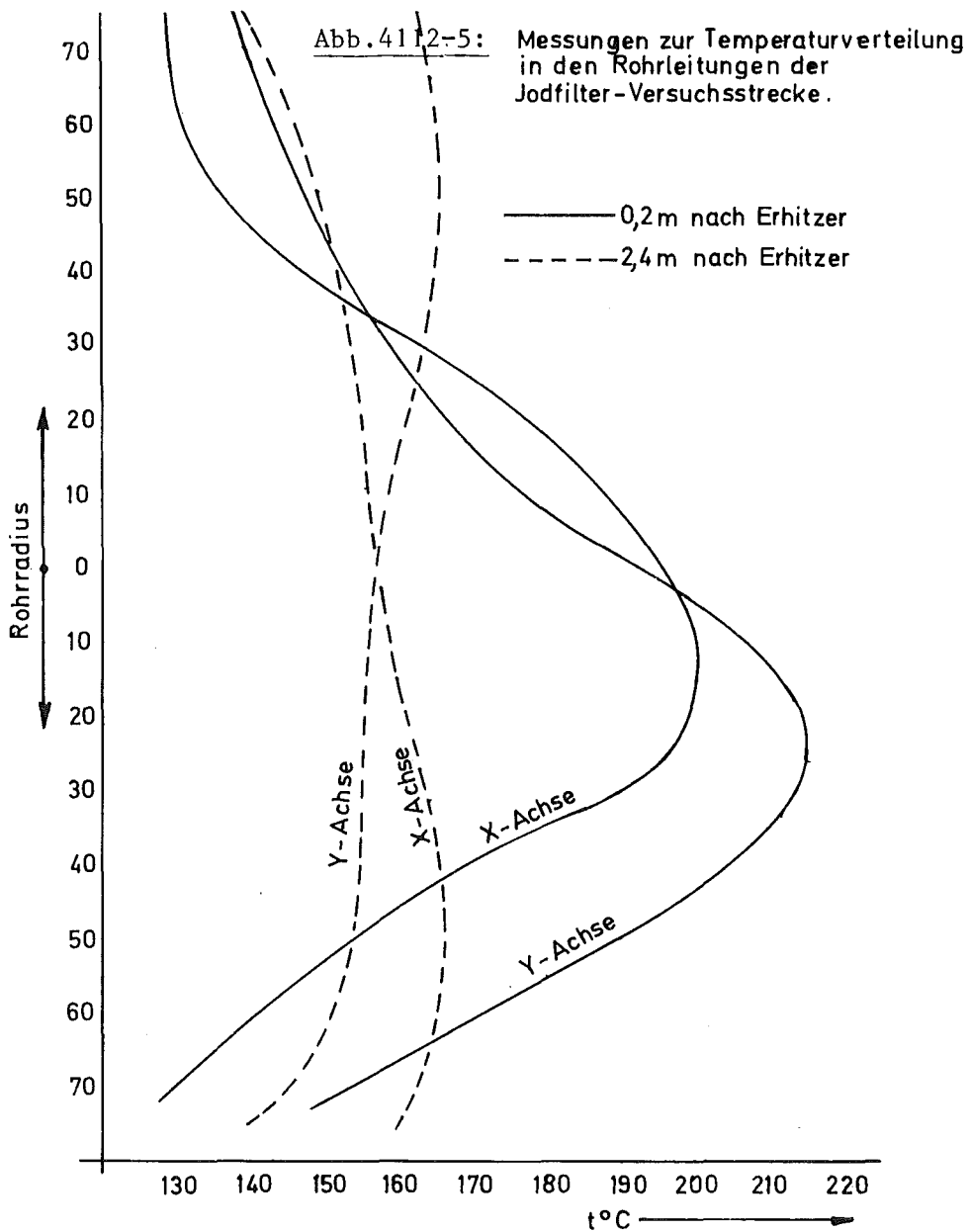
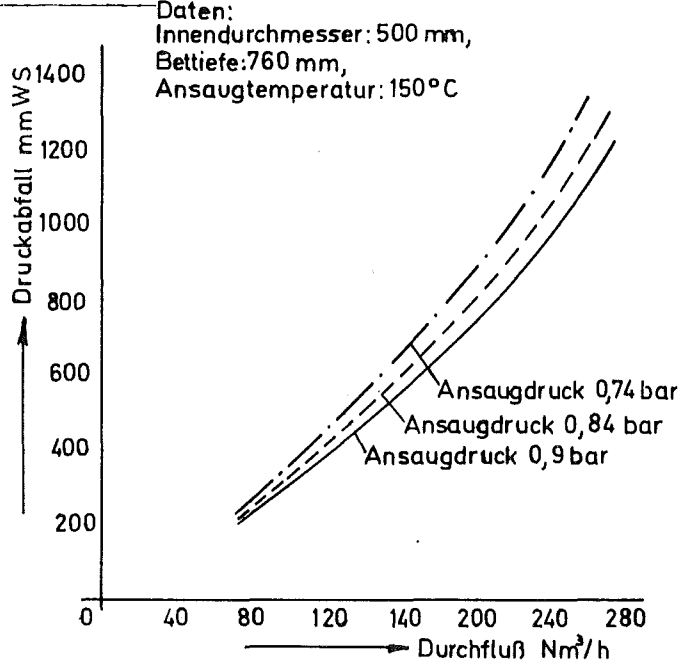
Zur genauen Einstellung und Messung der Gasfeuchte vor und nach den zu erprobenden Naßabscheidern wäre ein konstanter radialer Temperaturverlauf in der Rohrleitung wünschenswert.

Abb. 4112-5 zeigt den radialen Temperaturverlauf 2 m und 0,2 m nach dem Gaserhitzer in der Versuchsanlage. Die Versuche werden fortgesetzt mit dem Ziel, durch Änderung am Erhitzer, durch nachgeschalteten Mischer und durch El. Heizung der Rohrleitung das radiale Temperaturprofil ca. 0,5 m nach dem Gaserhitzer bzw. nach der Dampfeinspeisung abzuflachen.

2.3 Dichtheitsversuche und Leckagemessungen mit der Filtertrommel

Mit der gewählten Profildichtung für die Filtertrommel (siehe Abb. 4112-4, 1. Halbjahresbericht 1976 des PNS) wurden Dichtheiten von 10⁻³ Torr/l/s erreicht. Die genannte Dichtheit wurde auch bei mehrmaliger Benutzung der gleichen Trommel gemessen.

Abb. 4112-4: Druckverluste der Jodfiltertrommel

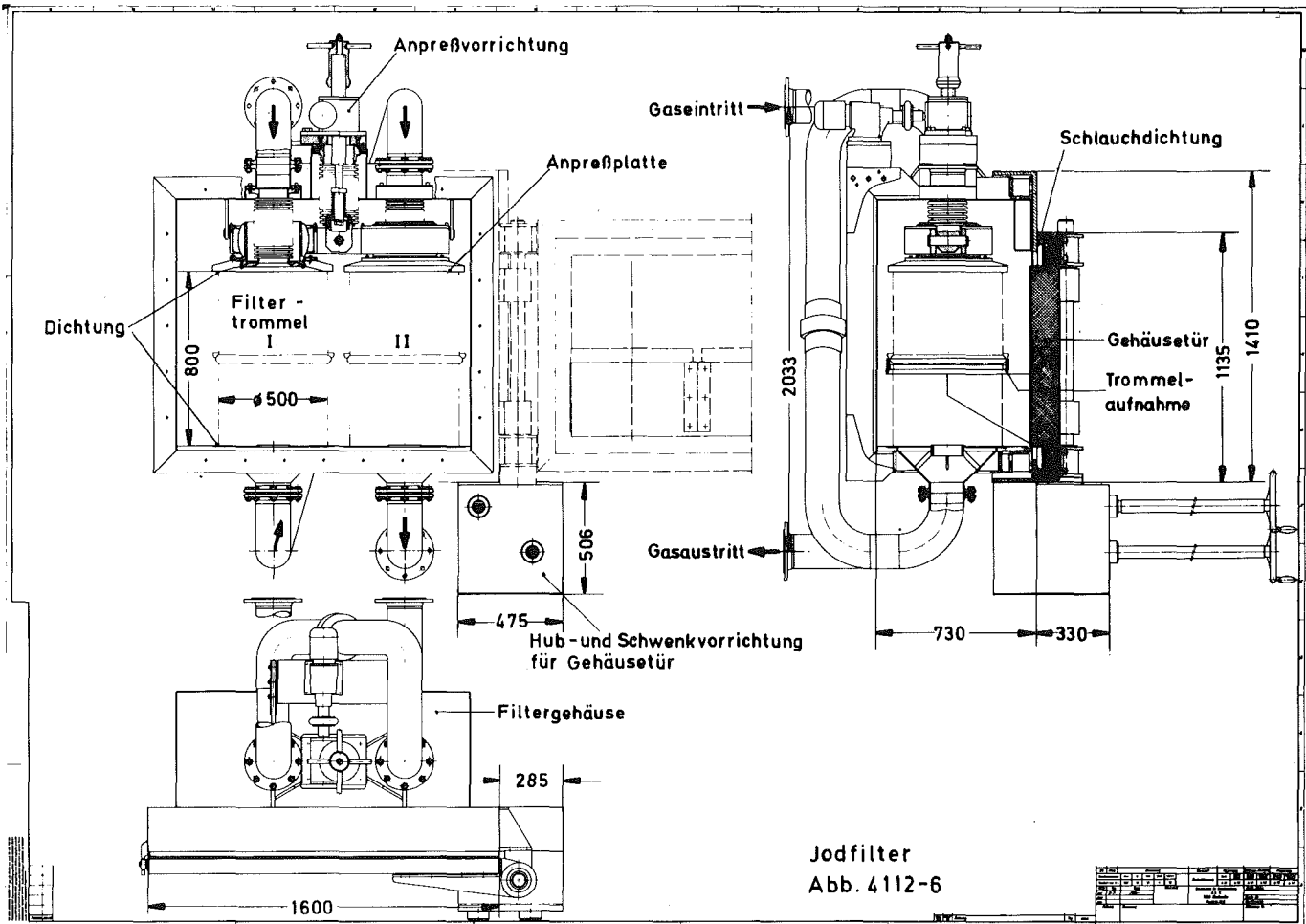


3. Jodfilter (Abb. 4112-6)

Das Jodfilter besteht aus dem Gehäuse mit Anpreßmechanismus, den Filtertrommeln, die in einer Aufnahmevorrichtung der Tür eingesetzt werden und der Tür mit Schwenk- und Hubvorrichtung. Der Aus- und Einbau der Filtertrommeln erfolgt bei ausgeschwenkter Tür mit Flaschenzug und Greifer. Das Heben und Schwenken der Tür wird über eine verlängerte Welle von außerhalb der Filterzelle durchgeführt (Hand- bzw. Motorantrieb). Der Gehäuseinnenraum wird an der Türöffnung bei geschlossener Tür mit einer aufblasbaren Dichtung nach außen abgedichtet. Das Anpressen der Filtertrommeln erfolgt über die gelenkig gelagerten Anpreßplatten. Die Anpreßplatten werden über die Halterung, der Gelenklager mit der Anpreßvorrichtung gesenkt bzw. angehoben. Max. Hub 100 mm; max. Anpreßkraft 3 t. Die Abschaltung des Elektromotors erfolgt über Endschalter, die von der Spindel der Anpreßvorrichtung betätigt werden. Die Anpreßkraft wird über ein Tellerfederpaket übertragen. Die Notbedienung zum Lösen des Anpreßmechanismus wird außerhalb der Filterzelle von Hand vorgenommen.

Sowohl der Anpreß- als auch der Schwenk- und Hubmechanismus können von außerhalb der Filterzelle leicht ausgewechselt werden.

Bei einer Undichtheit an den Filtertrommeln wird Umgebungsluft (Zellenluft) angesaugt. Rohluft kann nicht in die Reinluft gelangen. Elementares Jod könnte nur an den Stirnseiten der Trommeln anhaften. Dies wird durch die vorgesehene Spülung der Trommeln mit Reinluft vor dem Wechsellvorgang weitgehend abgetragen und in der zweiten Trommel - diese ist bis zum Zeitpunkt des Wechsellvorganges nur zum Teil beladen - chemisch gebunden.



Funktionsbeschreibung

Die Rohluft tritt von oben in die erste Filtertrommel ein, verläßt diese unten - die Trommeln sind an beiden Stirnseiten gegenüber dem Gehäuse abgedichtet - und wird in die zweite Filtertrommel von oben geführt. Das Sorptionsmaterial der ersten Filtertrommel wird also von oben beginnend mit Jod beladen. Die für die chemische Bindung des Jods erforderliche Verweilzeit des Abgases im Sorptionsmaterial, für hohe Abscheidegrade beträgt sie ca. 1,4 s. Bei voller Beladung der ersten Filtertrommel wird auch ein Teil (oberste Schicht) des Sorptionsmaterials der zweiten Filtertrommel beladen. Die volle Beladung der ersten Filtertrommel wird durch eine in der Rohrleitung zwischen der ersten und der zweiten Filtertrommel montierten Meßstelle signalisiert bzw. angezeigt. Beim Auswechseln der Filtertrommeln wird die erste Filtertrommel mit den Fernbedienungseinrichtungen herausgenommen und als Abfall abtransportiert. Die zweite Filtertrommel wird in die Position der ersten umgesetzt und in der Position der zweiten Filtertrommel wird eine neue eingesetzt.

Nach dem Filterwechsel können die folgenden Dichtheitsprüfungen vorgenommen werden:

1. Prüfung der Dichtheit der Filtertrommeln

Die Kugelhähne vor und nach dem Jodfilter werden geschlossen und in den Filtertrommeln wird ein Prüfunterdruck erzeugt. Wahlweise können die beiden Filtertrommeln gemeinsam oder durch Schließen des Kugelhahnes in der Leitung zwischen den Trommeln getrennt auf Dichtheit geprüft werden.

2. Prüfung der Türdichtung

Die Kugelhähne bleiben wie unter 1. geschlossen und im Jodfiltergehäuse wird ein Prüfunterdruck erzeugt. Das Ansteigen des Druckes im Gehäuse ist dann ein Maß für die Undichtheit der aufblasbaren Dichtung der Tür.

Während des Betriebes wird der Druck im Jodfiltergehäuse stetig kontrolliert. Bei Auftreten einer Undichtheit an den Filtertrommeln fällt der Druck im Filtergehäuse ab und es fließt von der Filterzelle über ein Durchflußmeßgerät Luft in das Filtergehäuse. Die Leckagemenge kann an einem Durchflußmeßgerät abgelesen werden. Jedoch kann bei Undichtheit an den Filtertrommeln aufgrund des herrschenden Unterdrucks in der Gasleitung nur Frischluft angesaugt werden. Abgas (Rohluft) dagegen kann nicht nach außen (im Filtergehäuse bzw. Reinluft) gelangen.

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

Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

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

Im KFK 2195 wurde auf S. 116 ein Prüfstand zur Untersuchung der Wirkung von Vorfiltern beschrieben. Über die ersten Ergebnisse der gaschromatographischen Untersuchung der im Kernkraftwerk Biblis beaufschlagten Vorfilterkohle wird im KFK 2262, S. 124, berichtet. Die Untersuchungsergebnisse zeigten, daß typisch leichtflüchtigere Lösungsmittelbestandteile wie Toluol, Xylol und Äthylacetat von Aktivkohle-Vorfiltern mit Dimensionen, die in Kernkraftwerken noch sinnvoll eingesetzt werden können, nicht ausreichend lange (mehrere Monate) zurückgehalten werden. Hochsiedende Lösungsmittelanteile (Petroleum-Benzin-Fraktion) wurden durch das Vorfilter praktisch vollständig abgeschieden.

Aufgrund der bisher vorliegenden Versuche könnten die Auswirkungen der Lösungsmittelbeladung durch folgende kombinierte Maßnahmen beherrscht werden:

1. Aufteilung der insgesamt eingesetzten Aktivkohle in zwei aufeinanderfolgende Schichten (Vorfilter + Jod-Sorptionsfilter).
2. Wechsel der Vorfilterkohle im Zeitabstand von mehreren Monaten.
3. Periodisches Ausheizen der adsorbierten leichtflüchtigen Filterschadstoffe aus der Kohle des Jod-Sorptionsfilters.

Im Berichtszeitraum wurden Versuche zum Ausheizen der leichtflüchtigen Filterschadstoffe aus im Kernkraftwerk Biblis beaufschlagten, durch Vorfilter geschützten Jod-Sorptionsfiltern durchgeführt (Tab. 4114-1).

Tab. 4114-1: Desorption von Filterschadstoffen aus Jod-Sorptionsfiltern

Aktivkohle des Jod-Sorptionsfilters: CG II, 1 % KJ-impregniert, Stäbchen-
durchmesser: 2 mm

Bett-Tiefe des Filters: 50 cm, Verweilzeit: 1 s

Beaufschlagung mit vorgefiltrierter Anlagenraumabluft über einen Zeitraum von
2 Monaten

Spülgasstrom während der Desorption: Luft, $T = 90^{\circ}\text{C}$, $v_{\text{lin}} = 50 \text{ cm/s}$

Desorptions- dauer [h]	Gewicht der Aktivkohle [g]	
	Filter 1	Filter 2
0	135,0	135,0
5	127,9	128,0
10	127,9	127,6
15	127,9	127,6
20	127,9	127,6

Bei der Aufheizung der Betten in den Zeitintervallen (s. Tab. 4114-1) er-
gab sich bereits nach 5 h Gewichtskonstanz der Jodfilterkohle.

Der Gewichtsverlust von 7,1 g bzw. 7,4 g, bezogen auf 135 g Kohle-Einwaage,
entspricht 5,3 bzw. 5,5 Gew.% Lösungsmittelbeladung.

In Tab. 4114-2 sind die Abscheidegrade der in Biblis vergifteten Jod-
Sorptionsfilter vor und nach der Desorption der Filterschadstoffe wieder-
gegeben.

In den einzelnen Versuchen wurden verschiedene Aktivkohlen in den Vorfiltern
verwendet. Die in Tab. 4114-2 aufgeführte unterschiedliche Abscheideleistung
vor der Desorption kann dadurch verursacht sein. Nach der Desorption er-
gaben sich erwartungsgemäß keine Unterschiede zwischen den Abscheide-
leistungen der beiden Jod-Sorptionsfilter.

Tab. 4114-2: Abscheidegrade von vergifteten Jod-Sorptionsfiltern gegenüber radioaktiv markiertem Methyljodid

Aktivkohle und Filterbett-Tiefe wie in Tab. 4114-1 angegeben.

Trägergas: Luft, 30°C, 98-100 % r. F., $v_{lin} = 50 \text{ cm/s}$

Bett-Tiefe (cm)	12,5	25,0	37,5	50,0
Verweilzeit (s)	0,25	0,50	0,75	1,0
Filterzustand	Abscheidegrade η in %			
vor Desorption	24,8	74,5	94,9	99,1
nach Desorption	73,7	95,9	99,5	99,94
vor Desorption	52,3	89,5	98,2	99,7
nach Desorption	76,7	96,0	99,4	99,93
frische Aktivkohle gleichen Typs	80,2	96,6	99,5	99,91

Die in Tab. 4114-2 angegebenen Daten zeigen, daß mit einem Desorptionszyklus die leichtflüchtigen Filterschadstoffe entfernt und die ursprünglichen Abscheidegrade der Jod-Sorptionsfilter wieder erreicht wurden. In weiteren Untersuchungen sind folgende Fragen zu klären:

Verhalten von abgeschiedenem Radiojod während der Desorptionszyklen, max. zulässigen Zeitabstand zwischen den Zyklen, notwendige Desorptionstemperatur und Dauer in Abhängigkeit vom Luftdurchsatz. Wegen Personalmangel konnten im Berichtszeitraum keine weiteren Untersuchungen durchgeführt werden.

Identifizierung von Jodverbindungen in den Abgasen kerntechnischer Installationen

Entwicklung von diskriminierenden Jodsammlern

(H. Deuber)

Zur Abschätzung der tatsächlich durch Ingestion von Spaltjod über den Weide-Kuh-Milchpfad zu erwartenden Strahlenbelastung (Schilddrüsendosis) in der Umgebung von Kernkraftwerken sind die Anteile der Spaltjodkomponenten (Aerosole, Verbindungen) in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken zu bestimmen. Die Bestimmung wird mit diskriminierenden Jodsammlern durchgeführt, in denen eine Abscheidung der Spaltjodkomponenten an Schwebstofffiltern bzw. selektiven Sorptionsmaterialien erfolgt. Es wird eine Bestimmung von Aerosoljod, anorganischem Jod (J_2) und organischem Jod (Modellsubstanz CH_3J) durchgeführt. Diese Jodkomponenten werden in der genannten Reihenfolge im Jodsammler abgeschieden.

Als selektives J_2 -Sorptionsmaterial wird AC 6111, imprägniert mit 8,5 % KJ, verwendet. Dieses Material, in Zukunft als DSM 10 bezeichnet, hatte unter bestimmten Bedingungen eine sehr hohe Abscheidung von J_2 und im relevanten Parameterbereich eine sehr niedrige Abscheidung von CH_3J gezeigt (KFK 2195, S. 117, KFK 2262, S. 126).

Im Berichtszeitraum wurden die Versuche zur Abscheidung von J_2 an DSM 10 fortgesetzt. Außerdem wurde die J_2 -Desorption von DSM 10 sowie die J_2 -Abscheidung an Schwebstofffiltern untersucht. Erste Versuche mit diskriminierenden Jodsammlern vor Ort wurden durchgeführt.

Laborversuche

Die Ergebnisse der Laborversuche zur Bestimmung der Abscheidegrade von DSM 10 für J_2 im relevanten Parameterbereich gehen aus Tab. 4114-3 hervor. Abgesehen vom Fall hoher Temperatur und Feuchte, ergaben sich bei einer Bett-Tiefe von 7,5 cm (Verweilzeit 0,3 s) integrale Abscheidegrade von > 99,9 %. Die Werte können als völlig befriedigend angesehen werden.

Tab. 4114-3: Abscheidegrad von DSM 10 für ^{131}J in Form von J_2

Trägerkonzentration: 1 mg/m³
 Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm
 Beaufschlagungszeit: 1 h
 Vorströmzeit : ≥ 20 h
 Nachströmzeit : 2 h

Bett-Temp. [°C]	Luft-feuchte [%]	Bett-Tiefe [cm]	Abscheidegrad integral [%]	Abscheidegrad differentiell +) [%]
10	20	2,5	99,20	99,20
		5,0	99,987	98,5
		7,5	99,9967	78,7
	80	2,5	99,977	99,977
		5,0	99,981	17,0
		7,5	99,982	5,1
70	20	2,5	99,79	99,79
		5,0	99,963	83,5
		7,5	99,966	9,2
	80	2,5	99,50	99,50
		5,0	99,56	10,7
		7,5	99,58	5,1

+) Abscheidegrad eines Bettes von 2,5 cm Tiefe

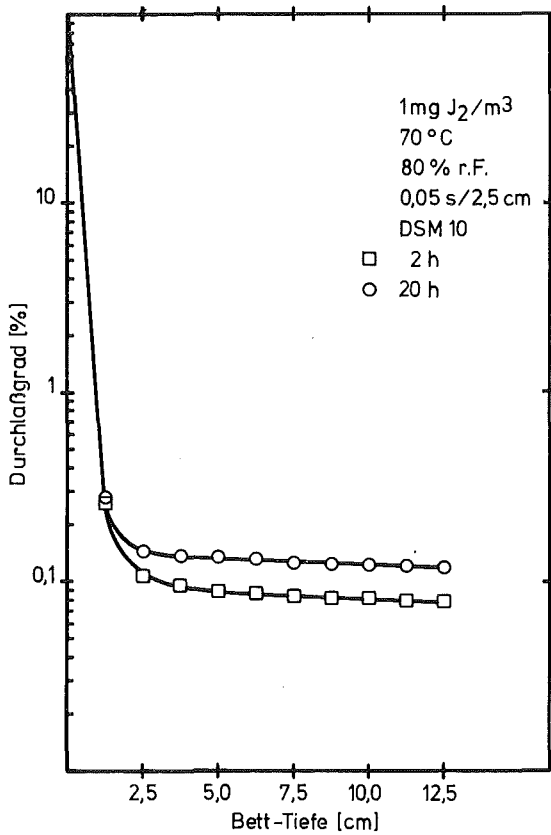
Zur Bestimmung der J_2 -Desorption von DSM 10 wurden Abscheidungsversuche unter ungünstigen Bedingungen (Temperatur, Feuchte, Luftgeschwindigkeit) durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tab. 4114-4 und Abb. 4114-1 wiedergegeben. Bei einer Bett-Tiefe von 1,25 cm (Verweilzeit 0,025 s) war kein Unterschied in den Abscheidegraden und somit keine Desorption festzustellen. Die Unterschiede in den integralen Abscheidegraden bei größeren Bett-Tiefen dürften auf das Vorliegen von anderen Jodverbindungen in unterschiedlichen Mengen zurückzuführen sein.

Tab. 4114-4: Abscheidegrad von DSM 10 für ^{131}J in Form von J_2

Trägerkonzentration: 1 mg/m^3
 Bett-Temperatur : 70 $^\circ\text{C}$
 Luftfeuchte : 80 %
 Verweilzeit : 0,05 s/2,5 cm
 Beaufschlagungszeit: 1 h
 Vorströmzeit : ≥ 20 h

Nachströmzeit [h]	Bett-Tiefe [cm]	Abscheidegrad integral [%]	Abscheidegrad differenziell ⁺⁾ [%]
2	1,25	99,72	99,72
	2,5	99,89	62,2
	3,75	99,905	10,3
	5,0	99,910	5,6
	6,25	99,914	3,7
	7,5	99,916	2,7
	8,75	99,918	2,1
	10,0	99,919	1,7
	11,25	99,920	1,5
	12,5	99,921	1,3
20	1,25	99,73	99,73
	2,5	99,86	46,1
	3,75	99,86	4,3
	5,0	99,87	3,1
	6,25	99,87	2,7
	7,5	99,87	2,6
	8,75	99,88	2,1
	10,0	99,88	1,6
	11,25	99,88	1,3
	12,5	99,88	1,0

⁺⁾ Abscheidegrad eines Bettes von 1,25 cm Tiefe



Aus den Durchlaßprofilen (Abb. 4114-1) ergibt sich für J₂ - unabhängig von der Nachströmzeit - eine Halbwertsbett-Tiefe, d. h. eine Bett-Tiefe, in der der Durchlaßgrad auf den halben Wert sinkt, von 0,1 bis 0,2 cm.

Abb. 4114-1 Durchlaßgrad von DSM 10 für ¹³¹J in Form von J₂ bei verschiedenen Nachströmzeiten

Da sich J₂ in starkem Maße an Schwebstofffiltern abscheiden kann, wurde das Abscheideverhalten von J₂ gegenüber mehreren Schwebstofffiltern geprüft. Es wurden jeweils 2 Filter hintereinander geschaltet. Die Abscheidung am binderfreien Glasfaserfilter GF/A im relevanten Parameterbereich geht aus Tab. 4114-5 hervor. Wie ersichtlich, war die Abscheidung bei hoher Temperatur und Feuchte am größten. Unter dieser Bedingung wurden weitere Glasfaser-schwebstofffilter getestet. Tab. 4114-6, in der die Ergebnisse wiedergegeben sind, zeigt, daß die Abscheidung an Filtern mit anorganischem Binder (SS 6, SS 8) geringer als an Filtern mit organischem Binder (SS 9, SS 10) war. Da der Druckabfall am Filter SS 6 relativ hoch ist, wurden die Filter SS 8 und GF/A für Vor-Ort-Versuche ausgewählt.

Tab. 4114-5: Abscheidung von ^{131}J in Form von J_2 am Schwebstofffilter GF/A (Whatman)

Trägerkonzentration : 1 mg/m^3
 Luftgeschwindigkeit : 7,5 cm/s
 Beaufschlagungszeit : 1 h
 Vorströmzeit : ≥ 20 h
 Nachströmzeit : 2 h

Filtertemperatur [$^{\circ}\text{C}$]	Luftfeuchte [%]	Filter-Nr.	Abscheidegrad [%]
10	20	1	0,34
		2	0,25
	80	1	0,98
		2	0,63
70	20	1	1,49
		2	0,50
	80	1	3,47
		2	3,52

Tab. 4114-6: Abscheidung von ^{131}J in Form von J_2 an verschiedenen Schwebstofffiltern (Schleicher u. Schüll)

Filtertemperatur: 70°C

Luftfeuchte : 80 %

weitere Bedingungen wie in Tab. 4114-5

Filtertyp	Filter-Nr.	Abscheidegrad [%]
SS 6	1	0,99
	2	1,26
SS 8	1	0,61
	2	0,77
SS 9	1	4,46
	2	4,49
SS 10	1	18,19
	2	19,23

Vor-Ort-Versuche

Die diskriminierenden Jodsammler, die vor Ort eingesetzt wurden, hatten in Anströmrichtung folgenden Aufbau:

1. Stufe für Aerosoljod:
2 oder 3 Schwebstofffilter SS 8 (Schleicher u. Schüll) bzw. GF/A (Whatman);
2. Stufe für anorganisches Jod (J_2):
5 Betten DSM 10;
3. Stufe für organisches Jod:
5 Betten Aktivkohle CG 0,8 (Stäbchendurchmesser 0,8 mm, imprägniert mit 1 % KJ).

Der Durchmesser der Schwebstofffilter und Sorptionsmaterialbetten betrug, sofern nicht anders angegeben, jeweils 2,5 cm oder 5 cm, die Bett-Tiefe jeweils 2,5 cm. Der Luftdurchsatz betrug 0,88 bzw. 3,5 m³/h und somit die lineare Luftgeschwindigkeit in den Schwebstofffiltern und im Sorptionsmaterial 50 cm/s, die Verweilzeit im Sorptionsmaterial 0,05 s/2,5 cm.

Die Messung der ¹³¹J-Aktivität der Sammlerkomponenten (Schwebstofffilter, Sorptionsmaterialbetten) wurde nach der Demontage der Sammler mit Hilfe eines Ge(Li)-Detektors durchgeführt. Bei jeder Messung wurde eine Nettoimpulszahl von $> 10^3$ und somit ein Fehler von $< 5\%$ angestrebt. Die maximale Meßzeit betrug 1000 min. Bei dieser Meßzeit lag die Nachweisgrenze im Bereich von 10^{-12} Ci ¹³¹J (Nettozählrate gleich Standardabweichung der Nettozählrate). Bei einer Gesamtaktivität von 10^{-9} Ci ¹³¹J im Sammler lag die Nachweisgrenze also bei etwa 0,1 % der Gesamtaktivität.

Die Sammler wurden in verschiedenen Luftarten in zwei Druckwasserreaktoren (DWR 1, DWR 2) und einem Forschungsreaktor (FR) eingesetzt. Sofern nicht anders angegeben, wurden bei 2fachen Messungen 2 Sammler gleichzeitig eingesetzt (Parallelschaltung). Die Messungen in verschiedenen Luftarten wurden jeweils gleichzeitig begonnen. Die Ergebnisse gehen aus den Tab. 4114-7 bis 4114-9 und den Abb. 4114-2 bis 4114-10 hervor. Die mit parallel geschalteten Sammlern erzielten Ergebnisse stimmen, wie ersichtlich, gut überein.

Bei der Interpretation der Ergebnisse der Stufen für Aerosoljod ist zu berücksichtigen, daß durch das 1. Schwebstofffilter praktisch das gesamte

Aerosoljod abgeschieden wird. (In den Versuchen im DWR 2 wurde für radioaktive Aerosole (^{58}Co , ^{60}Co) ein Durchlaßgrad bei SS 8 von ca. 0,1 %, bei GF/A von < 0,01 % festgestellt). J_2 (gasförmig) wird dagegen mit gleichem Abscheidegrad, d. h. in praktisch gleichen Mengen, von den hintereinandergeschalteten Schwebstofffiltern abgeschieden, falls der insgesamt abgeschiedene Anteil nicht sehr groß ist. Aerosoljod ist nur dann anzunehmen, wenn die Jodmenge am 1. Schwebstofffilter größer ist als die an den folgenden Schwebstofffiltern. (Der Anteil an Aerosoljod ist danach leicht errechenbar).

Eine größere Menge an Aerosoljod wurde nur in der ungefilterten Betriebsraumabluft des DWR 1 gefunden. Sie betrug 32 bzw. 27 %. Ebenso war in diesem Fall eine größere Abscheidung von J_2 an den Schwebstofffiltern zu messen, und zwar 11 bzw. 14 % pro Filter. Bei den sonst herrschenden größeren Luftgeschwindigkeiten lag die Abscheidung von J_2 sowohl bei SS 8 als auch bei GF/A meistens unter 1 % pro Filter.

Bei der Auswertung der Ergebnisse der Sammlerstufe für J_2 ist zu bedenken, daß den Laborversuchen entsprechend (Tab. 4114-4 und Abb. 4114-1) praktisch das gesamte J_2 im 1. DSM 10-Bett abgeschieden würde. Eine Abscheidung von Jod in den folgenden DSM 10-Betten dürfte auf das Vorliegen einer weiteren, schwerer abscheidbaren Jodkomponente zurückzuführen sein. Eine ins Gewicht fallende Abscheidung von CH_3J oder ähnlichen Verbindungen an DSM 10 kann ausgeschlossen werden.

Bei den DWR schied sich in der Stufe für anorganisches Jod das Jod zum weitaus größten Teil im 1. Bett ab, jedoch wurde auch in den folgenden Betten eine Abscheidung von Radiojod festgestellt. Aus den Durchlaßprofilen kann auf das Vorliegen einer kleinen Menge einer an DSM 10 schwerer abscheidbaren Jodkomponente geschlossen werden.

Beim Forschungsreaktor, insbesondere im Falle der Isotopenkanalabluft, war die Abscheidung des Jods in den DSM 10-Betten unbefriedigend. Aus einer starken Braunfärbung des Sorptionsmaterials ist zu schließen, daß eine Vergiftung (Oxidation) des Sorptionsmaterials vorlag.

Unter Berücksichtigung des Anteiles an J_2 , der im Falle der Betriebsraumabluft des DWR 1 bereits an den Schwebstofffiltern abgeschieden wurde, ergibt sich bei allen aufgeführten Messungen ein Anteil an J_2 und Jodverbindungen ähnlichen Abscheidungsverhaltens von > 50 % am Gesamtjod. Es sei darauf

verwiesen, daß die vorliegenden Untersuchungen mit nicht jodgefilterter Luft durchgeführt wurden. In jodgefilterter Luft wird ein weitaus geringerer Anteil an elementarem Jod erwartet. In zukünftigen Versuchen soll dies nachgewiesen werden.

In der Stufe für organisches Jod schied sich das Jod in den beiden ersten Betten meistens vollständig ab. (Beim FR wurden daher nur diese beiden Betten gemessen). Für die DWR, bei denen eine eindeutige Aussage möglich ist, ergibt sich in der Regel ein Anteil an organischen Jodverbindungen von < 20 %.

Die Ergebnisse zeigen, daß der vorliegende diskriminierende Jodsammler für die Bestimmung der Jodkomponenten in der Ab- und Fortluft von Kernkraftwerken, bei denen keine Vergiftung des J_2 -Sorptionsmaterials wie in der Abluft des Forschungsreaktors eintritt, geeignet ist.

Tab. 4114-7: Verteilung von ^{131}J -Aktivität in diskriminierenden Jod-sammlern: DWR 1

Betriebsphase : BE-Wechsel

Zustand der Luft

Betriebsraumabluft : ungefiltert
 Fortluft : schwebstoffgefiltert, nicht jodgefiltert

Sammelzeit

Betriebsraumabluft : 17 h
 Fortluft : 116 h

^{131}J -Aktivität im Sammler am Ende der Sammelzeit

Betriebsraumabluft : $2,7 \cdot 10^{-9}$ Ci, Sammler 1
 $2,8 \cdot 10^{-9}$ Ci, Sammler 2
 Fortluft : $2,0 \cdot 10^{-8}$ Ci

^{131}J -Aktivität der Luft

Betriebsraumabluft : ca. $2 \cdot 10^{-10}$ Ci/m³
 Fortluft : ca. $5 \cdot 10^{-11}$ Ci/m³

Sammlerstufe	Sammler-komponente	^{131}J -Aktivität [%]		
		Betriebsraumabluft		Fortluft
		Sammler 1 +)	Sammler 2 +)	
Stufe für Aerosoljod (SS 8)	1	43,1	41,0	2,6
	2	11,2	14,2	2,7
	1-2	54,2	55,3	5,3
Stufe für anorganisches Jod (DSM 10)	3	33,2	32,4	69,5
	4	1,7	1,7	3,6
	5	0,8	0,8	0,7
	6	0,6	0,5	0,3
	7	0,5	0,5	0,2
3-7	36,8	35,9	74,4	
Stufe für organisches Jod (CG 0,8)	8	8,2	7,7	19,5
	9	0,2	0,2	0,6
	10	0,1	0,2	< 0,1
	11	0,2	0,3	< 0,1
	12	0,3	0,5	< 0,1
8-12	9,0	8,8	20,3	

+) Luftgeschwindigkeit in den Schwebstofffiltern 15 cm/s
 (Durchmesser der Schwebstofffilter 4,5 cm)

Tab. 4114-8: Verteilung von ^{131}J -Aktivität in diskriminierenden Jod-sammlern: DWR 2

Betriebsphase : BE-Wechsel
 Zustand der Luft : Betriebsraumluft ungefiltert
 (Sammelstelle neben BE-Lagerbecken)

Sammelzeit

Sammler 1 : 127 h
 Sammler 2 : 203 h

^{131}J -Aktivität im Sammler am Ende der Sammelzeit

Sammler 1 : $2,7 \cdot 10^{-8}$ Ci
 Sammler 2 : $5,4 \cdot 10^{-9}$ Ci

^{131}J -Aktivität der Luft: ca. $6 \cdot 10^{-11}$ bzw. $8 \cdot 10^{-12}$ Ci/m³

Sammlerstufe	Sammler- komponente	^{131}J -Aktivität [%]	
		Sammler 1 +)	Sammler 2 +)
Stufe für Aerosoljod (SS8, Sammler 1; GF/A, Sammler 2)	1	0,9	0,8
	2	< 0,1	< 0,1
	3	< 0,1	< 0,1
	1-3	1,0	0,9
Stufe für anorganisches Jod (DSM 10)	4	71,7	65,0
	5	4,0	4,2
	6	2,0	2,3
	7	1,4	2,0
	8	1,2	1,7
4-8	80,3	75,1	
Stufe für organisches Jod (CG 0,8)	9	17,9	22,7
	10	0,8	1,1
	11	< 0,1	< 0,1
	12	< 0,1	< 0,1
	13	< 0,1	< 0,1
9-13	18,7	24,0	

+) Sammler 1 (zeitlich) vor Sammler 2 eingesetzt

Tab. 4114-9: Verteilung von ^{131}J -Aktivität in diskriminierenden Jod-
sammlern: FR

Betriebsphase : Normalbetrieb

Zustand der Luft

Isotopenkanalabluft: } schwebstoffgefiltert, nicht jodgefiltert
Fortluft : }

Sammelzeit

Isotopenkanalabluft: 59 h
Fortluft : 159 h

^{131}J -Aktivität im Sammler am Ende der Sammelzeit

Isotopenkanalabluft: $5,7 \cdot 10^{-9}$ Ci, Sammler 1
 $5,7 \cdot 10^{-9}$ Ci, Sammler 2
Fortluft : $8,8 \cdot 10^{-10}$ Ci, Sammler 1
 $1,0 \cdot 10^{-9}$ Ci, Sammler 2

^{131}J -Aktivität der Luft

Isotopenkanalabluft: ca. $1 \cdot 10^{-10}$ Ci/m³
Fortluft : ca. $2 \cdot 10^{-12}$ Ci/m³

Sammlerstufe	Sammler- komponente	^{131}J -Aktivität [%]			
		Isotopenkanalabluft		Fortluft	
		Sammler 1	Sammler 2	Sammler 1	Sammler 2
Stufe für Aerosoljod (GF/A, Sammler 1; SS 8, Sammler 2)	1	0,1	0,4	0,3	0,7
	2	0,1	0,8	0,2	0,4
	3	0,1	0,7	0,2	0,4
	1-3	0,4	1,9	0,6	1,5
Stufe für anorganisches Jod (DSM 10)	4	23,8	28,2	44,5	40,3
	5	13,2	14,1	23,9	27,4
	6	8,5	9,0	9,9	12,6
	7	7,7	7,7	4,2	5,5
	8	6,9	6,6	3,4	2,3
4-8	60,1	65,6	86,0	88,1	
Stufe für organisches Jod (CG 0,8)	9	39,5	32,5	13,3	10,4
	10	< 0,1	< 0,1	0,1	< 0,1
	9-10	39,5	32,5	13,4	10,4

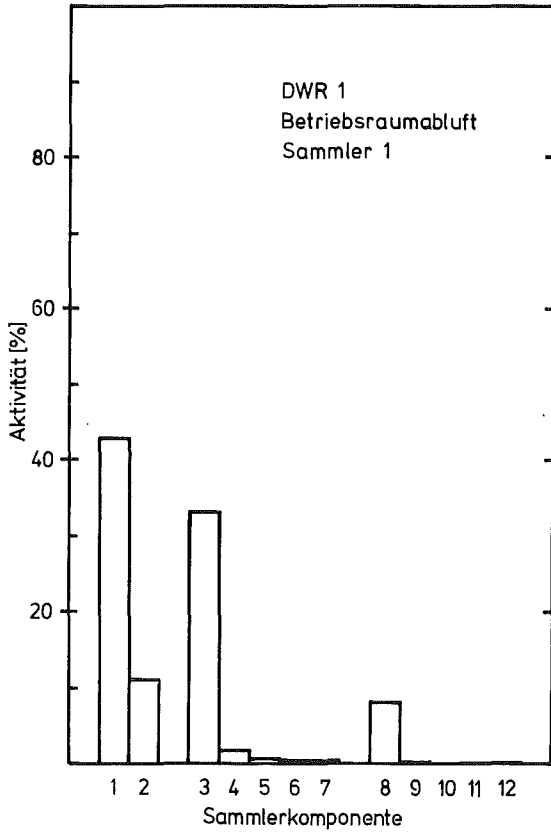


Abb. 4114-2

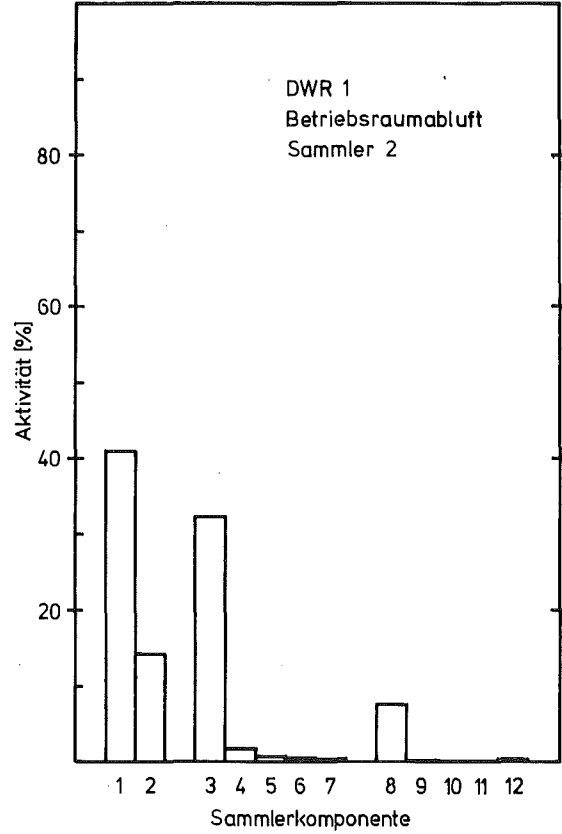


Abb. 4114-3

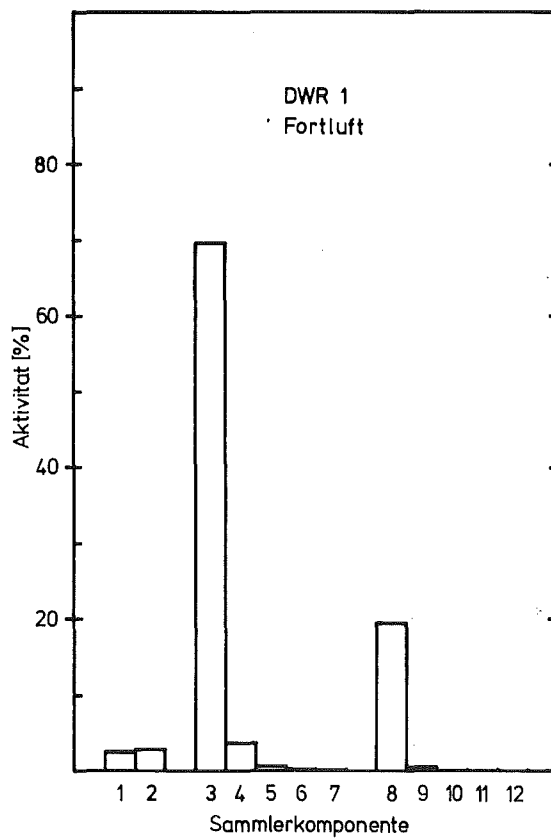


Abb. 4114-4

Verteilung von ^{131}J -Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: DWR 1

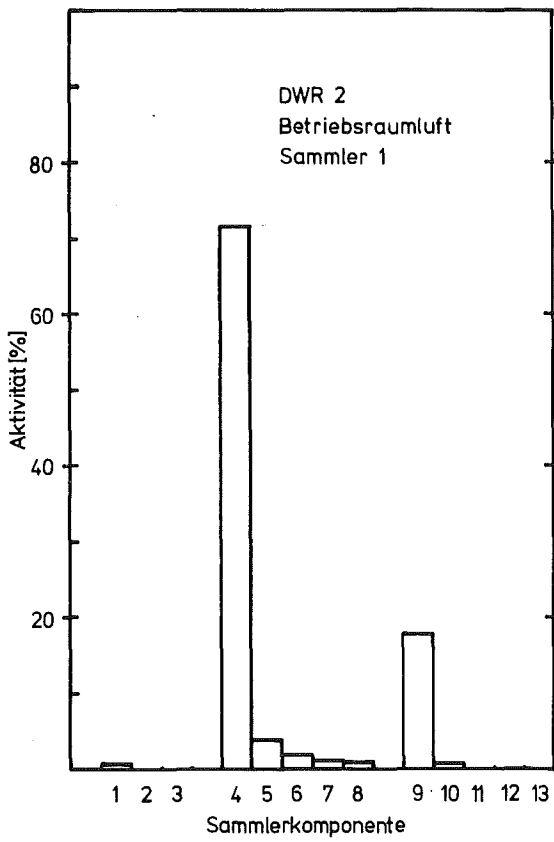


Abb. 4114-5

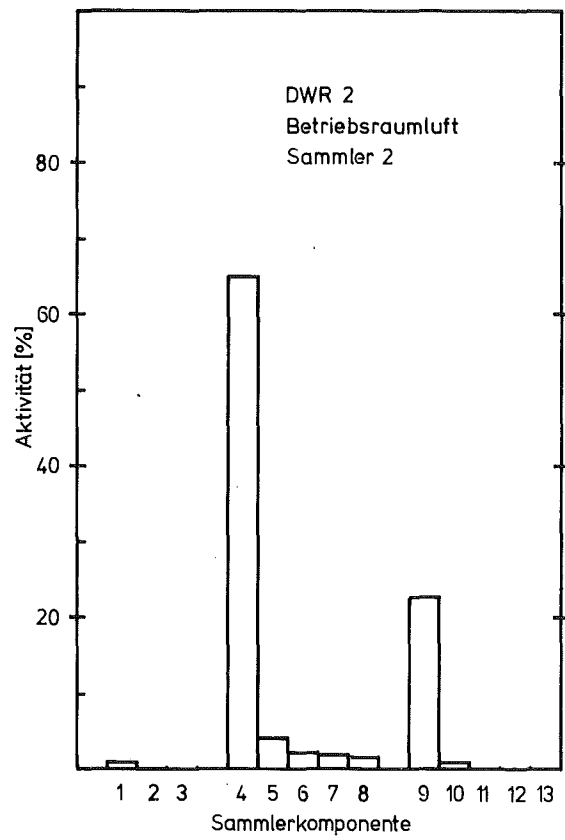


Abb. 4114-6

Verteilung von ^{131}J -Aktivität in diskriminierenden Jod-
sammlern: DWR 2

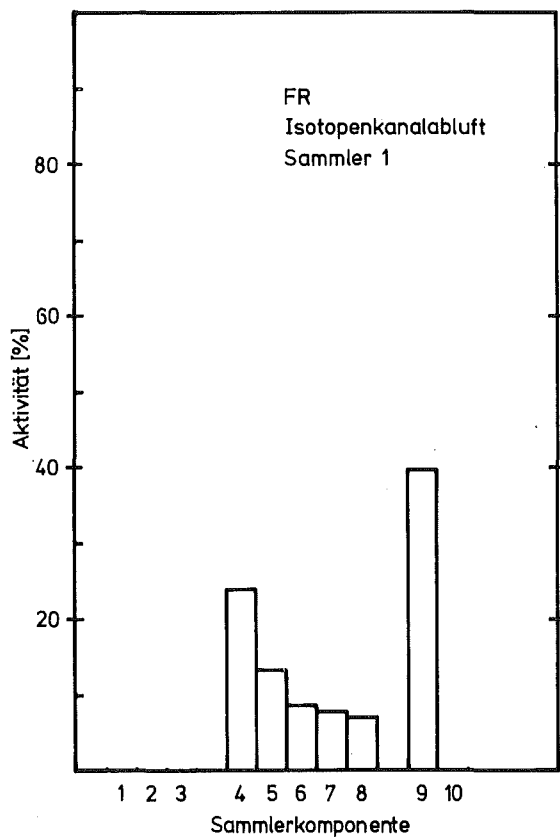


Abb. 4114-7

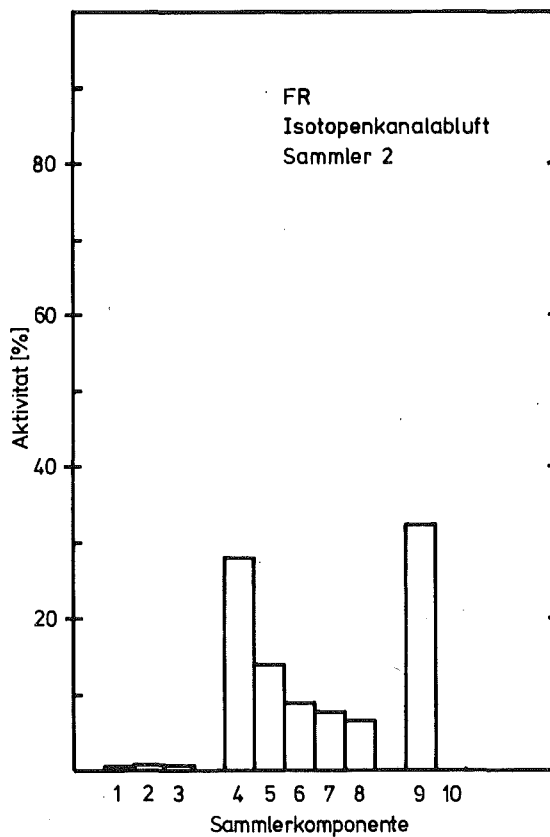


Abb. 4114-8

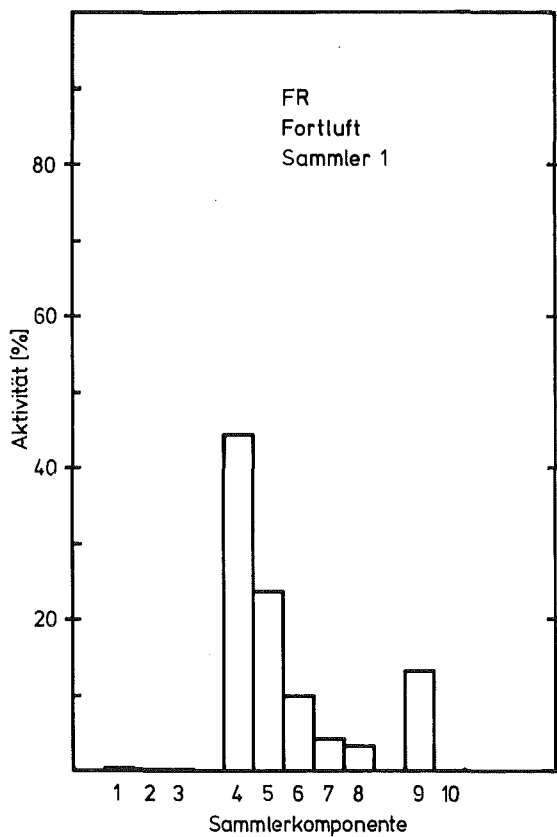


Abb. 4114-9

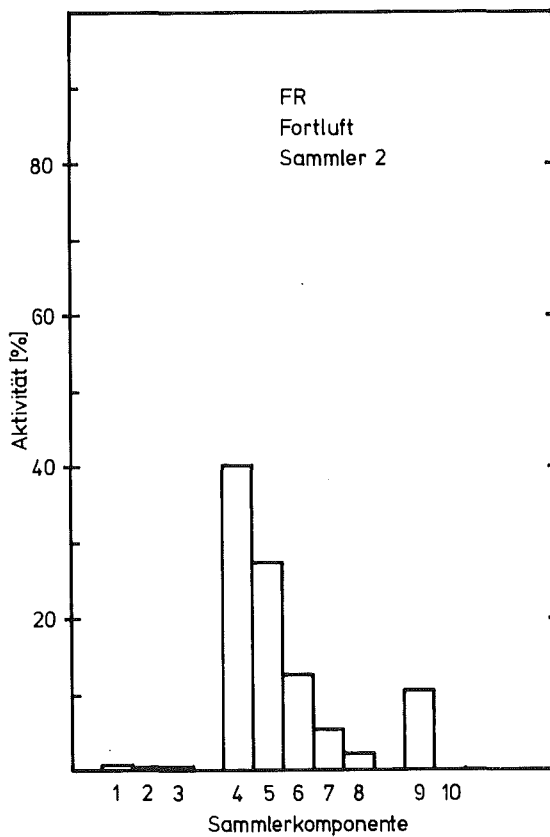


Abb. 4114-10

Verteilung von ^{131}J -Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: FR

Abscheidegradmessungen an Glasfaserpapieren in Abhängigkeit von der Luftgeschwindigkeit

(A. Weinert)

Die erste Stufe eines diskriminierenden Probensammlers zur Identifizierung von Jodverbindungen besteht aus Schwebstofffilterpapier zur Abscheidung von Aerosoljod. Kriterien für die Auswahl eines Filterpapiers sind außer dem Verhalten gegen elementares Jod sein Abscheidegrad und Luftwiderstand. Um die unvermeidliche Abscheidung von elementarem Jod am Filterpapier möglichst gering zu halten, verkleinert man dessen Fläche, was einen Anstieg der Luftgeschwindigkeit zur Folge hat. Es sollte deshalb Glasfaserpapier eingesetzt werden, das auch bei einer Luftgeschwindigkeit von 50 cm s^{-1} (normal $2,5 \text{ cm s}^{-1}$) noch einen hohen Abscheidegrad aufweist.

Für zwei der in Frage kommenden Schwebstofffilterpapiere wurde im Laborversuch der Durchlaßgrad für Luftgeschwindigkeiten von $2,5$ bis 60 cm s^{-1} bestimmt. In Abb. 4114-11 ist der Durchlaßgrad (in %) in Abhängigkeit von der linearen Luftgeschwindigkeit (in cm s^{-1}) dargestellt.

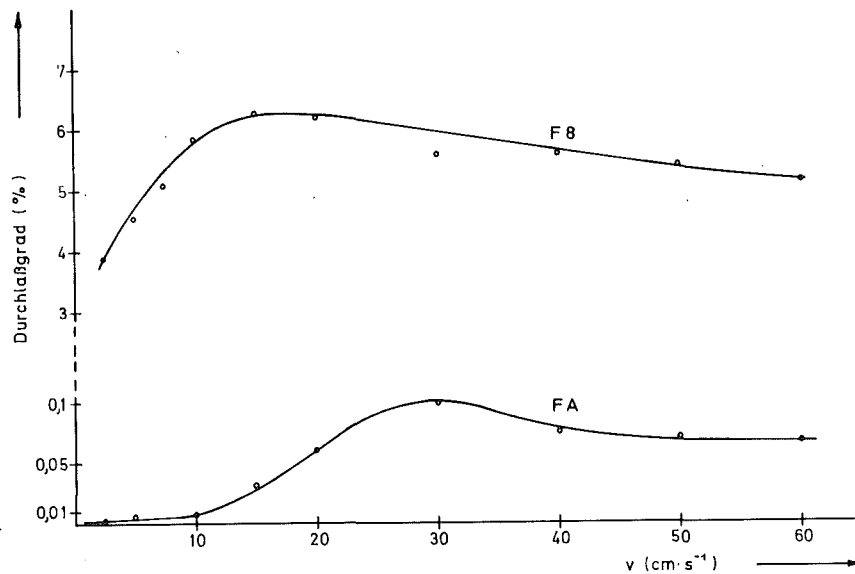


Abb. 4114-11: Durchlaßgrad der Glasfaserfilterpapiere F A und F 8 in Abhängigkeit von der linearen Luftgeschwindigkeit

Als Prüfaerosol diente NaCl, das mit Hilfe eines Collision-Atomizers erzeugt wurde. Der mittlere Teilchendurchmesser betrug ca. $0,17 \mu\text{m}$ bei einer geometrischen Standardabweichung von 1,9. Jeder Meßwert wurde an einem neuen, noch nicht beaufschlagten Filterpapier ermittelt, um Beladungseffekte auszuschließen. Für die Roh- und Reinluftmessung wurde der Sartorius-Szintillationsteilchenzähler mit Integrationseinheit benutzt. Alle Versuche wurden bei Raumtemperatur durchgeführt.

Es zeigte sich, daß das vor allem wegen seines niedrigen Luftwiderstands ausgesuchte Filterpapier F 8 bei keiner Luftgeschwindigkeit den vom Hersteller angegebenen Abscheidegrad von $> 99 \%$ (laut vorgelegtem Prüfbericht sogar $99,99 \%$ gegenüber Ölnebel) erreicht. Das Glasfaserpapier F A weist dagegen über den ganzen Geschwindigkeitsbereich einen Abscheidegrad von $> 99,9 \%$ auf, wobei bei der üblichen Luftgeschwindigkeit von $2,5 \text{ cm s}^{-1}$ die Leistung eines Schwebstofffilters der Klasse S erreicht bzw. übertroffen wird.

Durch die steigende Beladung mit den rückgehaltenen Teilchen steigt der Abscheidegrad eines Faserfilters während der Betriebsdauer an bei u. U. nur leicht wachsendem Luftwiderstand. Dieser Effekt wurde bei allen Messungen festgestellt. Er könnte als Erklärung der Diskrepanz zwischen angegebenem und von uns gemessenem Abscheidegrad beim Filterpapier F 8 angesehen werden. Im Gegensatz zu den hohen Aerosolkonzentrationen beim Ölnebeltest ($10 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$) betrug die NaCl-Rohluftkonzentration nur ca. $1,5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ bei Beaufschlagungszeiten von wenigen Minuten.

Das Ergebnis eines Langzeitversuchs mit einer NaCl-Konzentration von $7 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ (Luftgeschwindigkeit $2,5 \text{ cm/s}$) spricht für obige Vermutung. Der Durchlaßgrad sank von anfangs 8% nach 100 min auf $0,6 \%$, wobei der Druckabfall über das Filter nur von $4,6$ auf $5,2 \text{ mmWS}$ stieg.

Die im Vergleich zu Abb. 4114-11 (bei $v = 2,5 \text{ cm s}^{-1}$) relativ hohen Durchlaßgradwerte dürften eine Folge unterschiedlicher Partikelgrößenverteilung sein, die sich bei der höheren Aerosolerzeugungsrate eingestellt hat.

Der Zusammenhang zwischen Filterbeladung und Durchlaßgrad ist in Abb. 4114-12 für das Filterpapier F 8 dargestellt. Das Diagramm bestätigt die erwartete logarithmische Abhängigkeit.

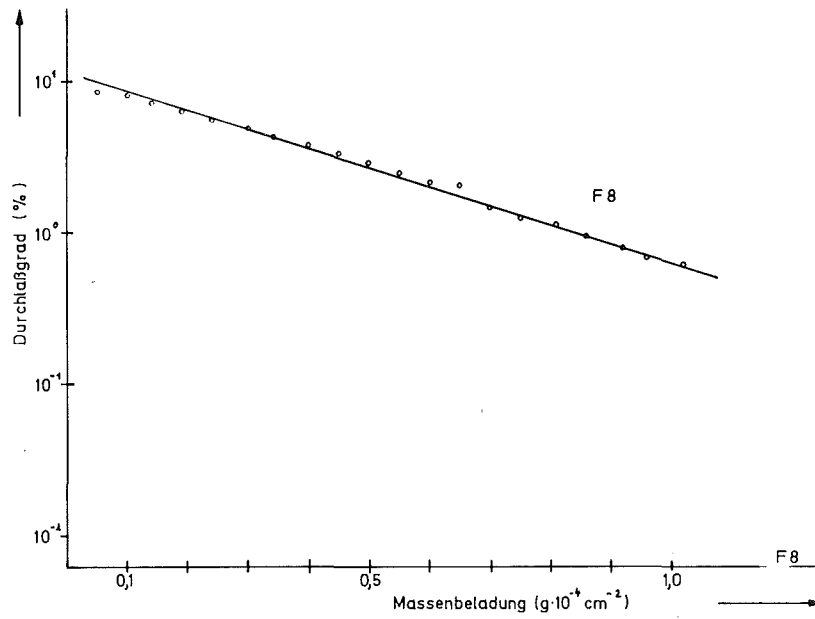


Abb. 4114-12: Durchlaßgrad des Glasfaserfilterpapiers F 8 in Abhängigkeit von der Schwebstoffbeladung, Luftgeschwindigkeit $2,5 cm s^{-1}$

4120 Reduktion der Aktivierung und Kontamination von Reaktor-
kreisläufen
(G. Bechtold, J. Michael, R. Melcher)

Bei den Untersuchungen zur Metallabgabe von INCOLOY 800-Proben an Druckwasser kann davon ausgegangen werden, daß sich die galvanische Goldbeschichtung auf der Innenwand des Versuchsautoklaven, die die Eigenmetallabgabe dieses Autoklaven an das Druckwasser verhindern sollte, durchaus bewährt hat. Erst nach mehr als 5000 Autoklavenbetriebsstunden über etwa ein Jahr verteilt, begann die Goldschicht stellenweise abzublättern, so daß nach Erreichen einer ungeschützten Autoklavenoberfläche von etwa 10 % die Untersuchungen zur Metallabgabe unterbrochen werden mußten.

Die erneute Goldbeschichtung der Autoklaveninnenwand mit einer galvanisierten Auflage von 20 Mikrometern durch die Fa. DEGUSSA, hatte zunächst nicht die notwendige Qualität gebracht. Untersuchungen der Eigenmetallabgabe des Autoklaven in den Elementen Fe, Cr und Ni zeigten Werte, die nicht toleriert werden konnten, da sie die Größenordnung der Abgaberate von INCOLOY ALLOY 800 erreichten. Die Schutzbeschichtung mußte deshalb in Verbindung mit umfangreichen und langwierigen Versuchen wiederholt werden.

Erfahrungsgemäß sind an der Primärkreiskontamination von Druckwasserreaktoren mittels der Metall- und Metalloxidabgabe und deren Aktivierung nicht nur die Dampferzeugerrohre aus INCOLOY ALLOY 800 beteiligt, sondern es sind auch Abgabebeiträge von der Rohrleitung im Druckhaltungssystem und den austenitisch beschichteten Behältern des Primärkreises zu erwarten, deren spez. Abgaberate wesentlich über der von INCOLOY ALLOY 800 liegen kann. Zur Untersuchung von normalen Cr-Ni-Stählen wurde deshalb eine weitere Autoklavenanlage (III) mit einem Volumen von etwas über 0,4 Litern aufgebaut. Der Nachteil dieses relativ kleinen Volumens wird durch die höhere zu erwartende Abgaberate ausgeglichen, so daß nicht zu befürchten ist, daß die Konzentrationswerte im Druckwasser unter die Nachweisgrenze absinken werden. Diesen Autoklaven zeigt Abb. 4120-1.

Die Absenkung des Sauerstoffgehaltes im Deionat (Speisewasser) mittels Edelgasspülung, die sich gegenüber der chemischen Absenkung durch Zugabe von Hydrazin bei geringer Zeitdauer als wesentlich wirksamer erwiesen hatte, wurde in direkter Verbindung mit der Autoklavenanlage I weiterentwickelt. Abb. 4120-2 zeigt das Schema. Zunächst wird das Leitungswasser in einem Partikelfilter von 0,2 Mikrometer Porenweite vorgereinigt. Danach durchläuft es den Ionentauscher mit Leitfähigkeitskontrolle. Zur Einspeisung in den Autoklaven tritt bereits die Argonspülung hinzu, die auch innerhalb des Autoklaven wirksam ist. Danach wird das Speisewasser einer Sauerstoffmeßsonde zugeführt. Das Sauerstoffmeßverfahren enthält eine Meßzelle mit dem Elektrodensystem Silberanode-KCl-Gel-Goldkathode, das durch eine sauerstoffdurchlässige Membranfolie vom zu untersuchenden Wasser abgetrennt ist. Der durch eine Vorpolarisation bestimmte Strom wird in Gegenwart von Sauerstoff geändert, und es ist die Stromänderung ein Maß für den Sauerstoffgehalt im Wasser. Das digitalanzeigende Gerät OXI 610E, hat eine untere Nachweisgrenze von 0,01 mg O₂ / Liter Wasser.

Nach der Sauerstoffmessung des physikalisch chemisch abgegrenzten O₂-Gehaltes treibt eine Schlauchpumpe das Wasser zum Einlauf in die Reinigungskette zurück, so daß durch mehrmaligen Durchlauf dieses Reinigungskreislaufes ein extrem niedriger Restsauerstoffgehalt erreicht wird. Im umlaufenden Wasser von etwa 5 Litern nimmt der Sauerstoffgehalt zeitabhängig entsprechend der Abb. 4120-3 ab. Dieses Ergebnis bedeutet eine deutliche Unterschreitung der Spezifikation von Zusatzwasser zum Primärkreis in der Konditionierung von Druckwasserreaktoren (Sauerstoffgehalt < 0,05 mg/l).

Durch die aufgetretenen Schwierigkeiten bei der Erneuerung der Autoklaveninnenbelegung mit einer galvanisch aufgetragenen Goldschicht des Autoklaven I konnten die Untersuchungen der Metallabgabe von INCOLOY 800-Proben an das bei LIOH alkalisierte Druckwasser erst im 2. Halbjahr aufgenommen werden.

Es wird in einem zweiten Autoklaven der 500-h-Metallabgabetest mehrmals unterbrochen, um Informationen über den zeitabhängigen Mechanismus der Deckschichtenbildung auf den INCOLOY 800-Proben zu erhalten. Dazu werden notwendigerweise wieder die physikalischen Oberflächenuntersuchungsverfahren der Sekundär-Ionen-Massenspektrometrie und der Auger-Elektronen-Spektroskopie eingesetzt.

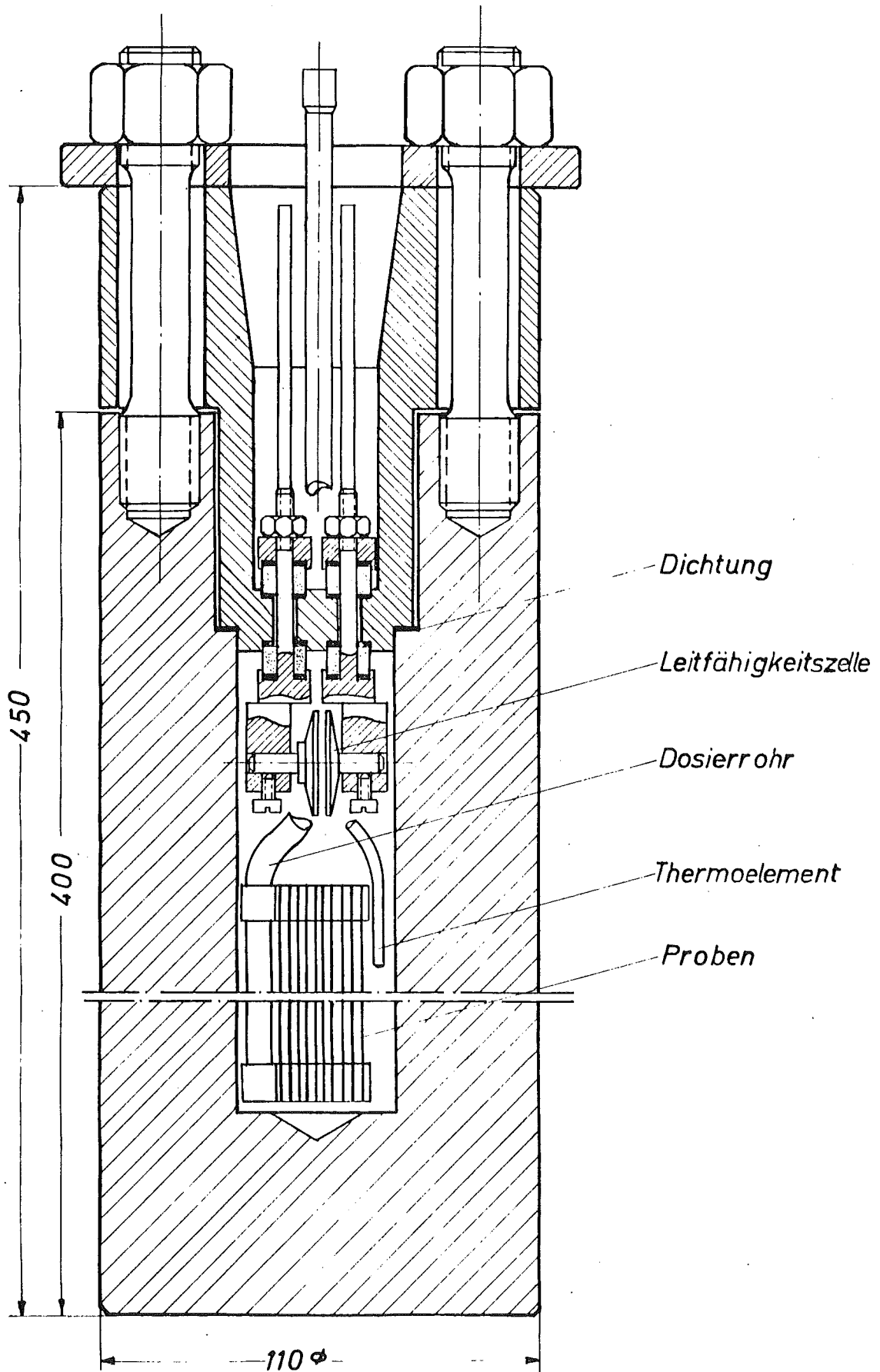
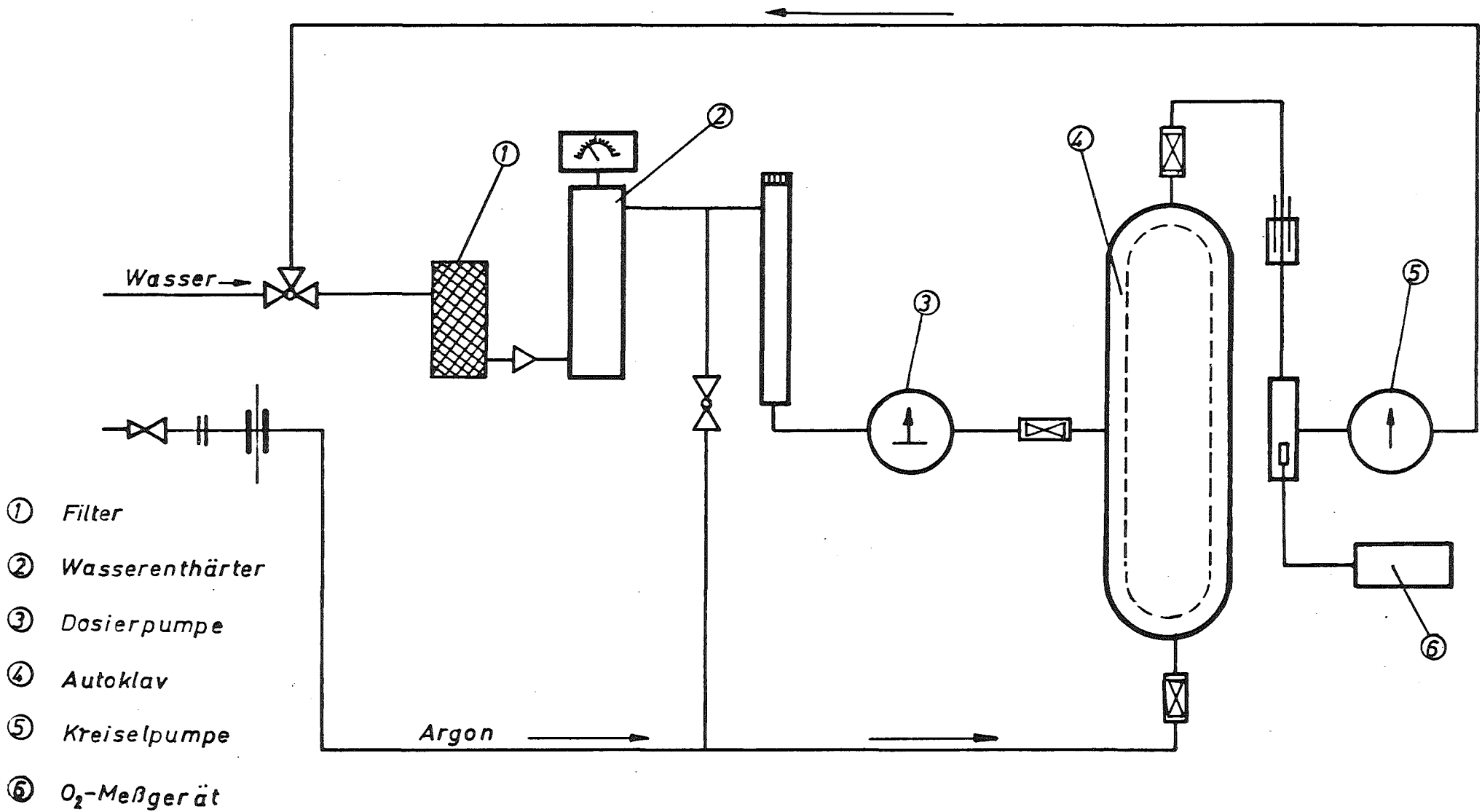


Abb. 4120-1 Autoklav III

Werkstoff: X 10 Cr Mi Mo 18 10 Höchstzulässige Betriebszustände 600°C, 200 bar



Anordnung zur O₂-Absenkung im Speisewasser der Autoklaven
 Abb. 4120-2

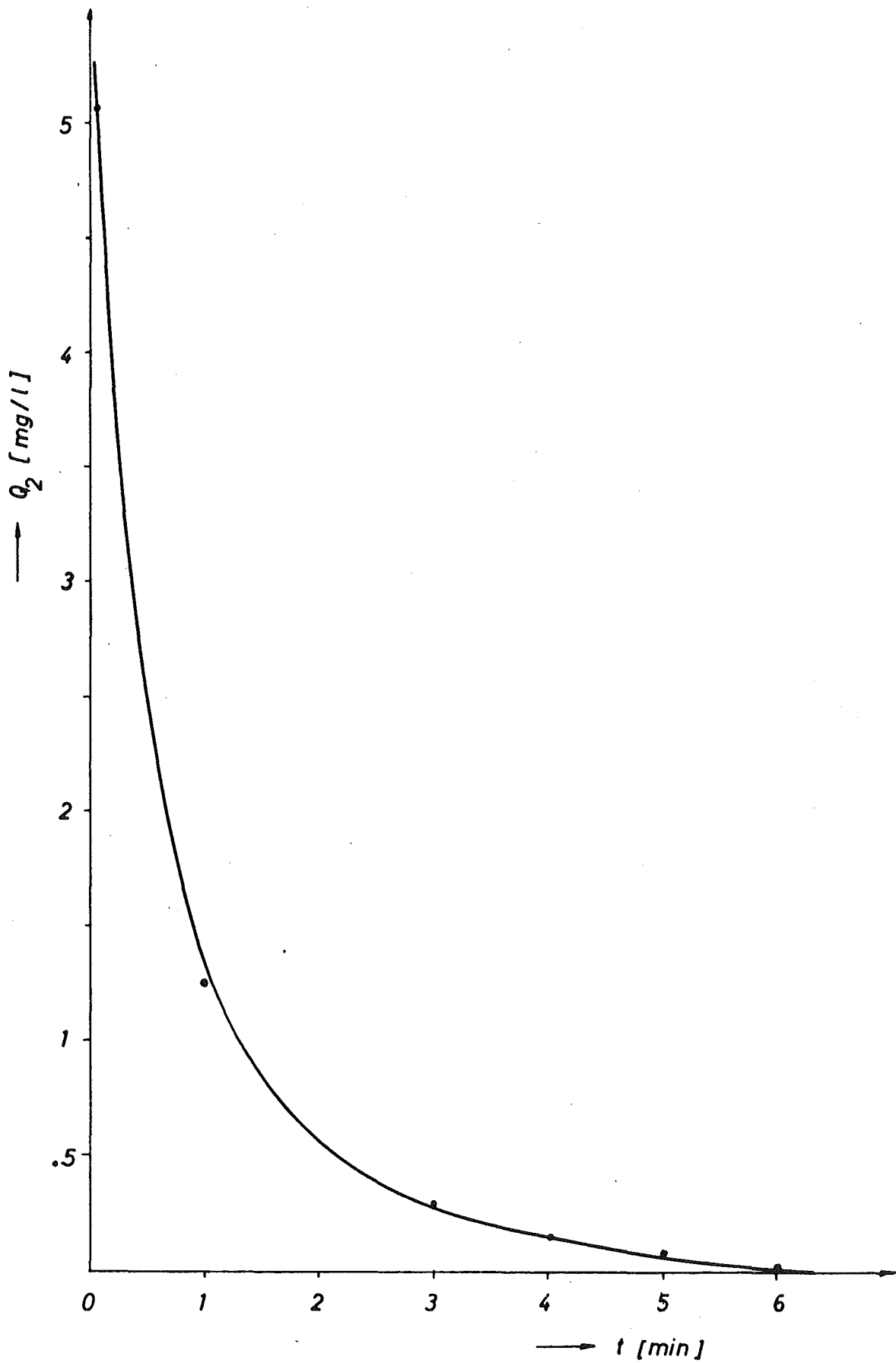


Abb. 4120-3 Sauerstoffabsenkung mit Argonspülung
[$\nu = 22\text{ }^\circ\text{C}$; $\text{pH} = 7,2$; $Q = 1,67\text{ l Ar/l H}_2\text{O} \cdot \text{min}$]

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

Im ersten Halbjahr 1976 wurden eine Reihe von Prozesslösungen der WAK analysiert. Es handelte sich um Proben aus hochaktiven, mittelaktiven und Wäscherlösungen. Die Ergebnisse entsprachen denen, die im vergangenen Jahr erhalten wurden. Als wichtigstes Ergebnis darf die abermalige Bestätigung der Tatsache angesehen werden, daß das Radiojod aus dem Kernbrennstoff während der Auflösung in HNO_3 praktisch quantitativ ausgetrieben wird.

36 Ziegen- und Kuhmilchproben wurden auf ihren ^{129}J -Gehalt analysiert. Die Ziegenmilchproben stammen von je zwei Bauernhöfen in Linkenheim und einem in Friedrichstal. In der Ziegen- und Kuhmilch, welche weiter ab von der Hauptwindrichtung gesammelt wurde, wurden im Durchschnitt einige $0,01 \text{ pCi } ^{129}\text{J/l}$ gemessen. Die Ziegenmilchproben, die an den restlichen beiden Sammelstellen gewonnen wurden, enthielten einige $0,1 \text{ pCi } ^{129}\text{J/l}$ bzw. einige $\text{pCi } ^{129}\text{J/l}$. Die letztere Probenahmestelle liegt im Hauptbeaufschlagungsgebiet der Abluftfahne der WAK. Die Grenzen der ^{129}J -Konzentrationen gemessen in Ziegenmilch liegen zwischen $0,04$ und $5,3 \text{ pCi } ^{129}\text{J/l}$ und in Kuhmilch zwischen $\leq 0,02$ und $0,096 \text{ pCi } ^{129}\text{J/l}$.

Die Probenahme von niederaktivem Abwasser der WAK, von den G-Behältern und den Endbecken der ADB erfolgte wie in einem früheren Halbjahresbericht des PNS beschrieben. Die Konzentrationen im niederaktiven Abwasser der WAK lagen zwischen 137 und $283 \text{ pCi } ^{129}\text{J/l}$, in den G-Behältern wurden Werte von $0-13 \text{ pCi } ^{129}\text{J/l}$ und in den Endbecken Werte von $0,1-0,8 \text{ pCi } ^{129}\text{J/l}$ gemessen. Während die im niederaktiven Abwasser der WAK gemessenen Konzentrationen den Ergebnissen des vergangenen Jahres entsprechen, liegen die restlichen Ergebnisse deutlich niedriger.

In den Monaten Februar bis April 1976 wurde ein Probenahmeprogramm für Boden und Pflanzen in der näheren und weiteren Umgebung der WAK durchgeführt. Insgesamt wurden ca. 200 Pflanzen- und Bodenproben genommen. Zweck dieses Programmes ist die Erfassung des aktuellen Kontaminationsstandes der Umgebung der WAK mit ^{129}J nach dem Einbau des im Rahmen des PNS-Vorhabens 4112 entwickelten, sehr wirkungsvollen Jodfilters. Außerdem soll die vertikale Verteilung von ^{129}J bis zu mehreren Metern Tiefe mit diesen Bodenproben gemessen werden.

Zur Bestimmung des Gehaltes des stabilen Jodes in der Umgebungsluft wurde eine Apparatur zur Probenahme und eine analytische Methode entworfen und geprüft. Die Analysenmethode erlaubt eine getrennte Bestimmung von Jodaerosolen und elementarem Jod. Wegen der langen Betriebspause des FR 2 werden erste Ergebnisse der Jodkonzentration in der Umgebungsluft erst Ende August vorliegen.

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

Beim Programmsystem zur Berechnung der radiologischen Belastung wurden bei den Modellen zur atmosphärischen Ausbreitung einige Änderungen vorgenommen (Einführung verschiedener Bodenrauigkeiten bei den Ausbreitungsrechnungen, Berücksichtigung der zeitlichen Änderung der Mischungshöhe) sowie die Modelle zur hydrosphärischen Ausbreitung fertiggestellt. Hierzu wurde die Sammlung hydrographischer Daten abgeschlossen und mit einer Zusammenstellung von Wassernutzungen flußabwärts von Kernkraftwerken begonnen. Es wurden weitere Teilergebnisse erzielt, wie z.B. die in Abb. 4134-1 dargestellten Schilddrüsen-Dosisraten durch J-131, die sich aufgrund des Mischungsprozesses in den Milchzentralen ergeben. Durch diese Mittelung ergeben sich realistischere Werte für die Schilddrüsen-Belastung durch Jod.

Eine spezielle Untersuchung /1/ befaßt sich mit den Aktivierungsprodukten mit besonderem Schwerpunkt auf der Freisetzung des Radiokohlenstoffisotops C-14 aus Kernreaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen. Für dieses Isotop wurden in einer russischen Arbeit /2/ relativ hohe Freisetzungsraten angegeben.

Die wesentlichen Neutronenreaktionen, die zur Entstehung von C-14 führen, sind:

- 1) C-13 $\frac{n, \gamma}{0,9 \text{ mb}}$ C-14
- 2) O-17 $\frac{n, \alpha}{0,236 \text{ b}}$ C-14
- 3) N-14 $\frac{n, p}{1,81 \text{ b}}$ C-14

Die zweite und dritte Reaktion tragen in Leichtwasserreaktoren den Hauptteil zur C-14-Erzeugung bei. Sauerstoff ist chemischer Verbindungspartner im Brennstoff und im Kühlmittel. Die natürliche Häufigkeit des O-17-Isotops beträgt 0,039 %. Stickstoff tritt als Verunreinigung im Brennstoff und im Kühlmittel auf. N-14 ist zu 99,64 % im natürlichen

Stickstoff enthalten. Die Bedeutung der Stickstoffverunreinigung ist begründet in dem hohen Verhältnis:

$$\frac{\sigma_{\text{th}}(\text{N-14})}{\sigma_{\text{th}}(\text{O-17})} \cdot \frac{\text{N-14/N}}{\text{O-17/O}} = 1,96 \cdot 10^4$$

Bei einer Stickstoffverunreinigung von 20 ppm im Brennstoff und von 5 - 10 ppm im Kühlmittel trägt die (n,p)-Reaktion mit etwa einem Drittel zur C-14-Gesamtproduktionsrate von 60 Ci/a in einem 1000 MW_e LWR bei.

Graphitmoderierte Reaktoren enthalten ebenfalls Stickstoff als Verunreinigung im Graphit. Hier ist das Verhältnis

$$\frac{\sigma_{\text{th}}(\text{N-14})}{\sigma_{\text{th}}(\text{C-13})} \cdot \frac{\text{N-14/N}}{\text{C-13/C}} = 2 \cdot 10^5,$$

so daß bei einer Verunreinigung von 25 ppm Stickstoff etwa 4/5 der Gesamtproduktionsrate von 100 Ci/a eines 1000 MW_e HTR durch die Stickstoffreaktion erzeugt wird.

Auf der Basis einer Prognose der Kernenergieentwicklung zeigt Abb. 4134-2 als Beispiel das globale C-14-Inventar durch kerntechnische Anlagen bis zum Jahr 2000.

Literatur:

/1/ G. Lorenz

Erzeugung und Freisetzung von Aktivierungsprodukten, insbesondere C-14, aus KKW und WAA und deren voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000 (in Vorbereitung)

/2/ V.P. Rublevskii, A.S. Zykova, A.D. Turkin

Kernkraftwerke als Emissionsquelle von Kohlenstoff-14

Übersetzt von R. Corssen, bearbeitet von G. Lorenz

Bericht KFK-tr-458 (1976)

/3/ A. Bayer, R. Kalckbrenner, M. Schückler

Zukünftige radiologische Belastung durch kerntechnische
Anlagen im Einzugsgebiet des Oberrheins

Teil I: Belastung über den Luftweg

Reaktortagung Düsseldorf 1976, ZAED Leopoldshafen 1976, S. 727

/4/ M. Schückler, R. Kalckbrenner, A. Bayer,

Zukünftige radiologische Belastung durch kerntechnische
Anlagen im Einzugsgebiet des Oberrheins

Teil II: Belastung über den Wasserweg

Reaktortagung Düsseldorf 1976, ZAED Leopoldshafen (1976), S. 723

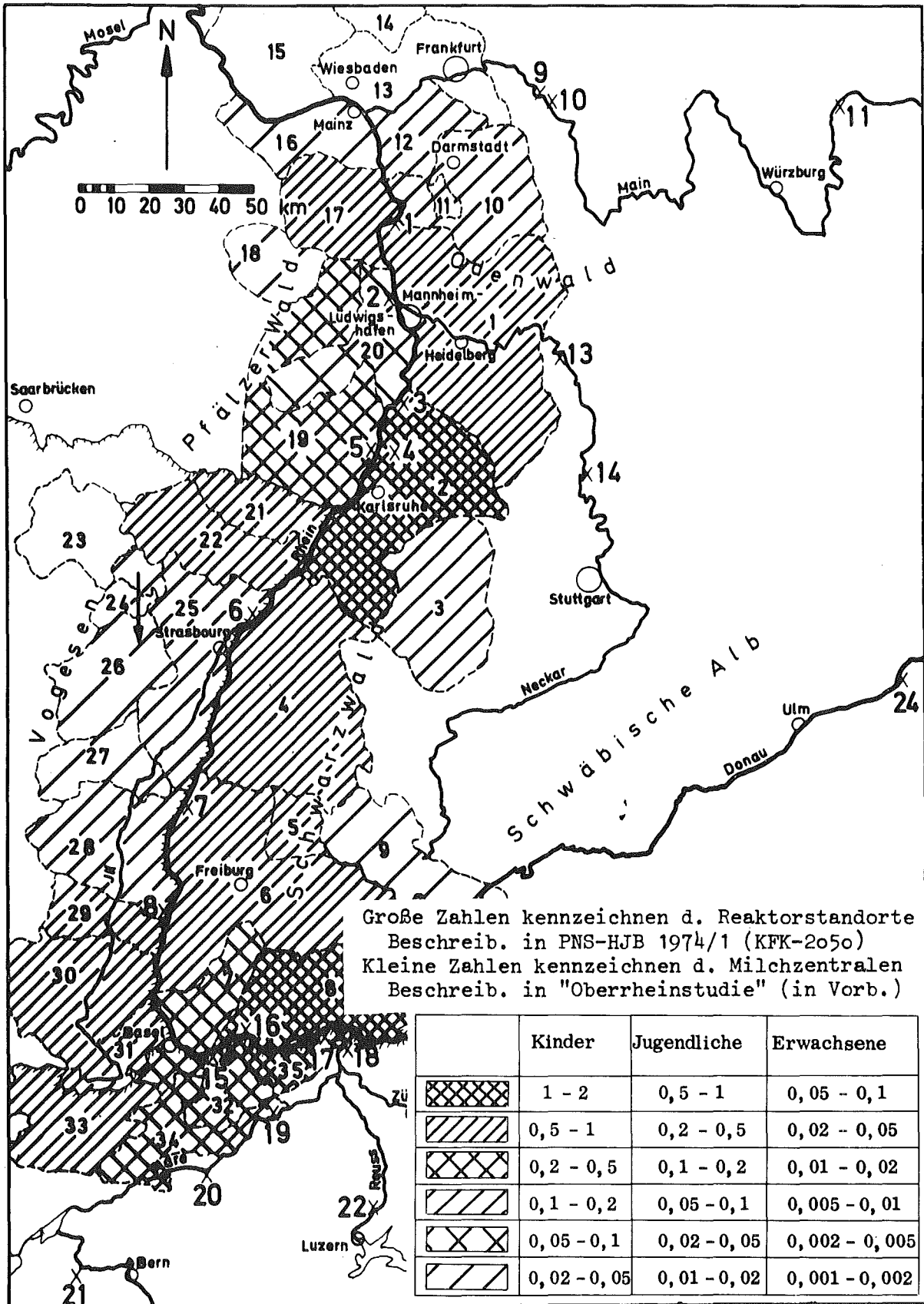
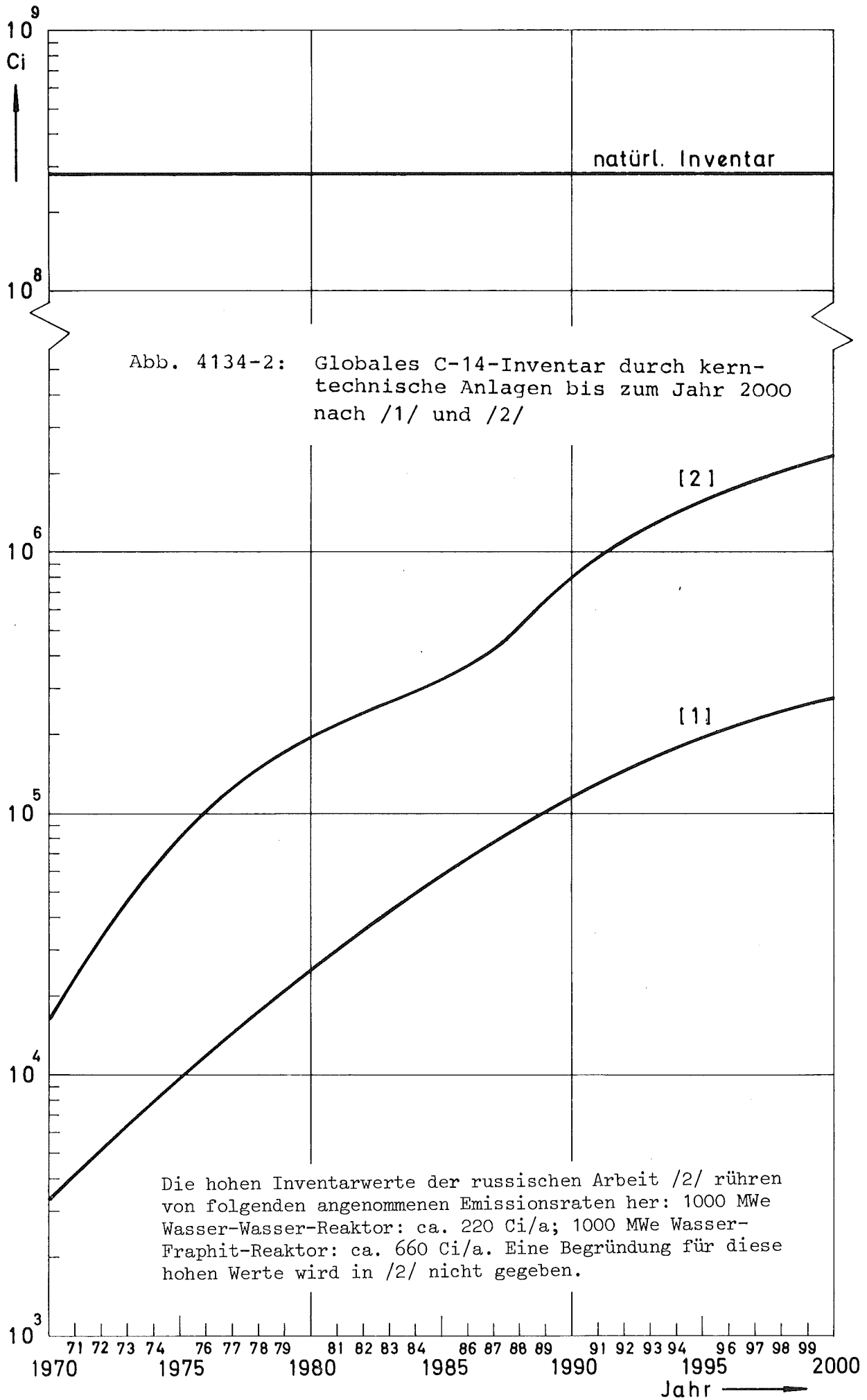


Abb. 4134-1 Schilddrüsen-Dosisraten (mrem/a) im Jahr "1985" durch J-131 über den Weide-Kuh-Milch-Pfad

Mittelung durch Mischungsvorgänge in zentralen Verarbeitungsbetrieben



4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen
(R. v. Ammon, W. Weinländer, IHCH; E. Hutter, G. Neffe, W. Pfeiffer, RBT; C.H. Leichsenring, PNS-PL)

1. Versuchsanlage

1.1 Adsorptionsanlage ADAMO

Um zu verhindern, daß es in der Tieftemperaturanlage KRETA zu Ausfrierungen und Verstopfungen kommt, wird das Abgas mit seiner zu erwartenden Zusammensetzung nach der NO_x - und O_2 -Reduktion mit einem Kompressor auf das Druck-Niveau von 6 bar gebracht. An einem nachgeschalteten Kühler (ca. 5°C) wird der größte Teil des im Abgas enthaltenen Wassers abgeschieden. Dennoch überwiegt das Restwasser vor allen anderen Schadstoffen wie CO_2 , NH_3 , NO_x , KW-Stoffe. Die Adsorptionsanlage ADAMO besteht deshalb aus je zwei hintereinander geschalteten Behältern in drei Straßen. Beim Adsorbieren gelangt das Gas zunächst in einen

Silicagel-Behälter:	Durchmesser 200 mm
	Höhe ca. 2000 mm
	Inhalt ca. 30 kg Silicagel

Hier wird das Abgas bevorzugt vom Wasser gereinigt (bis zu einem Taupunkt von -60°C). Anschließend strömt das Gas in den

Molekularsieb-Behälter:	Durchmesser 200 mm
	Höhe ca. 2500 mm
	Inhalt ca. 45 kg Molekularsieb

Nach der Adsorption sollen die Endreinheiten der genannten Schadstoffe 1 bis 2 ppm nicht überschreiten.

In der zweiten Straße wird während des achtstündigen Adsorptionsprozesses ($45 \text{ Nm}^3/\text{h} \pm 20\%$) gespült, das - insbesondere am Molekularsieb - anhaftende Krypton vollständig zu entfernen.

In der dritten Straße werden die Betten regeneriert (Desorption und Kühlung). Die Regeneriergastemperatur beträgt 220°C bei einem Gasdruck von 1 bar. Bei der Desorption und Kühlung ist die Strömungsrichtung des Gases aufwärts und damit entgegengesetzt zum Adsorptions- und Spülvorgang. Während das Spülgas dem Prozeß vor dem Kompressor wieder zugegeben wird, kann das Regeneriergas (Stickstoff der im wesentlichen Wasser und Kohlendioxid und die anderen Schadstoffe in sehr geringer Konzentration, - maximal 100 bis 200 ppm enthält) an die Atmosphäre abgegeben werden.

Die Anlage ADAMO wird der Optimierung der Prozeßparameter sowie der Untersuchung des Adsorptionsmaterial-Verhaltens (Alterung usw.) dienen. Bei den technischen Liefer- und Abnahmebedingungen sowie bei der konstruktiven Gestaltung wurde berücksichtigt, daß sie als ein Vorbild für eine möglichst ähnliche Anlage an der WAK im Rahmen des Projektes AZUR dienen kann. Die Adsorptionsanlage ADAMO wurde im Januar 1976 bestellt und befindet sich z.Z. in der Konstruktion.

1.2 Berechnungen zur Tieftemperatur-Rektifikationsanlage KRETA

Die in den vorangegangenen PNS-Halbjahresberichten ausführlich beschriebene Tieftemperatur-Rektifikationsanlage KRETA mit allen zugehörigen Versorgungseinrichtungen ist fast fertiggestellt. Ihre Inbetriebnahme und erste Versuchsergebnisse sind für das zweite Halbjahr 1976 vorgesehen. Die die Versuche begleitende theoretische Untersuchung der Rektifikation wurde mit der Berechnung der Trennung des polynären Gemisches N_2 , Ar, O_2 , Kr und Xe aufgenommen:

Mit dem dynamischen Programm DYBREK wurde das Anfahrverhalten einer Rektifikationskolonne simuliert. Im Kolonnensumpf beginnend wird mit einer Boden-zu-Bodenrechnung für eine vorgegebene Säulenstruktur der Konzentrationsverlauf mit den zugehörigen Temperaturen- und Flußverhältnissen für jeden Zeitschritt neu berechnet. Hierzu werden die Bilanzgleichungen in differentieller Form angesetzt und die sich ergebende Systeme von Differentialgleichungen numerisch gelöst. Bei vorgegebenen Randbedingungen erhält man bei frei wählbaren Anfangswerten auf diese Weise den zeitlichen Verlauf aller Varianten und, in dem man über eine hinreichend lange Zeit integriert, schließlich den stationären Zustand.

Zum Zeitpunkt $t = 0$ wird die Kolonne mit reinem Stickstoff betrieben. Die Volumenströme im Betriebs- und Verstärkungsteil der Kolonne entsprechen den Auslegungsdaten von Leybold-Heraeus. In Abb. 4140-2 sind die numerisch berechneten Konzentrationen für die Komponente N_2, Ar, O_2, Kr, Xe im Sumpf dargestellt. Die Siedepunkte von Ar und O_2 liegen zwischen den Siedepunkten von N_2 und Kr, Xe . Das bedeutet, daß zuerst N_2 von Ar und O_2 verdrängt wird. Mit zunehmender Konzentration an Kr und Xe sinken die Konzentrationen für Ar und O_2 nach Erreichen eines Maximums sehr schnell ab. Im angegebenen Bereich besteht die Gefahr des Ausfrierens von Xe . In einer Rechnung, in der die Kr -Konzentration um den Faktor 6 erhöht wurde, konnte gezeigt werden, daß der Ausfrierbereich umfahren werden kann. D.h. während des Anfahrbetriebs bis zum stationären Zustand muß dementsprechend Kr zugespeist werden. Der stationäre Endzustand nach dem dynamischen Verfahren wurde mit einem statischen Rechenprogramm von Hauss /1/. das nur den stationären Betriebszustand berechnet überprüft.

Um das Verhalten der Kolonne bei Betriebsparameteränderungen zu beurteilen, wurde vom stationären Betriebszustand ausgehend, einmal die Kr -Konzentration und zum anderen die Feedgasmenge um 30 % verringert. Bei beiden Änderungen strebt die Kolonne einem neuen stationären Betriebszustand zu. Abb. 4140-3 zeigt die Entwicklung der Kr -Konzentration im Sumpf und auf den Böden bei sprunghafter Verdopplung der Kr -Konzentration im Feedgas.

Bei sprunghafter Erhöhung der Heizleistung unter Beibehaltung der übrigen Betriebsparameter wird das Kr im Sumpf ausgetrieben und die Kr -Konzentration steigt auf den Böden an, bis sie in den Verstärkungsteil der Kolonne durchbricht.

/1/ Hauss: Statisches Rechenprogramm zur Berechnung von Rektifikationskolonnen (unveröffentlicht)

Tab. 4140-1: Effekt der Beladung einiger Edelmetallkatalysatoren mit "P₂O₅" (Zersetzungsprodukt von TBP) auf die Reduktion von NO mit H₂ (T_v = Mindesttemperatur des vollständigen NO-Umsatzes)

Katalysator		Beladung mit "P ₂ O ₅ " ^{x)}		T _v [°C]		NH ₃ -Gehalt [ppm] b. 400°C	
Typ	S [m ² /g]	[mg/g]	[mg/m ²]	vor	nach	vor	nach
				Beladung		Beladung	
Doduco (0.3 & Ru)	79	20	0.25		300		15
		30	0.38	300	400	15	250
		40	0.51		400		200
	350	50	0.14	300	300	30	35
KCE Do 35 K (Pt)	30	30	1.0	200	300	~ 1000	800

x) Der Fehler dieser Werte beträgt ca. ± 20 %.

2. Laboruntersuchungen zur Vorreinigung

2.1 Katalytische Reduktion von O_2 und NO_x mit H_2

Nach der Auswahl der reinen Ru-Katalysatoren für die Reduktion von O_2 und NO_x mit H_2 , aufgrund ihrer im Vergleich zu den Pd- bzw. Pt-haltigen Typen niedrigen NH_3 -Bildungsrate standen Vergiftungsversuche mit Tributylphosphat (TBP) und Jod an diesen Katalysatoren im Vordergrund.

2.1.1 Vergiftung mit TBP

Die Beladung der Katalysatorproben mit TBP erfolgte vor dem Aktivitätstest durch Besprühen mit einem N_2 -Strom, der vorher durch eine methanolische TBP-Lösung geleitet wurde oder durch Eintauchen des Katalysators in diese Lösung. Eine Variation der TBP-Beladung wurde dabei durch die Dauer des Besprühens und die Konzentration der TBP-Lösung erreicht. Danach wurden die Proben durch Trocknen bei $250^\circ C$ in Luft vom Lösungsmittel und Zersetzungsprodukten des TBP befreit. Dabei bildeten sich Phosphoroxide, vermutlich P_2O_5 , worauf die starke Hygroskopizität der Proben hinwies. Die Gewichtszunahme nach dieser Vorbehandlung stellt die Beladung mit " P_2O_5 " dar.

Die Aktivitätstests wurden - wie im letzten Halbjahresbericht (KFK 2262) beschrieben - bei einer Katalysatorbelastung von $5 Nm^3/1 \cdot h$ und einer Gaszusammensetzung von 0,5 % NO , 0,75 % O_2 und 2,75 % H_2 in N_2 vorgenommen. In Tabelle 4140-1 sind die Ergebnisse mit den entsprechenden Werten des unvorbehandelten Katalysators verglichen. Dabei zeigt sich, daß T_v , die Mindesttemperatur des vollständigen NO -Umsatzes (NO -Konzentration hinter dem Katalysator ≥ 1 ppm), mit steigender TBP-Beladung zunimmt. Ebenso steigt bei den Ru-Katalysatoren (Doduco) die NH_3 -Bildung. Bei dem Typ mit der großen spez. Oberfläche von $350 m^2/g$ sind die Effekte nicht merklich, weil hier die Oberflächenbelegung durch TBP offenbar noch zu gering ist. Bei dem Pt-haltigen Typ (KCE) konnte keine weitere Erhöhung der schon vor der Beladung sehr hohen NH_3 -Bildung festgelegt werden.

2.1.2 Vergiftung durch Jod

Hier wurde die Beladung des Katalysators durch kontinuierliches Verdampfen von J_2 im Gasstrom während des Aktivitätstests vorgenommen. Es hatte sich nämlich gezeigt, daß eine Beaufschlagung ähnlich der vorher beschriebenen zur Folge hatte, daß große Teile des adsorbierten J_2 während des Aktivitätstests wieder vom Katalysator desorbiert wurden, so daß keine definierte J_2 -Beladung angegeben werden konnte. Die Dosierung einer wäßrigen J_2 -Lösung mittels einer Dosierpumpe in ein auf $180^\circ C$ beheiztes Edelstahlgefäß, wo augenblickliche Verdampfung stattfand, erlaubte die genaue Dosierung des J_2 zum Gasstrom vor dem Katalysator. Im Gasstrom und im H_2O -Kondensat hinter dem Katalysator wurde während des Versuchs der Durchbruch des durch katalytische Reduktion gebildeten HJ mittels $AgNO_3$ verfolgt.

Hier ergab sich ebenfalls mit steigender Jod-Beladung eine Erhöhung der NH_3 -Bildung, die aber wesentlich ausgeprägter als bei der TBP-Vergiftung ist. Wie die Abbildung zeigt, ist die NH_3 -Bildung bei gleicher adsorbierter Jodmenge umso stärker, je größer die spezifische Oberfläche des Katalysators ist. In allen drei untersuchten Fällen wird eine Sättigung der NH_3 -Bildung bei einer bestimmten Jod-Beladung erreicht, die gleichzeitig die maximale Kapazität für die HJ-Adsorption darstellt.

Der NO-Umsatz ist bei vollständiger Jod-Beladung, d.h. bei HJ-Durchbruch bei $400^\circ C$ noch quantitativ. Eine gewisse Verringerung der Katalysator-Aktivität macht sich jedoch in einer Erhöhung der minimalen Temperatur des vollständigen NO-Umsatzes, die in derselben Größenordnung wie bei der TBP-Vergiftung liegt (maximal $100^\circ C$) bemerkbar.

Eine vorläufige, plausible Deutung der Befunde bei der Vergiftung sowohl mit TBP als auch mit Jod geht dahin, daß durch die starke Adsorption dieser Gifte am Ru-Metall die Adsorption von NO erschwert wird. Dadurch wird die Wahrscheinlichkeit des Zusammentreffens zweier NO-Molekeln an der RU-Oberfläche und damit der N_2 -Bildung verringert, die NH_3 -Bildung dagegen begünstigt.

Der Katalysator mit der geringsten NH_3 -Bildung ist der Typ Doduco 9 m^2/g . Seine maximale Jod-Kapazität liegt bei $17\text{ mg } J_2/g$. Nimmt man einmal

an, daß die Standzeit dieses Katalysators in der Abgasstrecke einer großen WA-Anlage (J_2 -Durchsatz 500 kg/a, DF des vorgeschalteten Jodfilters = 10^3) durch die Durchbruchzeit des Jods gegeben ist, dann wären nur 30 kg Katalysator notwendig, um eine Standzeit von 1 Jahr zu gewährleisten. Da der Gasdurchsatz in einer solchen Abgasstrecke wesentlich größere Katalysatorbetten erfordern wird, kann als wesentliches Ergebnis dieser Untersuchung festgestellt werden, daß die Vergiftung durch Jod wie auch durch TBP mit großer Wahrscheinlichkeit nicht unpraktikabel kurze Katalysator-Standzeiten zur Folge haben wird.

2.2 Adsorption an Molekularsieben

An der Laboranlage zur Messung der dynamischen Adsorption von verschiedenen Komponenten des vor der TTR zu erwartenden Gasgemisches wurden der Versuchsbetrieb aufgenommen. Zunächst wurden die Durchbruchzeiten der Gas NO und NH_3 an verschiedenen Molekularsieb-Typen bestimmt und somit Daten gewonnen, die aus der einschlägigen Literatur größtenteils nicht zu entnehmen sind. Als Adsorbentien kamen zum Einsatz: das konventionelle Molekularsieb Linde 5A, die säurefesten Typen AW-300 (Union Carbide) und Zeolon-200 (Norton). Es wurden die Parameter Temperatur (T), Partialdruck der Gaskomponente im Trägergas N_2 (p), Gesamtdruck (P) und damit der Durchsatz des Trägergases (F) variiert.

Aus der mittleren Durchbruchzeit (t_m) wurde der dynamische Adsorptionskoeffizient

$$(k_d = \frac{F \cdot t_m}{M}, \text{ wobei } M = \text{die Menge des Adsorbens})$$

bestimmt. In Tabelle 4140-2 sind einige Werte zum Vergleich angegeben. Daraus ergeben sich folgende Ergebnisse:

- NH_3 wird an den säurefesten Molsieben etwa um den Faktor 2 schlechter adsorbiert als am konventionellen Typ 5A;
- die Adsorption von NO an Molsieb 5A ist sehr schlecht; eine Abtrennung dieses Gases auf adsorptivem Weg erscheint damit kaum möglich.

Tab. 4140-2: Dynamische Adsorptionskoeffizienten k_d [Nml/g] von NH_3 und NO an einigen Molekularsieb-Typen in Abhängigkeit von Gasdurchfluß F [Nml/min], Gesamtdruck P [bar] und Temperatur [$^{\circ}\text{C}$]

Adsorptiv	Adsorbens	F [Nml/min]	P [bar]	T [$^{\circ}\text{C}$]	k_d [Nml/g]	
NH_3	5A	$1.55 \cdot 10^4$	1.3	20	$7.90 \cdot 10^4$	
	"		1.3	40	$6.80 \cdot 10^4$	
	AW-300		1.3	20	$2.99 \cdot 10^4$	
	"		5.0		$3.31 \cdot 10^4$	
	Zeolon-200		1.3		$2.82 \cdot 10^4$	
	"		5.0		$3.44 \cdot 10^4$	
	NO	5A	$3.1 \cdot 10^3$	1.3	20	25.15
		"	"	5.0		62.03
"		$1.55 \cdot 10^4$	1.3		32.04	
"		"	5.0		81.15	
"		"	1.3		0	53.11
"		"	"	5.0	0	102.71

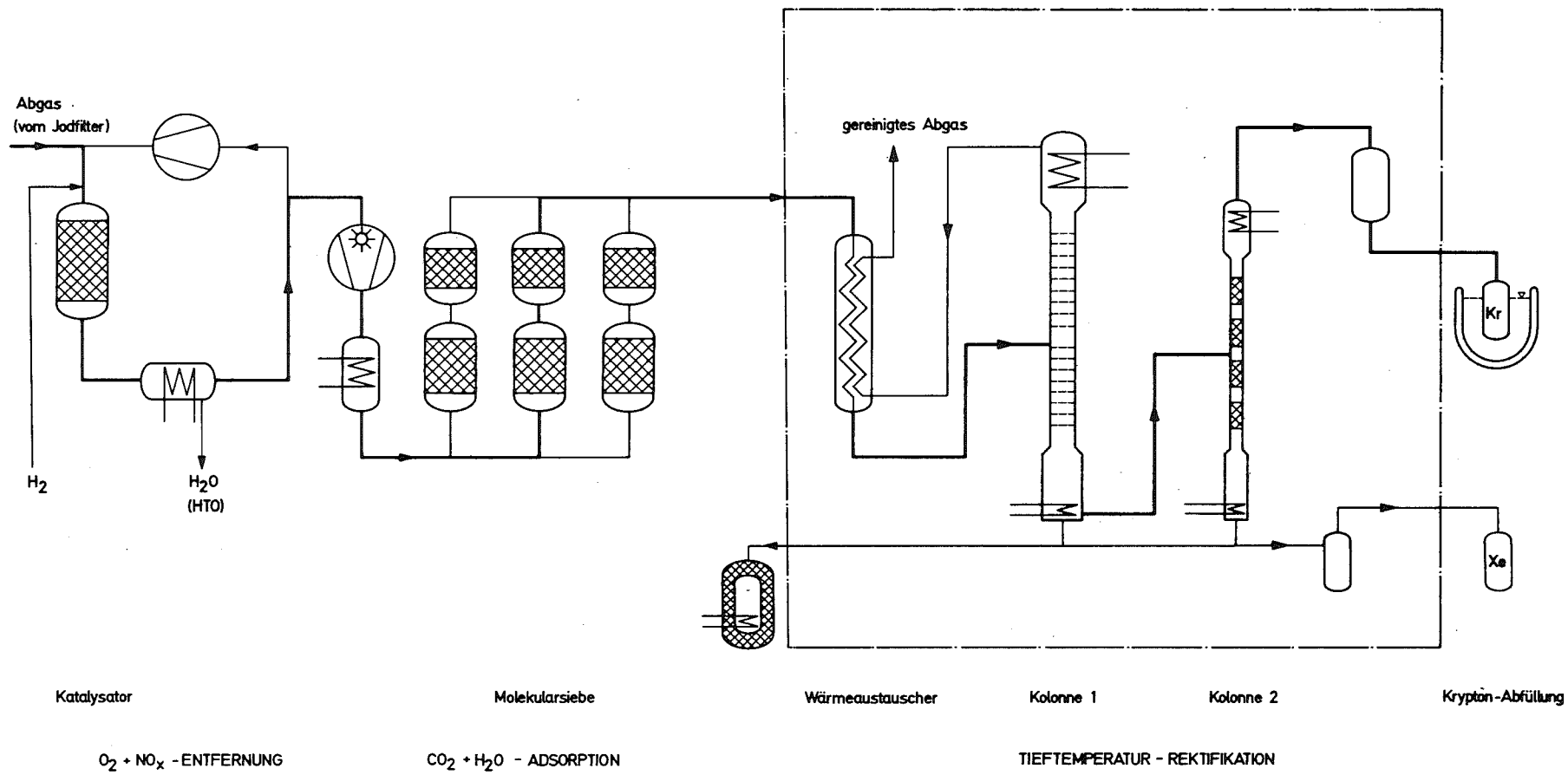


Abb. 4140-1: Schema der Adsorptionsanlage ADAMO und TTR-Anlage KRETA

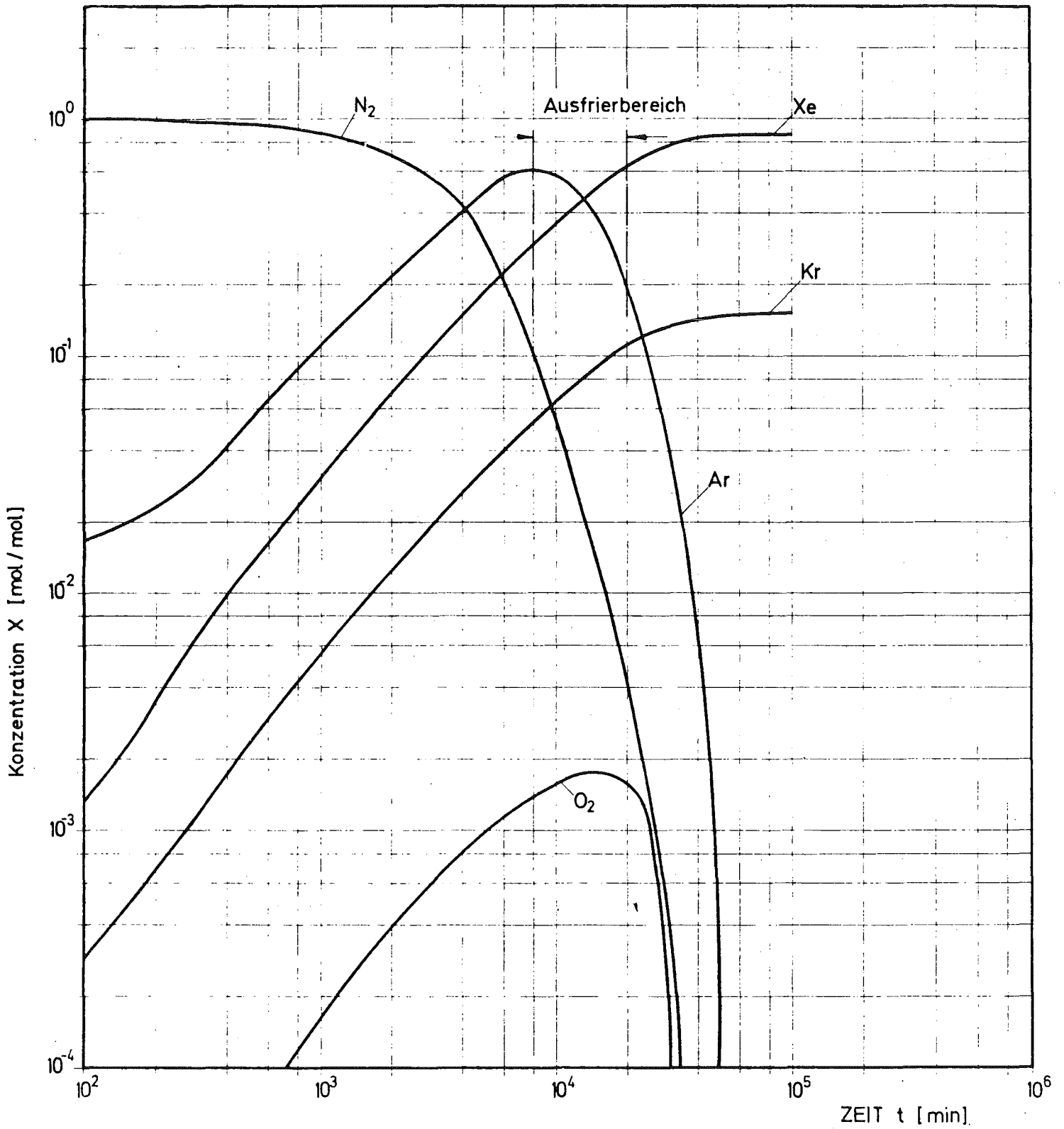


Abb. 4140-2: Konzentrationsverlauf von Xe, Kr, Ar, N_2 , O_2 im Sumpf der 1. TTR-Kolonne in Funktion der Zeit

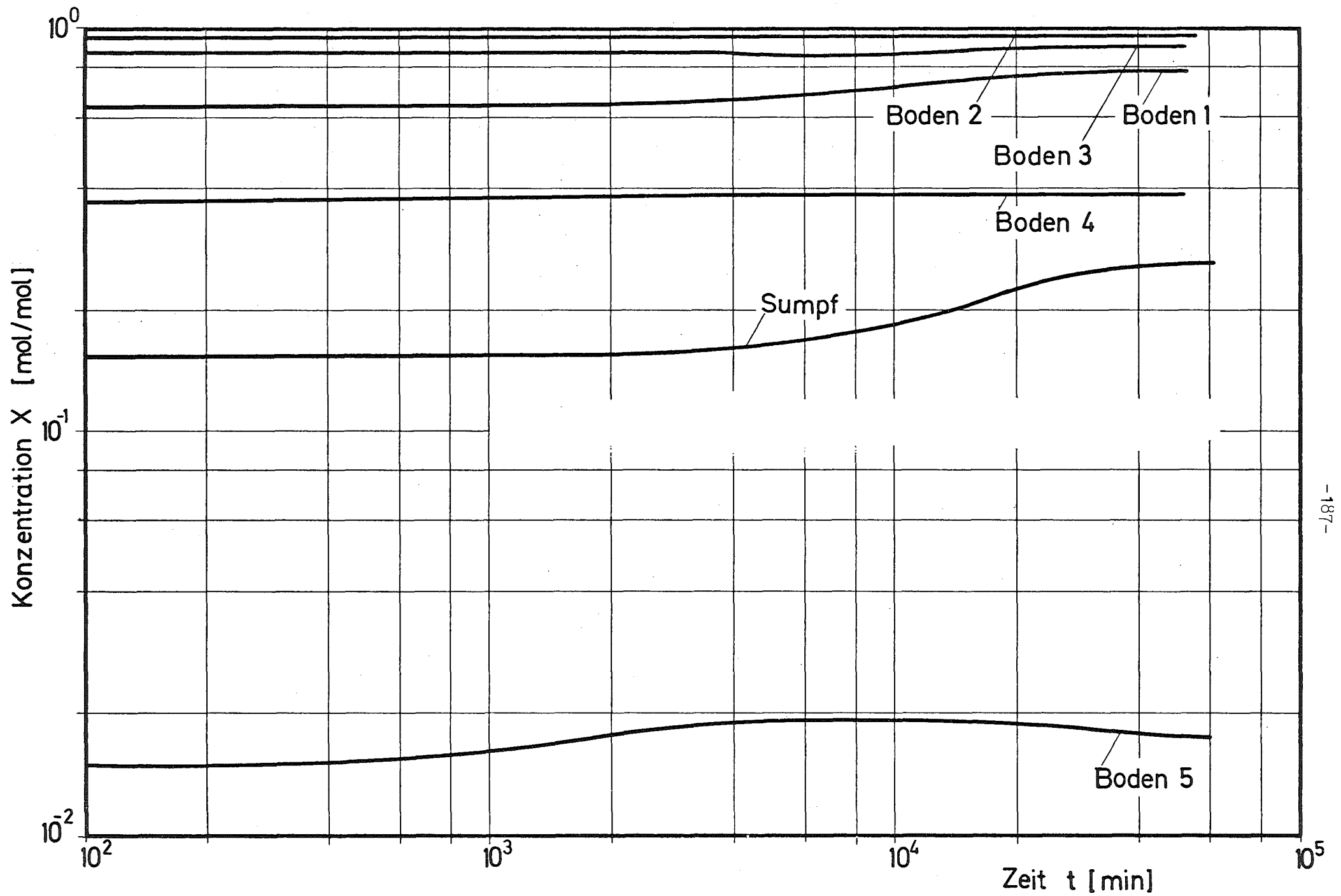


Abb. 4140-3: Änderung der Konzentration von Krypton

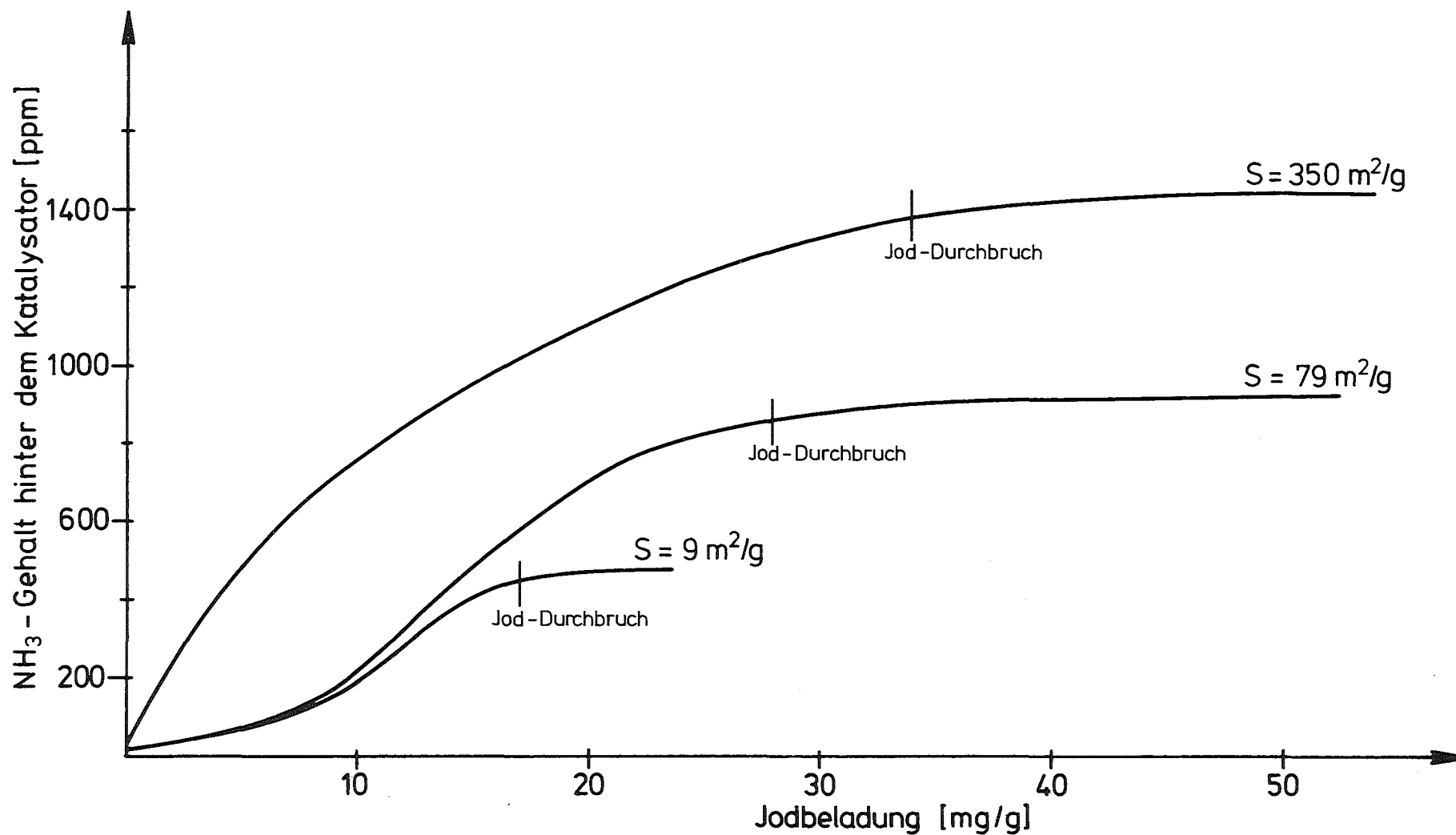


Abb. 4140-4: Abhängigkeit der NH_3 -Bildung bei der NO -Reduktion mit H_2 von der Beladung des Katalysators mit Jod und von der spezifischen Oberfläche (s) des Trägermaterials

3. Bestimmung des Ozons im Sumpf einer Tieftemperatur-Rektifikationskolonne und Entwicklung eines Verfahrens für dessen Beseitigung
(P. Schuster, K. Günther, R.-D. Penzhorn, IRCH)

Einleitung

Am Ende der Abgasreinigungsstrecke der geplanten Wiederaufarbeitungsanlage sind zur Abtrennung der Spaltgase Xe und Kr zwei Tieftemperatur-Rektifikationskolonnen (TTR) vorgesehen. Durch Einwirkung der β -Strahlung von Kr^{85} auf Sauerstoff kann Ozon entstehen. Die Bildung und Ansammlung von Ozon im Sumpf der ersten Kolonne ist daher nicht auszuschließen. Bei Auftreten eines Störfalls (z.B. Lufteinbruch), oder wenn auf die geplante Vorreinigung mit einer katalytischen Verbrennung des O_2 ganz oder partiell verzichtet wird, ist mit beträchtlichen Ozonkonzentrationen zu rechnen. Da bei tiefen Temperaturen flüssiges Ozon bekanntlich durch seine spontane, explosionsartige Zerstreung nicht ungefährlich ist, ist es zweckmäßig, a) eine Methode zur Bestimmung von Ozon im Sumpf der TTR zu entwickeln und b) ein Verfahren zu erarbeiten, mit dem die Ozonbildung unterbunden bzw. das Ozon nach seiner Entstehung zerstört werden kann.

Durchgeführte Arbeiten

Mit diesem Forschungsvorhaben wurde 1976 begonnen.

1. - Ozonanalytik

Zur Ermittlung einer quantitativen Ozonbestimmungsmethode bei tiefen Temperaturen (ca. -110°C) ist ein explosions sicherer Stahlkryostat konzipiert und dessen Bau bereits an die Industrie vergeben worden. Der Innenbehälter

geplant die Ozonkonzentration in der Flüssigkeit direkt durch UV-Absorption zu messen. Hierfür ist eine mit Quarzfenstern ausgestattete UV-Zelle vorhanden, die an den Kryobehälter angeschlossen ist. Eine Flüssigkeitszirkulierung durch die UV-Zelle soll durch einen Temperaturgradienten erzeugt werden. Die durch direkte UV-Absorption erzielten Ergebnisse sollen mit anderen Ozon-Meßmethoden verglichen werden. Hierfür ist ein geeichtes 10 cm^3 -Probeentnahme-Volumen vorhanden, das direkt an den Kryobehälter angeschlossen ist und das die gleiche Temperatur wie der Behälter hat. Nach Verdampfung dieses aliquoten Teils in einen Stahlbehälter kann die Ozon-Konzentration mit einer von mehreren zur Verfügung stehenden Analysemethoden bestimmt werden. Folgende Analysemethoden sind bereits erprobt und gegenübergestellt worden:

- a) Kaliumjodid-Methode: Durch Reaktion von Ozon mit Kaliumjodid entsteht freies Jod, das mit Natriumthiosulfat titriert wird. Diese Methode ist allerdings bei geringen Mengen Ozon relativ unempfindlich.
- b) UV Derivativ Spektrometrie: In einer 1 m langen Zelle mit 12 m langem Lichtweg können noch 40 ppb Ozon bestimmt werden.
- c) Chemiluminiszenz Methode: Mit einem selbstgebauten Chemiluminiszenzreaktor können Ozonkonzentrationen - vom ppm Bereich bis zur reinen Substanz - sehr schnell und zuverlässig erfaßt werden.

Weitere Methoden, die für eine semikontinuierliche Überwachung der Ozonkonzentration in Frage kommen, wie z.B. UV-Absorption, werden z.Z. untersucht.

2. - Katalytische Ozonzerstörung

Obwohl Ozon sowohl adsorptiv als auch katalytisch entfernt werden kann, wurde zunächst eine Untersuchung der Zerstörung durch Reinmetall und Metalloxid vorgezogen. Eine schematische Darstellung der für diese Zwecke gebauten Stahl-

apparatur ist aus Abb. 4.140-6 zu sehen,

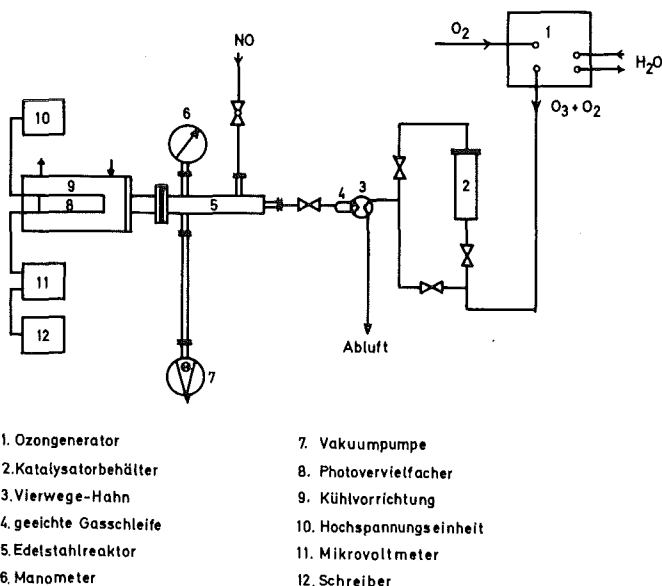


Abb. 4.140-6; Versuchsanordnung zur Messung der katalytischen Zersetzung des Ozons

Das in einem Ozonisator aus reinem O_2 erzeugte Ozon wird entweder direkt oder nach Durchgang durch einen mit Katalysator gefüllten Behälter in einen aus Edelstahl gebauten Chemiluminiszenzreaktor geleitet. Da die Probe mittels eines 4-Weghahnes über ein Eichvolumen in den Reaktor "eingespritzt" wird, ist eine quasikontinuierliche Ozon-Messung möglich. Der Katalysatorbehälter ist sowohl heizbar als auch bis auf $-80^\circ C$ mit einem Kryostaten kühlbar. Stickstoffmonoxid wird seitlich unverdünnt zugespeist und durch kontinuierliches Pumpen bei einem Druck von ca. 0.45 mbar gehalten. Das Chemiluminiszenzsignal, das dem O_3 Partialdruck proportional ist, wird mit einem Fotovervielfacher aufgenommen, der sich in einem auf $-40^\circ C$ gekühlten

Gehäuse befindet. Das Signal wird anschließend verstärkt und mit einem Schreiber registriert.

Drei Katalysatoren wurden bisher mit dieser Anordnung untersucht:

Silber (Ag): Wegen seiner Struktur braucht dieser Katalysator (2,3 DM/g) keinen "carrier" und ist zusätzlich leicht austauschbar. Die Versuche wurden aus apparativen Gründen bei einem konstanten O_2-O_3 Durchsatz von $0,03 \text{ N m}^3/\text{h}$ und Ozon-Konzentrationen von 0,21 und 0,50 g/h, durchgeführt. Wie aus Abb. 4140-7 hervorgeht, können 10 g Ag Ozon bei Raumtemperatur vollständig über eine Versuchsperiode von ca. 5 Tagen zerstören. Am Anfang ist eine kurze Induktionsperiode festzustellen. Obwohl durch die Einwirkung des Ozons das Ag schwarz wird (siehe Abb. 4140-8), geschieht dies ohne Beeinträchtigung der Katalyse. Dies geht daraus hervor, daß 10 g Ag (d.h. $9,3 \cdot 10^{-2} \text{ mol}$) über die gesamte Versuchsperiode mehr als zehnmal soviel Ozon zerstört haben, ohne (1,15 mol, d.h. 55 g oder 40 ml bei 161 K) Zeichen eines Verlustes der Wirksamkeit zu geben.

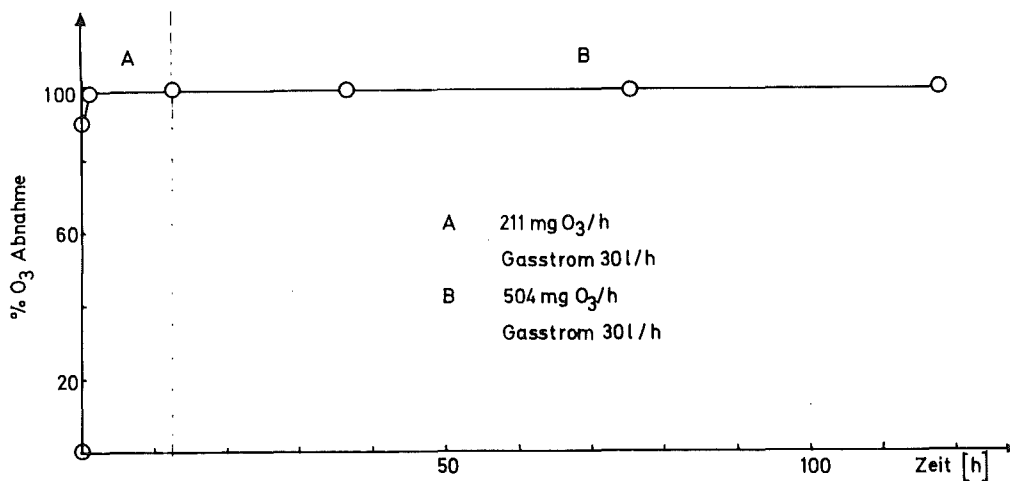


Abb. 4140-7: Katalytische Zersetzung von Ozon mit Silber

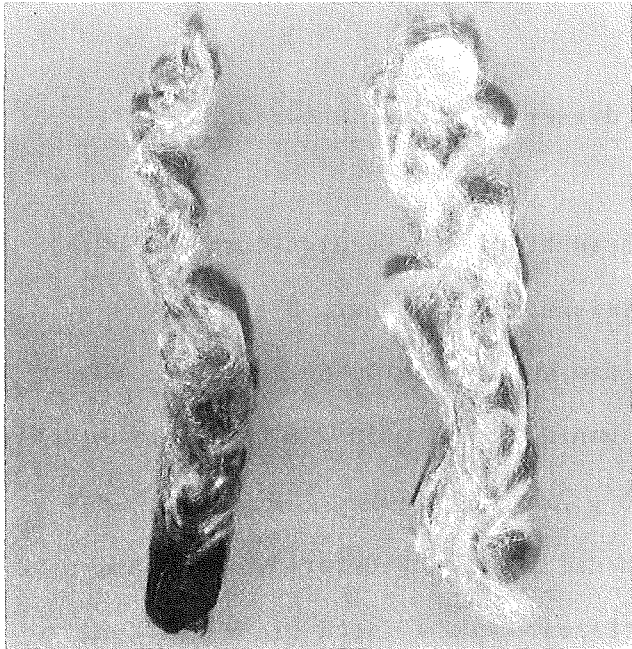


Abb. 4140-8

In einem anderen Versuch wurden 2 g Ag so lange mit Ozon behandelt bis alles, wahrscheinlich durch Bildung von Silberperoxid - Ag₂O₂, schwarz wurde. Da selbst unter diesen Bedingungen keine Abschwächung des katalytischen Wirkungsgrades festzustellen ist, wird Ozon wahrscheinlich von dem gebildeten Silberoxid ebenfalls zersetzt. Es konnte keine nennenswerte Wärmefreisetzung durch die katalytische Reaktion festgestellt werden. Das mit Silberoxid beschlagene Silber kann durch Erwärmen auf 400°C regeneriert werden.

Die auf Abb. 4140-9 aufgetragenen Ergebnisse verdeutlichen den Effekt von niedrigen Temperaturen auf den Wirkungsgrad des Katalysators. Bei Temperaturen unter 0°C beginnt Ag seine katalytischen Eigenschaften zu verlieren, um bei -30°C völlig wirkungslos zu werden. Obwohl dieses noch nicht experimentell geprüft worden ist, ist anzunehmen, daß Sauerstoff als einziges gasförmiges Produktmolekül während dieses Prozesses gebildet wird. Da es ferner nicht wahrscheinlich scheint, daß Edelgase durch Silber adsorbiert werden können, ist die Möglichkeit gegeben durch Einsatz dieses Katalysators die Ozonkonzentration im TTR-Sumpf zu verringern. Weitere

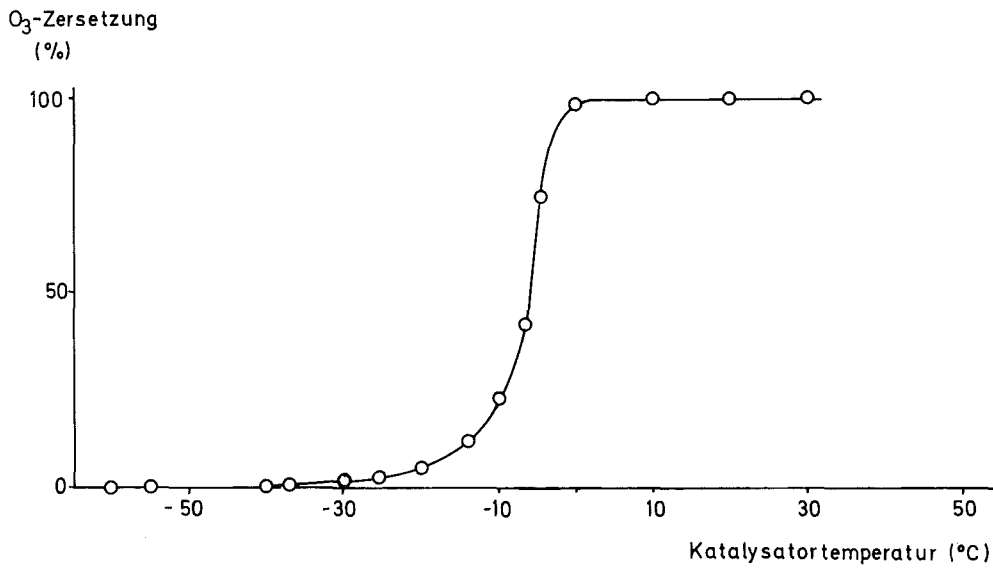


Abb. 4140-9: O_3 -Zersetzung bei verschiedenen Temperaturen mit Ag

Untersuchungen sind jedoch erforderlich, bevor eine Entscheidung getroffen werden kann. Insbesondere sollte weiter nach Katalysatoren gesucht werden, die bei noch niedrigeren Temperaturen einsatzfähig sind.

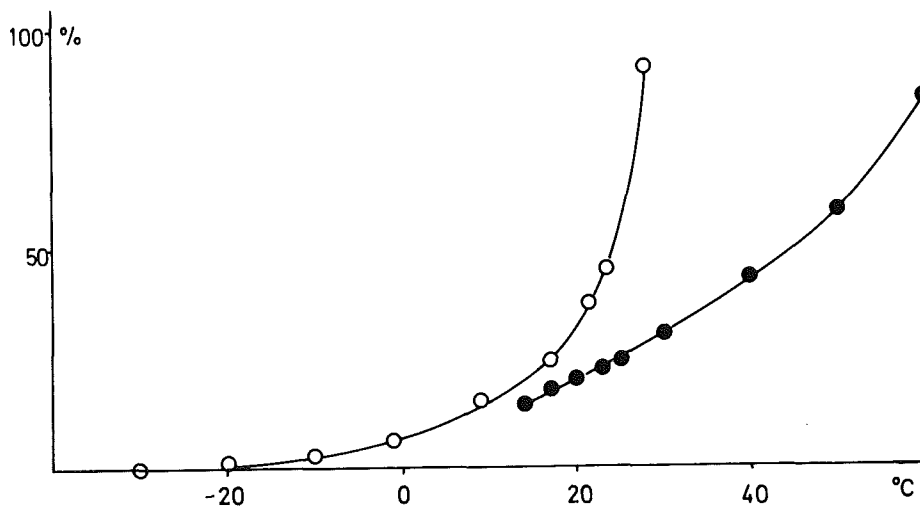


Abb. 4140-10: O_3 -Zersetzung bei verschiedenen Temperaturen mit CuO

Kupferoxid (CuO): Das katalytische Vermögen von Kupferoxid in Drahtform (CuO Oberfläche mit Cu₂O Kern; 4 Pf/g) wurde ebenfalls untersucht. Wie aus Abb. 4140-10 (Kurve mit o) zu ersehen, nimmt der Wirkungsgrad dieses Katalysators schon bei 30°C ab und wird bei -20°C verschwindend klein. Der Katalysator scheint weiterhin uninteressant aufgrund seiner schlechten bisher noch nicht erklärbaren Reproduzierbarkeit. Abb. 6 (Kurve mit ●) zeigt, daß durch Einsatz eines schon vorher verwendeten Katalysators nur noch halb soviel Ozon zerstört wird wie mit der frischen Substanz.

Palladium Pd: Bezüglich der Ozonzersetzung ist Palladium durchaus mit Silber zu vergleichen. Bei einem O₂-O₃ Strom von 30 l/h und 4 g Palladium wird ein Zersetzungsgrad von 100 % bis zu einer Temperatur von -30°C erreicht. Erst bei Temperaturen um ca. -70°C wird der Katalysator nahezu wirkungslos (ca. 3 %).

4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf ihre Umgebung

(K. Nester, ASS)

Die Numerik des dreidimensionalen Programms zur Berechnung des Aufstiegs von Kühlturmfahnen (WALKÜRE) wurde durch die Verwendung der zyklischen Reduktion für die Lösung der Poisson-Gleichung weiter verbessert. Außerdem werden jetzt Maschenweite und Schrittweite vom Programm gesteuert. Für eine Fahnenberechnung bis etwa 2 km Entfernung von der Quelle werden auf der IBM 370 /168 ungefähr 2 min Rechenzeit benötigt. Dies entspricht einer 30 %igen Reduzierung der Rechenzeit gegenüber der früheren Version.

Der Ansatz für den Diffusionskoeffizienten bei induzierter Turbulenz wurde zu

$$K_{\text{ind}} = c^3 (Z_{\text{max}} + R_0/c - H)^2 (|n_1| + |n_2|)$$

modifiziert, wobei

- R_0 = Austrittsradius des Kühlturms
- Z_{max} = Die Höhe des Vorticitymaximums
- H = Höhe des Kühlturms
- $|n_1|, |n_2|$ = Beträge der Vorticity der Einzelwirbel
- c = Konstante.

Das Maximum des Diffusionskoeffizienten befindet sich danach am Ort des Maximums der Vorticity.

Dieser Ansatz für K_{ind} leitet sich aus den Ansätzen der eindimensionalen Modelle ab, die davon ausgehen, daß der Radius der Fahne linear mit der Höhe zunimmt.

Zur Abschätzung des Einflusses mehrerer Kühlturmfahnen auf deren Aufstieg wurden erste Testrechnungen durchgeführt. Es wurde dabei von zwei parallelen Fahnen ausgegangen, deren Quellenmittelpunkte 100 m auseinanderliegen. Bei entsprechenden meteorologischen Berechnungen findet eine Vereinigung der beiden Fahnen bereits in kurzer Entfernung statt. Die Struktur der Einzelfahnen ist aber noch in 3 km Entfernung von den Quellen deutlich erkennbar. Abb. 4152-1

zeigt für eine derartige Testrechnung einen Feuchtequerschnitt durch die Fahne in 927,5 m Entfernung von den Quellen. Die sichtbaren Fahnen sind in diesem Fall bereits wieder getrennt. Zwischen den beiden Fahnen tritt ein Minimum der Vertikalgeschwindigkeit auf, wie aus Abb. 4152-2 ersichtlich ist. Die bereits früher festgestellte Ähnlichkeit zwischen der Feuchteverteilung und der Übertemperaturverteilung wird durch Abb. 4152-3 auch bei der Überlagerung von zwei Fahnen bestätigt. Die ersten Rechnungen deuten daraufhin, daß sich die Fahnen zweier nebeneinander stehender Kühltürme bereits bei geringen Abständen nicht mehr allzustark überlagern. Für hintereinander stehende Kühltürme werden derartige Rechnungen noch durchgeführt.

Die ersten Meßdaten der Meßkampagne Neurath wurden vom Eidgenössischen Institut für Reaktorforschung zur Verfügung gestellt. Weitere Daten werden im Herbst folgen. Aus diesem Grund können bis zum Ende des Vorhabens im Dezember 1976 nur noch wenige Vergleichsrechnungen angestellt werden. Es ist deshalb vorgesehen, die weitere Kalibrierung des Programms WALKÜRE im Rahmen des Projekts "Oberrheingraben" des Umweltbundesamtes durchzuführen.

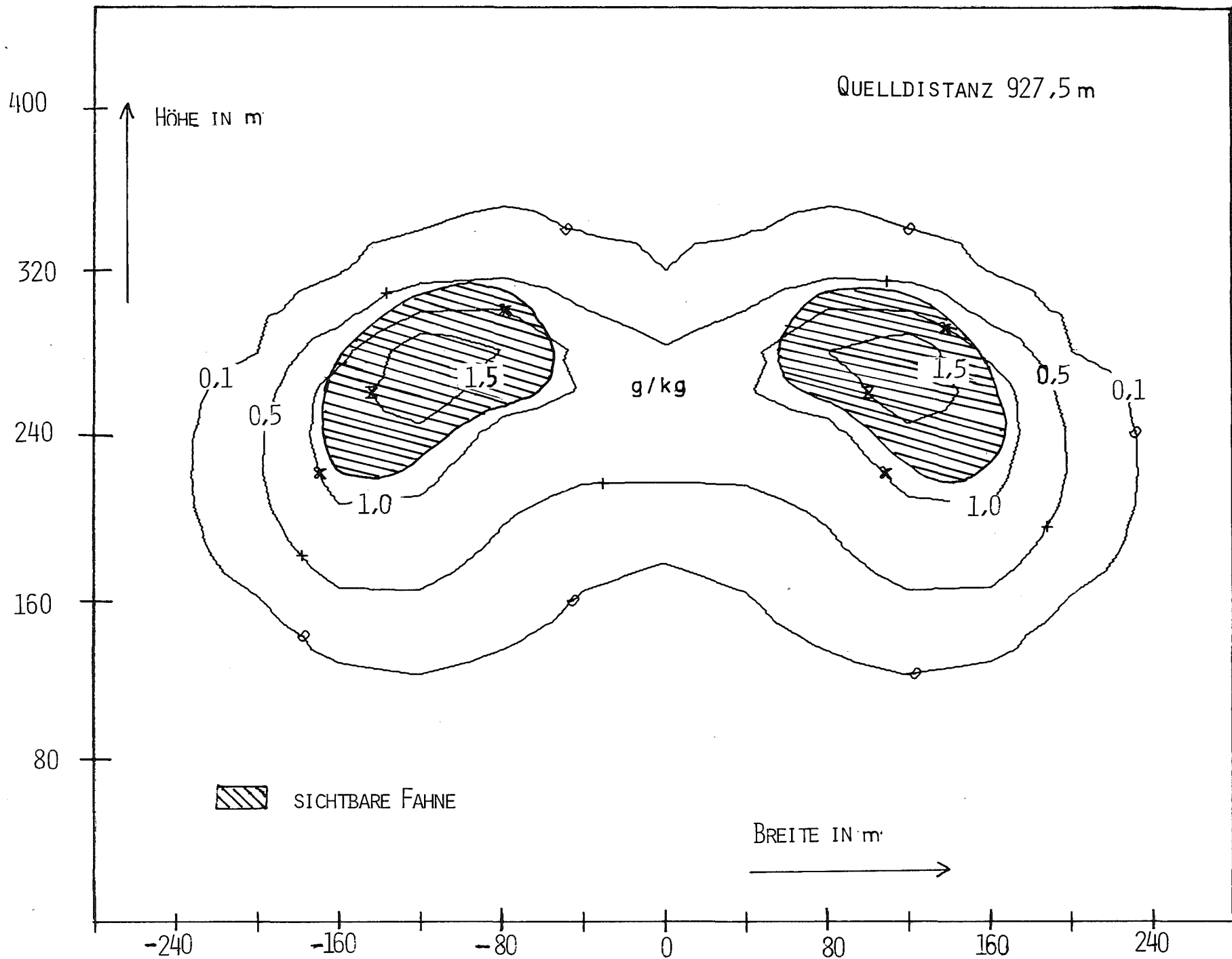


ABB.: 4152-1 VERTEILUNG DER SPEZIFISCHEN FEUCHTEÜBERHÖHUNG IN EINEM SCHNITT SENKRECHT ZUR TRANSPORTRICHTUNG

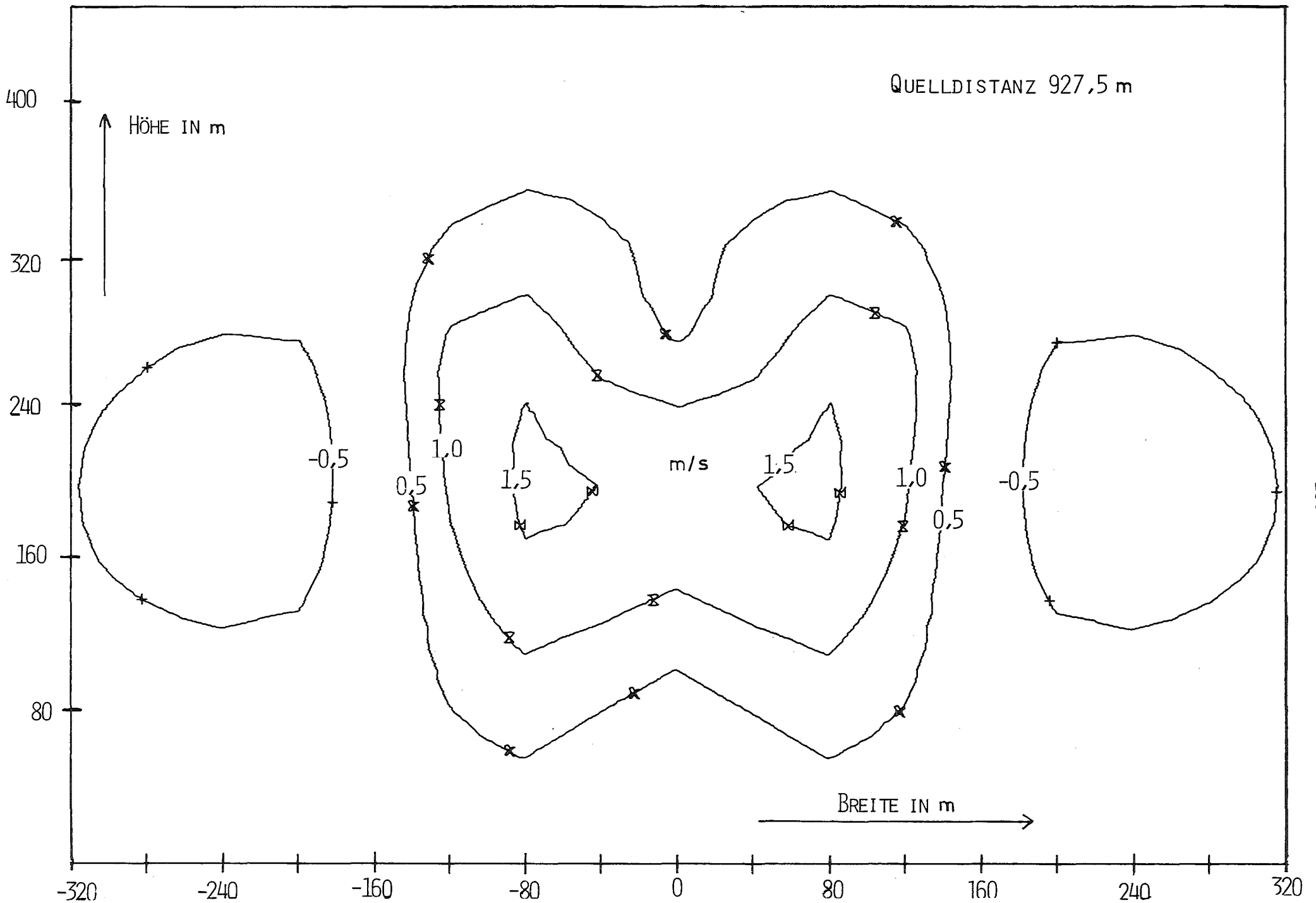


ABB.: 4152-2 VERTEILUNG DER VERTIKALGESCHWINDIGKEIT IN EINEM SCHNITT SENKRECHT ZUR TRANSPORTRICHTUNG

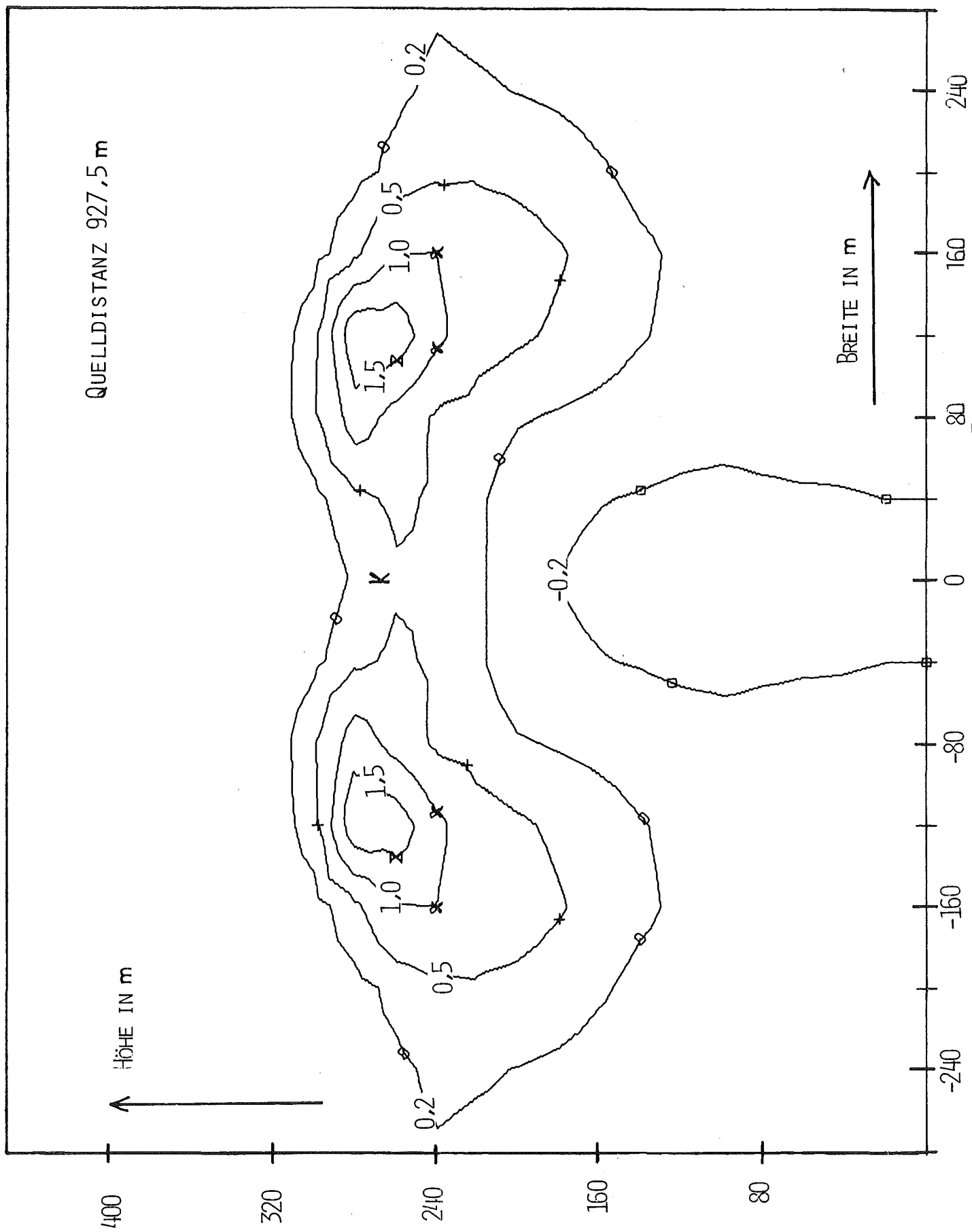


Abb.: 4152-3 VERTEILUNG DER ÜBERTEMPERATUR IN EINEM SCHNITT SENKRECHT ZUR TRANSPORTRICHTUNG

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

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

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

1. Marviken-Blowdown-Experiment

1.1 Auswertung der Marviken I-Meßergebnisse

(F.Eberle, J.Kadlec)

Die bisher erzielten Ergebnisse zur Frage der im Marviken-Druckunterdrückungssystem beobachteten akustischen Resonanzfrequenzen wurden in einem Bericht zusammenfassend dargestellt. Es wird in Erwägung gezogen, die Arbeiten auf diesem Gebiet nach Vorliegen der im Rahmen des Marviken II-Versuchsvorhabens gemessenen Daten fortzusetzen.

1.2 Experimentelle Arbeiten

(D.Barschdorff^x, E.Erb, M.Neumann^x, P.Philipp, E.Wolf)

Die für das Marviken II-Projekt entwickelte und gefertigte Infrarot-Meßeinrichtung wurde im Januar ausgeliefert und termingerecht bis zum 28.1.1976 in der Marviken-Versuchsanlage installiert und in Betrieb genommen. Abb. 4211-1 zeigt die Anordnung der eigentlichen Meßapparatur vor Ort. Sie ist am unteren Ende eines der vier Blowdown-Kanäle eingebaut und damit für Servicearbeiten recht gut zugänglich. Erkennbare experimentelle Nachteile sind mit diesem Einbauort nicht verbunden.

Die wirksame optische Meßlänge wird durch die in den Blowdown-Kanal hineinragenden Tauchrohre bestimmt und beträgt zur Zeit in Anlehnung an die Versuchsmeßstrecke am ITS 150 mm (Abb. 4211-2). Später ist geplant, die wirksame Meßlänge auf 300 mm zu vergrößern.

Über die dem Bau der Maßeinrichtung zugrunde liegenden, am ITS durchgeführten Versuche wurde auf einer KTG-Fachtagung im März 76 in Berlin berichtet [1]. Ein ausführlicher Bericht, in dem auch der konstruktive Aufbau der Marviken-Infrarot-Meßeinrichtung detaillierter beschrieben wird, ist

^x Dr.-Ing. D.Barschdorff ist Wissenschaftlicher Rat und Professor und M.Neumann wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe (TH)

zur Zeit in Arbeit.

Bei dem ersten Blowdown-Versuch der Marviken II-Serie (Marviken-Versuch Nr. 17) war die Meßwertübertragung durch Erdschleifen in der zentralen PCM-Magnetband-Registrierung noch gestört, so daß die Auswertung der aufgenommenen Signale erschwert ist. Eine gleichzeitige Aufzeichnung der Meßsignale mit einem Zweikanal-Linienschreiber hat jedoch ergeben, daß die Infrarot-Meßeinrichtung bereits beim ersten Versuch einwandfrei funktionierte. Nach kleineren Modifikationen, die im wesentlichen Verbesserungen der Datenübertragung und der Bedienung betrafen, wurde die Einrichtung inzwischen bei vier Blowdown-Versuchen mit Erfolg eingesetzt. Für die Bedienung waren dabei jeweils ein Mitarbeiter der GfK und ein Mitarbeiter des ITS anwesend.

Die Auswertung der aufgenommenen Meßsignale wird vom ITS in Karlsruhe und vom Marviken-Projekt in Studsvik parallel durchgeführt.

2. Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim

(M.Cramer, G.Lang, H.Schnauder)

Im Auftrag und für Rechnung des TÜV Baden, Mannheim, wurden bei einer neuen Versuchsserie im Großkraftwerk Mannheim Kontrollmessungen vorgenommen. Bei diesen Versuchen werden die Blowdown-Bedingungen eines Kondensationsrohres mit 600 mm \emptyset realistisch nachgebildet. Die auf ein Kondensationsrohr bezogenen Volumenverhältnisse des Wasserraums der Kondensationskammer und der vorgeschalteten Druckkammer entsprechen den Bedingungen der Großanlagen. Der Einfluß der aus der Druckkammer vom Dampf mitgerissenen Luft und der dadurch entstehenden Druckerhöhung im System auf das Kondensationsgeschehen werden auf diese Weise annähernd richtig wiedergegeben. Ergänzend zu den von Fa. Kraftwerk Union ausgeführten Messungen wurden zusätzliche Druckmessungen an den Wandungen der Kondensationskammer und in der Druckkammer sowie Temperaturmessungen mit hoher zeitlicher Auflösung vorgenommen. Auf diese Weise wird bei den wichtigsten Meßwerten meßtechnisch eine volle Redundanz und Diversität erzielt. Wegen des großen Einflusses der in dieser Versuchsserie gemessenen Daten auf den weiteren Ablauf des Genehmigungsverfahrens des Kernkraftwerkes Philippsburg ist dies von großer Bedeutung.

Die gemessenen und aufbereiteten Daten der einzelnen Versuche werden dem TÜV Baden direkt zugestellt. Bisher ergaben sich zwischen den Meßwerten der beiden beteiligten Gruppen keine nennenswerten Abweichungen.

3. Berechnung dynamischer Containment-Beanspruchungen (B.Göller)

Die Rechnungen zum dynamischen Verhalten des Brunsbüttel-Containments mit STRUDL ergaben eine unbefriedigende Übereinstimmung zwischen den gemessenen und den berechneten Containment-Auslenkungen. U.a. scheint eine schlechte Wiedergabe des dynamischen Verhaltens der Schalen durch das diskretisierte STRUDL-Modell ein Grund hierfür zu sein. Daher wurde eine analytische Untersuchung über das dynamische Verhalten dünner Schalen unter transienter Last durchgeführt. Der - analytisch - einfachste Schalentyp ist die Kreiszylinderschale, beidseitig frei aufliegend; daher wurde zunächst der Innenzylinder der Brunsbüttel-Kondensationskammer unter diesen Randbedingungen analysiert. Das dynamische Verhalten wurde aus der Donnel'schen Schalentheorie abgeleitet, wobei Trägheitskräfte nur bei den Radialauslenkungen berücksichtigt wurden.

Abb. 4211-3 zeigt die so berechneten Eigenfrequenzen abhängig von der Umfangsordnung m (= Anzahl der Sinus-Wellen am Umfang) und der axialen Ordnung n (= Anzahl der Sinus-Halbwellen in axialer Richtung) der zugehörigen Eigenschwingungsform. Die zur niedrigsten Eigenfrequenz gehörende Auslenkungsform läßt sich am leichtesten der Schale aufprägen (anschaulich: $\Omega_{\min}^2 = c_{\min}/m$). Abb. 4211-4 zeigt diesen Zusammenhang: gegen eine Druckbelastung der Umfangsordnung 9 ist die Schale rund 80 mal weicher als gegen rotationssymmetrischen Druck. Kleine Fourier-Amplituden entsprechend hoher Ordnung können also noch nennenswerte Anteile zur Gesamtverformung liefern.

Der Einfluß der höheren Ordnungen sei an einer Druckbelastung gezeigt, mit der die Schale auf einem Viertel des Umfangs und auf der Hälfte der axialen Länge beaufschlagt wird; die Druckverteilung hat in diesem Gebiet die Form einer Sinushalbwellen. Abb. 4211-5 zeigt für den Umfang die Druckverteilung und die resultierende statische Auslenkung. Abb. 4211-6 zeigt den Einschwingvorgang des Belastungsmittelpunktes, wenn die Druckverteilung sprunghaft aufgebracht wird. Die gestrichelten Kurven zeigen, wel-

cher Fehler entsteht, wenn die höheren Ordnungen nicht erfaßt werden, sei es durch ungenügende Superposition oder durch zu grobe Diskretisierung bei numerischem Vorgehen.

Abb. 4211-7 zeigt, wie sich die Verformungen allmählich auf den gesamten Umfang ausdehnen, wenn die beschriebene Druckverteilung in Form eines Rechteckimpulses von 20 ms Dauer aufgebracht wird. Bei einer numerischen Untersuchung muß auch in den unbelasteten Zonen noch eine entsprechend feine Auflösung vorhanden sein.

Das Verhalten des sicherheitstechnisch wichtigeren Bauteils, der Kugelschale, die die äußere Wand der Kondensationskammer bildet, ist für transiente Belastungen noch unbekannt, und soll daher als nächstes analytisch abgeschätzt werden. Dann lassen sich auch für dieses Bauteil detaillierte Forderungen nach einer Mindest-Diskretisierung für weitere numerische Untersuchungen ableiten.

4. Kontrollmessungen im Kernkraftwerk Philippsburg (M.Cramer)

Ergänzend zu den unter 2. beschriebenen Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim wurden, ebenfalls im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden, Mannheim, ähnliche Kontrollmessungen in der Kondensationskammer des Kernkraftwerkes Philippsburg vorbereitet. Während der bevorstehenden nichtnuklearen Heißtests des Druckentlastungssystemes sollen damit die Wandbelastungen und Wandreaktionen des Reaktorsicherheitsbehälters gemessen werden. Die Lage der im Wasserraum der Kondensationskammer vorgesehenen Meßstellen ist auf Abb. 4211-8 dargestellt. Einige weitere Meßstellen sind im oberen Bereich des Reaktorsicherheitsbehälters angeordnet. Darunter befindet sich auch ein Taster-Wegaufnehmer des Typs, der für einen Einsatz bei den HDR-Blowdown-Versuchen infrage kommt (s.Vorhaben 4222).

Literatur

- [1] Barschdorff, D.; Wolf, E.:
Infrarot-Meßtechnik für Zweiphasen-Mehrkomponenten-Massenströme.
Vortrag auf der KTG-Fachtagung "Experimentiertechnik auf dem Gebiet der Reaktor-Fluidodynamik" vom 10.-12.3.76 in Berlin

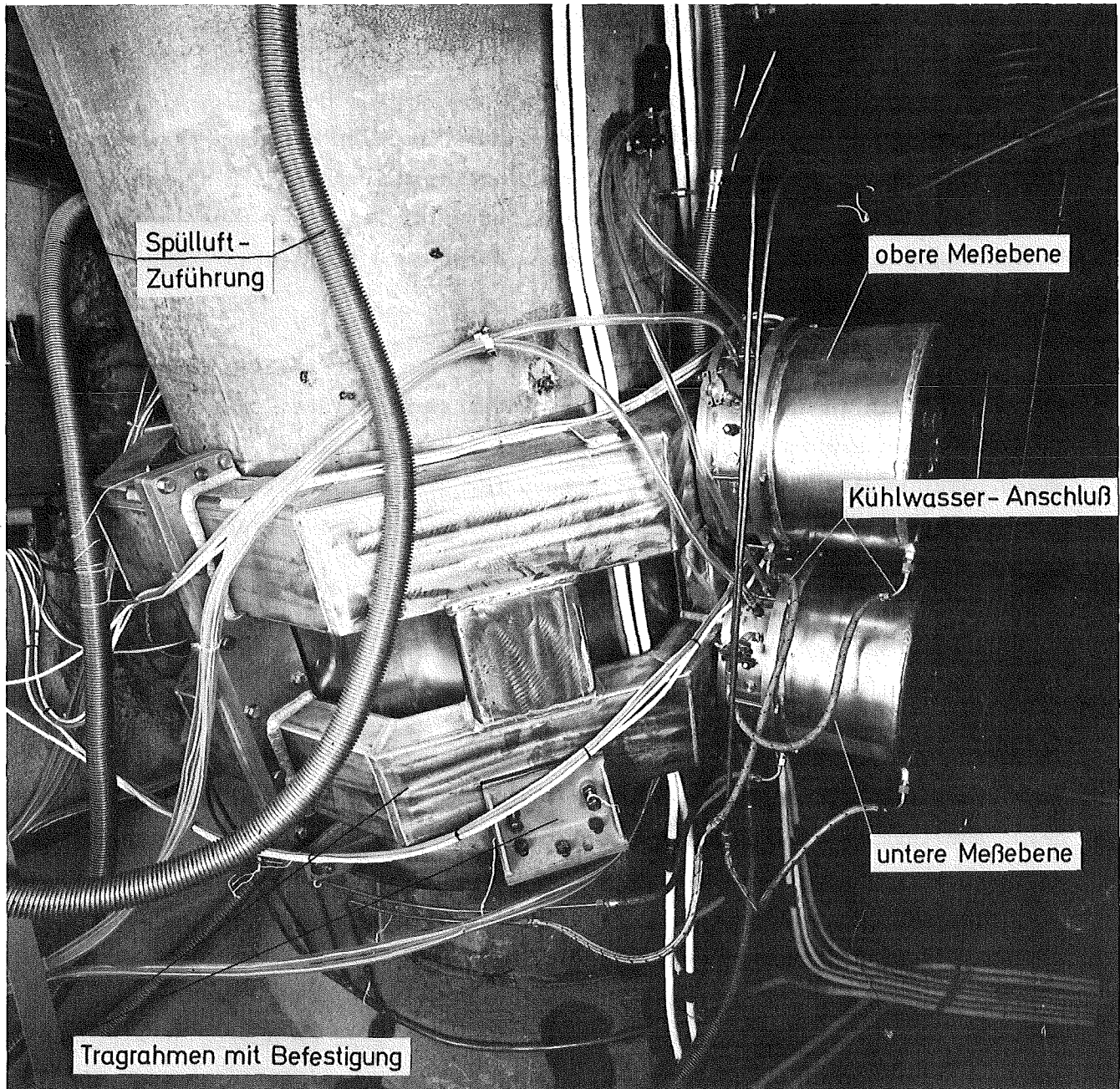


Abb. 4211-1: Einbauanordnung der Infrarot-Meßeinrichtung (Senderseite)



Abb. 4211-2: Anordnung der Tauch- und Schutzrohre im Blowdown-Kanal

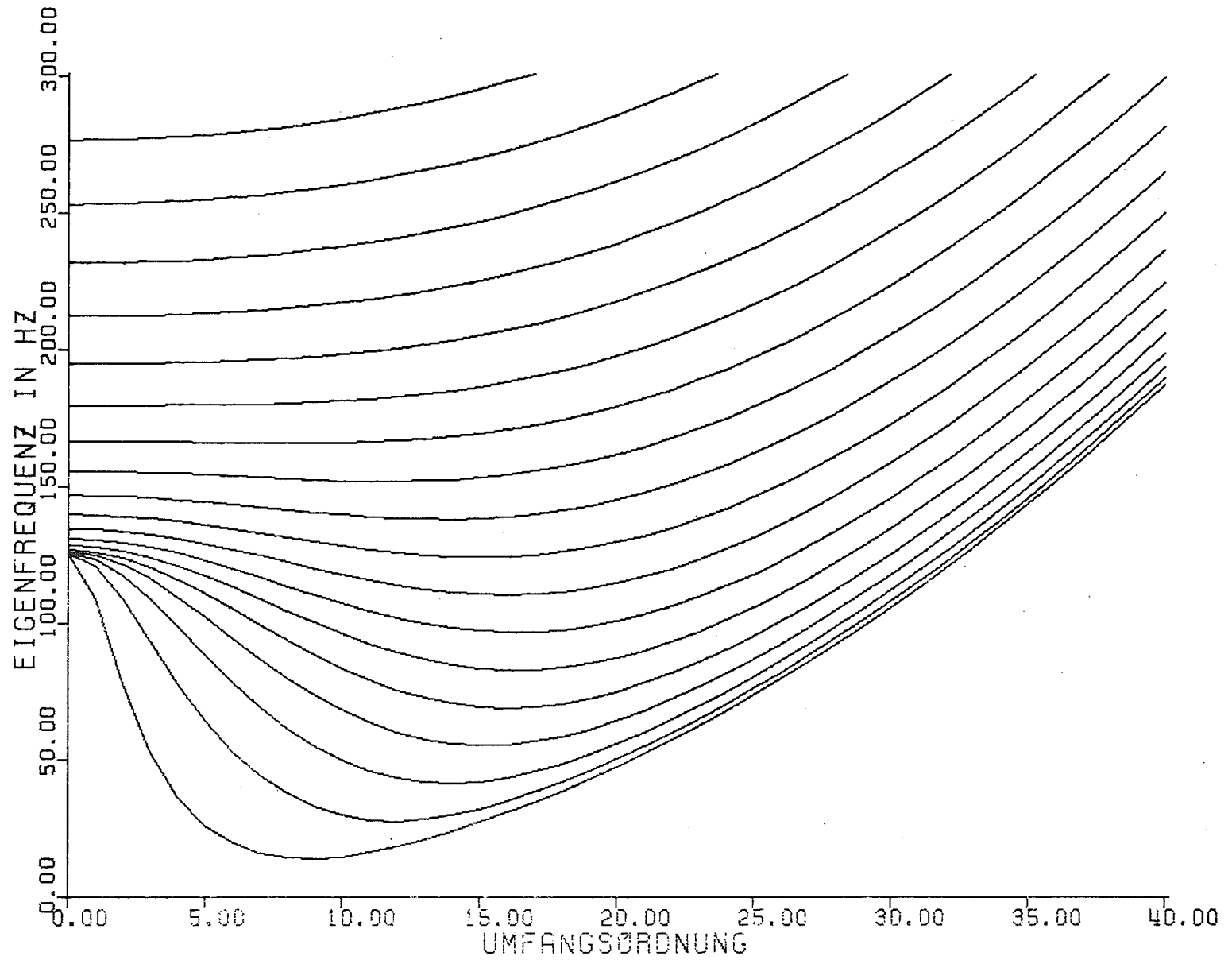


Abb. 4211-3: Eigenfrequenzen der Zylinderschale abhängig von der Umfangsordnung m und der axialen Ordnung n

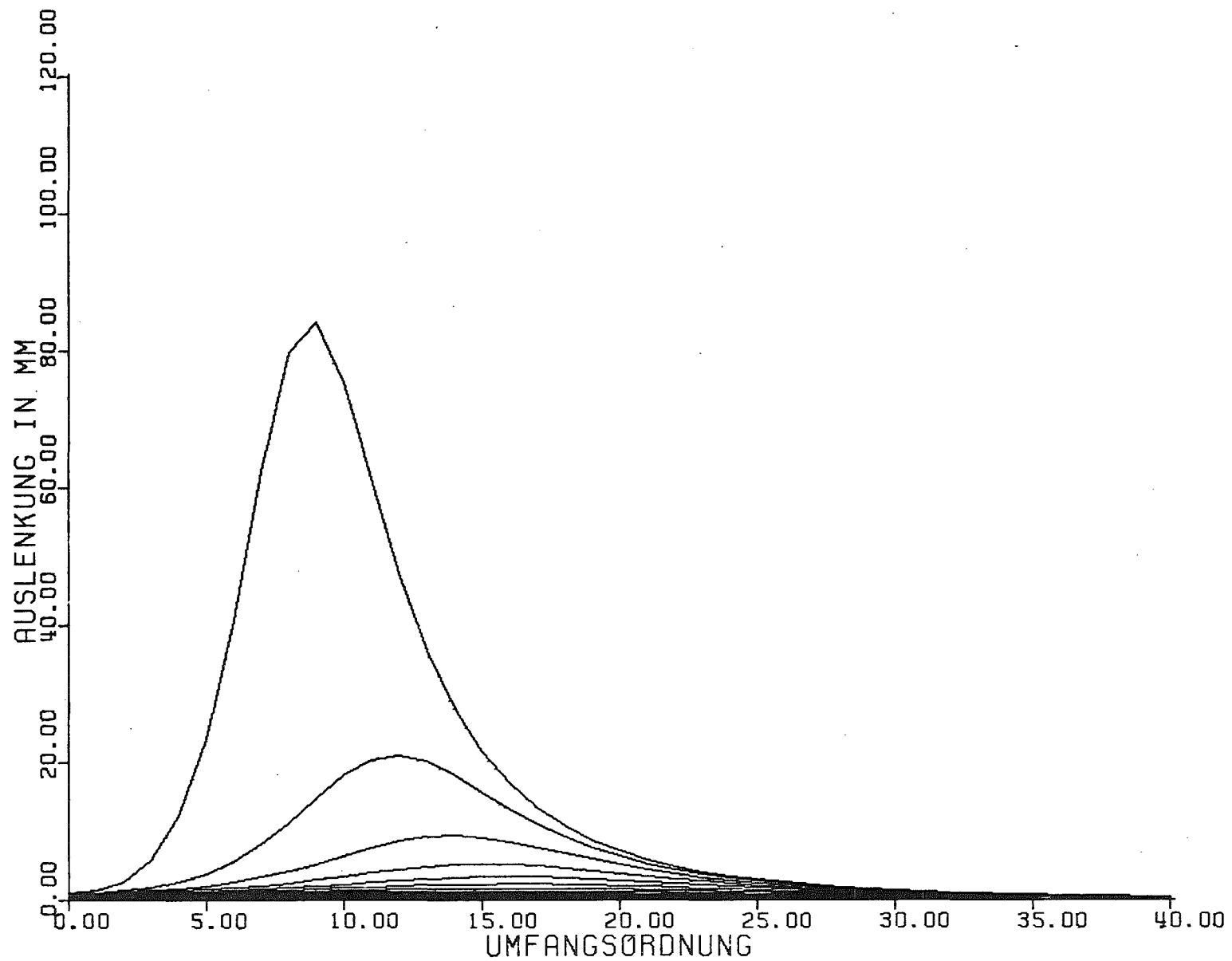


Abb. 4211-4: Größte statische Auslenkung der Zylinderschale bei Belastung mit einer Druckverteilung der Umfangsordnung m und der axialen Ordnung n (jeweils gleicher Maximaldruck)

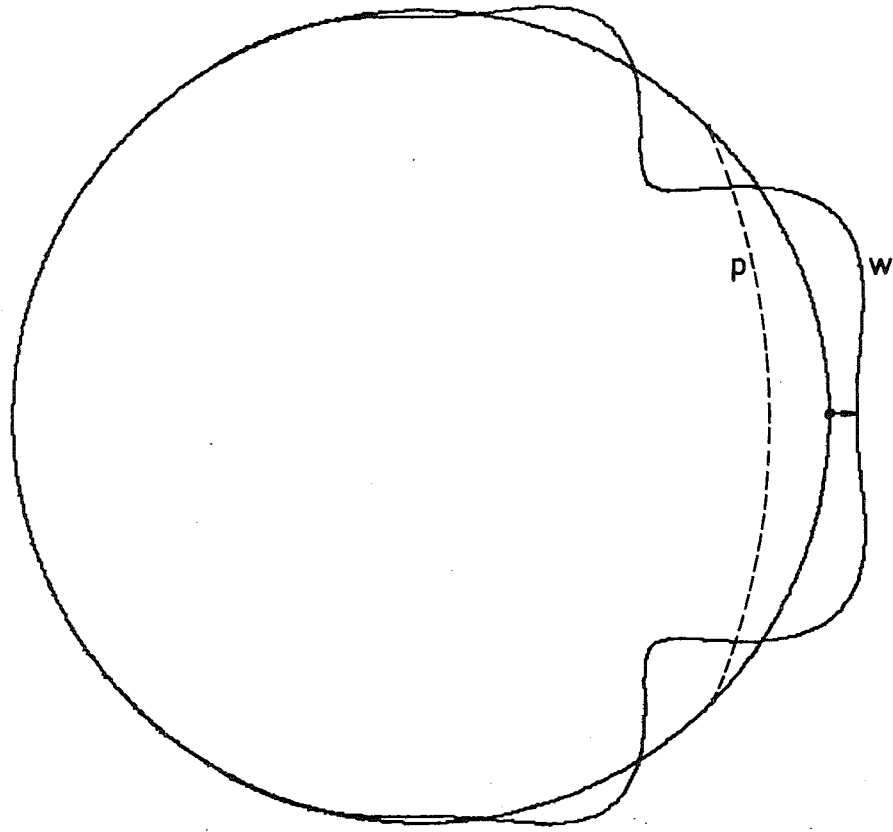


Abb. 4211-5: Statische Radialauslenkungen w des Zylinderumfangs durch die verteilte Druckbelastung p

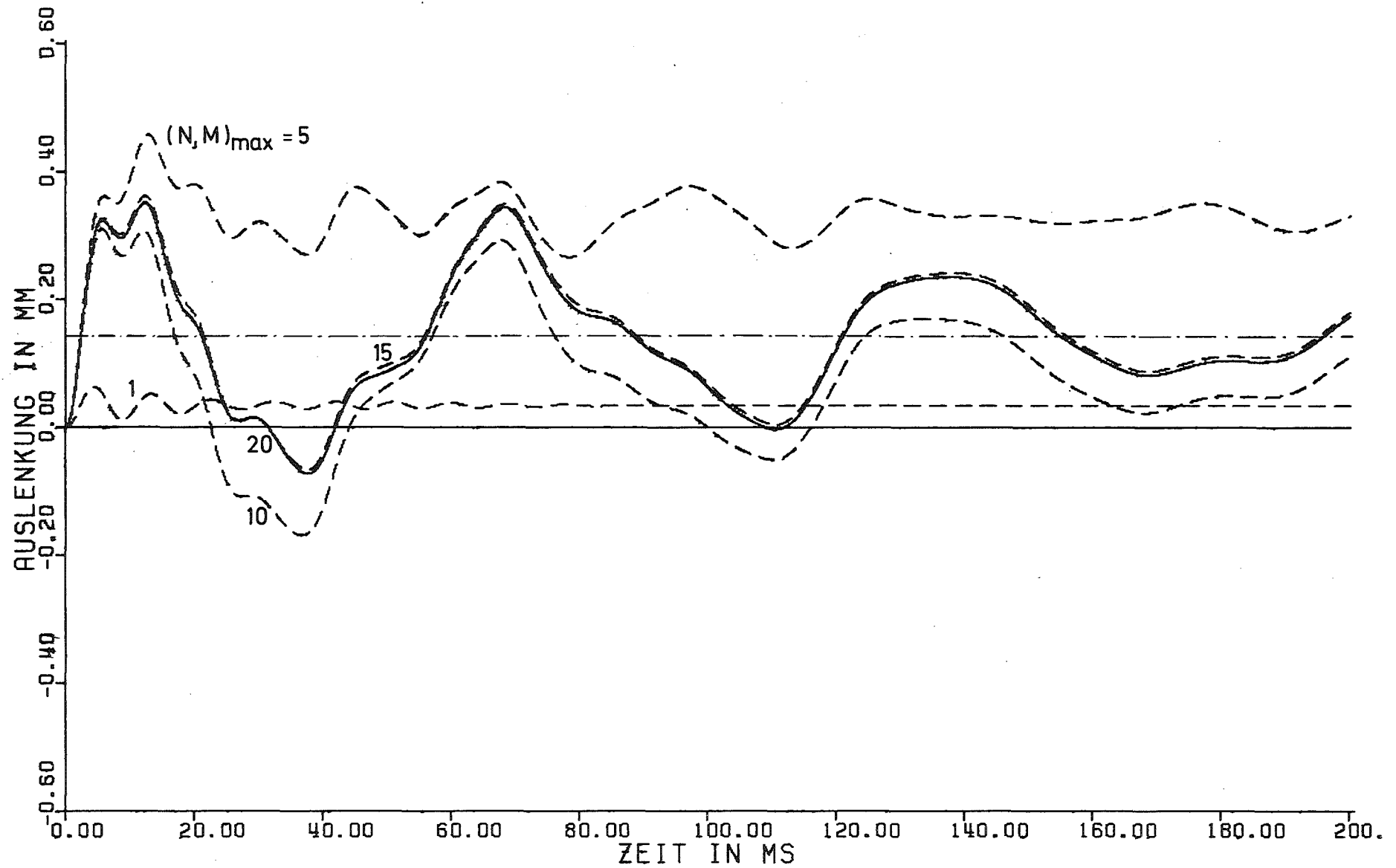


Abb. 4211-6: Radialauslenkung des Belastungsmittelpunktes bei sprungartiger Belastung der Schale mit der Druckverteilung von Abb. 4211-5 $(N, M)_{\max}$ = höchste in der Rechnung noch berücksichtigt Ordnung

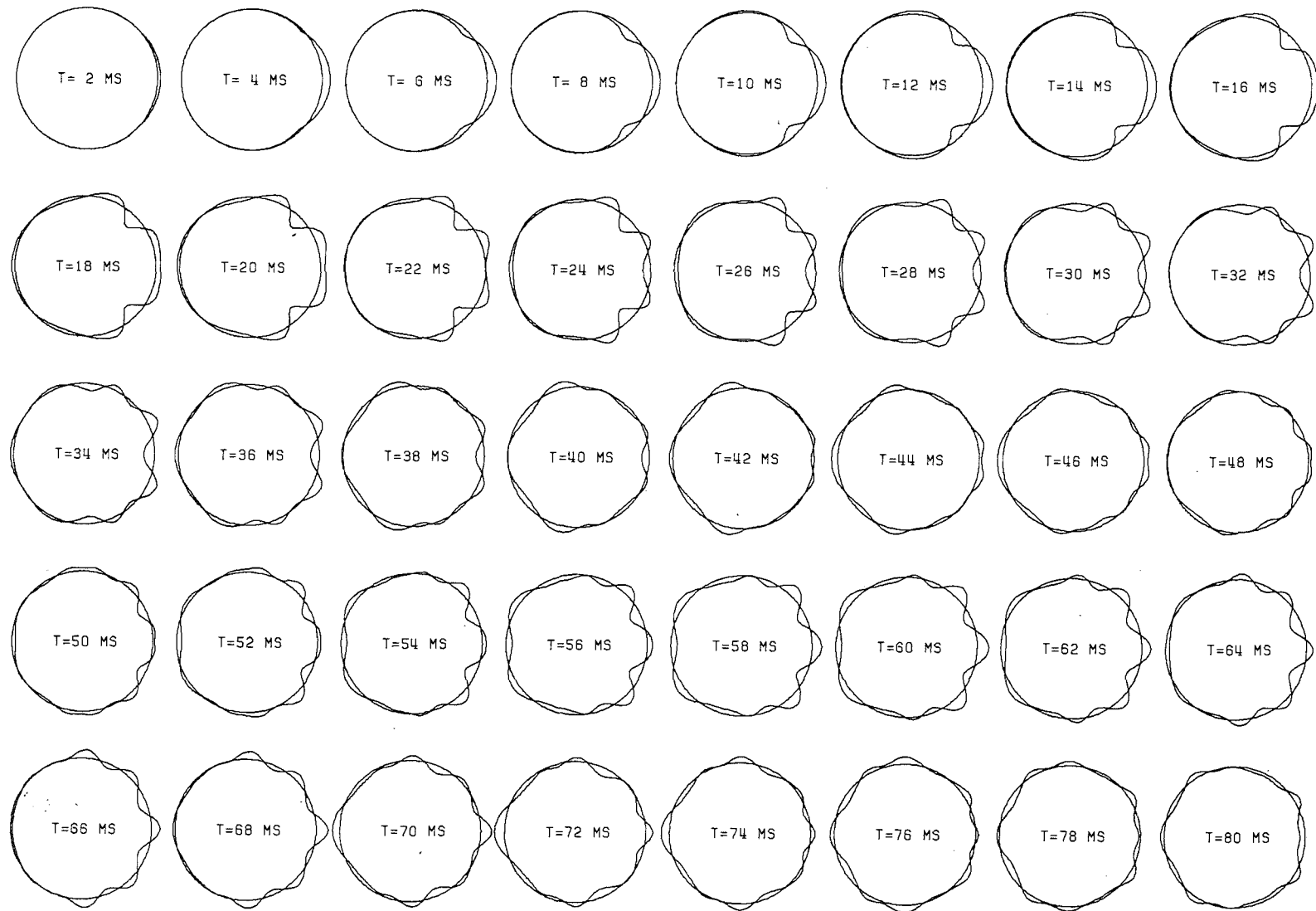
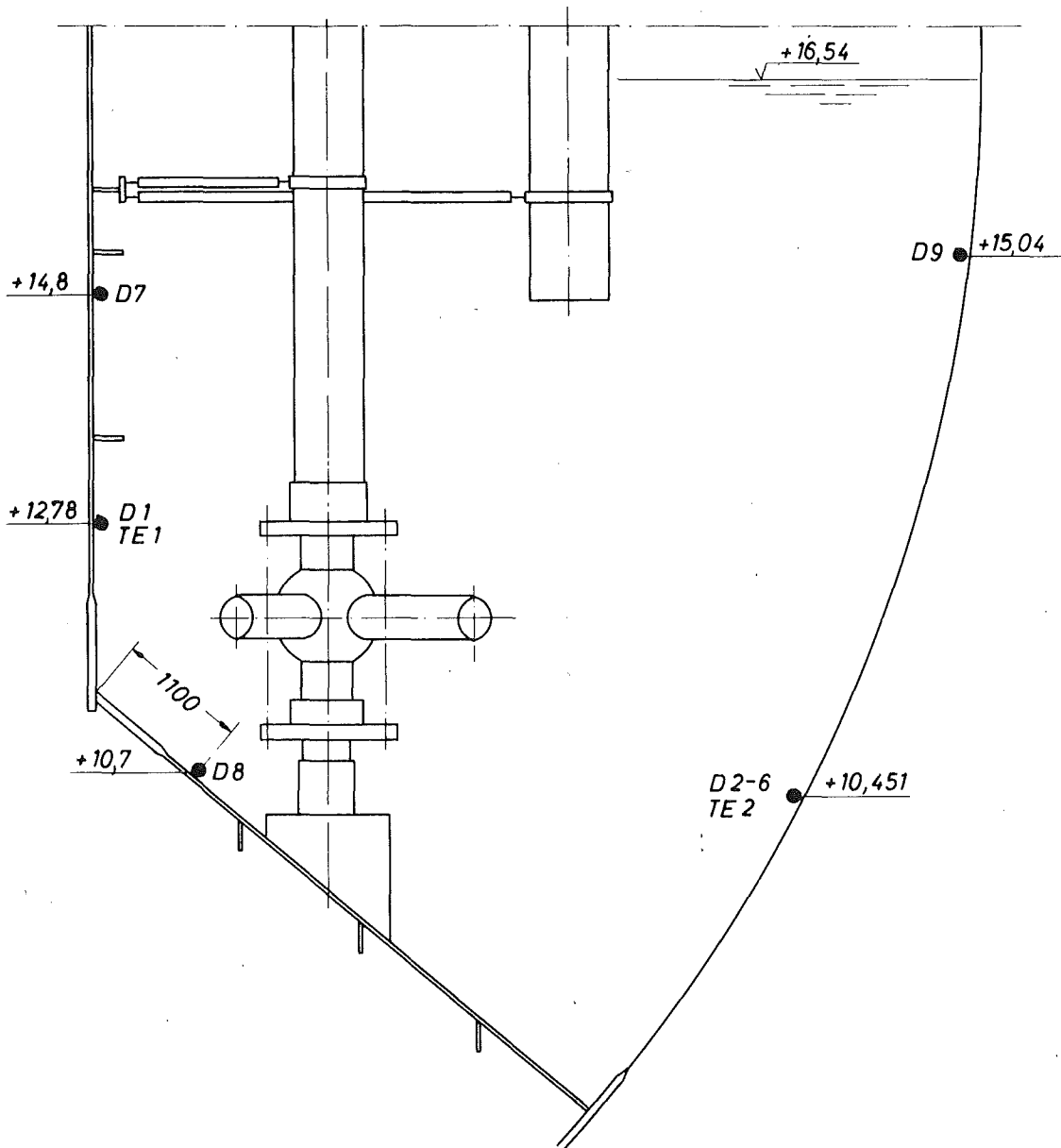


Abb. 4211-7: Radialauslenkungen für verschiedene Zeitpunkte bei impulsartiger Belastung der Schale mit der Druckverteilung von Abb. 4211-5



		Umfangswinkel					
		228°	236°	252°	260°	272°	284°
Innenzylinder	{ 14,80					D7	
	{ 12,78	D1, TE1					
Kegelboden	10,70					D8	
Außenschale	{ 10,451		D2	D3	D4, TE2	D5	D6
	{ 15,04					D9	

D = Druckaufnehmer
TE = Thermoelement

Abb. 4211-8: Lage der Kontrollmeßstellen in der Kondensationskammer des Kernkraftwerkes Philippsburg

4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Vorbereitungen der Marviken-II-Experimente wurden mit der Installation einer Gasgeschwindigkeitsmeßeinrichtung (vgl. Abb. 4214 - 1 und 2) an einem der 4 Abblasekanäle (Blowdown-Channels) und einer Zweiphasengeschwindigkeitsmeßeinrichtung (vgl. Abb. 4214 - 1 und 3) am Bruchstutzen des Marviken-Reaktors Ende Januar abgeschlossen.

Die 8 Blowdowns umfassende Versuchsserie wurde mit jeweils einem Blowdown pro Monat im Februar begonnen. Die Gasgeschwindigkeitsmeßeinrichtung (Blowdown-Channel) wurde vom ersten Blowdown (BD 17)¹ an eingesetzt. Dagegen konnte die Zweiphasengeschwindigkeitsmeßeinrichtung erst vom dritten Blowdown (BD 19) an in Betrieb genommen werden, da die Herstellung und Lieferung der Radiotracer Ar-41 (zusätzliche Menge) und Mn-56 von AB Atomenergi Studsvik erst ab März möglich war.

Erzielte Ergebnisse²

Die Gasgeschwindigkeit konnte in den Blowdown-Channels bei allen bisher durchgeführten Versuchen gemessen werden. Sie lag jeweils zwischen 0 und 60 m/s. Während die bei den einzelnen Blowdowns ermittelten Maximalgeschwindigkeiten nur

1) MARVIKEN I BD 1 - 16
 MARVIKEN II BD 17 - 24

2) Es handelt sich hier um eine Auswahl der vorläufigen Ergebnisse. Eine vollständige und endgültige Darstellung der Ergebnisse ist erst nach Abschluß der Marviken-II-Experimente möglich.

wenig voneinander abweichen, unterscheiden sich jedoch die Geschwindigkeits-Zeitkurven erheblich voneinander infolge der variierten Randbedingungen der Blowdowns (vgl. Abb. 4214 - 4 bis 7). Bei den Blowdowns Nr. 18, 19, 22 und 23 wurden starke Geschwindigkeitsschwankungen (z.B. ab ca. 70 Sekunden nach Blowdownbeginn bei BD 18) festgestellt (vgl. Abb. 4214 - 4 und 7) im Gegensatz zu den Blowdowns Nr. 17, 20 und 21 (vgl. Abb. 4214 - 5 und 6).

Nachdem ein erster grober Vergleich der Geschwindigkeit der Gasphase (gemessen mit dem Radiotracerverfahren des LIT) und der Flüssigphase (gemessen mit dem Infrarotverfahren des ITS³⁾) gute Übereinstimmung brachte, kann gefolgert werden, daß in den Blowdown-Channels kein oder kaum Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase vorlag. Eine beim Blowdown Nr. 21 durchgeführte Probemessung mit dem Flüssigtracer Mn-56 zeigte ebenfalls gute Übereinstimmung mit den Infrarotmessungen des ITS.

Von den Geschwindigkeitsmessungen im Bruchstutzen liegen erste Teilergebnisse vor. In Abb. 4214 - 8 ist die bei Blowdown 21 mit Mn-56 gemessene Strömungsgeschwindigkeit als Funktion der Zeit dargestellt. Ein mit Ar-41 bei BD 23 erzielttes Ergebnis wird in Abb. 4214 - 9 gezeigt.

Die Auswertung der Meßsignale hinsichtlich Zweiphasengeschwindigkeit und Schlupf ist noch nicht abgeschlossen.

3) ITS = Institut für Thermische Strömungsmaschinen der Universität Karlsruhe

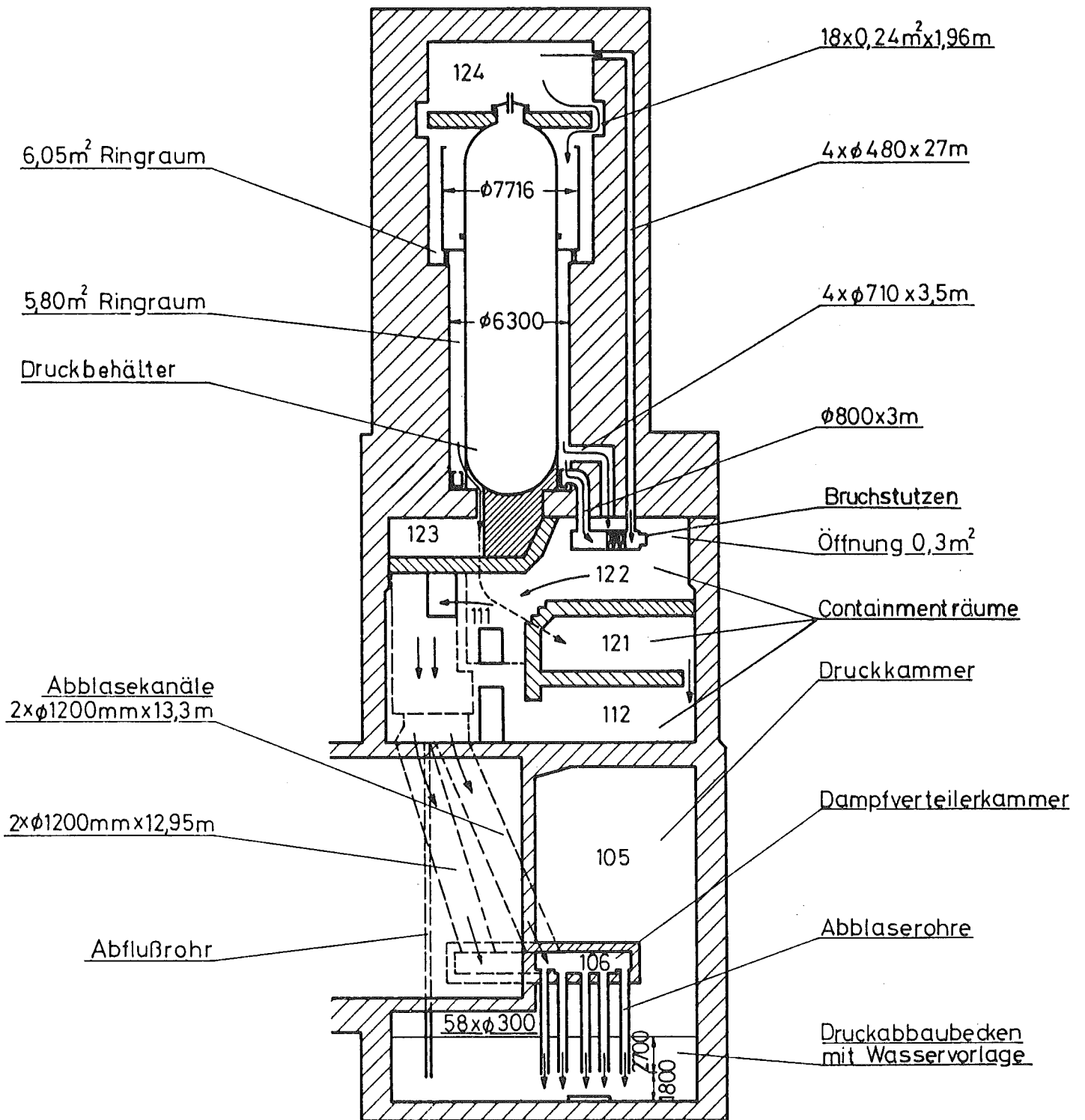


Abb. 4214 - 1: Druckabbausystem des Marviken-Reaktors

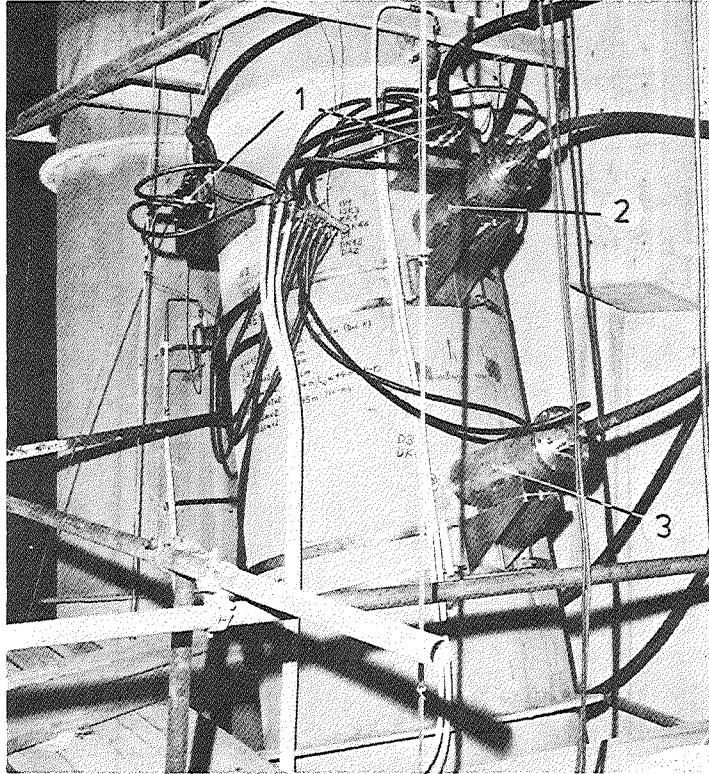


Abb. 4214-2: Radiotracergeschwindigkeitsmeßeinrichtung an einem der 4 Abblasekanäle (NW 1200) des Maryiken-Reaktors

- 1 Injektionsventile
- 2 γ -Detektor in der 1. Meßebe
- 3 γ -Detektor in der 2. Meßebe

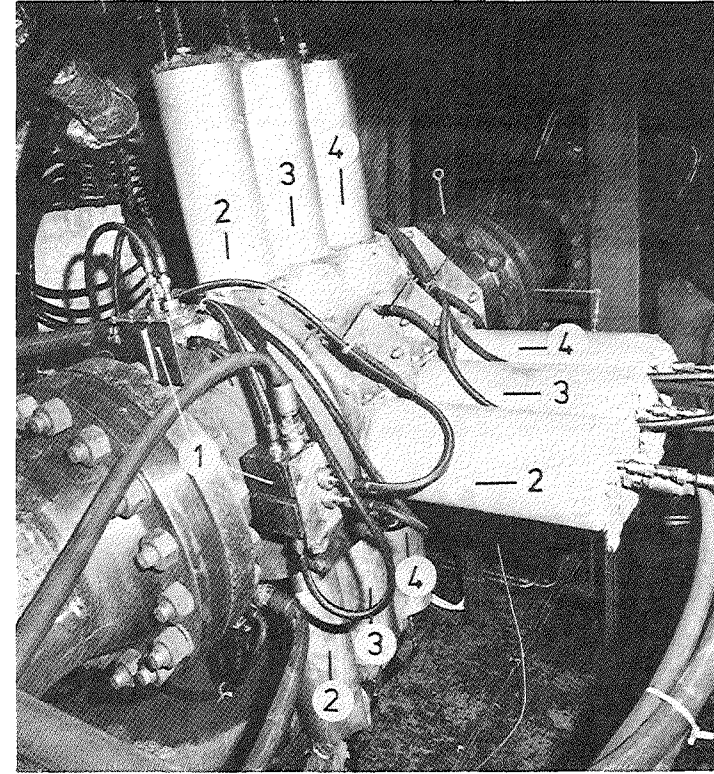


Abb. 4214-3: Radiotracergeschwindigkeitsmeßeinrichtung am Bruchstutzen (NW 400) des Maryiken-Reaktors

- 1 Injektionsventile
- 2 γ -Detektoren in der 1. Meßebe
- 3 γ -Detektoren in der 2. Meßebe
- 4 γ -Detektoren in der 3. Meßebe

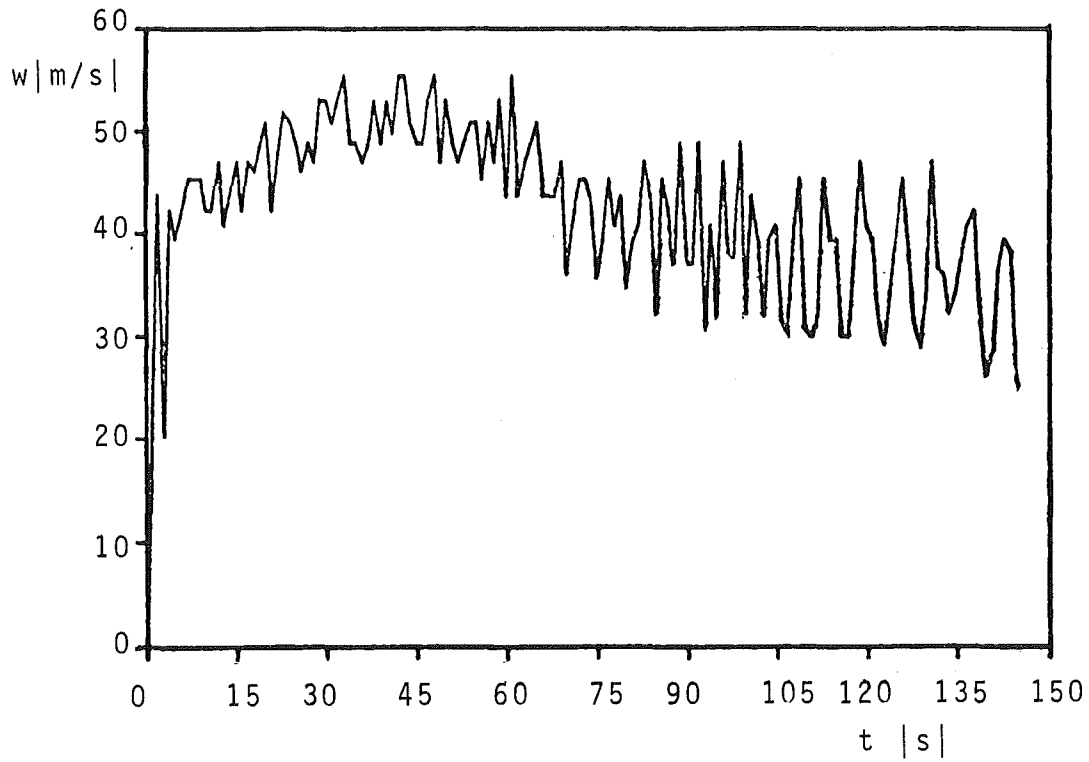


Abb. 4214-4: Geschwindigkeit der Gasphase im Blowdown-Channel bei Blowdown 18

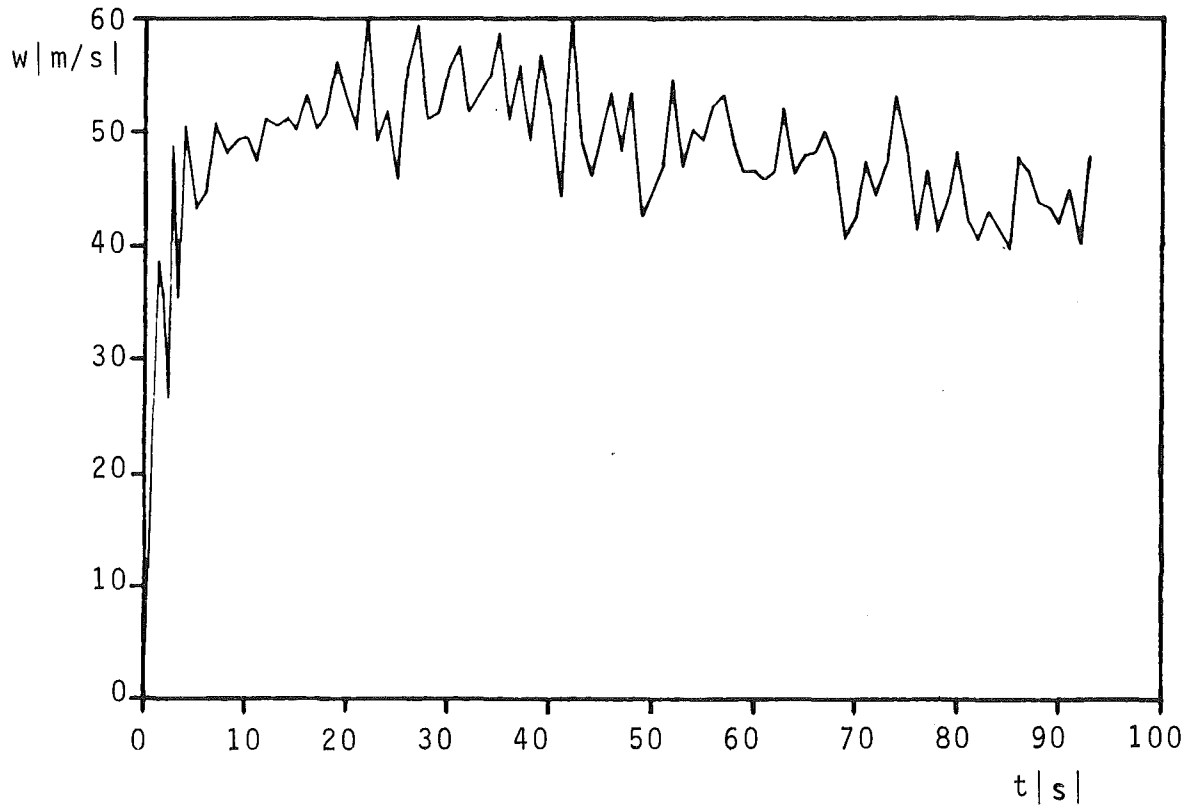


Abb. 4214-5: Geschwindigkeit der Gasphase im Blowdown-Channel bei Blowdown 20

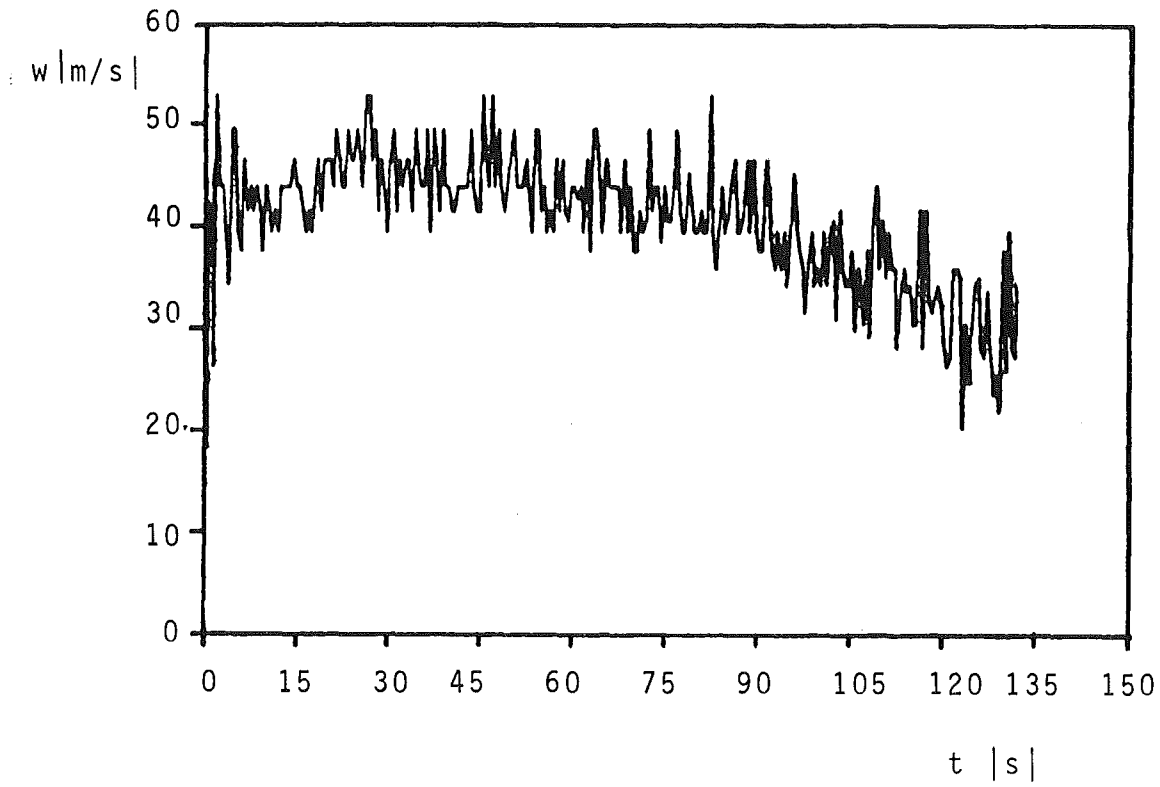


Abb. 4214 - 6: Geschwindigkeit des Flüssigtracers Mn-56 im Blowdown-Channel bei Blowdown 21

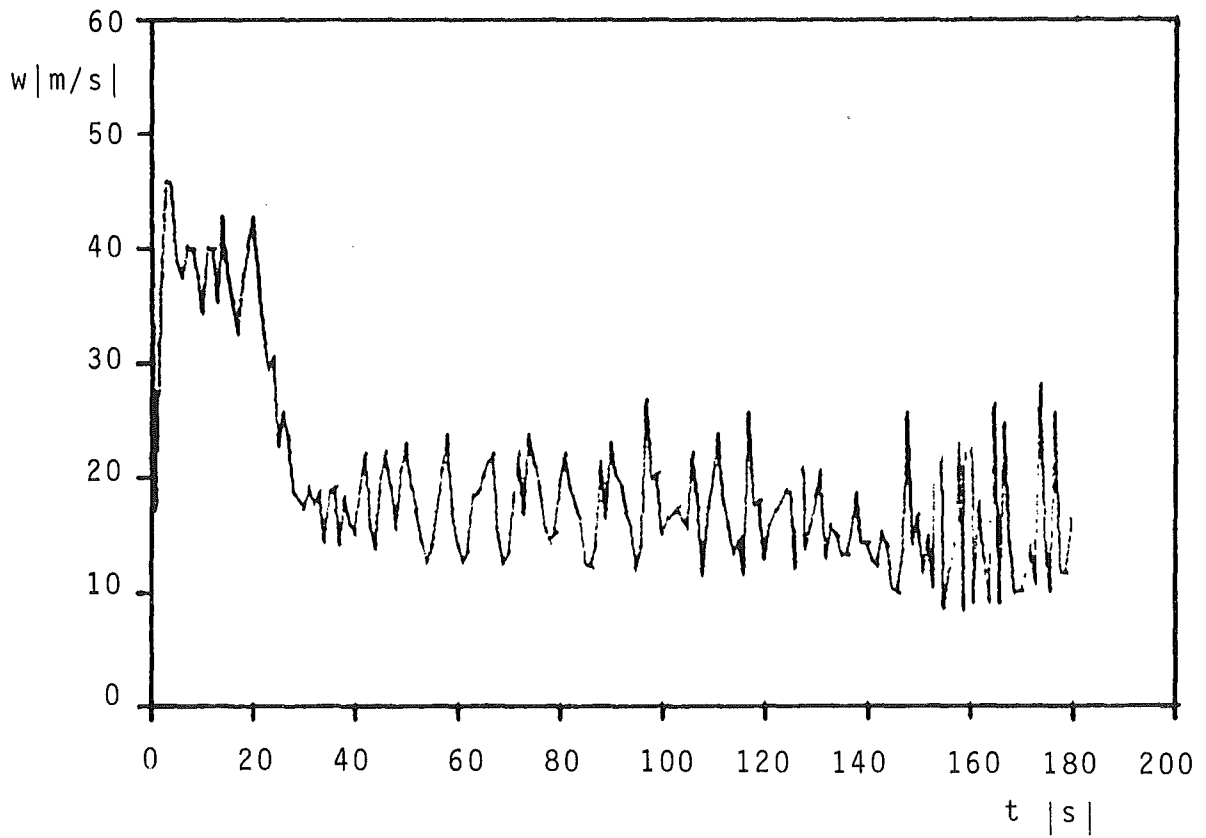


Abb. 4214 - 7: Geschwindigkeit der Gasphase im Blowdown-Channel bei Blowdown 23

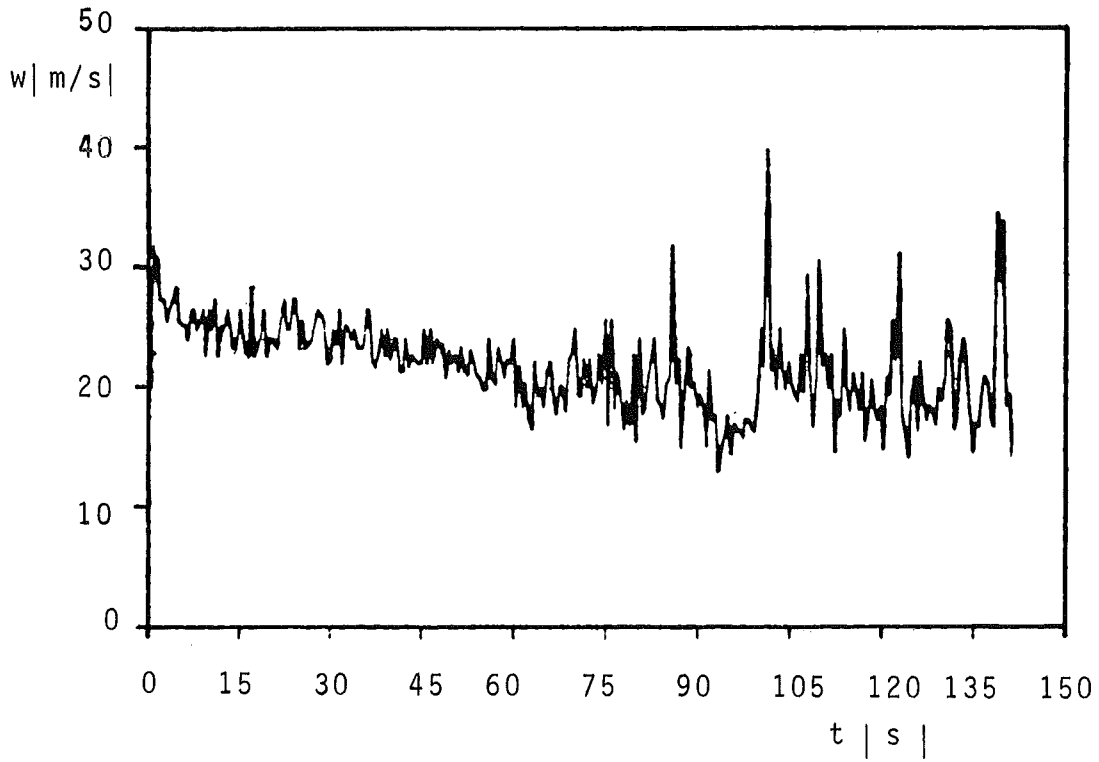


Abb. 4214 - 8: Geschwindigkeit des Flüssigtracers Mn-56 im Bruchstutzen bei Blowdown 21

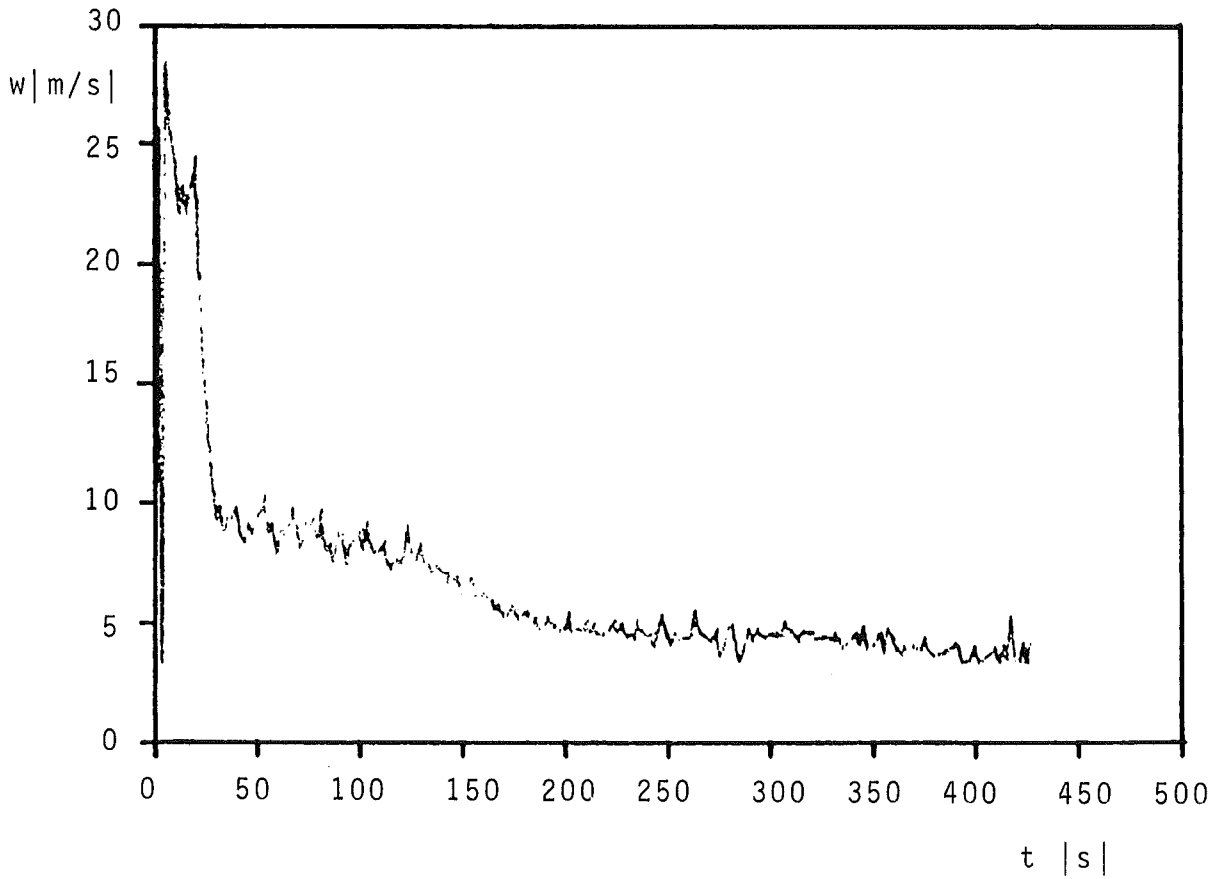


Abb. 4214 - 9: Geschwindigkeit des Gastracers Ar-41 im Bruchstutzen bei Blowdown 23

4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren.

(J. Reimann, G. Arnold, H. Hahn, H. John, St. Müller, IRB)

1. Dampf-Wasser Kreislauf

Nach Abschluß der Aufbauarbeiten des Kreislaufes wurde die Inbetriebnahmephase eingeleitet.

In einer Reihe von Versuchen wurde das funktionelle Arbeiten der Kreislaufkomponenten bis zum maximalen Betriebspunkt von 150 ata und 350°C untersucht. Das Verhalten der Gesamtanlage, besonders das regelungstechnische Verhalten der Kesselanlagen im Versuchsbetrieb wurde untersucht, um die notwendigen Erfahrungen für eine optimale Fahrweise zu gewinnen. Grundsätzliche Schwierigkeiten traten nicht auf. Das trifft auch für den Betrieb der Mischkammer zu.

Wegen der thermischen Trägheit der Kesselanlagen sind für die Erreichung stabiler Betriebspunkte relativ lange Zeiten nötig. Nach dem Hochfahren des Kreislaufs sind zum Erreichen eines stabilen Betriebspunktes 30 bis 60 Minuten erforderlich.

Die Übergabe der Betriebsdatenerfassung und Weiterverarbeitung durch den Rechner PDP 11 wird vorbereitet. Abb.4215-1 zeigt eine Ansicht der waagerechten Teststrecke mit den von oben zur Mischkammer verlaufenden Rohren für die einphasigen Teilmassenströme.

2. Bestimmung der Strömungsform

Für den Test der Massenstrom-Meßverfahren ist die Bereitstellung einer robusten Meßtechnik erforderlich, die während der Versuche eine Aussage über die vorhandene Strömungsform ermöglicht.

Ein hierfür eingesetztes Verfahren ist die Sichtbarmachung der Strömung mittels Kanalfenster aus Saphir in Verbindung mit einer Hochgeschwindigkeitskamera. Für die späteren Experimente ist diese Methode wenig geeignet wegen einiger Nachteile, wie Niederschlag eines Rostbelages auf den Scheiben, Empfindlichkeit der Scheiben gegen Wärmespannungen. Außerdem ist eine momentane Aussage über die Strömungsform bei Verwendung der Hochgeschwindigkeitskamera nicht möglich.

Von sehr großem Wert ist die Methode bei grundlegenden Untersuchungen. Hierzu gehört die Sichtbarmachung von einigen typischen Strömungszuständen in Abhängigkeit des Betriebsdruckes sowie der Vergleich mit einer zweiten Methode, die zur Strömungsidentifikation bei den späteren Experimenten besser geeignet ist. Die optische Methode liefert gute Ergebnisse im Bereich der Schichten-, Wellen- und Blasenströmung sowie der Kolbenströmung bei kleinen Dampfgehalten. Eine schlechte Interpretierbarkeit der Hochgeschwindigkeitsaufnahmen ist bei hohen Massenströmen und höheren Dampfgehalten (Übergang Kolben-Ringströmung, Ringströmung) vorhanden.

Die zweite Methode beruht auf der lokalen Messung des zeitlichen Verlaufs des Phasenzustandes mit nadelförmigen, konzentrisch aufgebauten Sonden.

Bei waagerechter Strömung werden dazu 2 oder mehr Sonden auf unterschiedlichen Radien angeordnet. Diese Sonden können zudem zur lokalen Messung des Dampfvolumentanteils verwendet werden. Da die Verwendung von konventionellen Meßmethoden bei den vorhandenen Kreislaufbedingungen (Temperaturen bis 350°C , nahezu keine elektrische Leitfähigkeit des Wassers) nicht zum Ziel führte, war eine eigene Entwicklung bzgl. Sondaufbau und Meßprinzip erforderlich.

Abb. 4215-2 zeigt Einzelaufnahmen aus einem Hochgeschwindigkeitsfilm (2000 Bilder/s) und das zeitlich zugeordnete SONDENSIGNAL bei Kolbenströmung ($p = 50 \text{ at}$, $T = 262^{\circ}\text{C}$). Die aus dem Film bestimmbaren Durchlaufzeiten der Dampfblasen an der Sondenspitze stimmen gut mit entsprechenden Werten des SONDENSIGNALS überein. Durch Anordnung zweier in Strömungsrichtung versetzter Sonden im oberen Bereich des waagerechten Strömungskanals wurde versucht, Größe und Geschwindigkeit der Dampfkolben zu bestimmen.

Erste Ergebnisse sind vielversprechend.

In den Bereichen, in denen die optische Methode keine eindeutige Aussage mehr liefert, sind die SONDENSIGNALE noch eindeutig interpretierbar. Zur Zeit ist eine Sondenverstelleinrichtung in Fertigung, mit der Profile des Dampfvolumentanteils sowie entsprechende Verteilungen der Durchlaufzeiten aufgenommen werden können (Abb. 4215-3).

3. Serielle Gamma-Dichtemeßvorrichtung

Die Bestimmung der Gemischdichte am Einsatzort eines Massenstrommeßverfahrens ist von großer Bedeutung, weil wegen der unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten von Wasser und Dampfphase die Dichtebestimmung aus der Massenbilanz der einphasig gemessenen Phasenteile nicht möglich ist. Es wurde daher eine Dichtemeßvorrichtung entwickelt die nach dem Prinzip der γ -Strahl-Schwächung arbeitet.

Um das Besondere, das diese Vorrichtung von den bekannten γ -Dichtemessungen unterscheidet, beschreiben zu können, soll das Prinzip kurz erläutert werden. Beim Durchtritt eines γ -Strahles durch Materie wird er nach dem bekannten Absorptionsgesetz

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu\rho l}$$

geschwächt, wenn:

I = Photonenzahl des γ -Strahles nach Schwächung

I_0 = Photonenzahl des γ -Strahles ohne schwächende Materie

μ = Linearer Absorptionskoeffizient

l = Dicke der durchdrungenen Materieschicht

ρ = Dichte der durchdrungenen Materieschicht

ist.

Sind die Größen I_0 , μ und l bekannt kann aus dem Meßwert I die Dichte berechnet werden.

Da das Absorptionsgesetz streng nur für einen unendlich dünnen, monoenergetischen γ -Strahl gilt, muß dafür gesorgt werden, daß die von einer Quelle kommende γ -Strahlung stark kollimiert wird und von der Meßelektronik nur Photonen einer Energie registriert werden. Das bedeutet aber, daß die im Bereich des γ -Strahles gemessene integrale Dichte bei der meistens vorliegenden inhomogenen Verteilung der Phasen nicht für den gesamten Strömungsquerschnitt repräsentativ ist. Es müssen deshalb mehrere γ -Strahlen über den Querschnitt verteilt vorgesehen werden. Bekannt geworden sind Anlagen mit bis zu 3 γ -Strahlen und je einer Meßkette pro γ -Strahl. Dabei wird für eine tragbare Genauigkeit ein sehr hoher Elektronik-Aufwand in Kauf genommen.

Für den beschriebenen Versuchskreislauf, der vorwiegend im stationären Bereich arbeitet, wurde eine Vorrichtung entwickelt mit der eine größere Anzahl γ -Strahlen über den Strömungsquerschnitt verteilt nacheinander gemessen und ausgewertet werden. Durch eine entsprechende Konstruktion, die im folgenden beschrieben wird, können besonders viele Meßstrahlen verwendet werden. Mit dem Aufwand für nur eine Meßkette kann damit eine relativ hohe Genauigkeit erreicht werden.

Die Abb.4215-4 zeigt schematisch die entwickelte Vorrichtung. Von einer gemeinsamen γ -Quelle ausgehend werden durch die Bohrungen eines Kollimatorblockes bei 50 mm \emptyset des Strömungskanals 5 γ -Strahlen durch das 2-Phasengemisch über eine Lochblendscheibe auf einen Szintillator mit Fotomultiplier geleitet. Ein 6. Strahl der das Medium nicht durchdringt dient als Referenzstrahl. Der Kollimatorblock besteht aus warmfestem Stahl und hat neben der Kollimierung der γ -Strahlen die Aufgabe als Druckwandung für den Strömungskanal zu dienen. Die eingesetzte dünnwandige Hülse übernimmt die Aufgabe der Druckfenster für die Kollimatorbohrungen. Dadurch, daß entsprechend den hier vorherrschenden hohen Betriebsbedingungen (150 ata, 350°C) nur sehr dünne Wände von der Meßstrahlung durchdrungen werden müssen, kann ein verhältnismäßig weicher γ -Strahler (z. B. Tm 170/84 KeV oder Ir-192/ca. 300 KeV) verwendet werden. Die Meßgenauigkeit erhöht sich dadurch, wegen des relativ großen Meßhubes zwischen Dampf u. Wasser beim weichen Strahler, weiter.

Die als " γ - Verschuß" dienende Lochblendscheibe ist mit einem Antrieb für veränderliche Drehzahl versehen. Die Drehzahl wird so eingestellt, daß während der Zählzeit für einen γ -Strahl, die durch das Startsignal einer Lichtschranke ausgelöst wird und durch die eingestellte Zeit des Timers beendet wird, der bogenförmige Schlitz geöffnet ist.

Die Meßelektronik ist weitgehend konventionell. Die wichtigsten Komponenten sind aus dem Schema ersichtlich. Das besondere Merkmal der Meßkette ist das relativ hohe zeitliche Auflösungsvermögen für mindestens 10^7 Impulse/sec, das einen Plastikszintillator erforderlich macht. Die Meßzeit je γ -Strahl soll 10ms betragen.

Die Auswertung der Meßsignale zur Dichtebestimmung erfolgt nach dem Differenz-Meßverfahren. Dadurch werden alle Einflüsse auf die γ -Strahl-Schwächung, die nicht durch Dichteänderung des zu messenden Mediums bedingt sind eliminiert.

Es werden die γ -Intensitäten (Photonenzahl der gewählten Energiesorte) für jede Kollimatorbohrung gemessen und zwar einmal bei Füllung des Kanals mit Dampf (I_D) und einmal bei Füllung mit Wasser (I_W). Abgeleitet aus dem anfangs genannten Exponentialgesetz läßt sich nach folgender Beziehung

$$\alpha_i = \frac{\ln (I_{2P} / I_W)}{\ln (I_D / I_W)}$$

I_{2P} =Intensität beim 2-Phasen-Gemisch

daraus der anteilige Dampfgehalt am Gesamtvolumen des γ -Strahl-Meßbereiches errechnen. Aus einer Reihe aufeinander folgender Meßpunkte lassen sich die Werte α_i , für jeden γ -Strahl mitteln (α_{iM}) und dann den Mittelwert α für den Kanalquerschnitt aus den Werten α_{iM} durch Mitteln bestimmen.

Die Referenzstrahlungsmessung hat dabei die Aufgabe, zu kontrollieren, ob alle nicht durch das Meßmedium bedingten Einflüsse, wie Quellstärke, elektronische Systemverarbeitung usw. konstant bleiben.

Die Gemischdichte ist dann

$$\rho_G = \rho_D \cdot \alpha + \rho_W (1 - \alpha) \quad \rho_{D,W} \text{ Dampf-, Wasserdichte}$$

Dieses Verfahren läßt sich auch für die später vorgesehenen instationären Versuche anwenden, weil die Meßzeit von 10 msec je γ -Messung sehr kurz im Verhältnis zu den Zustandsänderungen in der Teststrecke beim Blow-down sind. Für den Extremfall wird eine weitere Verkürzung der einzelnen Meßzeiten angestrebt. Außerdem kann für diesen Ausnahmefall die Anzahl der Meßstrahlen reduziert werden.

Neben der Dichtebestimmung kann aus den Intensitätsmesswerten der einzelnen γ -Strahlen auf die Struktur der Zweiphasen-Strömung geschlossen werden. Dies soll hier nun an 3 Beispielen gezeigt werden:

- Ergeben die Randstrahlen kleines und die mittleren Strahlen großes α_{iM} liegt Ringströmung vor.
- Ergeben alle Strahlen gleiches α_{iM} liegt Nebel oder Blasenströmung vor (wenn $0 < \alpha_{iM} < 1$).
- Nimmt α_{iM} von dem mittleren γ -Strahl nach beiden Seiten gleichmäßig ab, liegt vermutlich Schichtenströmung vor.

4. Erweiterung des Versuchsstandes auf Luft-Wasser-Strömung

Die Versuchsbedingungen des Dampf-Wasser-Kreislaufs sind, was Druck und Temperatur anbelangt, reaktorspezifisch; die Massenströme sind aber viel kleiner als bei Blowdown-Experimenten.

Es wurde ein Konzept erarbeitet, um innerhalb recht kurzer Zeit (ca. 4 Monate ab Bewilligung der Mittel) mit relativ kleinem finanziellem Aufwand (≈ 50 TDM) den Versuchskreislauf für Wasser-Luft-Strömungen auszubauen, um den maximal erreichbaren Massenstrom um den Faktor 7 gegenüber den Dampf-Wasser Versuchen zu erhöhen. Allerdings beschränkt sich die Erhöhung des Massenstroms auf einen relativ kleinen Bereich des "Dampfgehaltes" ($X \lesssim 0,1$).

Eine Abschätzung zeigt, daß dennoch alle Strömungsformen erreicht werden, die bei dem System Dampf-Wasser bei hohen Drücken, sehr viel höheren Dampfgehalten und entsprechend hohen Massenströmen auftreten würden. Die Erhöhung des Massenstroms ist wünschenswert für alle Meßverfahren und geradezu Voraussetzung für einen sinnvollen Test von Meßgerätekombinationen, die für hohe Massenströme ausgelegt sind, wie der Meßeinsatz für RS 109 (Euratom Ispra) und entsprechende Meßeinsätze, die in den amerikanischen Loft- und Semiscale-Versuchen verwendet werden. Aufgrund des amerikanischen Interesses werden die beiden amerikanischen Meßeinsätze mit großer Wahrscheinlichkeit ebenfalls im Gemeinsamen Versuchsstand getestet werden.

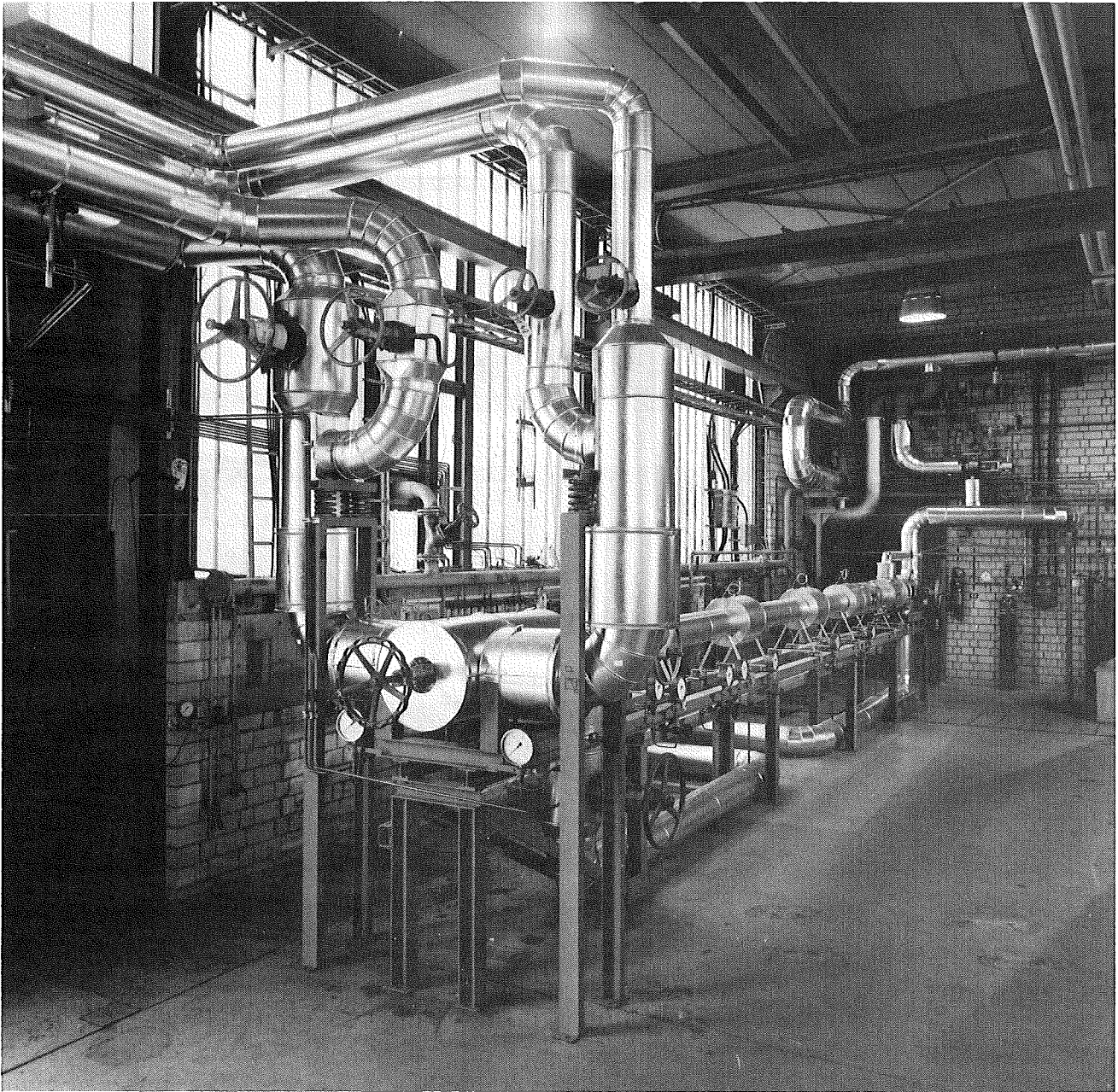


Abb. 4215-1 Teststrecke des Dampf-Wasser-Kreislaufs

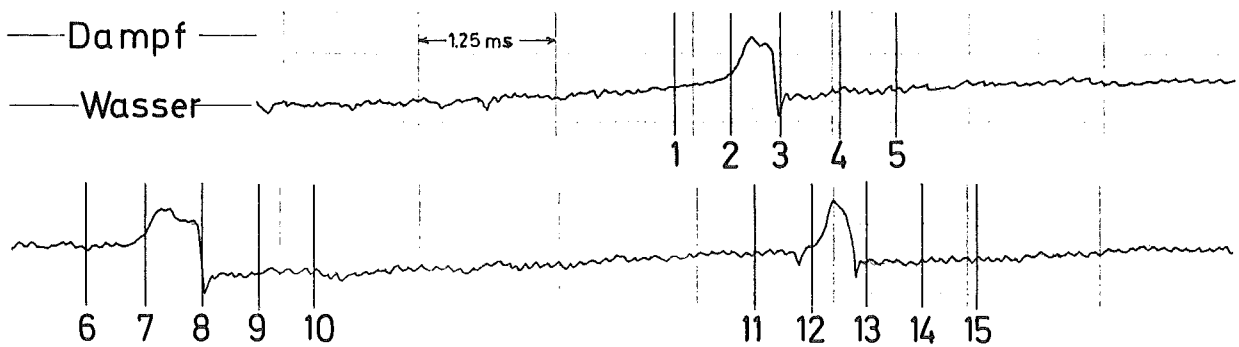
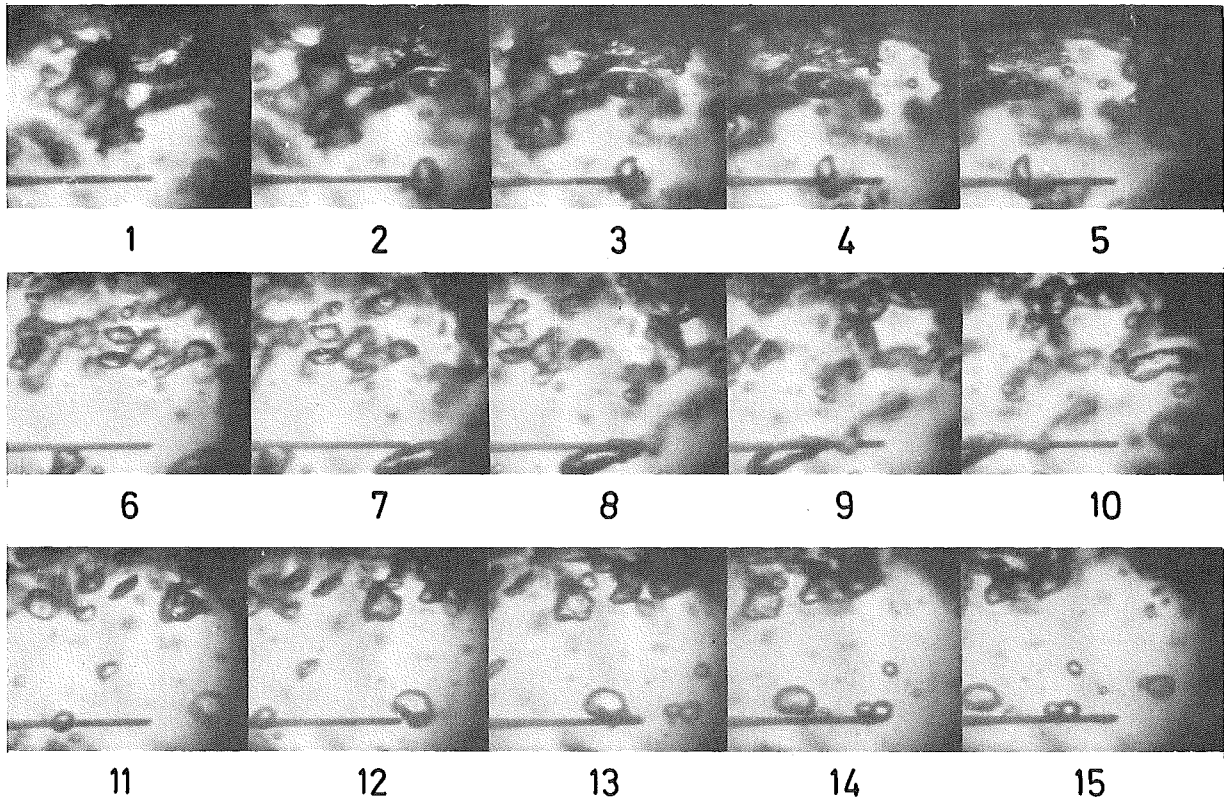
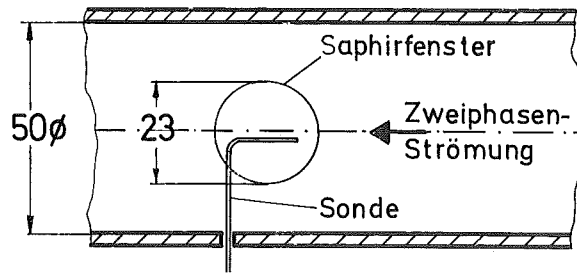


Abb. 4215-2 Hochgeschwindigkeitsaufnahmen (Bildabstand 0,5ms) und zugehöriges Sondensignal von einer Dampf-Wasser-Strömung ($\dot{m} = 3,5 \text{ kg/s}$, $x = 0,042$, $p = 50 \text{ at}$)

Serielle Mehrkanal-Dichtemeßvorrichtung Meßschema

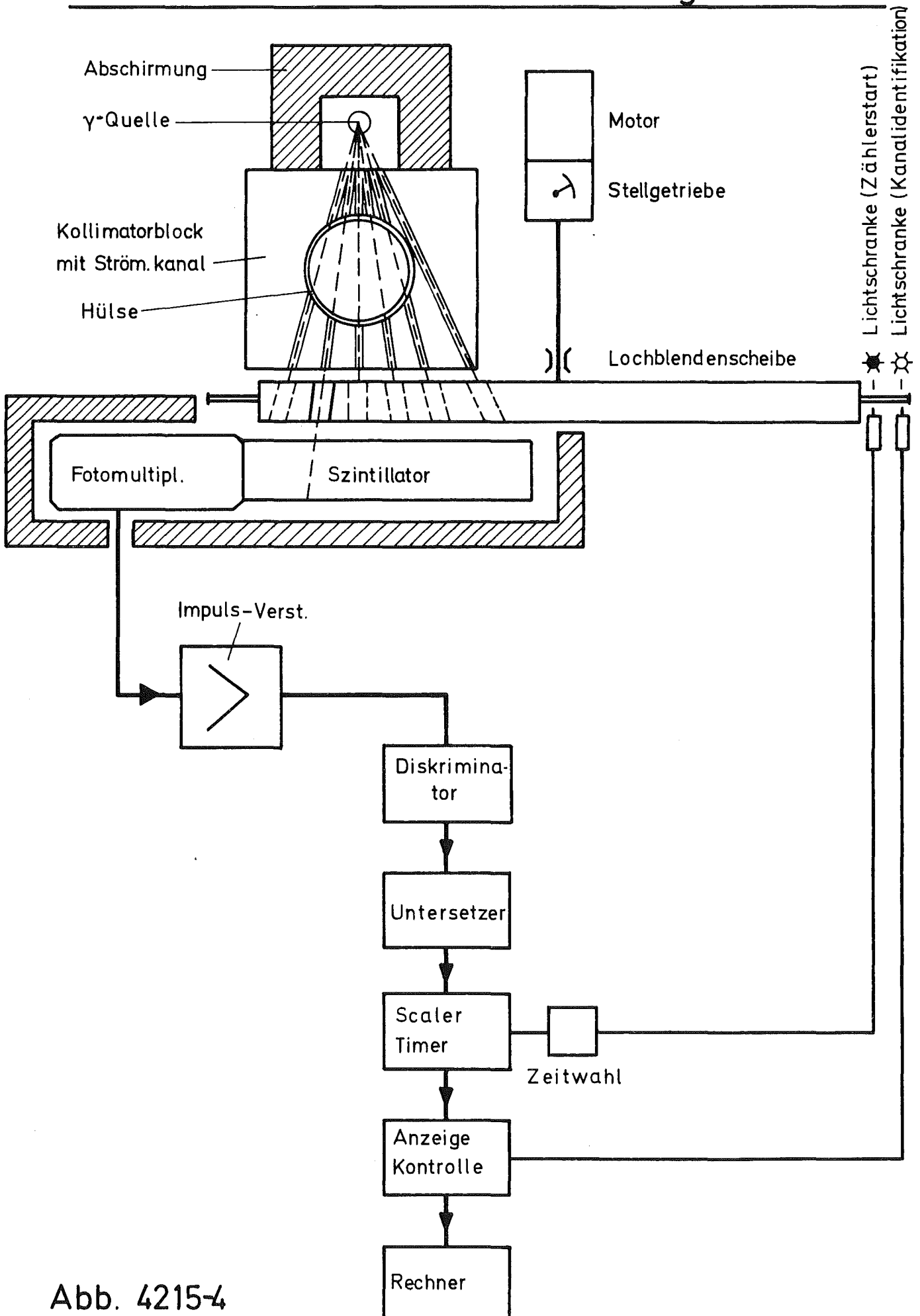


Abb. 4215-4

- 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 Druckbehältereinbauten
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

Zentrale Punkte des Vorhabens waren, nachdem zuvor die Zielsetzung der HDR-Versuche eindeutig festgelegt worden war (siehe PNS-Halbjahresbericht, KFK 2262, PNS 4220), die fertigungsgerechte Auslegung und Spezifikation der Druckbehältereinbauten, die Umstellung des Versuchskreislaufes zur Erreichung einer stabilen Enthalpie-Schichtung und die Planung von Vorversuchen.

Aufgrund der im vorangegangenen Halbjahr durchgeführten Auslegungsrechnungen wurden Werkstattzeichnungen für den Kernmantel, den Kernmanteleinspannflansch, den unteren Flansch und den Gewichtsring erstellt. Einige wenige Einzelheiten, wie z.B. die genauen Abmessungen der Auskehlung des Einspannflansches oder die Details zur Befestigung des Gewichtsringes müssen noch festgelegt werden. Auf der Basis der Werkstattzeichnungen konnte ein Fertigungs- und Montageauftrag vergeben werden. Die wesentlichsten Merkmale der konstruktiven Ausführung sind in Abb. 4221-1 wiedergegeben. Zur Zeit wird ein Konzept für Schwingungsversuche am eingebauten Kernmantel - mit und ohne Wasserfüllung - , durchzuführen unmittelbar vor den Blowdown-Versuchen, ausgearbeitet. Die Ergebnisse dieser Versuche sollen eine zusätzliche Stützstelle für die unter PNS 4223 zu entwickelnden Rechencodes darstellen.

Außerdem wurde eine Studie zur Standsicherheit des HDR-Druckbehälters beim Blowdown angefertigt. In einer oberen, stark konservativen Abschätzung ergab sich aufgrund der inneren Belastungsumlagerungen infolge des Blowdowns, d.h. ohne die Rückstoßkraft des austretenden Blowdownstrahles, eine Horizontalverschiebung von 1,4 mm. Daraus folgt, daß es zur Beurteilung der HDR-Standsicherheit ausreichend ist, allein die Rückstoßkraft des austretenden Blowdown-Strahles zu berücksichtigen. Der

Rechenaufwand reduziert sich dadurch ganz erheblich. Der Kreislauf zur Einstellung von Enthalpie-Schichtungen, wie sie für einen Reaktor typisch sind, wurde so umgestellt, daß die Enthalpie-Schichtungen stabil sind. Dies führte zu einer Kaltwasserzufuhr im unteren Plenum, einer Heißwasserzufuhr im oberen Plenum und einer Absaugung des Gemisches im Ringraum (siehe Abb. 4221-1). Ferner wurden Kriterien für die Kreislaufregelung festgelegt. Bedingt durch die Eigenschaften der Kreislaufkomponenten (insbesondere des E-Kessels) liegt die erreichbare Temperaturdifferenz zwischen Innen- und Ringraum bei 50 K. Die axiale Temperaturverteilung, die sich zu Beginn der HDR-Blowdown-Versuche einstellt, wurde ermittelt. Hierzu wurde ein einfaches theoretisches Modell erstellt, das es gestattet, den Einfluß des Wärmedurchgangs durch den Kernmantel auf die Strömung und die sich ausbildende Temperaturverteilung zu berechnen. Man hat es hier mit dem interessanten Problem des gleichzeitigen Auftretens von Naturkonvektion und erzwungener Konvektion zu tun, wobei wegen der geringen mittleren Geschwindigkeiten (ca. 1 cm/s) beide in etwa gleicher Größenordnung zum Wärmedurchgang beitragen. Um diese Temperaturverteilung experimentell verifizieren zu können, wurden entsprechende Vorversuche geplant. Der Meßstellenplan für diese Vorversuche ist fertiggestellt. Nach den bisher vorliegenden Ergebnissen scheint eine thermische Isolierung des HDR-Behälters nicht erforderlich zu sein, wenn die Kaminwirkung in der Anlage ausreichend unterdrückt wird. Die Berechnungen ergaben, daß die Temperaturen im Druckbehälter bei fehlender Isolierung nur wenige Zehntelgrade geringer sind als mit Isolierung.

Zur Überprüfung der Abmessungen für den Kernmanteleinspannflansch ist eine zumindest grobe elastisch-plastische Spannungsanalyse für den Flanschquerschnitt erforderlich. Neben der Klärung verschiedener Detailprobleme, die während des Fertigungsablaufes anfallen, muß zusammen mit dem Projekt PHDR die HDR-Deckelverschraubung unter dem Gesichtspunkt der Anlagensicherheit überprüft werden.

Der Meßstellenplan für den Kernmantel ist zu überprüfen und die genauen Positionen der Meßaufnehmer sind festzulegen.

Ein Konzept für Schwingungsversuche am eingebauten Kernmantel - mit und ohne Wasserfüllung - unmittelbar vor den Blowdown-Versuchen ist auszuarbeiten.

Mit dem Code YAQUI werden (zunächst ohne Berücksichtigung der elastischen

struktur) folgende Vorausberechnungen der Versuche vorgenommen werden:

- a) Abwicklung des Ringraumes mit vorgegebenem Druckzeitverlauf am Stutzen,
- b) wie a, jedoch mit einem - aufgrund einer Potentialtheorie entwickelten und dem Strömungsverlauf angepaßten - krummlinigen Maschennetz,
- c) Stutzen und Übergang in den Ringraum.

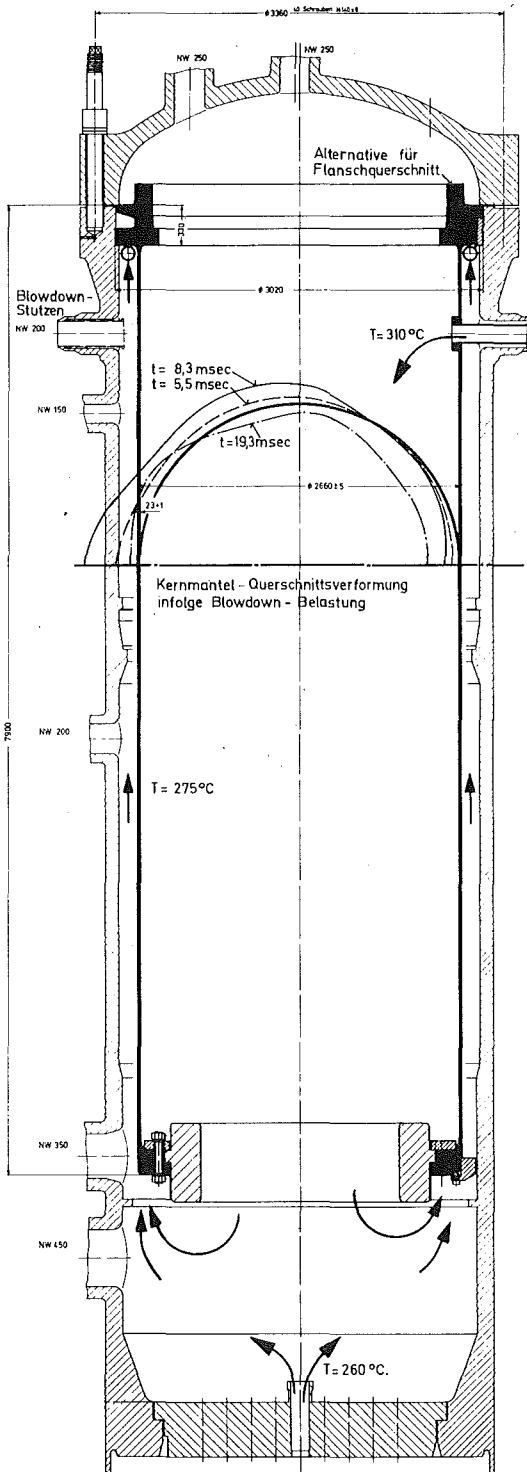


Abb. 4221-1:

Konzept für die Versuchsanlage der HDR-Blowdown-Experimente:

- Entwurf für Kernmantel mit Einspannflansch und unterem Flansch zur Coremasse-Simulation,
- Strömungsführung zur Einstellung einer DWR-typischen Enthalpie-Schichtung,
- Beispiel für eine vorausberechnete Kernmantel-Querschnittsverformung

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)

Die Detailkonstruktion der Autoklaven-Testvorrichtung wurde abgeschlossen. Durch die Verwendung von zwei bereits vorhandenen Druckkörpern waren für die Gestaltung der Anlage wichtige Randbedingungen vorgegeben. Abb. 4222-1 zeigt den vorgesehenen Aufbau. Die Instrumentierungstests werden in dem horizontal angeordneten Druckkörper ausgeführt werden; ein zweiter, gleichartiger Druckkörper in senkrechter Anordnung dient als Druckhalter. Die Beheizung erfolgt mit einer außen auf die Behälter bzw. Rohrleitungswandungen aufgebracht elektrischen Widerstandsheizung. Die an den Testobjekten erforderlichen mechanischen Bewegungen werden von einem elektromagnetischen Schwingungserreger erzeugt und über eine Koppelstange in das Innere des Testautoklaven übertragen. Ein geeigneter elektromagnetischer Schwingungserreger Typ TA 130 60 X wurde bei der Fa. Unholz-Dickie Inc. (USA), in Deutschland vertreten durch die Fa. Schleifring GmbH, Türkenfeld, bestellt. Unter Berücksichtigung der für die Koppelstange und die sonstigen Befestigungsteile erforderlichen mitbewegten Massen wird dieses System in der Lage sein, die zu testenden Aufnehmer bei einer Frequenz von 30 Hz, Beschleunigungskräften von 36 g und bei einer Frequenz von 400 Hz, Beschleunigungskräften von 95 g auszusetzen. Höhere Beschleunigungswerte können bei Tests in Luft, d.h. ohne Koppelstange erzielt werden. Die Testanlage erfüllt damit die für die HDR-Blowdown-Versuche spezifizierten Anforderungen, wonach alle Bewegungen mit Beschleunigungen bis 100 g und Frequenzen um 400 Hz mit sehr hoher Genauigkeit erfaßt werden sollen, so daß bei der Auswertung die Anwendung von Korrelationstechniken möglich ist und darüber bei Beschleunigungswerten von 200 bis 300 g auch noch gute und brauchbare Messungen mit kleinen bzw. bekannten Fehlern möglich sein sollen.

Die Fertigung der Einzelteile der Autoklaven-Testvorrichtung wurde im Berichtszeitraum begonnen und zum Teil abgeschlossen; der Zusammenbau und die Montage stehen bevor.

Mit zwei ersten angelieferten Taster-Wegaufnehmern wurden erste elektri-

sche und mechanische Tests bei Raumtemperatur ausgeführt. Es zeigte sich, daß eine stärkere mechanische Bewegung der Zuleitung sich als Störsignal bemerkbar macht. Die Auflösung und Reproduzierbarkeit der Meßgröße war dagegen sehr zufriedenstellend. Einer der beiden Wegaufnehmer wird vorübergehend dazu verwendet werden, bei den bevorstehenden nichtnuklearen Heißtests im Kernkraftwerk Philippsburg die Bewegungen der Kugelschale des Reaktorsicherheitsbehälters zu registrieren (s. Vorhaben 4211). Dabei werden weitere Erfahrungen bei der praktischen Verwendung dieses Aufnehmer-typs, allerdings unter Umgebungsbedingungen, anfallen.

Zwei weitere Probetaster-Wegaufnehmer, die ebenfalls für die bei den HDR-Versuchen vorliegenden Umgebungsbedingungen geeignet sind und weitere Beschleunigungsaufnehmer wurden im Berichtszeitraum bestellt. Die verschiedenen Aufnehmer werden entsprechend ihrer Anlieferung zunächst unter Umgebungsbedingungen, dann auch bei erhöhten Temperaturen und schließlich unter den echten Umgebungsbedingungen im Autoklav durchgemessen und getestet werden.

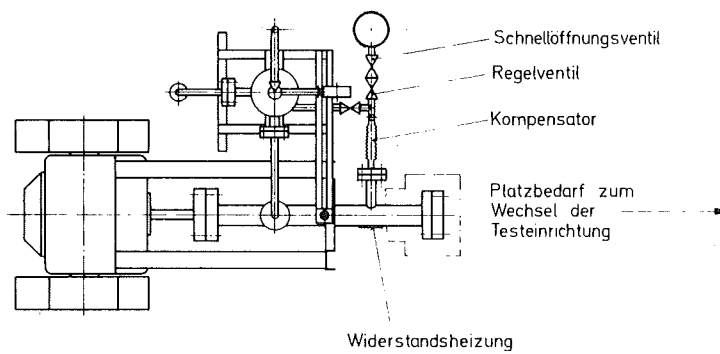
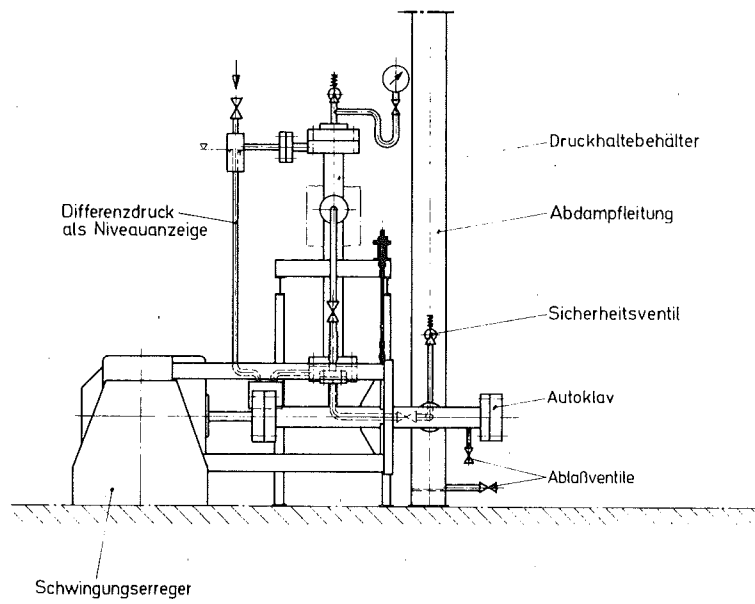


Abb. 4222-1: Autoklaven- Testvorrichtung für dynamische Instrumentierungstests

4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid- und strukturdynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen

(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

Das Vorhaben umfaßt die begleitenden theoretischen Arbeiten zu den HDR-Blowdown-Versuchen, insbesondere die Entwicklung fluid-strukturdynamischer Codes zur Berechnung der Blowdownvorgänge insoweit, als sie zur Bestimmung der maximalen Beanspruchung des Kernmantels von Bedeutung sind. Einfache Abschätzungen lassen vermuten, daß bei einer hinreichend realistischen Analyse die Rückwirkung der Strukturbewegung auf die fluiddynamischen Vorgänge auf keinen Fall vernachlässigt werden darf.

Auf dem Gebiet der Strukturmechanik wurde das Rechenprogramm CYLDY1 erstellt. Es soll die Verformung des Kernmantels als Funktion der Zeit für eine vorgegebene, vom Blowdown herrührende Lastverteilung liefern. Bei Rechnungen zur gekoppelten Fluid-Strukturmechanik wird es den Strukturmechanik-Modul darstellen. CYLDY1 basiert auf den Schalengleichungen von L.H. Donnell und L.S.D. Morley. Analytische Lösungen dieser Gleichungen werden in dem Rechenprogramm so überlagert, daß den Randbedingungen an den beiden Schalenstirnflächen näherungsweise genügt wird. Bisher durchgeführte Testrechnungen ergaben jedoch, daß diese Näherung für eine befriedigende Beschreibung der Kernmantelverformung zu grob ist. Aus diesem Grunde werden in einer zweiten Programmversion CYLDY2 nicht beliebige analytische Lösungen der Schalengleichungen überlagert, sondern sogenannte Eigenfunktionen, die den kinematischen Randbedingungen bereits genügen. Gleichzeitig werden auch gewisse, bisher in den Schalengleichungen vernachlässigte Terme berücksichtigt. Testrechnungen mit CYLDY2 stehen noch aus.

Eine vergleichende Studie über verschiedene Verfahren zur fluid-strukturdynamischen Kopplung wurde durchgeführt. Es ergaben sich gewisse Vorbehalte in Bezug auf die Stabilität der sogenannten sukzessiven Kopplungsverfahren. Bei den sukzessiven Kopplungsverfahren werden für jeden Zeitschritt entweder die strukturmechanischen Randbedingungen extrapoliert, um das Fluidmechanik-Problem lösen zu können, oder umgekehrt. Der Vor-

teil dieser Verfahren besteht darin, daß die fluid- und strukturdynamischen Teile der Rechnung weitgehend miteinander unabhängig durchführbar sind und deswegen auf vorhandene Codes und Rechenverfahren zurückgegriffen werden kann. Wegen der erwarteten Stabilitätsprobleme bei den sukzessiven Kopplungsverfahren (die bei der geplanten YAQUI-CYLDY2-Kopplung durch eine innere Iteration gelöst werden sollen) wurde alternativ hierzu ein sogenanntes simultanes Kopplungsverfahren vorgeschlagen, bei dem in einem integrierten Lösungsprozeß sowohl die fluid- als auch die strukturdynamischen Bedingungen gleichzeitig erfüllt werden. Als Vorarbeit hierfür war es notwendig, das Fluidodynamikproblem in ein BIE-Problem (Boundary Integral Equation Problem) zu überführen, bei dem der Definitionsbereich der Unbekannten mit der Fluid-Randfläche identisch ist. Hierzu wurde ein Singularitätenverfahren verwendet. Damit haben die Unbekannten in der Fluid- und in der Strukturmechanik im wesentlichen dieselben Definitionsbereiche und die Fluid-Struktur-Kopplung ist relativ leicht durchzuführen. Die Methode ist auf die Behandlung von 3D-Problemen (z.B. Kernmantel im Innern mit Wasser gefüllt) zugeschnitten. Die Kompressibilität der Flüssigkeit kann bei diesem Verfahren nicht unmittelbar berücksichtigt werden, sondern muß durch erhöhte Wandnachgiebigkeit simuliert werden.

Im Zuge der ersten Anwendungen des modifizierten zweidimensionalen Codes YAQUI (kompressible Fluide) wurden noch einige Anpassungen der Randbedingungen erforderlich. Damit wird es nun möglich, die Vorgänge im HDR-Ringraum mit einem der Strömung angepaßten krummlinigen Maschennetz genauer zu erfassen. Außerdem wurde an einem besonders ausgewählten Testbeispiel der Code YAQUI mit dem Code REXCO verglichen. Anwendungsrechnungen für die HDR-Blowdown-Versuche (jedoch mit Stutzenlänge null) wurden durchgeführt und zwar sowohl mit einem Rechteckmaschengitter wie auch mit einem Maschennetz, das aus der Potentialtheorie abgeleitet wurde (siehe Abb. 4223-1).

Für den neu zu entwickelnden Systemcode FLUST wurde ein eindimensionales Teilmodell entwickelt und getestet. An einem Stoßrohrproblem wurden seine Ergebnisse mit YAQUI-Rechnungen verglichen. Die Gleichungen und Eingabekonventionen für ein zweidimensionales Teilmodell wurden erstellt. Anhand der bei beiden Arbeiten gesammelten Erfahrungen ergab sich die Notwendigkeit einer Überarbeitung der Datenstruktur des Codes. Im Berichtszeitraum wurden ein revidierter Plan für die Datenstruktur und

eine detaillierte Spezifikation für ein zweidimensionales Teilmodell (kompressibel, Euler-Gitter) ausgearbeitet.

Die für eine Kopplung der Codes YAQUI und CYLDY2 erforderlichen Kopplungsgleichungen wurden entwickelt. Danach soll CYLDY2 als ein Teilmodell in den Code YAQUI eingebaut werden. Auch für die Kopplung eines inkompressiblen Fluids mit einem Strukturmodell wurden in allgemeiner Form die Algorithmen entwickelt. Es wird derzeit geprüft, ob anstelle des für den Kernmantel-Innenraum vorgesehenen Singularitäten-Verfahrens ein stark integriertes Gesamtmodell des HDR-Behälters zur Beschreibung dreidimensionaler Effekte entwickelt werden soll.

Es wurde die Möglichkeit der Behandlung gekoppelter Fluid-Struktur-Dynamik mittels des Charakteristikenverfahrens untersucht. Schwierigkeiten bereiten hierbei jedoch die üblichen strukturdynamischen Modelle, da diese nicht vom erforderlichen hyperbolischen Typ sind.

Der Massenstrom am Bruchstutzen ist wesentlich durch zwei Phasen-Strömungen kontrolliert. In diesem Bereich wurde die relevante Literatur gesichtet und die Verwendung des Programms SOLA-Drift-Flux aus Los Alamos geplant. Erste Studien mit einer einphasigen SOLA-Version wurden durchgeführt.

Die direkten numerischen Verfahren zur Lösung der Poisson-Gleichung wurden weiterentwickelt und zur Berechnung von Potentialströmungen in HDR-Geometrie eingesetzt. Errechnet wurde hierbei u.a. die Zeitkonstante, in der das Fluid von Null auf die halbe Maximalgeschwindigkeit beschleunigt wird. Diese Zeit hängt außer von der Druckdifferenz fast nur von der Länge des verbleibenden Rohrstutzens ab und liegt beim HDR in der Größenordnung 10 msec.

Die Wellenausbreitung und träge Strömung in kompressiblen Medien wurde mittels der Flachwasseranalogie experimentell untersucht. Besonderes Augenmerk galt hierbei der Möglichkeit einer Verminderung der Ausflußrate infolge Zirkulationen und Ausbildung eines Wirbels (Badewannen-Wirbel).

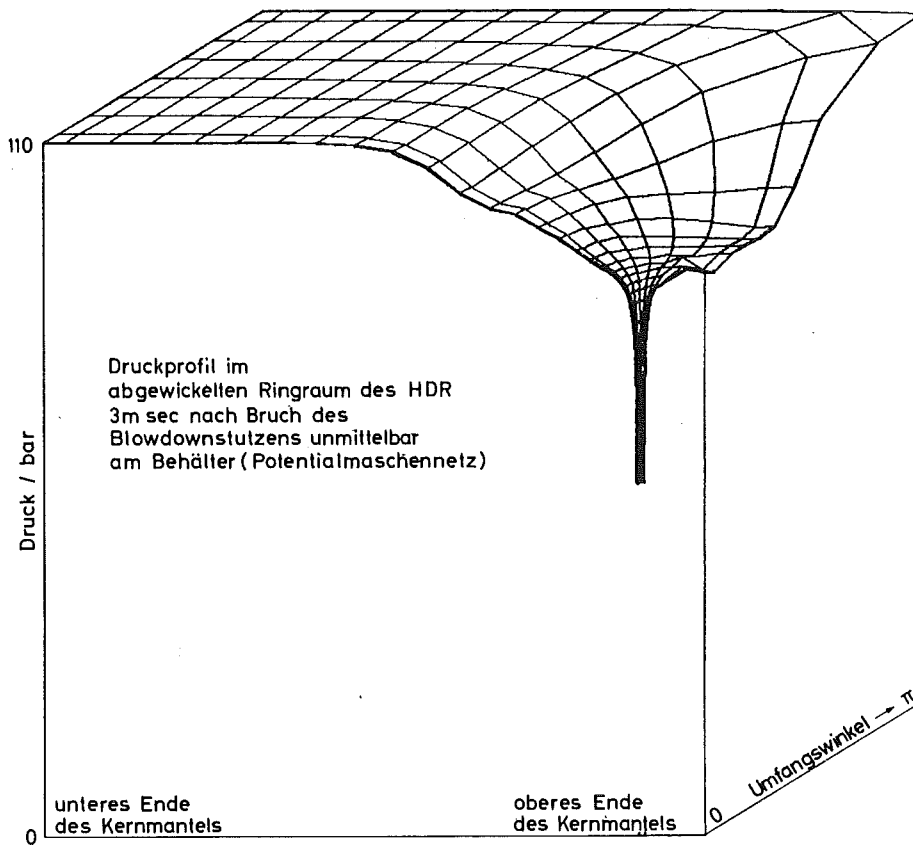
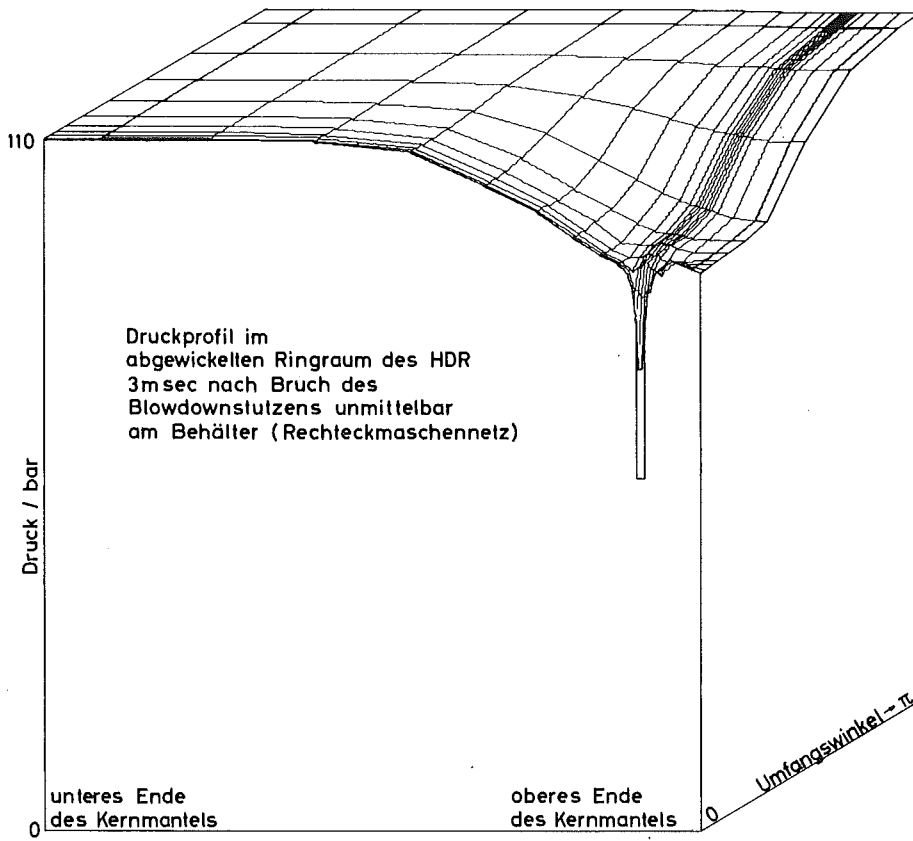


Abb. 4223-1: Druckverlauf im Ringraum

4230 Notkühlung von LWR

Untersuchung des Brennstabverhaltens bei Störfällen und der Auswirkungen von Brennstabschäden auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung

4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnellabschaltung

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

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

Im Berichtszeitraum wurden Testrechnungen und Parameterstudien durchgeführt. Die Entwicklung von Moduln zur Beschreibung der Wiederauffüll- und Flutphase und zur Berechnung der Hüllrohrverformung in $r-\phi$ -Geometrie wurde fortgesetzt. Mit SSYST-Mod 1 und FRAP-T2 wurden Vergleichsrechnungen (FRAP-T Standard Problem 1) durchgeführt.

1. Vergleichsrechnungen SSYST-Mod 1 und FRAP-T2

(M. Mesina, W. Gulden, S. Dagbjartsson, L. Ehnis)

Im Rahmen des deutsch-amerikanischen Workshops über Programmentwicklung zum Brennstabverhalten (1.-5.3.1976 in Karlsruhe) wurde das ANC-FRAP-T Standard Problem 1 (Double Ended Cold Leg Break in PWR) nachgerechnet.

Diese Rechnungen ermöglichten es, mit allen wichtigen Moduln von SSYST-Mod 1 einen integralen Test durchzuführen und die Ergebnisse mit denen der FRAP-Rechnungen zu vergleichen.

Für die Rechnungen wurde ein Brennstab der Länge 3,35 m angenommen

(Pelletradius 4,65 mm, Hülleninnenradius 4,75 mm, -außenradius 4,9533 mm).
Der Brennstab wurde für die Rechnung in folgende Zonen unterteilt:

	axial	radial		Hülle
		Brennstoff	Spalt	
SSYST	66	7	1	3
FRAP	16	11	-	3

Die SSYST-Rechnungen wurden in eine stationäre und eine transiente Rechnung unterteilt. Das Ziel der stationären Rechnung ist es, alle physikalischen Charakteristiken des Systems im Anfangszustand (Temperaturverteilung, Spaltgeometrie, α -Zahlen im Spalt) für den normalen Betriebszustand des Reaktors als Ausgangswerte für die transiente Rechnung zu bestimmen.

Für die transiente Rechnung wurden die zeitabhängigen Größen: α -Zahlen im Spalt, Druck im Kühlmittel und normierte Leistungsdichte als Eingabedaten verwendet. Folgende Moduln wurden für die Blowdown-Analyse des Brennstabs - zu einer Modulfolge zusammengefaßt - eingesetzt:

- STEP Bestimmt den folgenden Makrozeitschritt

- RANDM Übernimmt über Makrozeitintervalle gemittelte Randbedingungen

- SPAGAD Berechnet den Druck im Spalt

- WUEZ Bestimmt die α -Zahlen im Spalt

- ZET-1D Berechnet die Temperaturen

- STADEF Berechnet die Hüllrohrdeformation

- ZWERG Speichert die zeitabhängigen Daten

Die Übereinstimmung der Ergebnisse der Vergleichsrechnungen kann als gut bezeichnet werden. Bei beiden Programmen setzt das Blähen der Hülle an der heißesten Stelle nach. ca. 8 s ein (s. Abb. 4231-1 - Transiente Hüllrohrstrahlen an der heißesten Stelle).

Die verwendeten Modelle für die Wärmeleitung stimmen sehr gut, diejenigen für die Druckberechnung im Spalt und die Deformation der Hülle gut überein. Die Berechnung der Wärmeübergangszahl im Spalt führt jedoch zu unterschiedlichen Ergebnissen - vor allem beim stationären Zustand - aufgrund der verschiedenen Modelle bei kleinem und geschlossenem Spalt (z.B. Cracking-Modell bei FRAP). Abb. 4231-2 zeigt den transienten Verlauf der berechneten Wärmeübergangszahlen.

2. Nachrechnung von Ballooning-Experimenten (Vorversuche aus PNS 4238 mit verkürzten Brennstabsimulatoren) (M. Schindler)

Die Ergebnisse der Ballooning-Experimente des IRB wurden mit dem Deformationsmodul STADEF des Programmsystems SSSYST nachgerechnet. Dabei wurden verschiedene aus der Literatur bekannte Ansätze zur Beschreibung des zeitabhängig-plastischen Verhaltens von Zircaloy verwendet. Die Rechnungen wurden für ein Zircaloy-Rohr mit 5,375 mm Außen- und 4,655 mm Innenradius durchgeführt. Der zeitliche Temperatur- und Druckverlauf wurde den Versuchsergebnissen entnommen.

Abb. 4231-3 zeigt die Dehnung als Funktion der Temperatur für die gegebenen Versuchsbedingungen. Gegenübergestellt sind der experimentelle Befund und die theoretischen Werte nach Emmerich /1/.

Die Rechnungen werden fortgesetzt.

3. Entwicklung von Moduln für die Wiederauffüll- und Flutphase (R. Schütze)

Während der Entwicklung eines Hydraulikmoduls für die Unterkanalanalyse in der Druckentlastungsphase ergaben sich wegen der Behandlung von Wärmeleitung und Hydraulik in getrennten Modellen Stabilitätsprobleme. Sie konnten durch Kopplung beider Modelle in einem Programm beseitigt werden. Zur Behandlung der Flutphase wird deshalb von Anfang an eine Kopplung angestrebt.

Im Bereich der Benetzungsfront treten infolge großer Unterschiede im Wärmeübergangskoeffizienten steile Temperaturgradienten in axialer Richtung im Hüllrohr auf, d.h. die zweidimensionale Wärmeleitung (r,z-Geometrie) muß berücksichtigt werden. Da der steile Gradient ein sehr enges Maschennetz an der Benetzungsfront erfordert, wird - ausgehend vom Modul ZET-2D - ein Modell entwickelt, in dem ein begrenzter Bereich mit engem Maschennetz mit der Benetzungsfront wandern kann. Dadurch wird Rechenzeit und Kernspeicherplatz gespart. Ein Unterprogramm zur Anpassung des engen an das ursprüngliche Maschennetz wurde bereits erstellt. Der Benutzer kann dabei die Anzahl der engen Maschen und die zugehörige Maschenweite selbst vorgeben.

Das Modell zur Unterkanalhydrodynamik umfaßt den Strömungs- und Wärmezufuhranteil. Dem Strömungsmodell müssen Massenstrom am Kernein- und -austritt von einem anderen Programmteil bereitgestellt werden. Die Reibung im Kern sowie die geodätische Höhe werden zunächst vernachlässigt. Der Modul berechnet aus dem Massenstrom und der zugeführten Energie die Dampfproduktion und damit die Geschwindigkeit des sog. "collapsed level".

Die Darstellung des Wärmeübergangs von den Brennstäben an das Kühlmittel erfolgt im benetzten Bereich (Konvektion an unterkühlte Flüssigkeit und zweiphasiges Fluid, Wärmeübergang an Tropfenströmung, Dampf und Wasserfilm und von dort an Dampf- oder Tropfenströmung). Entsprechend der angegebenen Bereiche werden geeignete Korrelationen / 2 / eingesetzt. Aus den abhängig von Massenstrom und Kühlmittelzustand berechneten Wärmeübergangskoeffizienten wird die dem Kühlmittel zugeführte Leistung berechnet.

Die Moduln WAK und RAWAK wurden weiterentwickelt, sie wurden insbesondere an SSYST angepaßt und werden zur Zeit ausgetestet.

4. Entwicklung eines Programms zur Berechnung der Hüllrohrverformung in $r - \phi$ - Geometrie
(M. Schindler)

Mit der Darstellung der Hüllrohrverformung in $r-\phi$ -Geometrie wurde begonnen. Dabei wurden für das Spannungsfeld sowie für das Dehnungs- und Verschiebungsfeld folgende Annahmen getroffen:

Vernachlässigung der Radial- gegen Umfangs- und Axialspannung, ebener Spannungszustand, Normalen zur Schalenmittelfläche bleiben Normalen, linearer Dehnungsverlauf über dem Schalenquerschnitt, eine Dehnung in Umfangsrichtung hat eine Verschiebung in Normalenrichtung zur Folge. Man erhält damit bei Kenntnis der nichtelastischen Dehnungsraten ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem zur Bestimmung der Verschiebungsrates. Die beim Hüllrohrblähen erforderliche Berücksichtigung der Kriechrate bereitet Schwierigkeiten. Sie wird deshalb separat berechnet, wie dies bereits bei STADEF der Fall ist. Die vorgesehene Linearisierung erlaubt die Anwendung desselben Lösungsverfahrens, das für die Gesamtdehnungsrate ohnehin erforderlich ist.

Man erhält mit diesem Verfahren eine lineare Differentialgleichung 4. Ordnung für die Verschiebungsraten nach der Umfangsbogenlänge. Für die numerische Integration für den zeitabhängigen Vorgang ist ein Zwischenschrittverfahren nach dem Richtmeyer-Schema vorgesehen / 3 /.

Das Lösungsschema wird in Mikrozeitschritten durchlaufen, die abhängig von den Dehnungsraten gewählt werden, so daß das Dehnungsinkrement einen vorgegebenen zulässigen Wert nicht überschreitet.

5. Modellmäßige Erfassung von chemischen und mechanischen Eigenschaften von Zirkaloy
(S. Raff)

Das Rechenprogramm OPAL / 6 / zur Anpassung von Diffusionskonstanten an Oxidationsmeßwerte wurde so erweitert, daß die integrale Sauerstoffaufnahme berücksichtigt werden kann. Diese Erweiterung erwies sich als

notwendig, da insbesondere bei kleinen Oxidationsraten die Sauerstoffaufnahme genauer als die Schichtstärkenmessung ist.

Die Bestimmung von Norton-Parametern aus Zug- und Rohrberstversuchen wurde fortgeführt.

Zur Ermittlung von Norton-Parametern im Temperaturbereich unterhalb der Phasentransformation (superplastischer Bereich) wurde am IMF eine Zugversuchsserie an Zry-4 Flachproben isotherm bei den Temperaturen 600, 650, 700, 750, 800°C und mit Zuggeschwindigkeiten von 1, 5 und 20 mm/min durchgeführt. Die Parameter waren so gewählt, um die erwarteten Bedingungen bei den Berstversuchen zur Niederdruckphase (PNS 4238) abzudecken. Die ursprüngliche Auswertung dieser Kraft-Zeit-Kurven führte zu starken Streuungen in den Parametern. Bessere Ergebnisse werden erwartet, wenn (nach anderen Kriterien) ausgewählte Abschnitte der experimentell ermittelten Kurven zur Auswertung herangezogen werden.

Bei den temperatur- und drucktransienten Berstversuchen (PNS 4238) ist es möglich, sowohl den Spannungsexponenten n als auch die Aktivierungsenergie Q aus einem Versuch zu gewinnen. Zu diesem Zweck wurde ein Rechenprogramm erstellt, das die Parameter nach der Methode des kleinsten Fehlerquadrates an die gemessenen Dehnverläufe anpaßt.

6. Anwendungsrechnungen mit SSYST und RELAP (R. Meyder, W. Sengpiel)

Mit der in Karlsruhe implementierten Version von SSYST-Modl wurde untersucht, wie sich der transiente Innendruck eines Stabes verhält, wenn Größen wie Plenumvolumen, Anfangsinnendruck und Leistungsprofil geändert werden. Über die Ergebnisse wird in / 4 / berichtet. Wichtige Ergebnisse waren:

- kleinere Anfangsinnendrucke führen zu einer geringen Erhöhung in den Hüllrohrtemperaturen
- axiale Druckdifferenzen können sich nur dann aufbauen, wenn der Spalt sehr klein ist ($< 5 \mu$ hydraulisch)

- das Leistungsprofil bestimmt die Größe der Beule und hat so auch Einfluß auf den Druckverlauf.

Die neueste in der GfK verfügbare Version von RELAP4 ("Water Reactor Evaluation Model" mod 85) wurde getestet. Vermutlich wegen programmtechnischer Fehler ist eine Einzelstabanalyse mit dieser RELAP4-Version bisher nicht möglich gewesen. Deshalb wurde für den Fall eines Heißstabes eines modernen DWR RELAP4-mod17 eingesetzt. Die Einzelstabanalyse mit RELAP4 werden im Hinblick auf die Untersuchungen des Hüllrohrverhaltens mit SSYST und auf die probabilistischen Analysen zum Brennstabverhalten bei einem hypothetischen LOCA (siehe 7.) fortgesetzt.

7. Statistik des Hüllrohrverhaltens während LOCA's (W. Sengpiel)

Die Arbeiten zur probabilistischen Analyse des Brennstabverhaltens im Falle eines LOCA wurden weitergeführt. Erste Ergebnisse von Vergleichsrechnungen mit Monte Carlo- und "moment matching"-Verfahren für ein instationäres Temperaturfeldproblem liegen vor / 5 /. Die Ergebnisse lassen den Schluß zu, daß das "moment matching"-Verfahren dazu geeignet ist, die Statistik des Hüllrohrverhaltens (Erwartungswert, Varianz sowie höhere Momente von Temperaturen und Dehnungen) mit guter Genauigkeit zu ermitteln.

Literatur

- / 1 / Emmerich, K.-H.; Junke, E.F.; White, J.F.:
Failure of Pressurized Zircaloy Tubes During Thermal
Excursions in Steam and in Inert Atmospheres
ASTM-STP-458 (1969)

- / 2 / Bericht über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit der GfK für den Zeitraum April bis Juni 1975 (1975) unveröffentlicht
- / 3 / Klumpp, W.:
Das Differenzenverfahren zur numerischen Lösung von Differentialgleichungen
IKE-Bericht Nr. 4-37 (1974)
- / 4 / Meyder, R.; Raff, S.; Sengpiel, W.:
Sensitivity Study on Some Parameters of Internal Pressure of PWR-Fuel Rods during Blowdown using SSYST-mod1
OECD-Meeting 12.- 16. September 1976 Spätind, Norway
- / 5 / Sengpiel, W.:
Über die probabilistische Betrachtung des Brennstabversagens bei einem hypothetischen Kühlmittelverluststörfall eines DWR (1976) unveröffentlicht
- / 6 / Raff, S.:
Systematische Anpassung von Diffusionskoeffizienten für die Sauerstoff-Zirkaloy-Reaktion an integrale Meßwerte des Schichtenwachstums und der Gewichtszunahme mit dem Computer Programm OPAL (Teil 1) (1976) unveröffentlicht

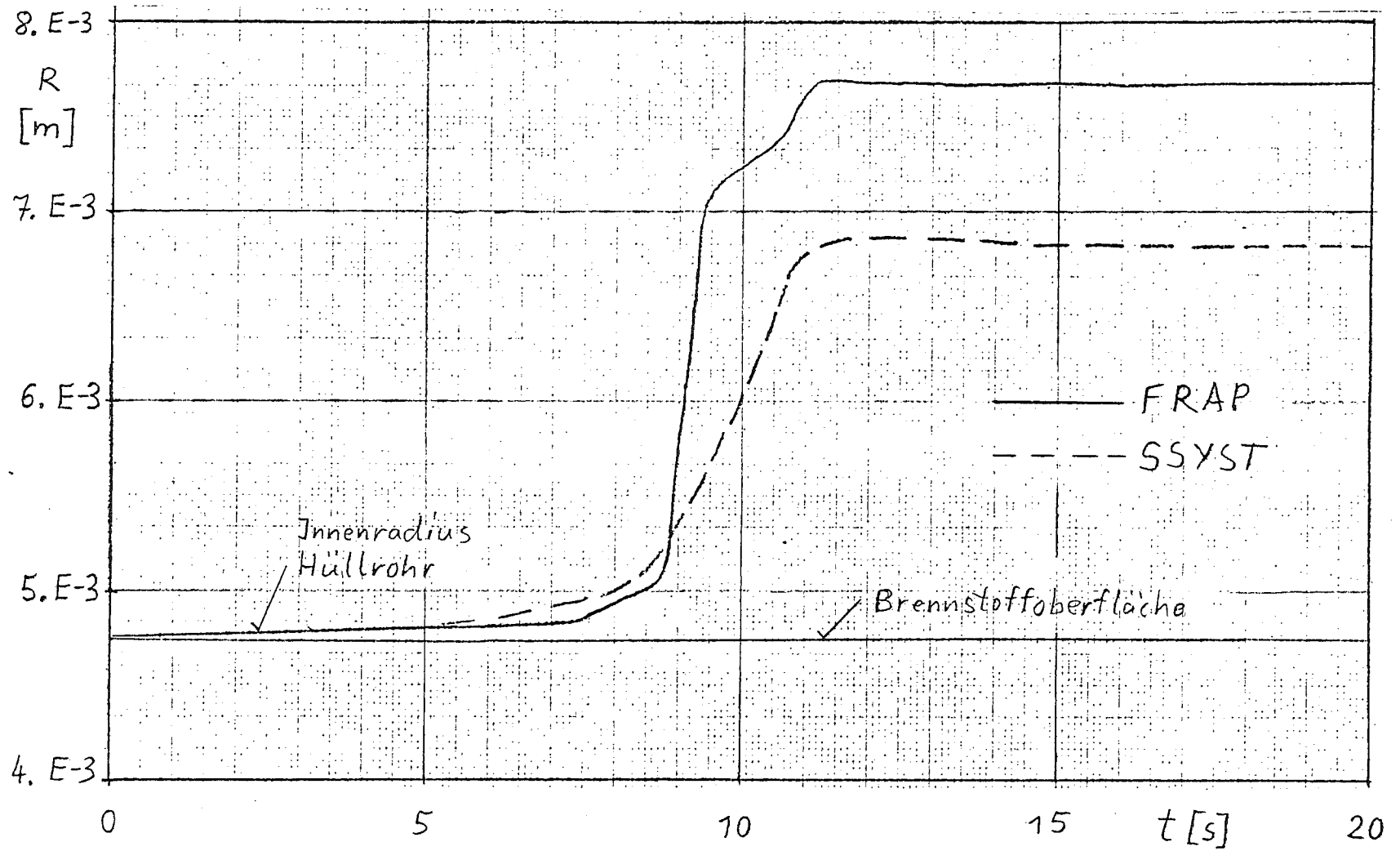


Abb. 4231-1: Innenradius des Hüllrohrs und Radius der Brennstoffoberfläche an der heißesten Stelle

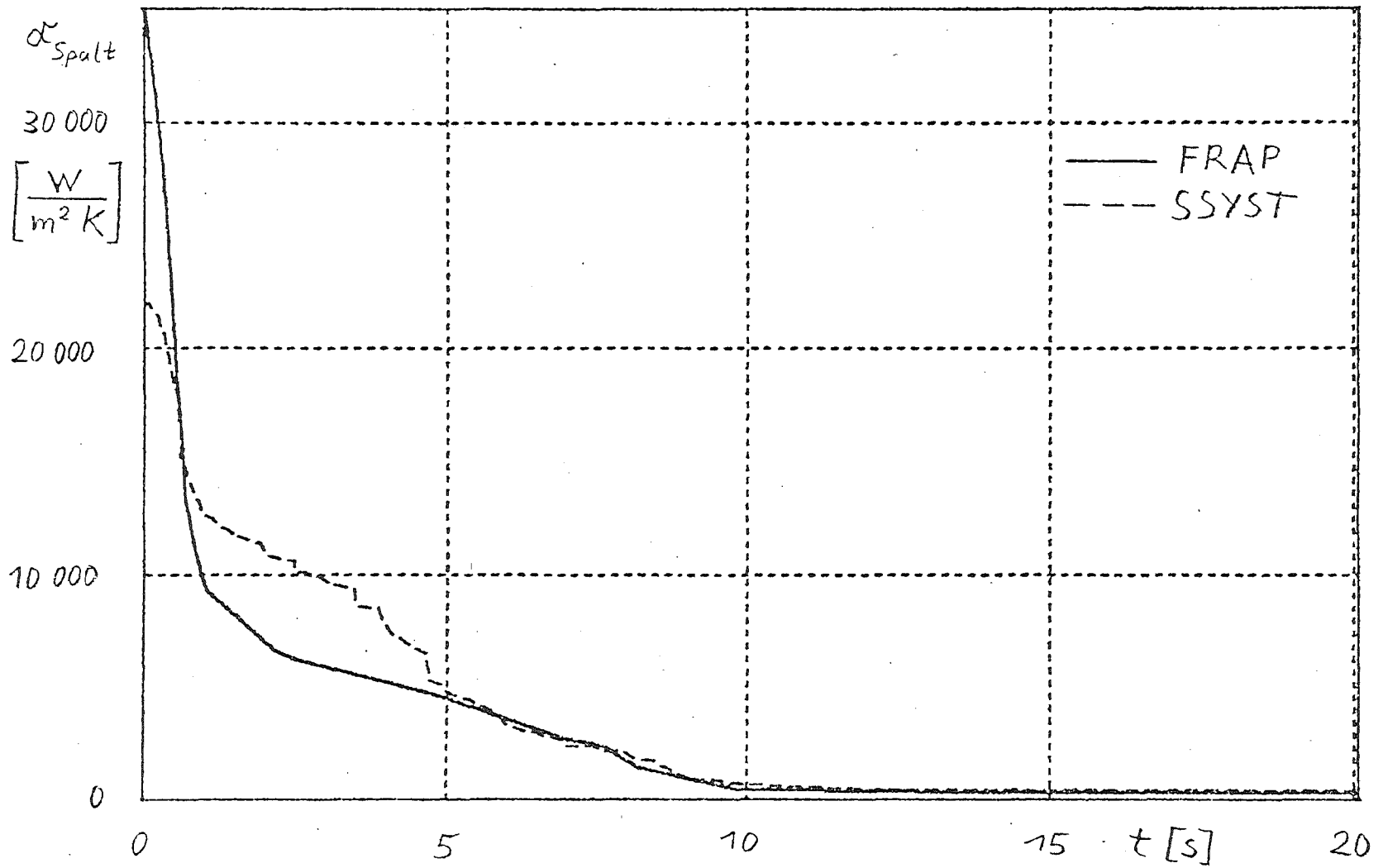


Abb. 4231-2: Wärmeübergangszahlen im Spalt an der heißesten Stelle

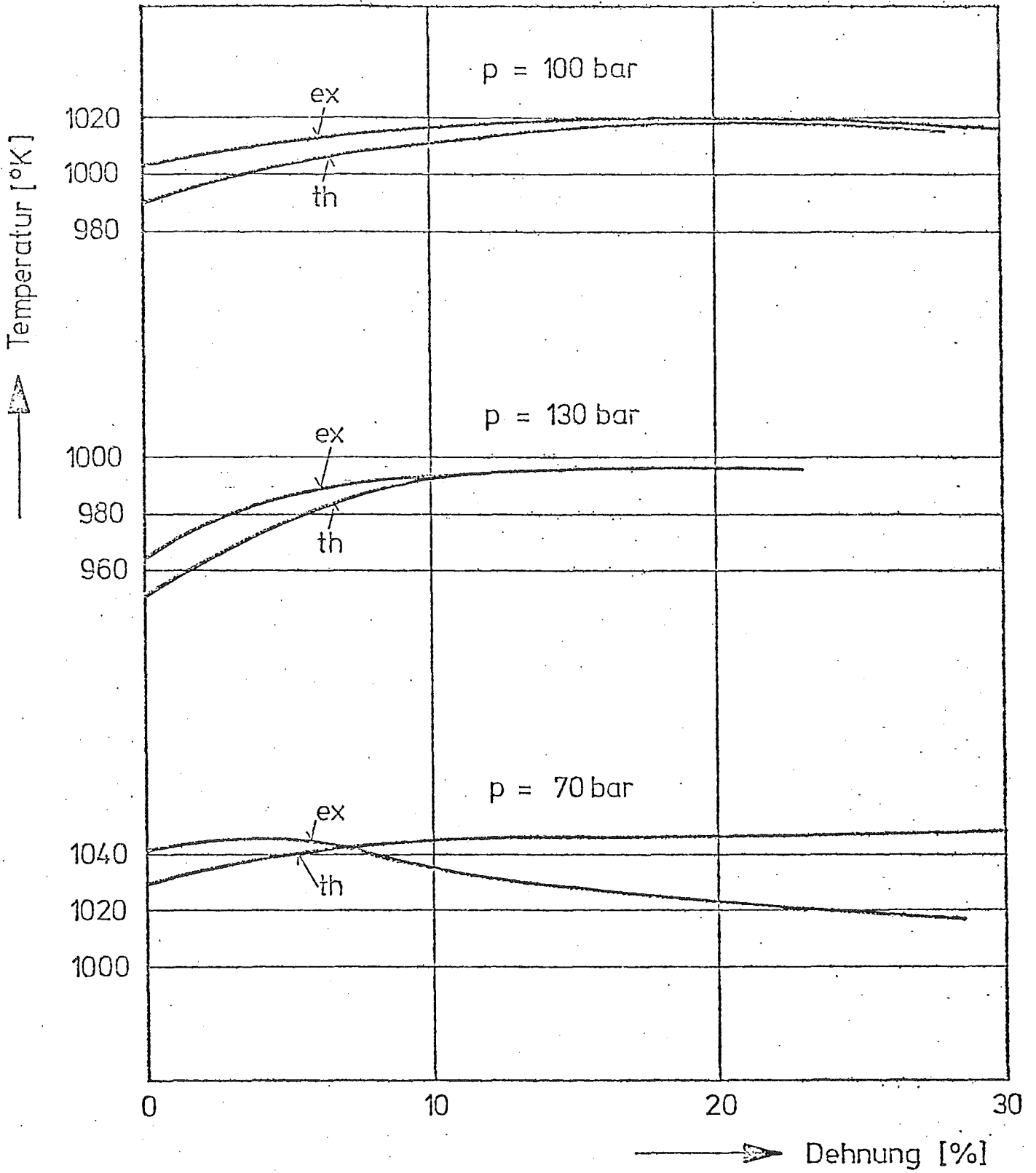


Abb. 4231-3: Dehnung als Funktion der Temperatur für die gegebenen Versuchsbedingungen des IRB (ex = experimenteller, th = theoretischer Befund)

4234 Messung der Nachzerfallswärme von ^{235}U im Zeitbereich 10 - 1000 sek

(K. Baumung, INR)

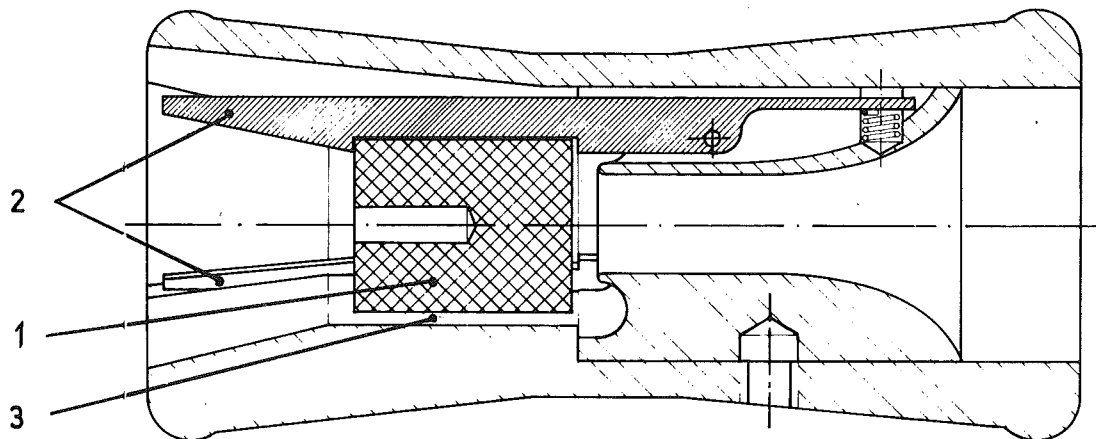
Mechanischer Versuchsaufbau

Da eine hohe Arbeitstemperatur des adiabatischen Kalorimeters unerwünscht ist, müssen die Brennstoffproben während der Bestrahlung in der thermischen Säule des FR 2 gekühlt werden. Da die Proben (von Pelletabmessungen) bei thermischen Leistungen bis zu 15 W nur Oberflächen von einigen Quadratzentimetern aufweisen, muß für eine wirksame Kühlung gesorgt werden.

Aus diesem Grund ist es geplant, das cladding elektrochemisch auf die Proben aufzubringen (Cu/Ni), wobei primär nicht eine absolute Dichtigkeit, sondern eine einige 10 μ dicke Schicht angestrebt wird, die Rückstoßkerne aus der Oberfläche auffangen soll. Da die oxidischen Proben eine geschlossene Porosität aufweisen werden, ist keine nennenswerte Freisetzung von Spaltprodukten aus dem Inneren der Probe durch Diffusion zu erwarten. Weil aber elektrolytisch abgeschiedene Schichten porös sind, wird die Meßanlage samt Rohrpost als geschlossene Einheit realisiert, die eine Freisetzung von Spaltprodukten verhindert.

Durch dieses "cladding" ist ein guter Wärmeübergang nach außen gewährleistet. Um eine ebenfalls gute Wärmeabfuhr durch das Kühlgas zu erreichen, wurde ein Rohrpostfahrzeug entwickelt, in dem die Brennstoffprobe in einem Ringspalt gehalten wird, der vom Kühlmittel durchströmt wird (vgl. Abb. 4234-1). Versuche mit künstlichen Rauigkeiten auf der Außenwand des Ringspalts zur Verbesserung des Wärmeübergangs (radiale und spiralförmige Rippen) haben gezeigt, daß die geringfügige Verbesserung gegenüber dem glatten Ringspalt den Aufwand bei der Fertigung nicht lohnt. In dieser einfachen Ausführung (mit 1.2 mm Spaltbreite) kann man bei Raumtemperatur und 1 at eine Leistung von 15 W bei Temperaturdifferenzen von etwa 10 - 15 K zwischen Probenoberfläche und Kühlmedium abführen.

Durch die an der Kühlung orientierte Auslegung der Fahrzeuge war es nicht möglich, den 1"-Fahrrohrdurchmesser der vorhandenen Rohrpost einzuhalten. Daher wurde eine neue Rohrpost mit 31 mm Innendurchmesser konstruiert. Das Fahrrohr ist als Teil eines geschlossenen Kühlkreislaufs ausgelegt, in dem die Probe aus der Be-/Entladestation (Abb. 4234-2/4) durch das Kühlgebläse (Abb. 4234-2/8) in die Bestrahlungsposition geblasen und während der Bestrahlung gekühlt wird. Die Halteklammern der aus Rein-aluminium gefertigten Fahrzeuge bestehen aus Titanblech und geben die Probe beim Auftreffen auf die Ausklinkvorrichtung (6) frei. Sie fällt durch das geöffnete Schiebeventil (8) in den Auffangtrichter (9) und wird von der gefederten Halteplatte (10) abgebremst. Durch einen Stift wird die Probe unten im Trichter festgehalten und durch Absenken und Schwenken (13) der Mechanik vom Temperaturfühler aufgenommen und in die Meßposition im adiabatischen Mantel (3) gebracht.



- 1 Brennstoffprobe
- 2 Halteklammern
- 3 Ringspalt für Kühlgas

Abb. 4234-1 Rohrpostfahrzeug

Sämtliche Funktionen der Transportapparatur von "Ende Bestrahlung" bis "Beginn Messung" werden automatisch gesteuert und lassen für den gesamten Transport Zeiten von 2 - 3 sek erwarten. Der in Abb. 4234-2 gezeigte Teil der Apparatur ist fertiggestellt, der Rohrposteinsatz für die thermische Säule wurde vom RBT/M konstruiert und befindet sich, wie die Steuerung, in der Fertigung.

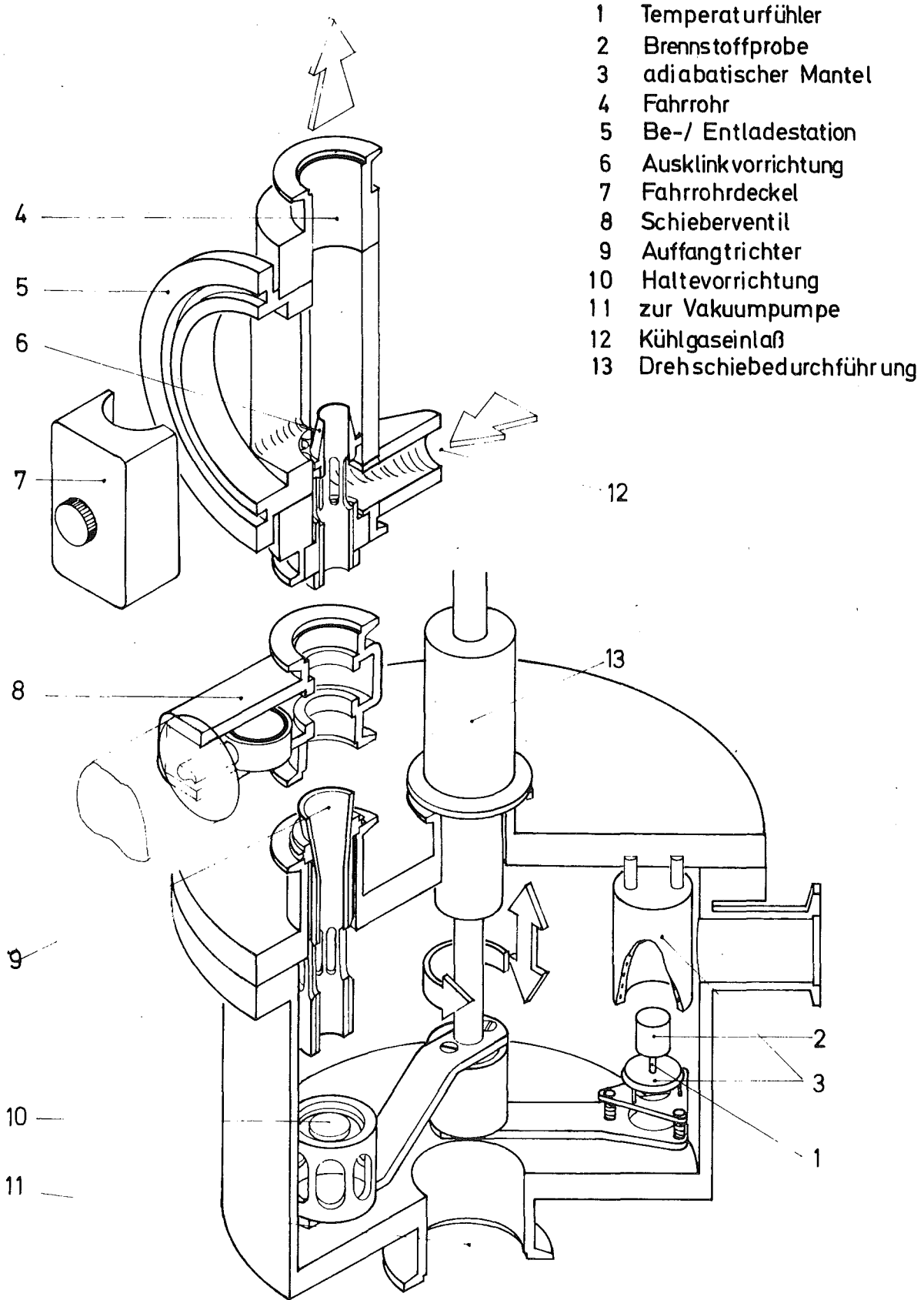


Abb. 4234-2 Kalorimeter mit Transportvorrichtung

γ -Energieflußmessung

Da bis zu 40 % der anfallenden Nachzerfallsleistung in Form von γ -Strahlung aus den Proben entweichen, muß für ein verallgemeinerungsfähiges Ergebnis dieser Anteil gesondert registriert werden.

Gewöhnliche γ -Detektoren weisen eine charakteristische Energieabhängigkeit sowohl der Empfindlichkeit als auch der Antwortfunktion auf. Will man mit diesen Detektoren die Leistung einer komplexen γ -Quelle bestimmen, so müssen die gemessenen Impulshöhenspektren unter großem rechnerischen Aufwand entfaltet werden. Um diese Schwierigkeiten zu umgehen, wurde für die γ -Energiestrommessungen ein MOXON-RAE-Detektor ausgewählt und gebaut. Die Nachweiswahrscheinlichkeit dieses Detektors steigt linear mit der Energie der nachgewiesenen γ -Quanten an. Somit ist die Zählrate, unabhängig von der spektralen Verteilung, direkt ein Maß für den Energiestrom in einem γ -Fluß.

Der Detektor besteht aus einem 30 mm dicken Konverter aus Graphit, in dem die γ -Strahlen COMPTON-Elektronen freisetzen, die dann in einem nur 0.5 mm dicken Plastiksziintillator nachgewiesen werden. Die Lichtausbeute aus dem dünnen Szintillator ist sehr gering, so daß ein Teil der Nachweise zu Impulshöhen führt, wie sie auch durch thermisch freigesetzte Photoelektronen im Photomultiplier entstehen können (Dunkelstrom des Photomultipliers). Dadurch erhält man eine Untergrundzählrate von etwa 1 kHz und ein schlechtes Signal-zu-Untergrund-Verhältnis. Durch die Verwendung zweier vorhandener schneller Photomultiplier in schneller Koinzidenz (20 ns Koinzidenzbreite) konnte die Untergrundzählrate um den Faktor 10^4 reduziert werden.

Eine Überprüfung des Energieverlaufs der Nachweiswahrscheinlichkeit im verfügbaren Energiebereich von 0.3 - 2 MeV zeigte innerhalb der Genauigkeit der γ -Eichpräparate die erwartete Linearität.

Geplanter weiterer Fortgang

Parallel zur Fertigstellung der Apparatur sollen die Brennstoffproben mit einem "cladding" versehen und ihre Wärmekapazitäten gemessen werden. Vor dem Aufbau am FR 2 sind Kaltversuche im INR vorgesehen.

- 4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten
- 4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial
(M. Boček, C. Petersen, D. Preininger, W. Schweiger und B. Seith, IMF/II)

1. Analyse des Stabilitätskriteriums für Rohrinndruckversuche

Ziel dieser theoretischen Untersuchung war, Zusammenhänge aufzusehen zwischen Materialeigenschaften und Verformungsverhalten auf der einen sowie Art der Versuchsführung auf der anderen Seite. In Analogie zum simplen Zugversuch [1] wird zur Beschreibung des Verformungsverhaltens von Rohren das Formänderungsverhalten als einziges Kriterium betrachtet.

Erfolgt in einem bestimmten Bereich A eines innendruckbeaufschlagten Rohres eine Wandstärkenverjüngung δW_A , so verläuft definitionsgemäß die Verformung stabil, solange die Verformungsgeschwindigkeit \dot{W}_A in diesem Bereich nicht größer ist als in dem benachbarten unverjüngten Bereich B. Dies kann analog zum Zugversuch ausgedrückt werden mittels der Beziehung

$$\frac{\dot{\delta W}_A}{\delta W_A} \leq 0 \quad (\text{stabil}) \quad (5)$$

Davon ausgehend hat Franklin [2] eine andere Beziehung für dünnwandige Rohre abgeleitet, die ermöglicht, das Stabilitätskriterium mithilfe gut meßbarer Größen zu formulieren, nämlich: die Verformung ist stabil, wenn gilt

$$\frac{\delta \dot{\epsilon}_{\theta} + \delta \dot{\epsilon}_Z}{\delta \epsilon_{\theta} + \delta \epsilon_Z} \leq \dot{\epsilon}_{\theta} + \dot{\epsilon}_Z \quad (\text{stabil}) \quad (1)$$

Im Fall, daß die axiale Dehnung ϵ_Z gegenüber der tangentialen ϵ_{θ} vernachlässigt werden kann, ist

$$\frac{\delta \dot{\epsilon}_{\theta}}{\delta \epsilon_{\theta}} \leq \dot{\epsilon}_{\theta} \quad (\text{stabil}) \quad (1a)$$

Im nächsten Schritt müssen die im Stabilitätskriterium auftretenden Größen mit gewissen Materialeigenschaften verknüpft werden.

Aus Abb. 4235-1 folgt für die Tangential-Kraft L_{θ}

$$L_{\theta} = \sigma_{\theta} W_Z \quad (2)$$

daraus

$$\frac{dL_{\theta}}{dt} \equiv \dot{L}_{\theta} = \dot{\sigma}_{\theta} W_Z + \sigma_{\theta} \dot{W}_Z + \sigma_{\theta} \dot{W}_Z \quad (3)$$

als "Stoffgesetz" dient die sehr allgemeine Annahme

$$\sigma_{\theta} = \sigma_{\theta} (\epsilon_{\theta}, \dot{\epsilon}_{\theta})$$

und daraus folgt

$$\frac{d\sigma_{\theta}}{dt} \equiv \dot{\sigma}_{\theta} = \left(\frac{\partial \sigma_{\theta}}{\partial \epsilon_{\theta}} \right) \dot{\epsilon}_{\theta} + \left(\frac{\partial \sigma_{\theta}}{\partial \dot{\epsilon}_{\theta}} \right) \epsilon_{\theta} \cdot \ddot{\epsilon}_{\theta} \quad (4)$$

wobei der Koeffizient $\alpha_{\theta} = \left(\frac{\partial \sigma_{\theta}}{\partial \dot{\epsilon}_{\theta}}\right)_{\dot{\epsilon}_{\theta}} \equiv \theta_{\theta}$ das Verfestigungsverhalten und $\beta_{\theta} = \left(\frac{\partial \sigma_{\theta}}{\partial \ddot{\epsilon}_{\theta}}\right)_{\dot{\epsilon}_{\theta}}$ das "viskose" Verhalten des Materials beschreiben sollen. Dividiert man die Gl (3) durch Gl (2), setzt Gl (4) ein, dann liefert die Kombination mit den folgenden Beziehungen

$$\dot{\epsilon}_{\theta} = \frac{\dot{r}}{r} \quad (5); \quad \ddot{\epsilon}_{\theta} = \frac{\ddot{r}}{r} - \left(\frac{\dot{r}}{r}\right)^2 \quad (6)$$

$$\dot{\epsilon}_w + \dot{\epsilon}_z + \dot{\epsilon}_{\theta} = 0 \quad (7)$$

$$\frac{\beta_{\theta}}{\sigma_{\theta}} \cdot \dot{\epsilon}_{\theta} = m_{\theta} \quad (8); \quad \frac{\alpha_{\theta}}{\sigma_{\theta}} = \frac{\theta_{\theta}}{\sigma_{\theta}} = Y_{\theta} \quad (9)$$

schließlich die Grundgleichung

$$\frac{\dot{L}_{\theta}}{L_{\theta}} = \frac{\dot{r}}{r} [1 - Y_{\theta} + m_{\theta}] + m_{\theta} \frac{\ddot{r}}{r} \quad (GG)$$

Drei Versuchsführungen werden hier betrachtet. Jeder ist eine eigene GG zugeordnet.

a) Fall: $\sigma_{\theta} = \text{konst.}$

Es folgt für $\dot{\sigma}_{\theta} = 0$ mittels Gl (3) Gl (5) und Gl (7)

$$\frac{\dot{L}_{\theta}}{L_{\theta}} = - \frac{\dot{r}}{r}$$

was eingesetzt in (GG) ergibt

$$- \left(\frac{Y_{\theta} - m_{\theta}}{m_{\theta}}\right) \sigma_{\theta} = \frac{d \ln \dot{r}}{d \ln r} \quad (10)$$

Bei Vernachlässigung der Axialdehnung und unter der Annahme einer entlang der Rohrachse gleichmäßigen Tangentialdehnung folgt für $p(r)$ (p Rohrimmendruck, r Innenradius)

$$[p]_{\sigma_{\theta}} \sim \frac{1}{r^2}$$

b) Fall $L_{\theta} = \text{konst.}$

Für $\dot{L}_{\theta} = 0$ folgt aus (GG 9)

$$\left(\frac{1 - Y_{\theta} + m_{\theta}}{m_{\theta}}\right)_{L_{\theta}} = \frac{d \ln \dot{r}}{d \ln r} \quad (11)$$

Ferner folgt aus

$$L_{\theta} = \text{p.r.z.} \quad (12)$$

und

$$\dot{L}_{\theta} = 0$$

zusammen mit

$$\dot{Z} = 0$$

$$[p]_{L_{\theta}} \sim \frac{1}{r}$$

c) Fall $p = \text{konst.}$

Es folgt aus Gl (12) für $\dot{p} = 0$ und $\dot{Z} = 0$

$$\frac{\dot{L}_{\theta}}{L_{\theta}} = \frac{\dot{r}}{r}$$

was eingesetzt in die (GG) liefert

$$\left(\frac{2 - Y_{\theta} + m_{\theta}}{m_{\theta}}\right)_p = \frac{d \ln \dot{r}}{d \ln r} \quad (13)$$

Das Stabilitätskriterium Gl (1a) kann nun mit den Gl (10), Gl (11) und Gl (13) in Verbindung gebracht werden. Die Umformung von Gl (1a) für die Variablen \dot{r} und r ergibt

$$\frac{d \ln \dot{r}}{d \ln r} = \frac{d \ln \dot{\epsilon}_{\theta}}{d \epsilon_{\theta}} + 1 \leq 2 \quad (14)$$

a) Fall $\sigma_{\theta} = \text{konst.}$ Gl (10) und Gl (14) liefern

$$\left[\frac{d \ln \dot{\epsilon}_{\theta}}{d \epsilon_{\theta}} \right]_{\sigma_{\theta}} = - \frac{Y_{\theta}}{m_{\theta}} \leq 1 \quad (15)$$

Für $Y_{\theta} < 0$ verläuft die Verformung unabhängig vom m_{θ} -Wert (für den gilt $0 < m_{\theta} \leq 1$) instabil.

b) Fall $L_{\theta} = \text{konst.}$ Gl (11) und Gl (14) liefern

$$\left[\frac{d \ln \dot{\epsilon}_{\theta}}{d \epsilon_{\theta}} \right]_{L_{\theta}} = \frac{1 - Y_{\theta}}{m_{\theta}} \leq 1 \quad (16)$$

Verformung verläuft instabil für $Y_{\theta} < 1 - m_{\theta}$

c) Fall $p = \text{konst.}$ Gl (13) und Gl (14) liefern

$$\left[\frac{d \ln \dot{\epsilon}_{\theta}}{d \epsilon_{\theta}} \right]_p = \frac{2 - Y_{\theta}}{m_{\theta}} \leq 1 \quad (17)$$

Verformung verläuft instabil für $m_{\theta} < 2 - Y_{\theta}$

Reihenfolge der Rohrrinnendruckversuche bezüglich der Stabilität

Versuchsführung

$$\sigma_{\theta} = \text{konst.} \quad (p \sim \frac{1}{r^2})$$

$$L_{\theta} = \text{konst.} \quad (p \sim \frac{1}{r})$$

$$p = \text{konst.} \quad (p \neq p(r))$$

Verformung wird instabil für

$$Y_{\theta} < 0$$

$$Y_{\theta} < 1 - m_{\theta}$$

$$Y_{\theta} < 2 - m_{\theta}$$

In Pfeilrichtung nimmt die Stabilität für gleichen m_{θ} -Wert zu, d. h. zur Wahrung der Stabilität müßte unter vergleichbaren Bedingungen das Verfestigungsvermögen im Fall $p = \text{konst.}$ größer sein als in den anderen Versuchsführungen. In Wirklichkeit ist das Verfestigungsvermögen eine von den obigen Versuchsbedingungen unabhängige Materialeigenschaft. Eine erhöhte, d. h. zeitlich früher einsetzende Instabilität im Rohrinnendruckversuch ist darum für den Fall $p = \text{konst.}$ zu erwarten. Die Instabilität, charakterisiert durch die lokal sich ausbreitende Verformung, ist unter normalen Bedingungen die Ursache für die Entstehung und das Wachstum von "balloons".

Bekanntlich erfolgt die Verformung im sogenannten superplastischen Fließbereich ohne makroskopische Einschnürung und, wie noch weiter gezeigt wird, Einschnürungskeime, die sich unter diesen Verhältnissen bilden, bleiben stabil, d. h. sie erfüllen die Bedingung (S). Das "ballooning" von Zry-Hüllrohren im Temperaturbereich oberhalb 800°C könnte im wesentlichen "stabiler" Natur sein.

Für praktische Belange dürfte die Frage des Entstehungsmodus von balloons zunächst unerheblich sein. Dies gilt sicherlich nicht mehr, wenn mit dem Begriff Instabilität auch andere nicht nur geometrische Aspekte verbunden werden. Man denke dabei die aus dem einfachen Zugversuch wohlbekannte Tatsache, daß die instabile Verformung (d. h. die nach Bildung der instabilen Einschnürung ablaufende) unter stetig abfallender Last erfolgt. Überträgt man diesen Aspekt auf Rohrinnendruckversuche, gewinnt der Verformungsmodus durchaus eine praktisch sehr bedeutsame Komponente. Darum bedarf das Problem Rohrverformung im Hinblick auf das Verhalten der treibenden Kraft besonderer Aufmerksamkeit.

2. Gefügeuntersuchungen an superplastisch verformten Zry-4 Flachzugproben

Das Ziel dieses Vorhabens war es, den im Bereich des superplastischen Fließens haupttragenden Verformungsmechanismus zu eruieren. Drei Un-

tersuchungsverfahren wurden angewendet.

- i) Metallographische Korngefügeuntersuchungen
- ii) Texturuntersuchungen
- iii) Raster-Elektronenmikroskopie (REM)

Aus der Theorie des Zugversuchs [1] folgt, daß für $m \geq 0.3$ (sog. Geschwindigkeitsexponent) die Stabilität gegenüber makroskopischer Einschnürung mit wachsendem m -Wert zunimmt. Untersuchungen an Zry-4 lassen Zweifel darüber aufkommen, daß allein anhand des m -Wertes die Probenformänderung voraussagbar ist.

In Abb. 4235.2 ist der zu diesem Zweifel führende Sachverhalt dargestellt. Demzufolge ist auch für $m \leq 0.3$ die Verformung in einem breiten Temperatur- und Verformungsgeschwindigkeitsbereich stabil (Verformung verläuft bis zum Bruch ohne makroskopische Einschnürung).

Wie im weiteren erläutert wird, bestimmt das Einschnürverhalten weniger der m -Wert. Offenbar ausschlaggebend dafür sind bestimmte Verformungsverhältnisse des Korngefüges.

Dieselbe Erkenntnis wie Abb. 4235.2 vermitteln metallografische Oberflächenuntersuchungen (Abb. 4235.3). Zu beachten sind insbesondere die Abb. 4235.3b und 3c. Diese Proben zeigen trotz unterschiedlicher m -Werte makroskopisch einschnürungsfreies Verhalten. Ähnliche Erscheinungsformen können auch an verformten Hüllrohren beobachtet werden.

2.1 Metallographische Korngefügeuntersuchungen

Zry-4 Flachzugproben (mit unterschiedlicher Orientierung der Zugrichtung zur Walzrichtung ausgedrückt durch den Winkel γ) wurden bei 900°C und 880°C und einer auf die Ausgangsprobenlänge bezogenen Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_0 = 3.3 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$ in Luftatmosphäre verformt. Wie aus früheren Untersuchungen bekannt [3], ergeben diese Bedingungen Geschwindigkeits-exponenten die für $\gamma = 0^{\circ}$ "superplastische" (SPL) Werte (d.h. $m \geq 0.3$)

und für $\gamma = 45^\circ$ "normalplastische" (NPL) Werte (d. h. $m < 0.3$) annehmen. Eine Versuchsserie bestand aus identischen Proben, die um verschiedene Beträge bei konstanter Temperatur und $\dot{\epsilon}_0$ gedehnt wurden. Die metallographischen und Textur-Untersuchungen wurden an Teilen desselben Prüflings vorgenommen, wobei die gewonnenen Ergebnisse am Kopf und an der aktiven Probenlänge verglichen werden konnten.

2.1.1 Korngrenzgleiten (KGG)

Die Rolle des KGG im Bereich des SPL-Fließens ist in letzter Zeit wiederholt direkt nachgewiesen worden [4] [5] [6]. Zwei grundsätzlich verschiedene KGG Mechanismen sind zu betrachten (Abb. 4235.4).

Erfahren die Körner eine Dehnung vergleichbar der der Gesamtprobe (Abb. 4235.4a), so werden die Körner in der Beanspruchungsrichtung verlängert, wobei die Körner ihre Nachbarn beibehalten. (Erfolgt diese Gestaltänderung unter Mitwirkung von Massentransport, wird dieser Vorgang als sogenannte LIFSHITZ-Gleitung [7] bezeichnet.)

Der andere Mechanismus (Abb. 4235.4b) ermöglicht eine Probenverlängerung ohne die Gestaltänderung der Körner; dabei vertauschen diese ihre Nachbarn (sogn. RACHINGER Gleitung [8]). Ein Kornzählverfahren [8] ist angewandt worden zu entscheiden, welcher dieser KGG Mechanismen im SPL Bereich wirksam ist. Die Zählung erfolgte parallel und senkrecht zur Beanspruchungsrichtung. Aus den longitudinalen und transversalen Zählungen der α -Körner sind die Zahlen n''_α und n^\perp_α (Zahl der Körner pro Längeneinheit) ermittelt worden. Gleiches geschah an den unverformten Probenköpfen, die entsprechenden Größen sind mit $n''_{o,\alpha}$ bzw. $n^\perp_{o,\alpha}$ bezeichnet. Mittels dieser Zahlen wurde die Korndehnung

$$\epsilon_{\alpha,g} = \left(\frac{n''_{o,\alpha}}{n''_\alpha} \cdot \frac{n^\perp_\alpha}{n^\perp_{o,\alpha}} \right)^{2/3} - 1$$

berechnet [9]. Für die hier beschriebenen Versuche war stets $\epsilon_{\alpha,g} = 0$.

Um die relative Translationsbewegung der Körner zu erfassen, wurde in Abb. 4235.5 das Verhältnis

$$\frac{n''_{0,\alpha} \cdot n^{\perp}_{0,\alpha}}{n''_{\alpha} \cdot n^{\perp}_{\alpha}}$$

gegenüber $\sqrt{1 + \epsilon_t}$ aufgetragen. Eine lineare Abhängigkeit zwischen diesen Größen sollte auf Grund des Rachinger Modells bestehen (s. dazu [10]). Daß dem so ist, zeigt Abb. 4235.5.

Eine andere Auftragung (Abb. 4235.6), nämlich des (auf den unverformten Zustand reduzierten) "linearen Korndichte"-Verhältnisses

$$\frac{n^{\perp}_{0,\alpha} \cdot n''_{\alpha}}{n''_{0,\alpha} \cdot n^{\perp}_{\alpha}}$$

gegenüber der Gesamtdehnung ϵ_t macht zweierlei deutlich:

- . Rachinger's Kornvertauschmechanismus (KVM) spielt bei kleineren Dehnungen $\epsilon < 0.5$ eine tragende Rolle
- . der KVM ist für Dehnungen $\epsilon_t > 0.5$ offenbar weniger bedeutsam.

Ein prinzipiell ähnliches Verformungsverhalten zeigt das Verhältnis

$$\frac{n''_{\alpha+\beta}}{n^{\perp}_{\alpha+\beta}}$$

in dem α - und β -Körner eingeschlossen sind (Abb. 4235.7).

Wie der Abb. 4235.8 zu entnehmen ist, wächst die "Dichte" der β -Körner n''_{β} mit zunehmender Verformung und strebt für $\epsilon_t > 1.0$ einem "Sättigungswert" zu.

Für die Dehnung in longitudinaler Richtung gilt

$$\epsilon''_{\alpha} = \frac{n''_{\alpha} \cdot L''_{\alpha} - n''_{0,\alpha} \cdot L''_{\alpha}}{n''_{0,\alpha} \cdot L''_{\alpha}}$$

wobei L'' , L''_{α} die Kornabmessung in der entsprechenden Richtung bedeutet.

Aus Abb. 4235.9 ist ersichtlich, daß zwischen

$$\ln \frac{d\varepsilon''_{\alpha}}{d\varepsilon_t} \quad \text{und } \varepsilon_t \quad \text{im Bereich von } \varepsilon_t = 0 \text{ bis } \varepsilon_t \sim 0.7 \text{ ein}$$

linearer Zusammenhang besteht. Daraus folgt, daß der Anteil von ε''_{α} an der Gesamtdehnung mit zunehmendem ε_t exponentiell abnimmt. Dies ist, wie in [10] gezeigt, auf Grund des KVM zu erwarten. Für ε''_{α} gilt dann

$$\varepsilon''_{\alpha} = \varepsilon(R) (1 - e^{-c\varepsilon_t}) \quad (18)$$

wobei $\varepsilon(R)$ eine Modellkonstante ist (s. Abb. 4235.4b). Der zweite Term beschreibt das "Abklingen" des KVM im Laufe der Dehnung. Aus Abb. 4235.9 folgt $c = 2.46$ ("Zerfallkonstante") und $\varepsilon(R) = 0.32$. Die Tatsache, daß die Gerade für $\varepsilon_t = 0$ nicht den Punkt

$$\ln \frac{d\varepsilon''_{\alpha}}{d\varepsilon_t} = 0 \text{ berührt, weist darauf hin, daß auch bei}$$

kleinen Dehnungen neben dem KVM noch andere, durch die metallographische Untersuchung nicht identifizierte Gleitmechanismen wirksam sind. Einen weiteren Hinweis darauf liefern Texturuntersuchungen (s. weiter).

Die Abb. 4235.10 zeigt REM Aufnahmen der äußeren Oberfläche eines durch Innendruckbeaufschlagung verformten Zry-4 Hüllrohres. Um Aufschluß zu bekommen über das Verhalten einzelner Körner beim Aufblähen (Aufheizgeschwindigkeit 3°C/s , maximale Tangentialspannung 12 MN/m^2 bei 855°C ; die Probe ist bei 900°C bei abnehmendem Innendruck geborsten, Innen- und Außenatmosphäre: Argon) sind an der Probe Kratzer als Markierungen angebracht worden. Die Bilder beziehen sich auf Bereiche des selben balloons mit unterschiedlicher Tangentialdehnung ε_{θ} . Der Sachverhalt ist ziemlich komplex, bestätigt jedoch die prinzipiellen Erwartungen des KVM.

2.1.2 Texturuntersuchungen

Die aus der aktiven Probenlänge entnommenen 6 - 8 mm langen Metallstreifen wurden auf etwa 0.40 mm Dicke verdünnt. Die Texturuntersuchungen an diesen Prüflingen wurde bei Raumtemperatur vorgenommen (Reflexionsverfahren, Zählrohrgoniometer, $\text{CuK}\alpha$ -Strahlung).

Abb. 4235.11 zeigt die (0002)-Polfiguren. Die Zahlenangaben bezeichnen das Intensitätsverhältnis zwischen Probe und Zr-Standard mit regelmäßiger Kornverteilung. Ein Vergleich der Polfiguren (Abb. 4235.11a und 11b) läßt deutlich erkennen, daß eine Glühbehandlung $900^\circ\text{C}/40\text{ mm}/\text{Vakuum}$ sowohl die Polverteilung als auch das Intensitätsverhältnis verändert. Wesentlich für die weitere Betrachtung sind hier allein die Differenzen zwischen den Polfiguren der wärmebehandelten aber unverformten Proben (Abb. 4235.11b) und den bei 900°C gedehnten Proben (Abb. 4235.11c).

Die Abb. 4235.12 zeigt den Verlauf des maximalen Intensitätsverhältnisses in der Ebene ND-TD.

Die Ergebnisse aus beiden Bildern zusammengefaßt:

- . Bereits für sehr kleine Dehnungen ($\epsilon_0 < 0.05$) wird der Verkipfungswinkel $\delta = 0$. Dies könnte auf von Gleitprozessen gesteuerte Kornmatrix-Verformung hindeuten (s. Ausführung zur Abb. 4235.9).
- . Das Intensitätsverhältnis nimmt mit der Verformung ab. Ein Zeugnis für unkorrelierte Kornbewegung, die auf eine Texturzerstörung hinausläuft.

Beide Beobachtungen sind unabhängig von der Probenorientierung. Letztere bestätigt die Ergebnisse der metallographischen und REM-Gefügeuntersuchungen, wonach im SPL-Bereich Kornrotation und Kornvertauschung die wesentlichen Verformungsmerkmale sind.

2.1.3 Zusammenfassung

Die wesentlichen Erkenntnisse aus diesem Berichtsabschnitt und die daraus resultierenden Folgerungen werden im Nachfolgenden zusammengefaßt:

- . Im allgemeinen können anhand des m -Wertes allein keine Aussagen angestellt werden über das makroskopische Einschnürverhalten. Dies wird offensichtlich primär vom Verformungsmodus selbst bestimmt. (s. weiter)
- . Im Bereich des SPL Fließens spielt der KVM eine wesentliche Rolle. Die experimentellen Ergebnisse, die durch die Gl (18) beschrieben wurden, zeigen, daß die einzelnen Korn-Gruppen-Umwandlungen von einander unabhängig erfolgen. Dies hat grundlegende Konsequenzen für das Einschnürungsverhalten.

Im Unterschied zur gleichförmigen Kornverformung (z.B. LIFSHITZ-Gleitung) kann im Fall des KVM das lokale Verformungsereignis räumlich begrenzt bleiben. So können Mikro-Einschnürungen simultan in verschiedenen Bereichen der Probe auftreten, ohne dadurch zwangsweise eine Makro-Einschnürung zu induzieren. Die Ergebnisse zeigen, daß der KVM, soweit offenbar andere Voraussetzungen erfüllt sind (Temperatur, Spannung), nicht unbedingt mit SPL- m -Werten verknüpft zu sein braucht. Es ist die Aufgabe weiterer Untersuchungen, die Randbedingungen für den KVM zu eruieren. Einen Ausgangspunkt dazu könnte z.B. Abb. 4235.2 liefern.

- . Im gegebenen Fall ist der KVM nach einer Verformung von etwa 0.5 zu 75 % erschöpft. Die Frage erhebt sich nach den anderen, den KVM begleitenden und bei größeren Verformungen tragenden Verformungsmechanismen. Die Rolle der β -Phase sollte in diesem Zusammenhang näher untersucht werden.
- . Wie REM-Untersuchungen zeigten, ist der Verformungsmodus im SPL-Bereich in Zry-4 Hüllrohren derselbe wie der an Zugproben beobachtete.

3. Das Kriechverhalten

In den neu in Betrieb genommenen umgebauten Vakuum-Kriechanlagen sind erste Verformungsversuche vorgenommen worden. Diese Untersuchung sollte zunächst die Verwendbarkeit der Anlagen für die vorliegenden Aufgaben prüfen und im ersten Schritt Auskunft geben über:

- . die Form der Kriechkurve im SPL Bereich
- . die Spannungsabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten m besonders im Bereich kleiner Spannungen.

In Abb. 4235.13 sind Kriechkurven für einige Temperaturen und (konstante) Ausgangsspannungen σ_0 wiedergegeben. Die Verformung erfolgte im Vakuum, Druck $\sim 10^{-5}$ torr. Insbesondere bei Versuchen mit kleinen Lasten kann aber die Sauerstoffaufnahme trotzdem recht beachtlich sein, wie aus den verhältnismäßig kleinen Gesamtdehnungen zu schließen ist.

$$m = \left[\left(\frac{\partial \log \dot{\epsilon}}{\partial \sigma} \right)_T - 1 \right]^{-1}$$

Neben diesem Verfahren wurden m -Werte auch mithilfe von Lastwechselversuchen bestimmt, für diese gilt

$$m_{LW} = \left(\frac{\Delta \log \sigma_0}{\Delta \log \dot{\epsilon}_0} \right)_T$$

Die Meßwerte der in Abb. 4235.13 abgebildeten Kriechkurven zeigen z. T. beachtliche Abweichungen vom gezeichneten Kurvenverlauf. Wie weit dies bedingt ist durch die Versuchsführung selbst (z.B. Sauerstoffaufnahme) soll durch weitere Experimente mit verbesserter Versuchsanordnung geprüft werden.

In diesem Verformungsbereich zeigen die Kriechkurven in der Regel zwei Bereiche. Der erste, sogenannte Übergangsbereich scheint in stärkerem Maße von den Versuchsparametern (Temperatur, Last) abzuhängen

als der zweite, lineare Teil. Es ist die Aufgabe weiterer Versuche, diesen Umstand näher zu eruieren.

In Abb. 4235-14 ist $m(\sigma)$ für drei Versuchstemperaturen wiedergegeben, dabei scheint von Bedeutung, daß mit $\sigma \rightarrow 0$ der Geschwindigkeitsexponent $m \rightarrow 1$ geht. Zu ähnlichen Ergebnissen wie in Fig. 14 dargestellt gelangten CHUNG et al. /11/.

Weitere Kriechversuche unter reduziertem Sauerstoff-Partialdruck (Getterung) sind im Gange. Sie sollen zunächst diese vorläufigen Ergebnisse überprüfen.

- [1] HART, E.W., Acta Met. 15, 351 (1967).
- [2] FRANKLIN, D., Acta Met. 20, 839 (1972).
- [3] BOČEK, M., FAISST, G. und PETERSEN, C.
J. Nucl. Mat. Im Druck.
- [4] NICHOLS, R.B. in: Electron Microscopy and Structure of Materials, eds.,
G. THOMAS, R.M. FULRATH and R.M. FISHER
Univ. of California Press, Berkeley, 1972, p. 689.
- [5] GECKINLI, A.E. and BARRETT, C.R.,
J. Mat. Sci 11, 510 (1976)
- [6] EDINGTON, J.W., MELTON, K.N. and C.P. CUTLER,
Progr. Mat. Sci. 21, 63 (1976).
- [7] LIFSHITZ, L.M., Soviet Phys. JETP 17, 909 (1963).
- [8] RACHINGER, W.A., J. Inst. Met. 81, 33 (1952/53).
- [9] HEUSLER, J.H. and GIFKINS, R.C.,
J. Inst. Met. 92, 340 (1963/64).
- [10] BOČEK, M., HOFMANN, P. and PETERSEN, C.
3rd International Conference on Zircaloy in Nuclear
Industry, Quebec, Canada,
10-12 August 1976, ASTM Special Publication. Im Druck.
- [11] CHUNG, H.M., GARDE, A.M., LIN, E.I.H. and T.F. KASSNER;
Mechanical Properties of Zircaloy Containing Oxygen.
ANL Quarterly Progress Rep. October-December 1975.

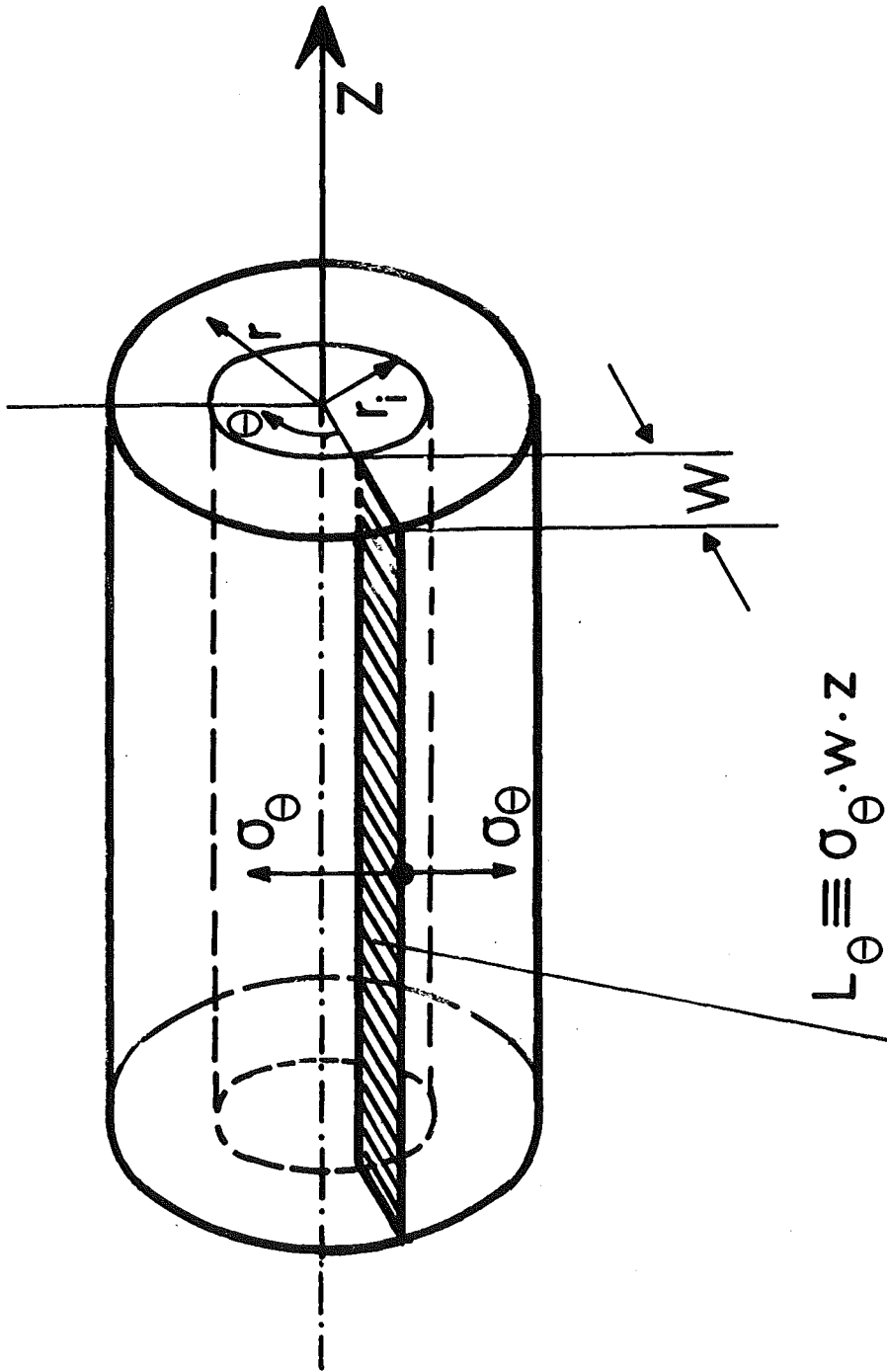


Abb. 4235.1 (siehe Text)

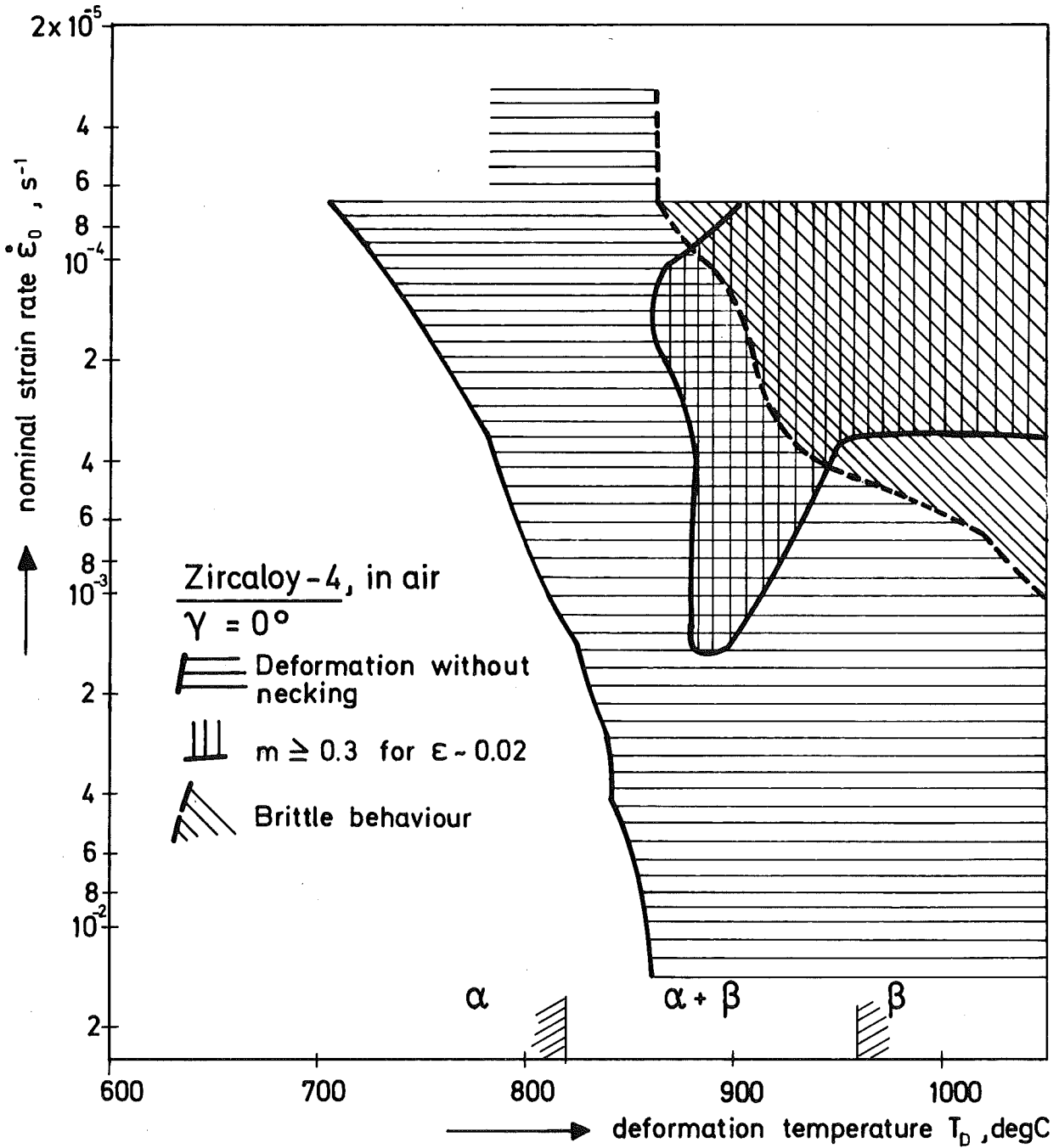
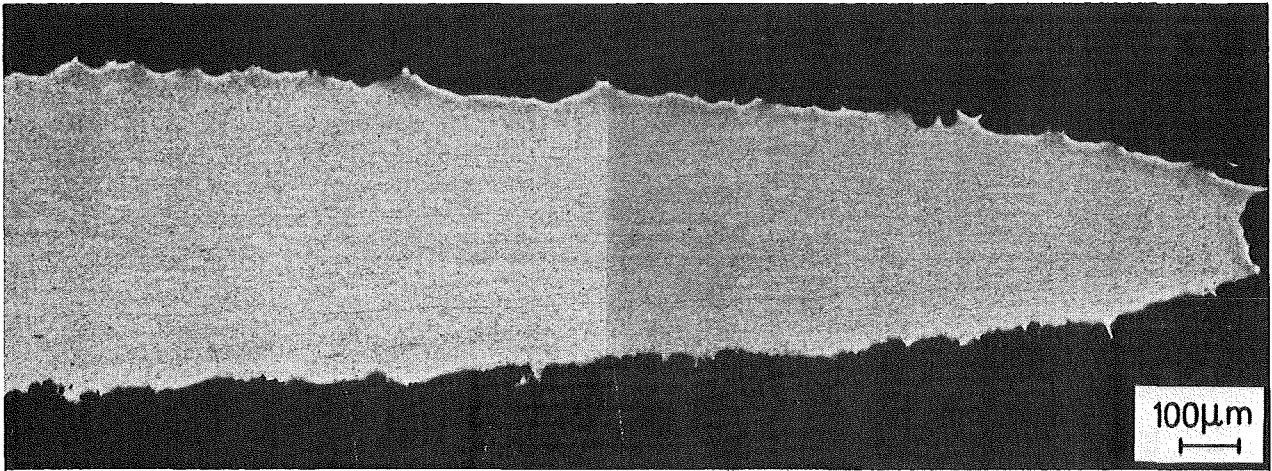
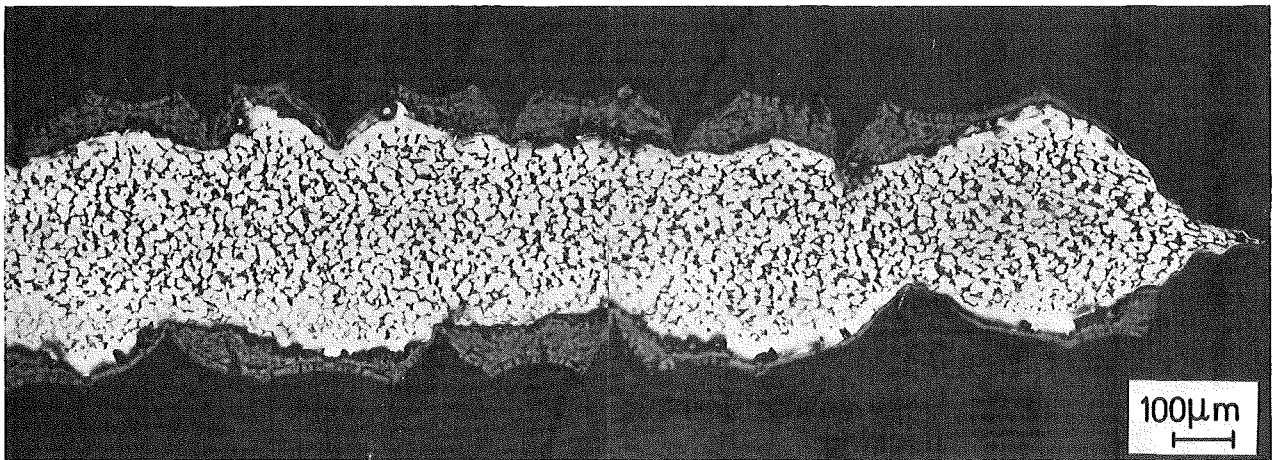


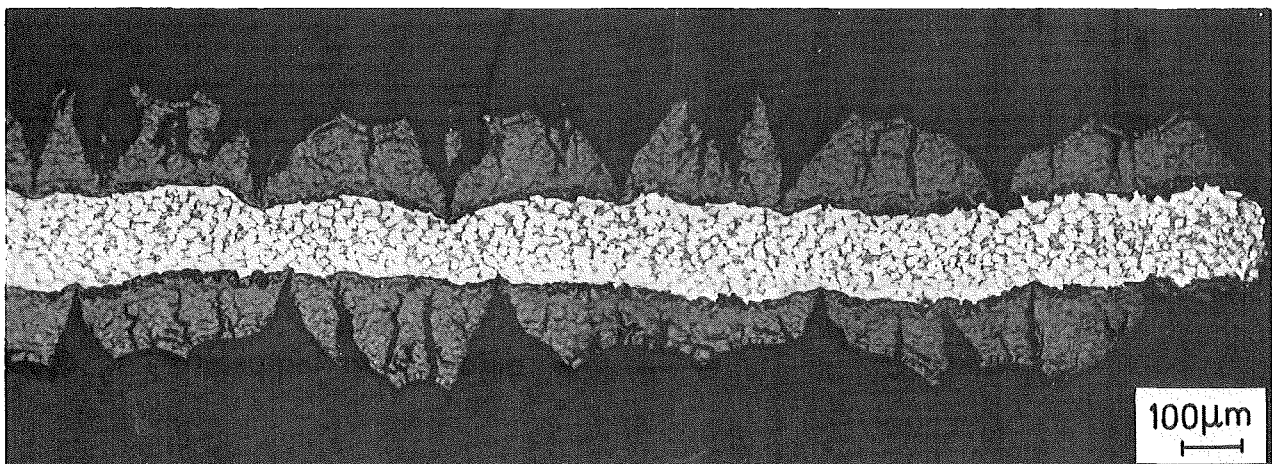
Abb. 4235.2 Zum Einschnürungsverhalten von Zircaloy-4 Flachzugproben



$T_D = 650C$, $m = 0.10$



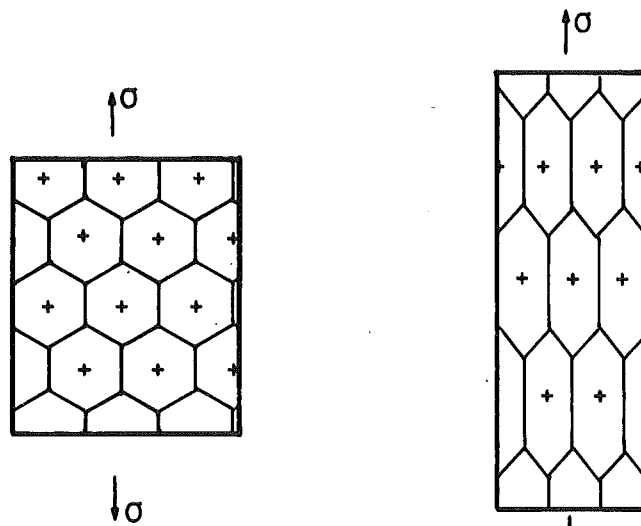
$T_D = 860C$, $m = 0.23$



$T_D = 900C$, $m = 0.85$

Abb. 4235.3 Schliffbilder von Zry-4 Flachzugproben, die bei unterschiedlichen Temperaturen bis zum Bruch verformt wurden

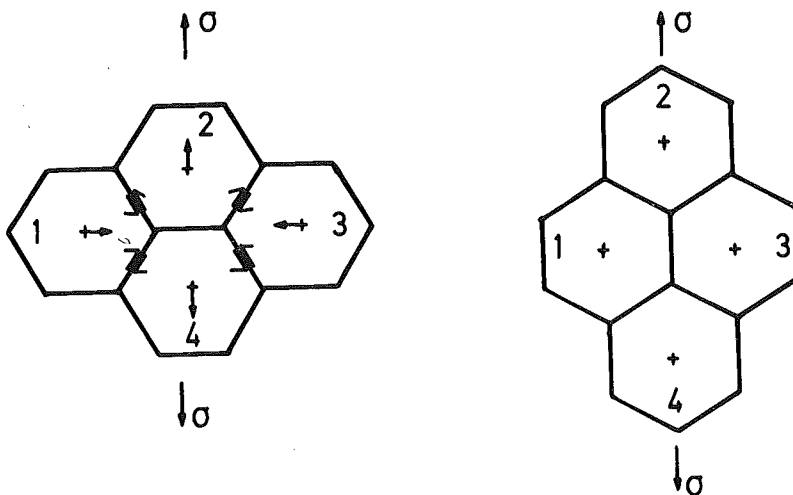
uniform deformation



$$\text{grain strain } \epsilon_g = \left[\frac{L^{\parallel}}{L_0^{\parallel}} \cdot \frac{L_0^{\perp}}{L^{\perp}} \right]^{\frac{2}{3}} - 1$$

L^{\parallel}, L^{\perp} are the corresponding mean grain diameters

Rachinger's grain switching mechanism



strain (per switching event) $\epsilon(R) = 0.55$

strain in the longitudinal direction

$$\frac{n_{\alpha}^{\parallel} L^{\parallel}}{n_{0,\alpha}^{\parallel} L_0^{\parallel}} - 1 = \epsilon_{\alpha}^{\parallel} = \epsilon(R) \left[1 - \frac{N}{N_0} \right]$$

L^{\parallel} grain dimension in the longitudinal direction

N number of unswitched grain configurations

Abb. 4235.4 Verformungsmodelle.

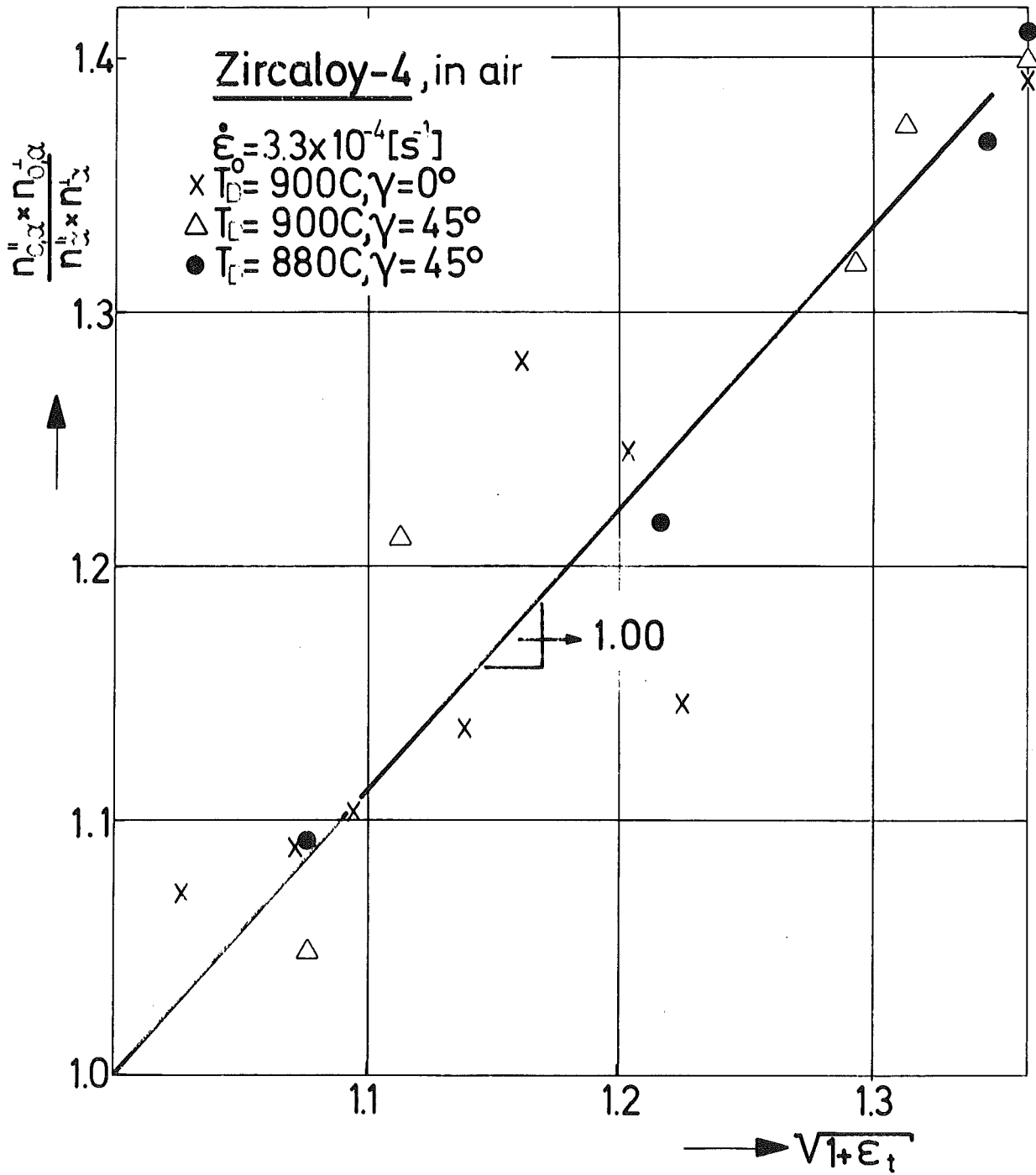


Abb. 4235.5 Beitrag der Dehnung durch Kornumordnung zur Gesamtdehnung

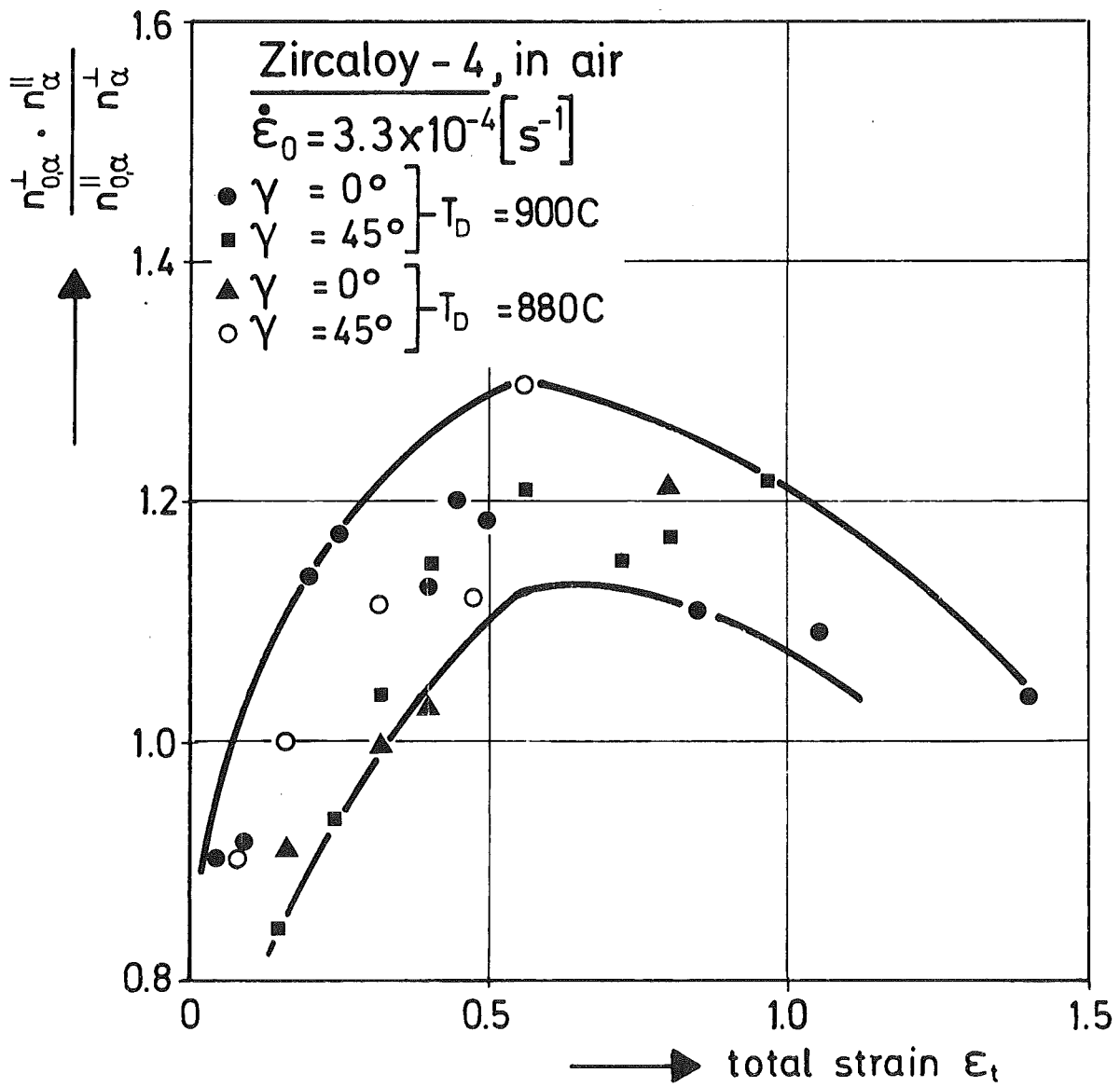


Abb. 4235.6 Zum Kornvertauschungsmechanismus

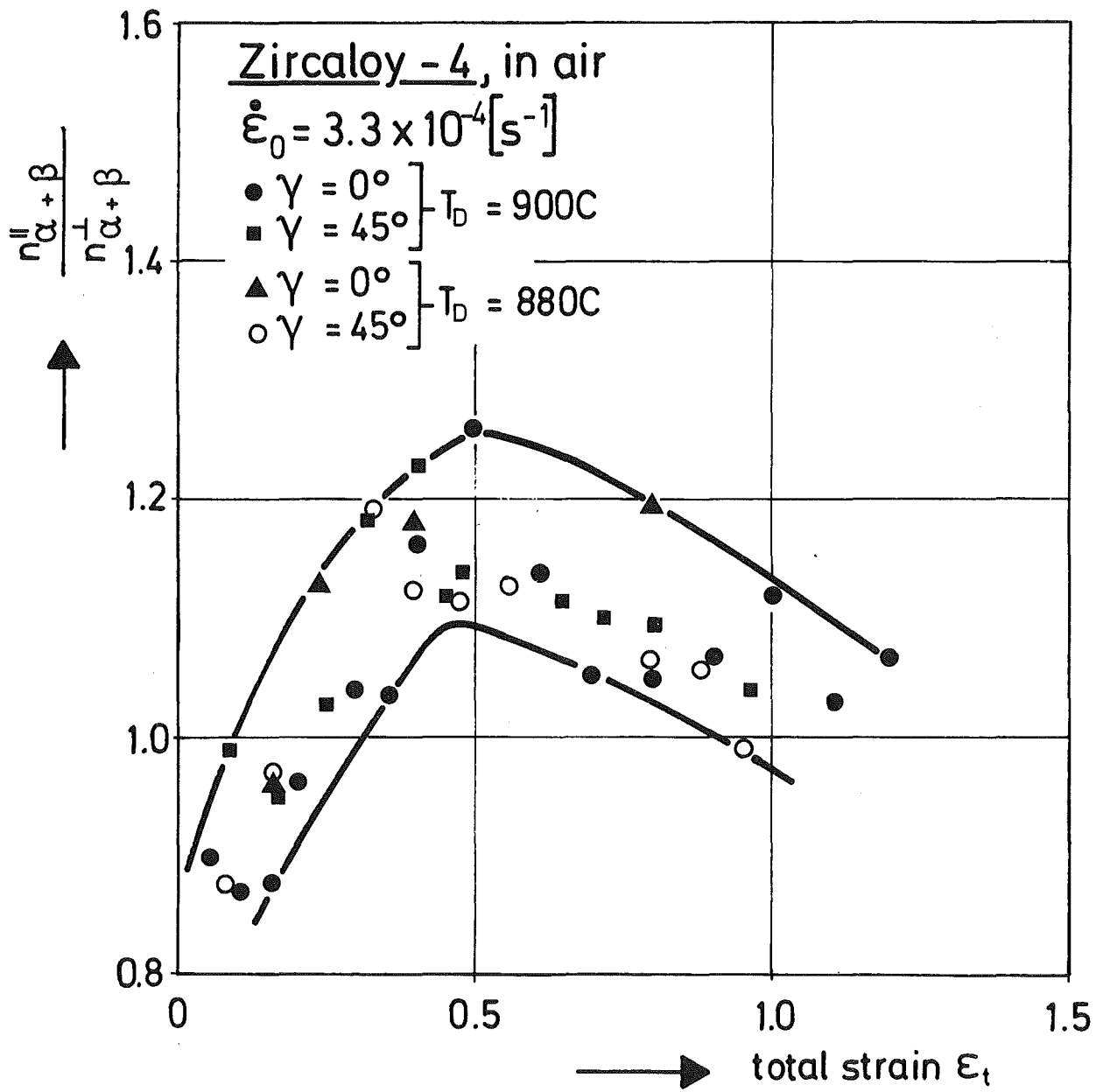


Abb. 4235.7 Zum Kornvertauschungsmechanismus

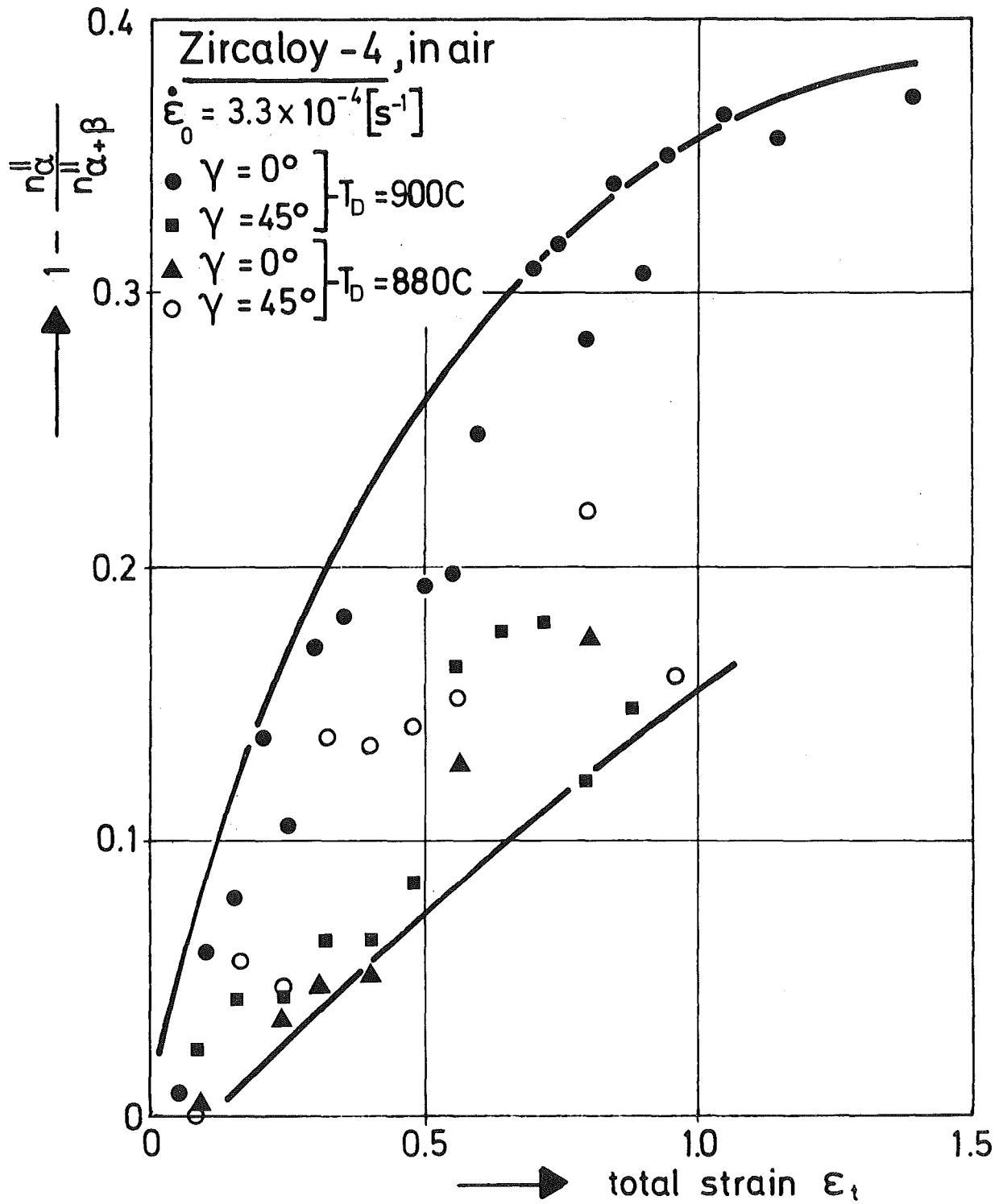


Abb. 4235.8 Die Verformungsabhängigkeit der β -"Korndichte"

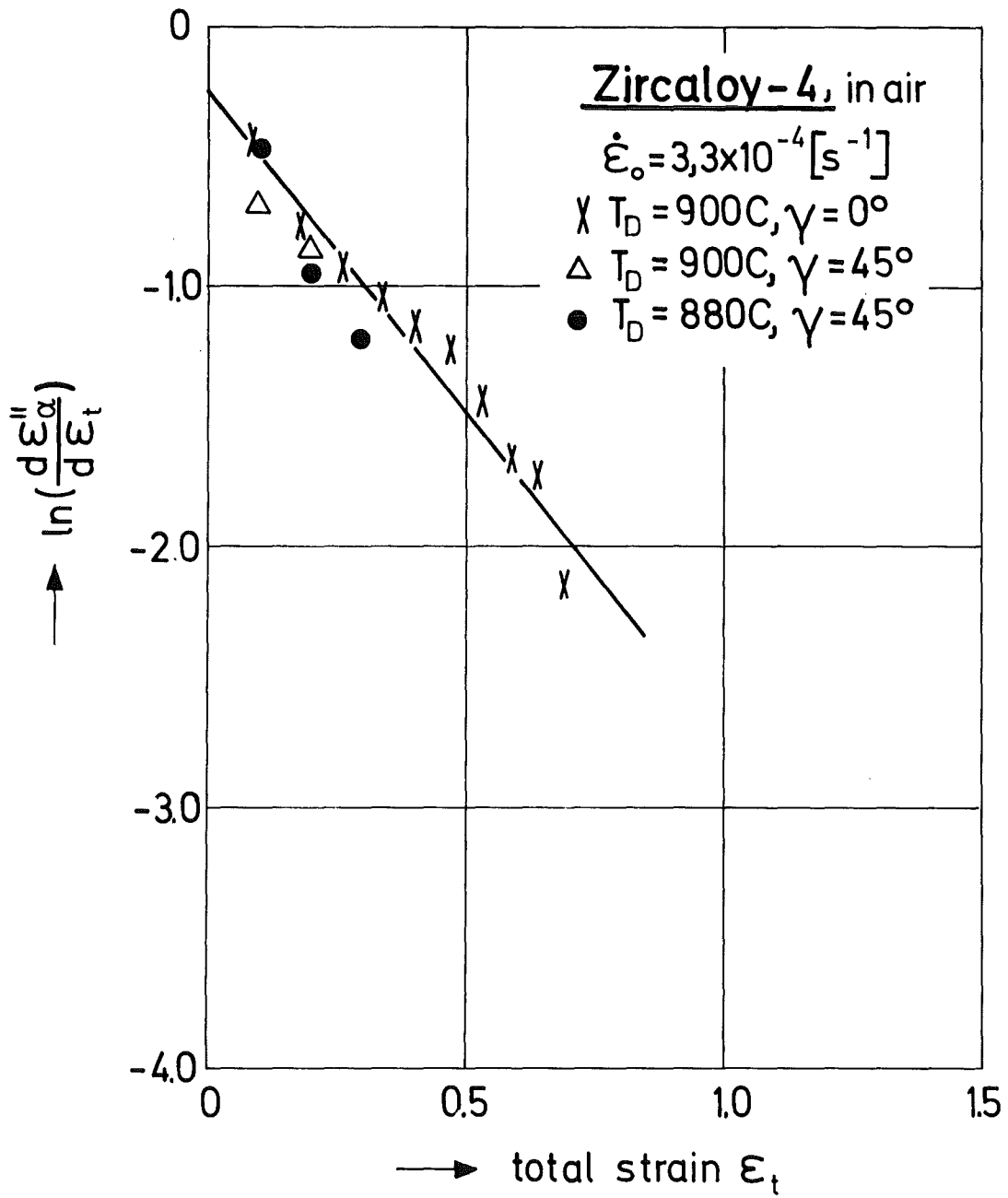
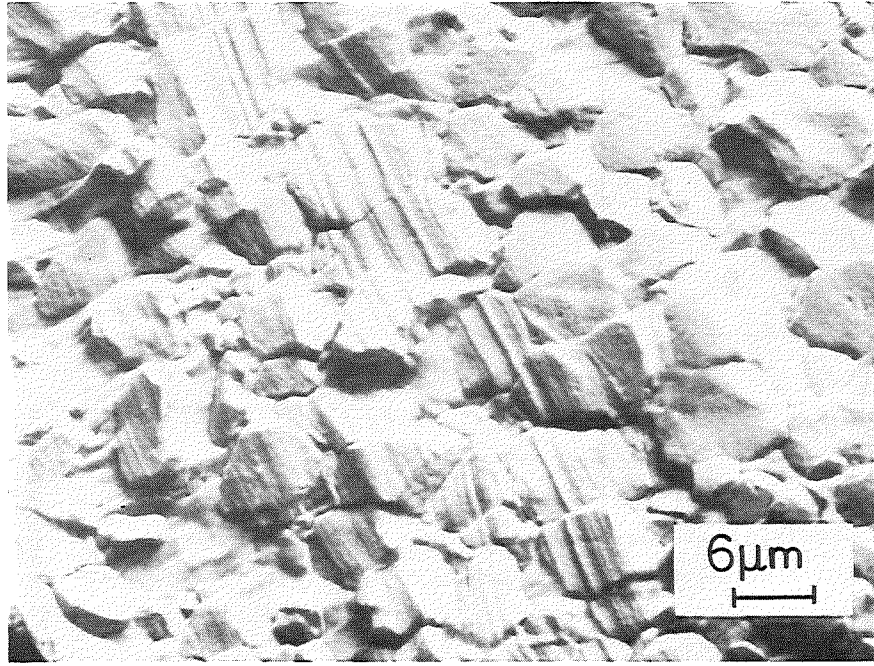
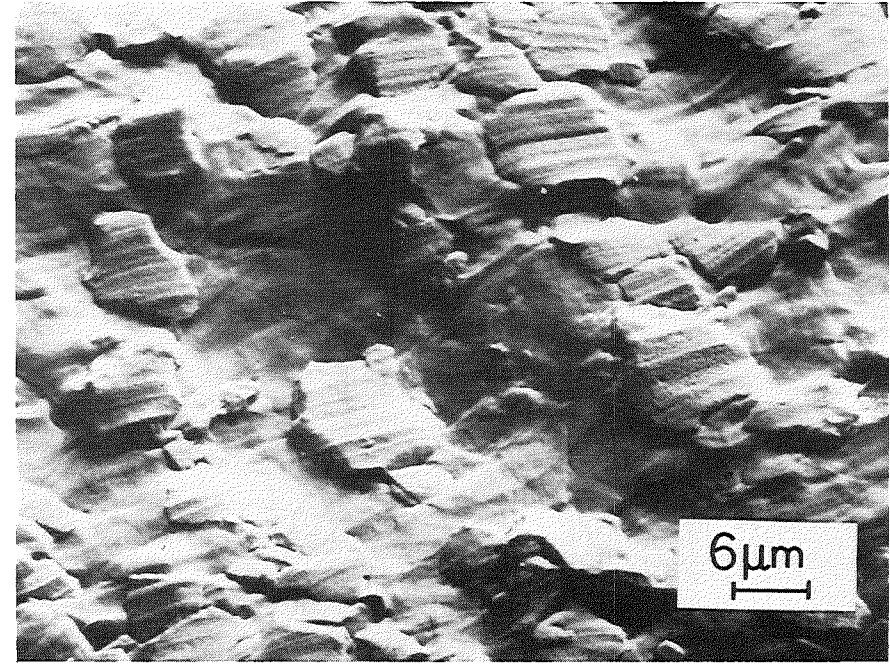


Abb. 4235.9 Beitrag der Dehnung durch Kornumordnung zur Gesamtdehnung



$$\epsilon_{\theta} \sim 0.10$$

ϵ_{θ} is the tangential strain



$$\epsilon_{\theta} \sim 0.60$$

Abb. 4235.10 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen eines Zry-4 Hüllrohres (aus unterschiedlichen Bereichen derselben Beule)

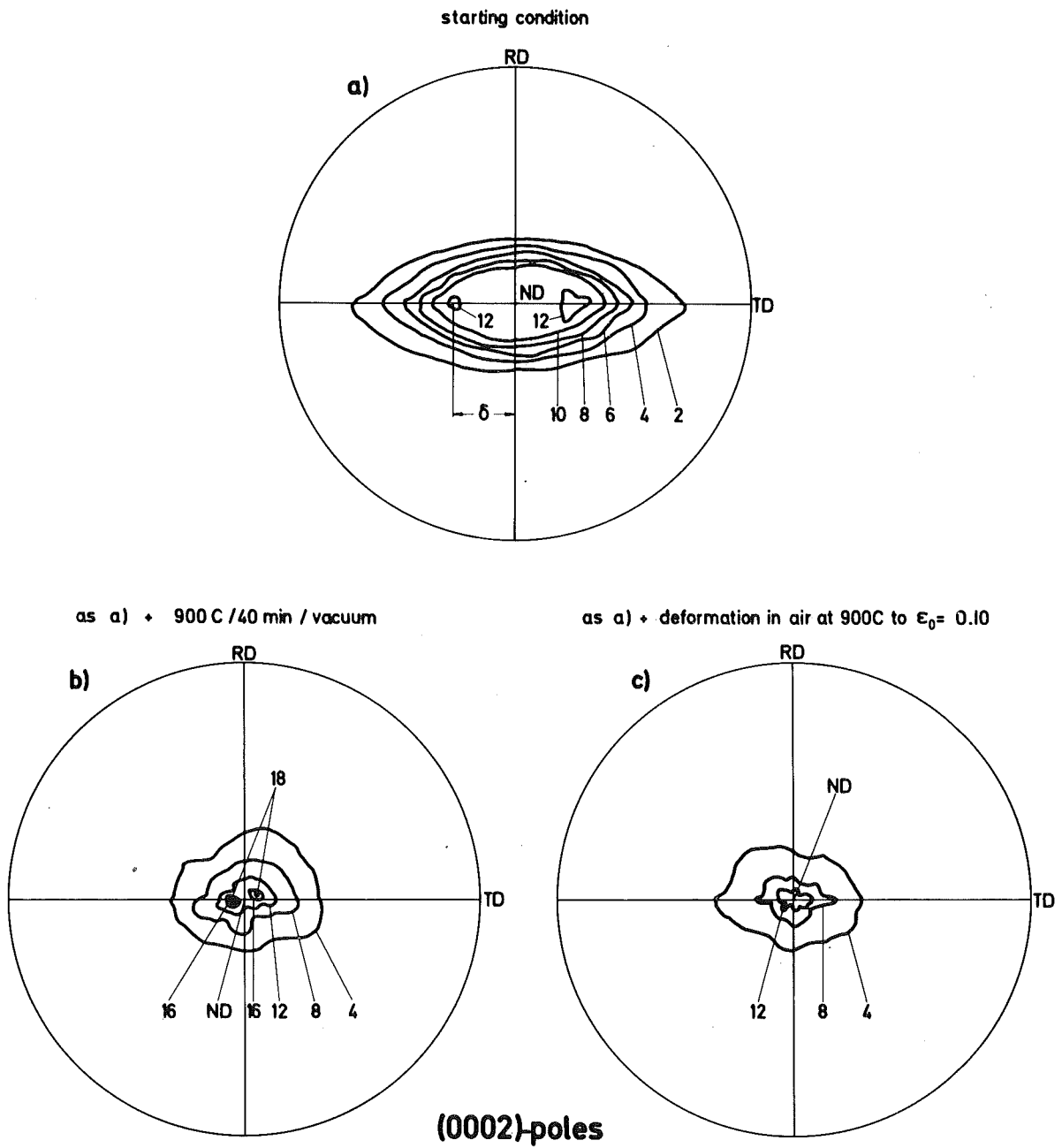


Abb. 4235.11 Polfiguren von Zry-4 Flachzugproben

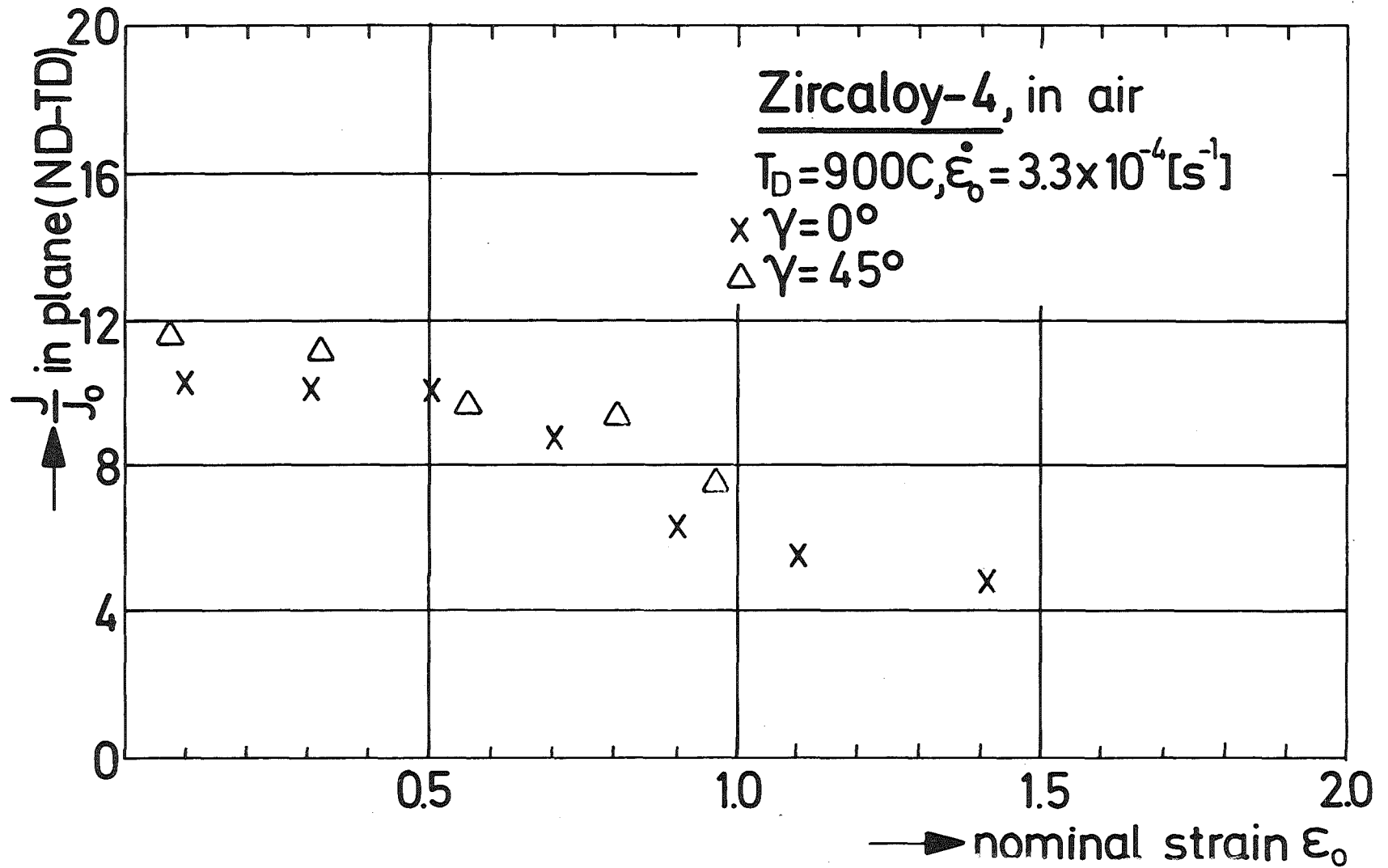


Abb. 4235.12 Die Dehnungsabhängigkeit des Verhältnisses der Maximalintensität. Zur Intensität der regellosen Verteilung in der Ebene (ND-TD) für unterschiedliche Probenorientierungen

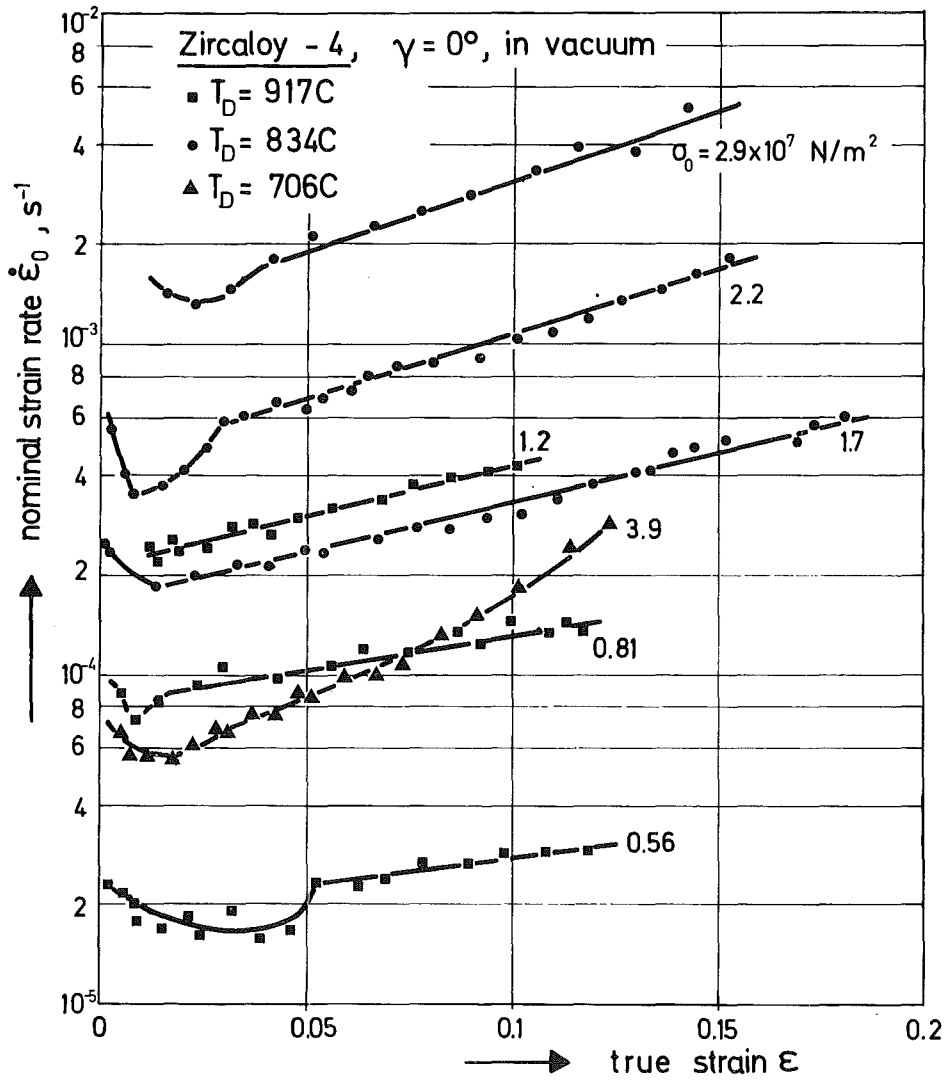


Abb. 4235.13 Kriechkurven in der $\log \dot{\epsilon}_0$ vers. ϵ -Darstellung (ϵ ist die wahre Dehnung)

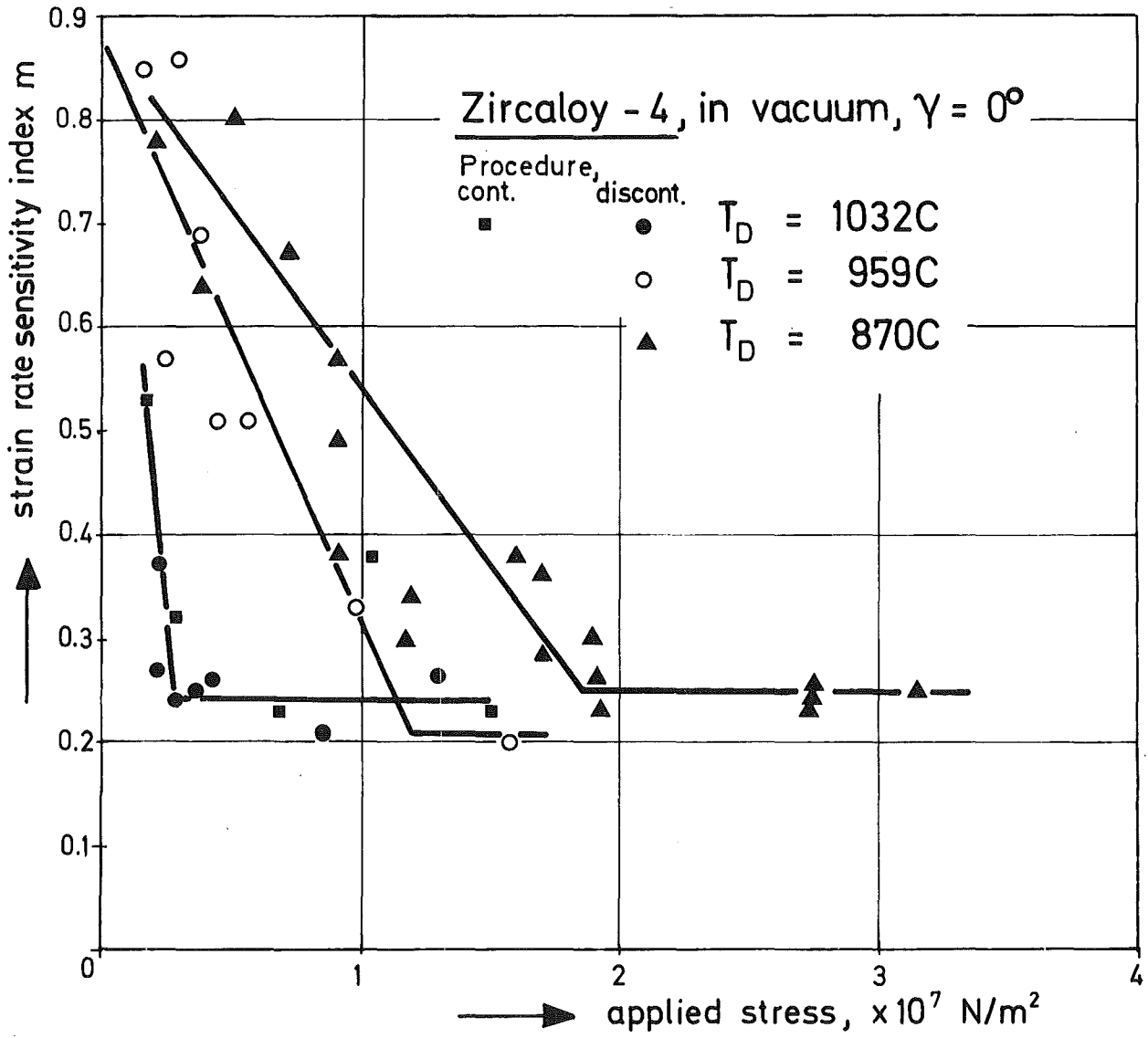


Abb. 4235.14 Die Spannungsabhängigkeit der m -Werte

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren

(S. Leistikow, H. v. Berg, D. Jennert, R. Kraft, G. Schanz)

1. Oxidationskinetische Untersuchungen an ungespannten Rohrabschnitten in Wasserdampf

1.1 Oxidationskinetische Untersuchungen

1.1.1 Angenähert isotherme Zeit-Temperatur-Verläufe in widerstandsbeheizten Rohröfen

1.1.1.1 Oxidation von vorkorrodierten Rohrabschnitten bei 1000 und 1200°C

Im Prinzip ist die Auswertung von Hochtemperatur-Störfall-Oxidationsreaktionen an vorkorrodierten Rohrproben unter dem Aspekt der prozentualen Wandstärkenschädigung und unter dem Aspekt des Reaktionsumsatzes im Störfall vorzunehmen. Im einzelnen ist darüberhinaus zu prüfen, ob die Oxidschicht des vorkorrodierten Materials eine auf die nachfolgende Störfallreaktion hemmende Wirkung ausübt oder nicht. Dazu zeichnet man sich am besten die bekannte Gewichtszunahme-Zeit-Funktion bei der gewählten Störfalltemperatur, trägt die Gewichtszunahme der Vorkorrosion auf, findet zeichnerisch die äquivalente Reaktionszeit und berechnet sodann auf der Basis der beabsichtigten Prüfdauer die Sauerstoffaufnahme, die - unter Berücksichtigung des existierenden "Sockels" - gemäß der parabolischen Zeitgesetzmäßigkeit während des simulierten Störfalls zu erwarten wäre.

Ausgehend davon, daß eine dichte, haftfeste, durch Festkörperdiffusion wachsende Oxidschicht bereits eine proportional ihrer Dicke zunehmende Schutzwirkung auf die metallische Phase ausübt, sind bei Störfalloxidation vorkorrodierter Proben prinzipiell drei Verhaltensweisen möglich.

1. Verminderte Schutzwirkung

Ist die gemessene Sauerstoffaufnahme im Störfall größer als die gemäß parabolischen Zeitgesetzen berechnete, so läßt sich

folgern, daß die Oxidschicht - aufgrund von Schichtdefekten - der Sauerstoffaufnahme einen geringeren Durchtrittswiderstand entgegengesetzt als eine äquivalente Hochtemperatur-Oxidschicht.

2. Gleichartige Schutzwirkung

Ist die gemessene Sauerstoffaufnahme gleich der berechneten, so entspricht im Versuchszeitraum der Fehlordnungsgrad des Vorkorrosionsprodukts in etwa dem des Störfall-Produkts.

3. Verbesserte Schutzwirkung

Ist die gemessene Sauerstoffaufnahme kleiner als die berechnete, so kommt dem Oxid der Vorkorrosion verglichen mit dem gleichstarken Hochtemperatur-Oxid ein schützender Charakter zu.

Die Dampfoxidation (5 min, 1000^oC) unterschiedlich voroxidierter Proben (Abb. 4235-15) läßt eine nur mäßige, zusätzliche Massenzunahme und damit einen gegenüber der Oxidation im metallischen Zustand stark reduzierten Störfallumsatz erkennen. Im einzelnen weisen die oxidierten Proben (mit Ausnahme der 93 Std, 600^oC-Vorkorrosion, bei der eine etwa gleichartige Oxidationsgeschwindigkeit gemessen wurde) niedrigere Gewichtszunahme als für 1000^oC parabolisch berechnet und damit verbesserte Schutzwirkung (3. Verhaltensweise) aus (Abb. 4235-16).

Im Fall der Untersuchungen während 5 min bei 1200^oC an Proben unterschiedlichen Vorkorrosionsgrades, Abb. 4235-17 ist in fünf Fällen der Störfall-Umsatz niedriger als der im Fall der Oxidation metallischen Materials, in 4 Fällen davon ist auch der gemessene Umsatz kleiner als der für voroxidiertes Material parabolisch berechnete, was verbesserte Schutzwirkung des bei den niedrigeren Vorkorrosions-Temperaturen gebildeten Oxides erkennen läßt (Abb. 4235-18/19).

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß die bei Vorkorrosion in Dampf bei verschiedenen Temperaturen zwischen 350-800^oC gebildeten Oxidschichten

mit den im LWR-Betrieb zu erwartenden ZrO_2 -Schichtdicken bis etwa 25 μm gegenüber Hochtemperatur-Schichten verbesserte Schutzwirkung auswies. Dickere Schichten oder solche, die zwischen 500 und 1000 Std bei $500^\circ C$ aufwuchsen und schon nach Vorkorrosion mechanische Defekte wie Aufplatzen und Absplittern zeigten, erwiesen sich als von vermindert schützendem Charakter.

1.1.1.2 Ergebnisse vertiefter metallographischer Auswertung oxidierter Rohrabschnitte

1.1.1.2.1 ZrO_2 -Schichtdicke

Weitere Rohrproben aus bereits berichteten (12) angenähert isothermen Oxidationsversuchen im Rohrofen bei 900 bis $1300^\circ C$ sind metallographisch untersucht worden. Die an ungeätzten Querschliffen gemessene Schichtstärke des Oxides ist nur geringen Schwankungen über den Rohrumfang unterworfen, und die Reproduzierbarkeit bei identischen Versuchsparametern ist gut. In Abb. 4235-20 sind die ZrO_2 -Schichtstärken für alle ausgewerteten Versuche gegen die Wurzel aus der Oxidationsdauer aufgetragen. Die eingezeichneten Ausgleichsgeraden, die innerhalb der Streubereiche meist mehrerer Proben liegen, zeigen, daß im Temperaturbereich von 900 bis $1300^\circ C$ und für Zeiten von 2 bis 15 min die Oxidschicht parabolisch mit der Zeit wächst. Zum Vergleich sind Meßwerte und Ausgleichsgeraden nach vorläufigen Ergebnissen des ORNL angegeben.

1.1.1.2.2 Gesamte oxidative Durchdringung

Entsprechend dem Oxid wurde die sauerstoffstabilisierte α -Phase an Querschliffen vermessen. Bei Proben nach zweiminütiger Oxidationsdauer wurden keine örtlichen Einwachsungen der α - in die β -Phase gefunden, wie sie für längere Zeiten und besonders bei hoher Temperatur beobachtet und nach planimetrischer Vermessung und Umrechnung auf eine gemittelte Tiefe zur α -Schicht zugeordnet werden (12). Wie Abb. 4235-21 zeigt, bestätigen die Versuche von 2 min Dauer den bereits festgestellten, angenähert parabolischen Zeitverlauf des Wachstums der Doppelschicht aus Oxid und α -Phase. Bei Berücksichtigung der Einwachsungen wächst die gesamte oxidative Durchdringung noch rascher, so daß z.B. bei $1300^\circ C$ in weniger

als 15 min (beidseitige Oxidation) die β -Phase aufgezehrt ist und damit der Begriff Einwachsungen gegenstandslos wird. Auf diese vollständige oxidative Durchdringung ist das Abbiegen der obersten Teilkurve in Abb. 4235-21 zurückzuführen.

1.1.1.2.3 Verhältnis der Teilschichten

Aus metallographisch ermittelten Schichtstärken wurde das Verhältnis der Stärke der Oxidschicht zur α -Schicht gebildet. Damit sollte untersucht werden, von welchen Parametern dieses Verhältnis abhängt und ob mit dieser Kenntnis die Temperaturmessung überprüft werden kann, was nach einer Arbeit von Urbanic (13) vorgeschlagen wird. Die Streuung der experimentellen Daten erforderte die Bildung geeigneter Mittelwerte, die nach verschiedenen Verfahren erfolgte.

Gefügebraufnahmen von Proben aus oxidationskinetischen Versuchen von 2 min bei 1000 bis 1300^oC wurden an mehreren Stellen vermessen. Das lokale Verhältnis der Teilschichten wurde für jede Probe statistisch gemittelt. Die relativ große Standardabweichung resultiert aus Schichtstärkenschwankungen und Ablesefehlern. Ein geringer Einfluß des Aufnahmetyps - Aufnahmen ungeätzter Proben in Polarisation und Aufnahmen geätzter Proben - zeigt die Genauigkeitsgrenzen der metallographischen Auswertung. Das Schichtstärkenverhältnis beträgt ca. 0,62 für 1300^oC und steigt auf ca. 0,73 für 1000^oC.

Entsprechend dem Vorgehen von Urbanic wurden Oxidationsversuche von 2 min, 5 min und 15 min Dauer gemeinsam auf das Schichtstärkenverhältnis ausgewertet. Basierend auf der Annahme des zeitlich parabolischen Wachstums der Schichten werden für jede Temperatur die Geschwindigkeitskonstanten in Arrhenius-Auftragung dargestellt und ihr Verhältnis gebildet, das einem zeitunabhängigen Schichtstärkenverhältnis für die einzelnen Temperaturen entspricht. Die Auswertung der eigenen Experimente schließt an Abb. 4235-20 und 21 an. Nach zeichnerischen Ausgleichsgeraden, im Falle der α -Phase ohne Berücksichtigung der Einwachsungen, wurde errechnet, daß das zeitunabhängige Verhältnis bei beträchtlicher Streuung von

ca. 0,7 bei 1300^oC auf ca. 0,78 bei 1000^oC ansteigt. Diesen Werten stehen nach Urbanic etwa 0,67 bei 1300^oC und etwa 1,05 bei 1000^oC gegenüber.

Aus der getrennten Auswertung für verschiedene Oxidationszeiten folgt, daß das Schichtstärkenverhältnis nicht nur temperaturabhängig ist, sondern auch deutlich mit steigender Oxidationszeit abnimmt. Diesen Befund bestätigen Ergebnisse des Codes SIMTRAN I (14).

Die von Urbanic berichtete starke Temperaturabhängigkeit des Schichtstärkenverhältnisses kann somit nicht in vollem Umfang bestätigt werden, während ihre Tendenz durch Experimente und Coderechnungen bestätigt und durch die hohe Aktivierungsenergie der Sauerstoffdiffusion in der α -Phase erklärt wird. Die Zeitabhängigkeit ist in einem räumlich begrenzten Diffusionssystem selbstverständlich. Prinzipiell kann mit Kenntnis der Temperatur- und Zeitabhängigkeit des Schichtstärkenverhältnisses die gemessene Oxidationstemperatur überprüft oder auf die Messung einer der Schichtstärken verzichtet werden. In der Praxis ist diese Art der Versuchsauswertung jedoch zu ungenau.

1.1.1.3 Verbesserung der modellmäßigen Beschreibung isothermer Oxidationsvorgänge mit SIMTRAN I *

Das Diffusionsmodell, das der Code SIMTRAN zur Beschreibung der Sauerstoffaufnahme und -Verteilung bei der Oxidation von Zircaloy verwendet, beruht auf den Diffusionsdaten des Sauerstoffs im Oxid und den beiden metallischen Phasen, sowie auf deren Gleichgewichtsbeziehungen nach dem Zustandsdiagramm.

Zur Verbesserung der Modellrechnung wurden Daten der Sauerstoffdiffusion in der β -Phase nach neuesten experimentellen Ergebnissen des ORNL übernommen (15). Die entsprechende Untersuchung im Temperaturbereich von etwa 900 bis 1550^oC ist nahezu abgeschlossen und hat übereinstimmende Ergebnisse nach unabhängigen Meßmethoden erbracht.

* In Zusammenarbeit mit IRB (DI. Malang)

Die Verbesserung des Modells der mit der Oxidation verbundenen Phasenumwandlung und der Gleichgewichtskonzentrationen auf der Basis des Zustandsdiagrammes Abb. 4235-22 wurde fortgesetzt. Als Gleichgewichtskonzentrationen an den Grenzen der beiden metallischen Phasen werden die gestrichelt eingezeichneten Grenzkonzentrationen für die α - β -Umwandlung im System Zircaloy 4-Sauerstoff verwendet (16).

Weiterhin benutzt SIMTRAN jetzt konzentrationsabhängige Diffusionsdaten in Konzentrations- und Temperaturbereichen, die dem Zweiphasengebiet $\alpha+\beta$ des Zircaloy-Sauerstoff-Diagramms entsprechen. Die Diffusionsdaten werden dabei nach dem Hebelgesetz entsprechend dem örtlichen Anteil der beiden Phasen ständig geändert. Diese modellmäßige Verbesserung kommt bei isothermer Oxidation vor allem im Temperaturbereich zwischen ca. 820 und 970°C zum Tragen. Damit ist physikalisch sinnvoll modelliert, daß das von SIMTRAN als β ausgewiesene Gebiet in Wirklichkeit ein Zweiphasengebiet ist. Unterhalb von 820°C, wo die β -Phase nicht auftritt, rechnet SIMTRAN formal wie bisher, verwendet aber sinnvollerweise nur die Diffusionsdaten für Oxid und α -Phase.

Damit ist die Verbesserung des Rechenmodells vorläufig als Version SIMTRAN I abgeschlossen. Eine Verbesserung des Oxidmodells unter Berücksichtigung der Phasenumwandlungen im Oxid ist mangels verlässlicher experimenteller Daten vorerst nicht geplant.

1.1.2 Transiente Zeit-Temperaturverläufe bei induktiver Beheizung

In Anlehnung an resp. unter pessimistischen Annahmen über DWR-typische Störfallverläufe wurden Versuchsreihen mit der programmgesteuerten Induktionsheizung (17) gefahren, die im wesentlichen die Variation der Höhe des Blowdown-Peaks sowie die der erreichten maximalen Temperaturen in der Reflood-Phase und deren Haltezeiten zum Inhalt hatten.

1.1.2.1 Oxidation in der Blowdown-Phase

Bei einer konstanten Aufheizgeschwindigkeit von 100⁰/sec und Ab-

kühlgeschwindigkeit von $25^{\circ}/\text{sec}$ wurde zwischen 950 und 1200°C die Höhe des Blowdown-Peaks und wegen gleichartiger Abkühlgeschwindigkeit entsprechend die Expositionszeiten variiert. Im einzelnen wurden die Mittelwerte aus drei Messungen der Gewichtszunahme bei Maximaltemperaturen von 950 , 1000 , 1100 und 1200°C bestimmt (Abb. 4235-23). Sie liegen bei 52 , 65 , 118 und $195 \text{ mg}/\text{dm}^2$ Massenzunahme und damit rechnerisch bei ZrO_2 -Schichtdicken von mäßiger Stärke (3.4 , 4.3 , 7.9 und $13 \mu\text{m}$).

1.1.2.2 Oxidation im Störfallverlauf

Die hypothetischen Störfallverläufe wurden unter Variation der Maximaltemperaturen und der ihnen zugeordneten Haltezeiten variiert. Nach dem Blowdown-Peak bei 950°C wurden $1,5$ - 3 Minuten lange Haltezeiten bei 700 , 750 , 800 , 850 und 900°C eingestellt und erneut die Gewichtszunahme aus drei Oxidationsversuchen gemittelt (Abb. 4235-24). Mit Werten zwischen 44 und $74 \text{ mg}/\text{dm}^2$ resp. 55 und $102 \text{ mg}/\text{dm}^2$ entsprechend $2,9$ - $4,9$ resp. $3,7$ - $6,7 \mu\text{m}$ ZrO_2 wurden für diese störfalltypischen Verläufe sehr niedrige Sauerstoffaufnahmen registriert.

Werden höhere Maximaltemperaturen (1000 , 1100 , 1200°C) eingestellt, so treten bei jeweils insgesamt dreiminütiger Reaktionszeit Gewichtszunahmen von 200 - $540 \text{ mg}/\text{dm}^2$ entsprechend $13,4$ - $36,2 \mu\text{m}$ ZrO_2 auf (Abb. 4235-25). Diese Werte stellen etwa 66 - 70% der bei isothermer Oxidation gemessenen Gewichtszunahme dar. Die zugehörigen Schichten sind in Abb. 4235-26 wiedergegeben.

Auf diese Weise ist es gegenwärtig möglich, die Kinetik der Zircaloy 4-Wasserdampf-Oxidation in Gesamt- und Teilverläufen des Kühlmittelverlust-Störfalls zu analysieren. In Vorbereitung ist darüber hinaus die Einbeziehung einer programmierten Temperaturabsenkung zum Ende des Reaktionsverlaufs, die es ermöglichen soll, gemäß der berechneten Störfall-Zeit-Temperatur-Funktion sowohl die Haltezeiten zu minimalisieren und durch temperaturkontrollierte Abkühlverläufe zu ersetzen, als auch verspröde Hochtemperatur-Oxidationsreaktionen mit kontrollierter Abkühlgeschwindigkeit langsam abzufahren. Solche Untersuchungen, die vor

allem durch sorgsame metallographische Untersuchungen ergänzt werden müssen, sind im gange und werden es erlauben, über mechanische Kennwertveränderungen als Funktion der Abkühlgeschwindigkeit und Sauerstoffaufnahme Aussagen zu machen.

1.1.2.3 Vergleichsrechnungen mit dem Code SIMTRAN I

Zur Darlegung des Standes der Computerberechnung der Oxidation bei Störverläufen soll Abb. 4235-27 dienen, ein Plot, das Ergebnisse einer SIMTRAN I-Rechnung graphisch darstellt. Es zeigt den zeitlichen Verlauf der Temperatur, der Schichtstärken von Oxid und α -Phase sowie der Sauerstoffaufnahme während eines pessimistischen simulierten Störfalls verglichen mit experim. Werten.

Die unter 1.1.1.3 beschriebene modellmäßige Verbesserung des Codes SIMTRAN I, die sinngemäß auch für transiente Zeit-Temperaturverläufe gilt, modelliert eindimensional auch die oben beschriebenen Vorgänge während Abkühlphasen und beschreibt damit die Oxidation während der Temperaturzyklen eines Kühlmittelverlustunfalles vollständig.

Bei nicht zu rascher Abkühlung einer oxidierten Probe kommt es unter den Annahmen, die auch von Cathcart et al. (15) bereits formuliert wurden, daß eine wesentliche Übersättigung der β -Phase an Sauerstoff nicht stabil ist, und daß die Umwandlung in die α -Phase über Keimbildungs- und Wachstumsprozesse abläuft, zu folgenden Vorgängen: Der von der β -Phase aufgenommene Sauerstoff erzwingt bereits oberhalb von 970°C die Ausbildung eines Zweiphasensaumes zwischen stabilisierter α -Phase und β -Phase. Die β -Phase wird durch Bildung und Wachstum von α -Keimen bei weiterer Abkühlung aufgezehrt, bis schließlich bei ca. 820°C neben dem Oxid nur noch α -Phase vorhanden ist. Gleichzeitig wird der Sauerstoff von den in der β -Phase wachsenden α -Bereichen durch lokale Diffusion aufgesogen, wodurch eine Übersättigung der β -Phase vermieden wird. Eine weitere Überprüfung des Modells und der Versuch seiner Bestätigung durch metallographische Untersuchung der Morphologie oxidierten Proben ist vorgesehen.

Abb. 4235-28 zeigt ein typisches Plot des Sauerstoff-Konzentrationsprofils in der α - und β -Phase zu dem Zeitpunkt unmittelbar vor der Endabkühlung für die in Abb. 4235-27 in Zeitabhängigkeit dargestellte Reaktion.

2. Kurz-Zeitstandversuche unter überlagerter Heißdampf-Oxidation an Rohrkapseln unter Innendruck in Argon und Wasserdampf

2.1 Zeitstand-Vergleichsversuche bei 800, 900 und 950°C in Argon

Die Kurz-Zeitstandversuche in Argon wurden in derselben Apparatur und nach derselben Untersuchungsmethode wie die unlängst berichteten Untersuchungen (17) durchgeführt. Dazu wurden Rohrkapseln drucklos in den auf Temperatur gebrachten, argon-durchspülten Rezipienten eingeschoben. Nachdem innerhalb von 4 Minuten die gewünschte Temperatur erreicht worden war, wurde in wenigen Sekunden der erforderliche Innendruck eingestellt und von dann die Standzeit bis zum Bersten der Proben gemessen. Der Innendruck wurde über den gesamten Versuch konstant gehalten, die Tangentialspannung erfuhr also mit zunehmender Kriechverformung der Rohrwandung eine ständige Erhöhung. In den Zeitstandkurven wurde die unter Bezug auf die Rohrabmessungen bei Raumtemperatur im unoxidierten Ausgangszustand berechnete Tangentialspannung als Ordinate und gegen die Standzeit als Abszisse aufgetragen.

Die zweite Serie der Kurzzeitstanduntersuchungen wurde bei 800, 900 und 950°C in reinem Argon mit dem Ziel durchgeführt, das Zeitstand- und Duktilitätsverhalten in Expositionszeiten bis zu 40 min zu messen. Bei 800°C führten im besagten Zeitraum Innendrucke von 70,8 \rightarrow 32,4 at zum Bruch, bei 900°C waren es solche von 40 \rightarrow 9 at und bei 950°C genügten schon Drücke von 19 \rightarrow 8 at. Zwischenwerte lassen sich aus den in doppelt-logarithmischer Auftragung dargestellten Zeitstandgeraden (Abb. 4235-29) ablesen. Die Zeitstandkurven sind in bester Übereinstimmung mit denen von Hardy (18), die für Zircaloy 4 bei 800-1000°C gemessen wurden.

Die in Abb. 4235-30 -32 dargestellten geborstenen Rohrkapseln lassen erkennen, daß bei den geprüften Temperaturen hohe Innendrucke (kurze Standzeiten) ein starkes Aufreißen der Kapseln verursachten, während niedrigere Drücke (längere Standzeiten) zu immer feineren Kapselrissen führten. Im Fall der Versuche bei 800°C ist das besonders augenfällig. Bei dieser Temperatur war der Berstvorgang so vehement, daß sich die ganze Kapsel verbog, und damit die dem Riß abgewandte Seite stark dehnte, die Rißseite der Kapsel zugunsten der Ausbeulung kontrahierte.

Die aufgetretenen maximalen Umfangsdehnungen nach Bruch (ϵ_{UB}) der Kapseln lagen zwischen 85-98% (800°C), 68-146% (900°C) und 46-72% (950°C). Trägt man diese maximalen Umfangsdehnungen gegen die Temperatur auf (Abb. 4235-33), so wird deutlich, daß gerade im Zr-($\alpha+\beta$)-Umwandlungsgebiet zwischen 820-960°C sowohl maximale wie auch minimale Werte gemessen wurden und erst nach vollendeter Umwandlung wiederum eindeutige Verhältnisse mit Dehnungen bis zu 75-100% mit abnehmender Tendenz eintraten. Hohe Spannungen führten bei 900 und 950°C zu niedrigeren Dehnungswerten. Niedrigere Spannungen führten bei 900°C zu superplastischen Dehnungen, ab 1000-1300°C zu vergleichsweise niedrigen Umfangsdehnungen.

Zur Messung der Änderung des gesamten Kapselvolumens wurden die Berst-Risse der Kapseln verschlossen und das Volumen durch Auslitern bestimmt. In Abb. 4235-34 ist das Ergebnis, d.h. die Volumenzunahme als Funktion der Standzeit, aufgetragen. Die Darstellung zeigt, daß die über alles gehende Tendenz der Volumenänderung gleichsinnig verläuft mit der maximalen Umfangsdehnung, die zu Vergleichszwecken als Parameter jeweils mit eingetragen wurde. In Abb. 4235-35 ist für die Gesamtheit der bei 800-1300°C durchgeführten Rohrrinnendruck-Kurzzeitstandversuche in Argon der Verlauf der Dehnungsgeschwindigkeit als Funktion der Tangentialspannung (bezogen auf die Rohrabmessungen im Ausgangszustand) aufgetragen. Die Darstellung erlaubt für einen gegebenen Innendruck bei bekannter Temperatur die Kriechgeschwindigkeit zu ermitteln. Die entsprechenden Untersuchungen in Dampf werden demnächst aufgenommen.

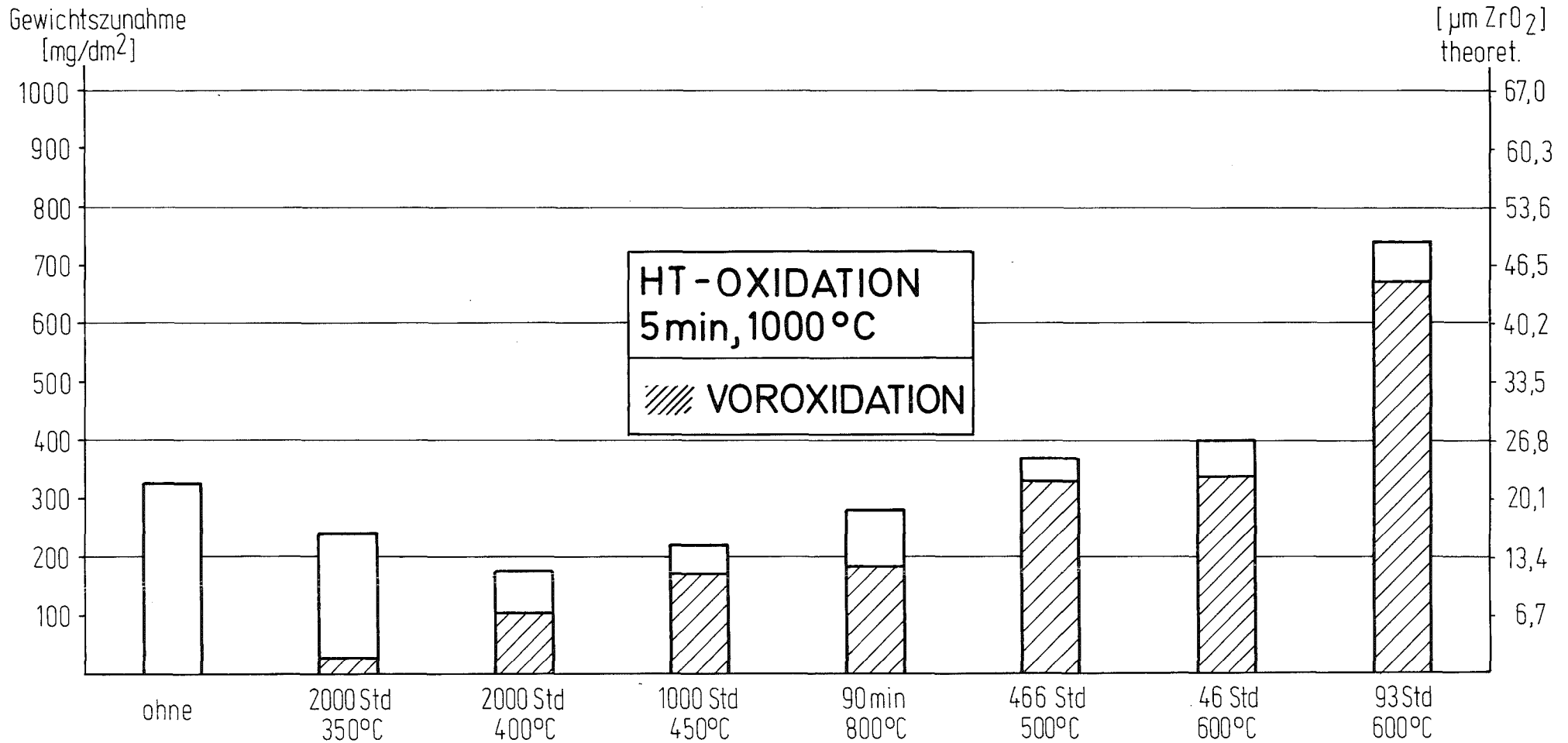
Literatur

- 12) S. Leistikow et al.
PNS-Halbjahresbericht 1/75
KFK-2195 (1975) 219-238
- 13) V. F. Urbanic
J. Nucl. Mater. 59 (1976) 90-94
- 14) S. Malang
ORNL-5083 (1975)
- 15) J. V. Cathcart et al.
ORNL-TM-5148 (1975)
- 16) H. M. Chung, A. M. Garde u. T. F. Kassner
3. NRC-Water Reactor Safety Research
Information Meeting, Gaithersburg, Md, USA, 29.9.-2.10.75
- 17) S. Leistikow et al.
PNS-Halbjahresbericht 2/75
KFK-2262 (1976) 232-259
- 18) D. G. Hardy
Proc. Meeting on LWR-Safety
Salt Lake City, Utah 26.-28. 3. 73
CONF-730304, 254-273

Abb.4235-15 ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION


IN ABHÄNGIGKEIT VON DER VOROXIDATION

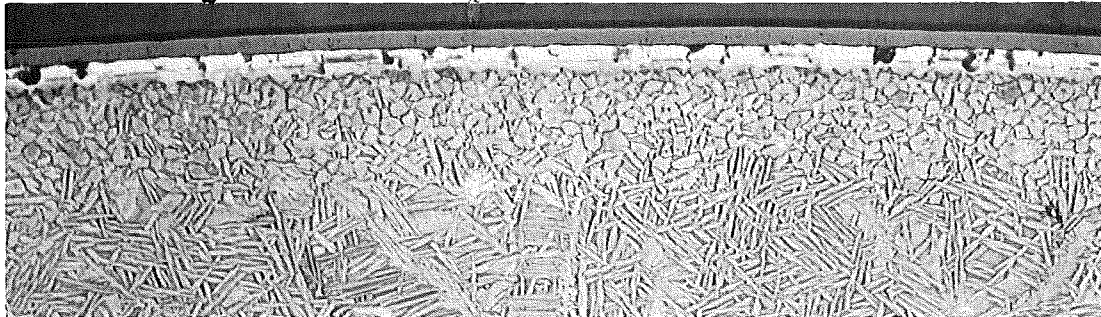
MITTELWERTE AUS 3MESSUNGEN



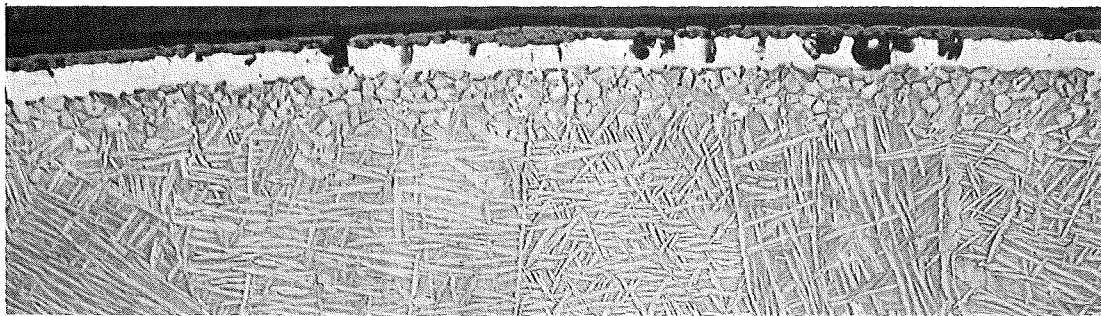
ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

QUERSCHLITTE NACH UNTERSCHIEDLICHER VOROXIDATION (VO) IN DAMPF, GEFOLGT VON NACHOXIDATION = 5 min, 1000 °C

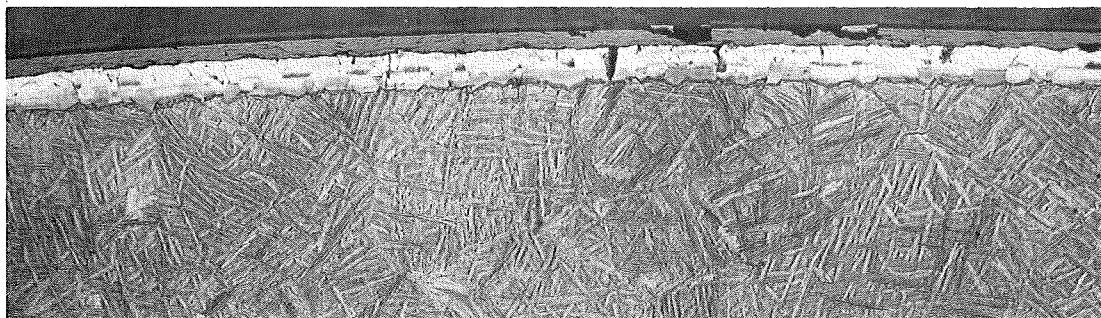
50 µm 



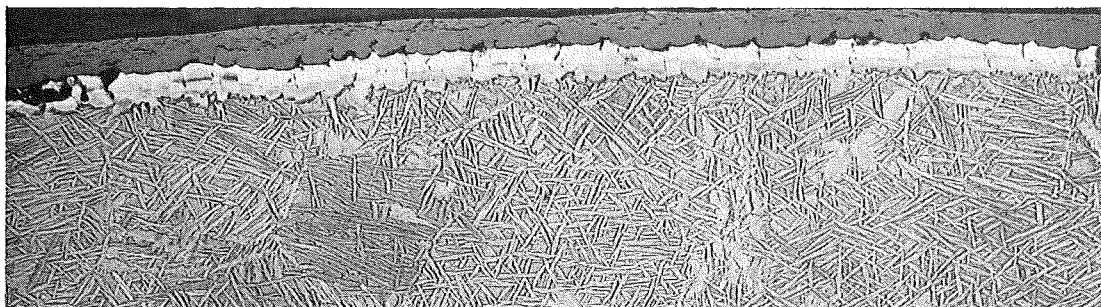
VO: 2000 Std, 350 °C



VO: 2000 Std, 400 °C



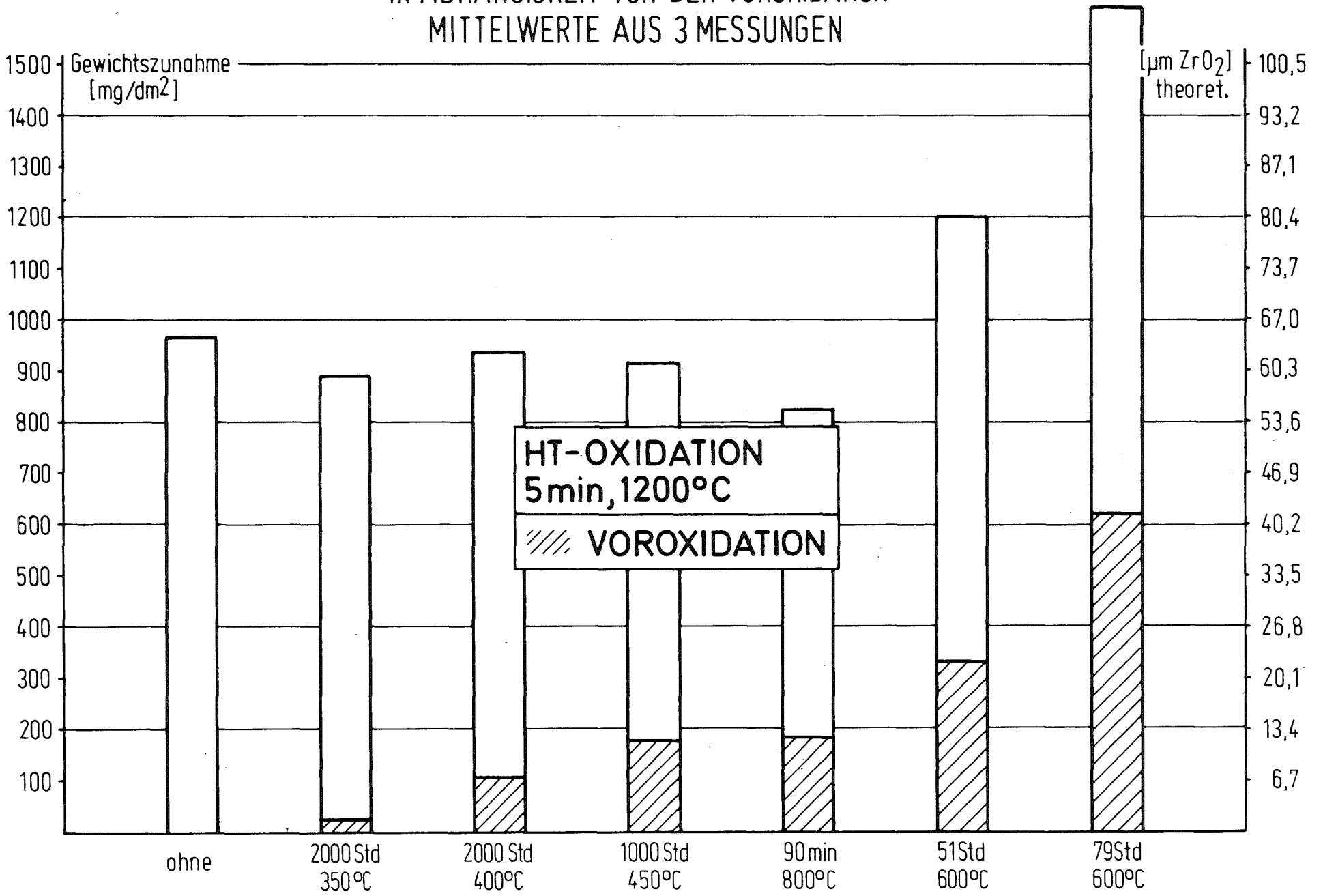
VO: 1000 Std, 450 °C



VO: 90 min, 800 °C

Abb.4235-17 ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION


IN ABHÄNGIGKEIT VON DER VOROXIDATION
MITTELWERTE AUS 3 MESSUNGEN

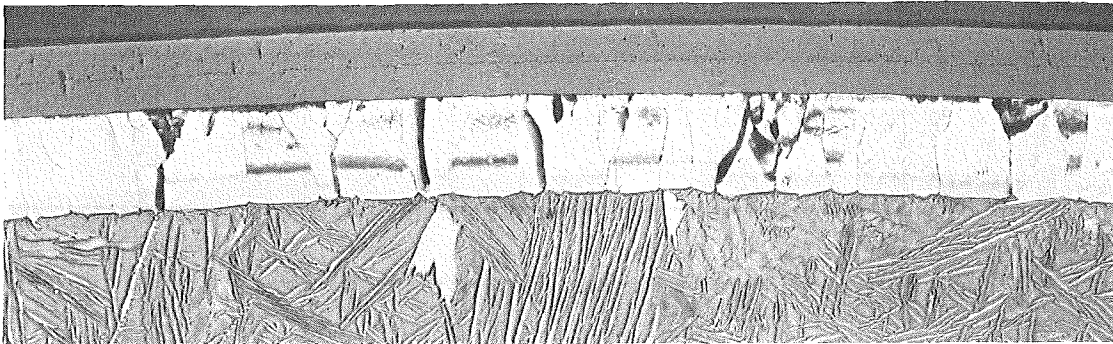


ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

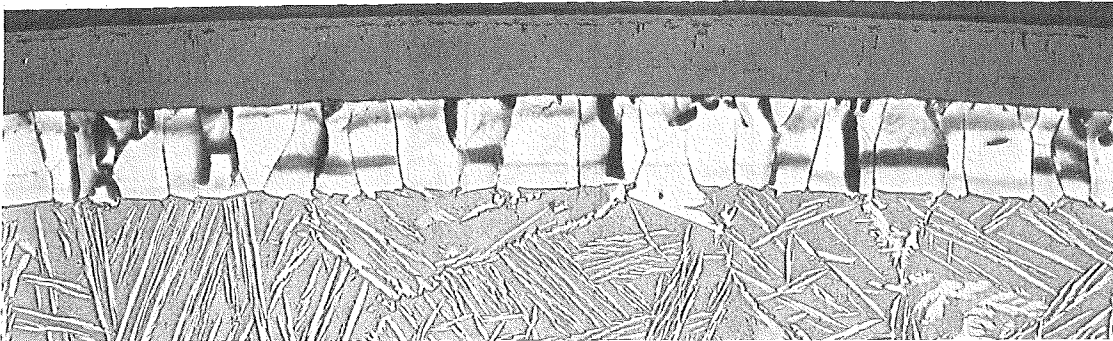
QUERSCHLIFFE NACH UNTERSCHIEDLICHER VOROXIDATION (VO) IN DAMPF, GEFOLGT VON NACHOXIDATION = 5 min, 1200°C

-298-

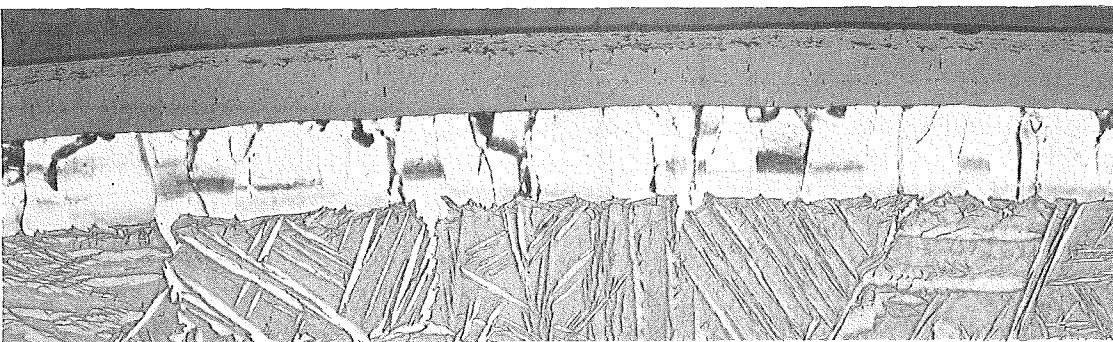
50 µm 



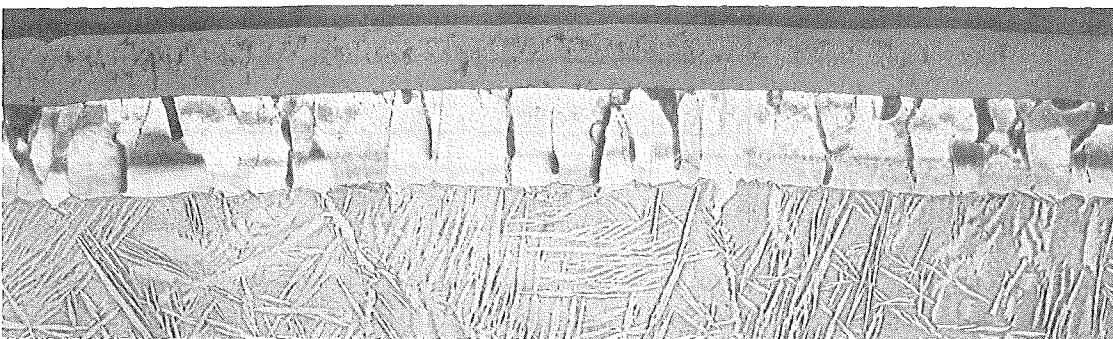
VO: 2000 Std, 350°C



VO: 2000 Std, 400°C



VO: 1000 Std, 450°C



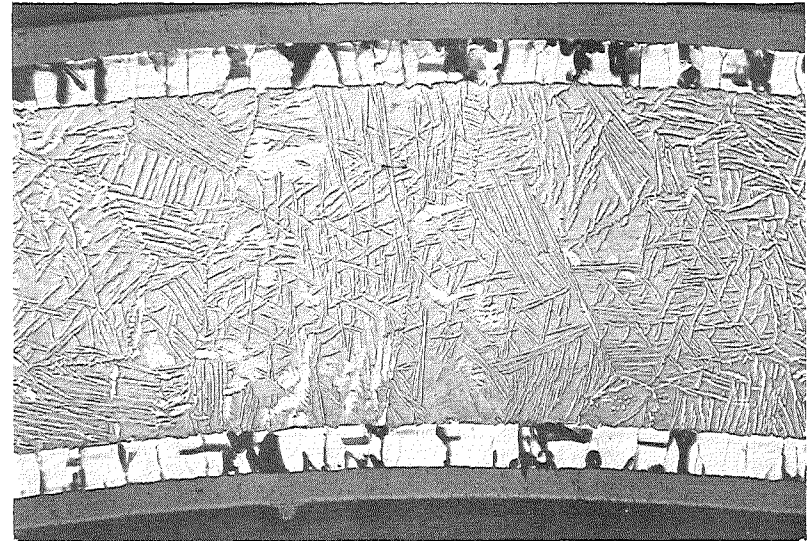
VO: 90 min, 800°C

ZIRCALLOY 4 / DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

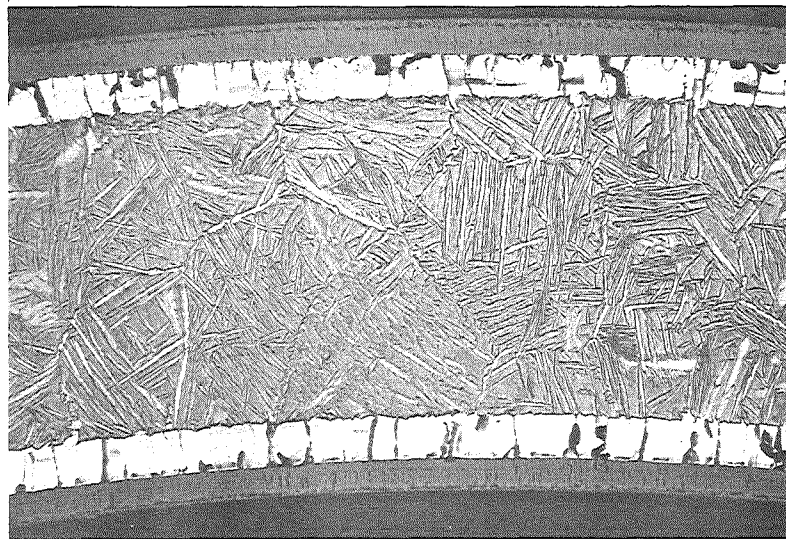
QUERSCHLIFFE NACH UNTERSCHIEDLICHER VOROXIDATION (VO) IN DAMPF GEFOLGT VON NACHOXIDATION = 5 min, 1200 °C 100µm ←



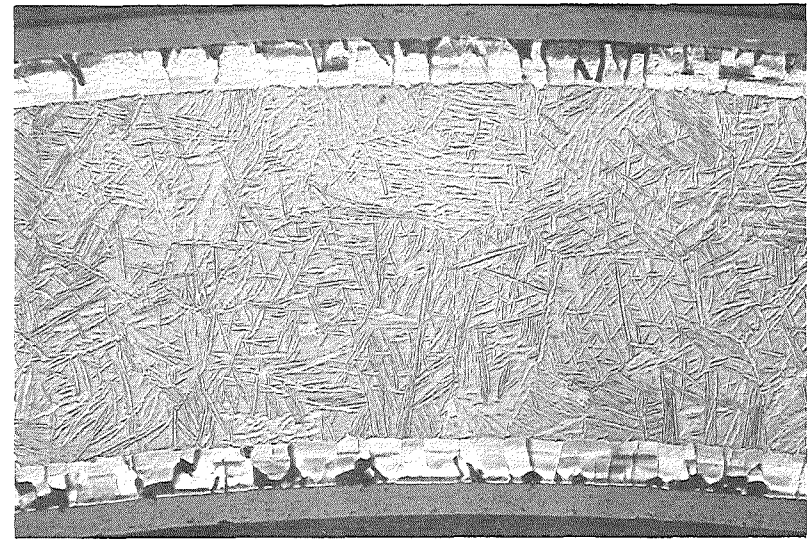
VO: 2000 Std, 350 °C



VO: 2000 Std, 400 °C



VO: 1000 Std, 450 °C



VO: 90 min, 800 °C

ZIRCALOY 4 / DAMPF - HOCHTEMPERATUR - OXIDATION

Abb.4235-20 PARABOLISCHES WACHSTUM DER OXIDSCHICHT

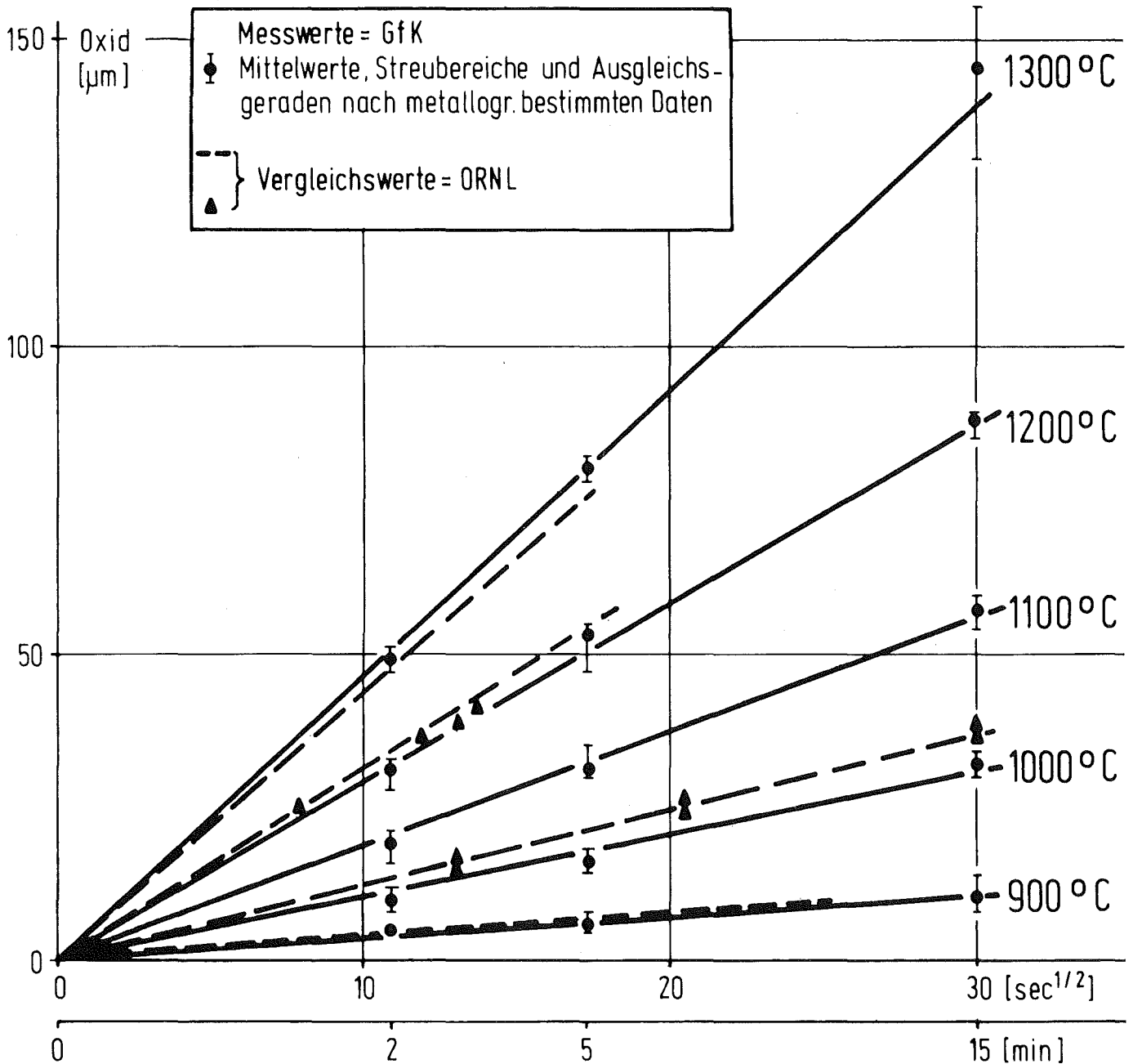


Abb.4235-21

ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

DAS WACHSTUM DER DOPPELSCHICHT OXID+ α -PHASE IN ABHÄNGIGKEIT VON DER WURZEL AUS DER REAKTIONSZEIT BEI DOPPELSEITIGER OXIDATION

Dicke der Doppelschicht Oxid+ α -Phase [μm]

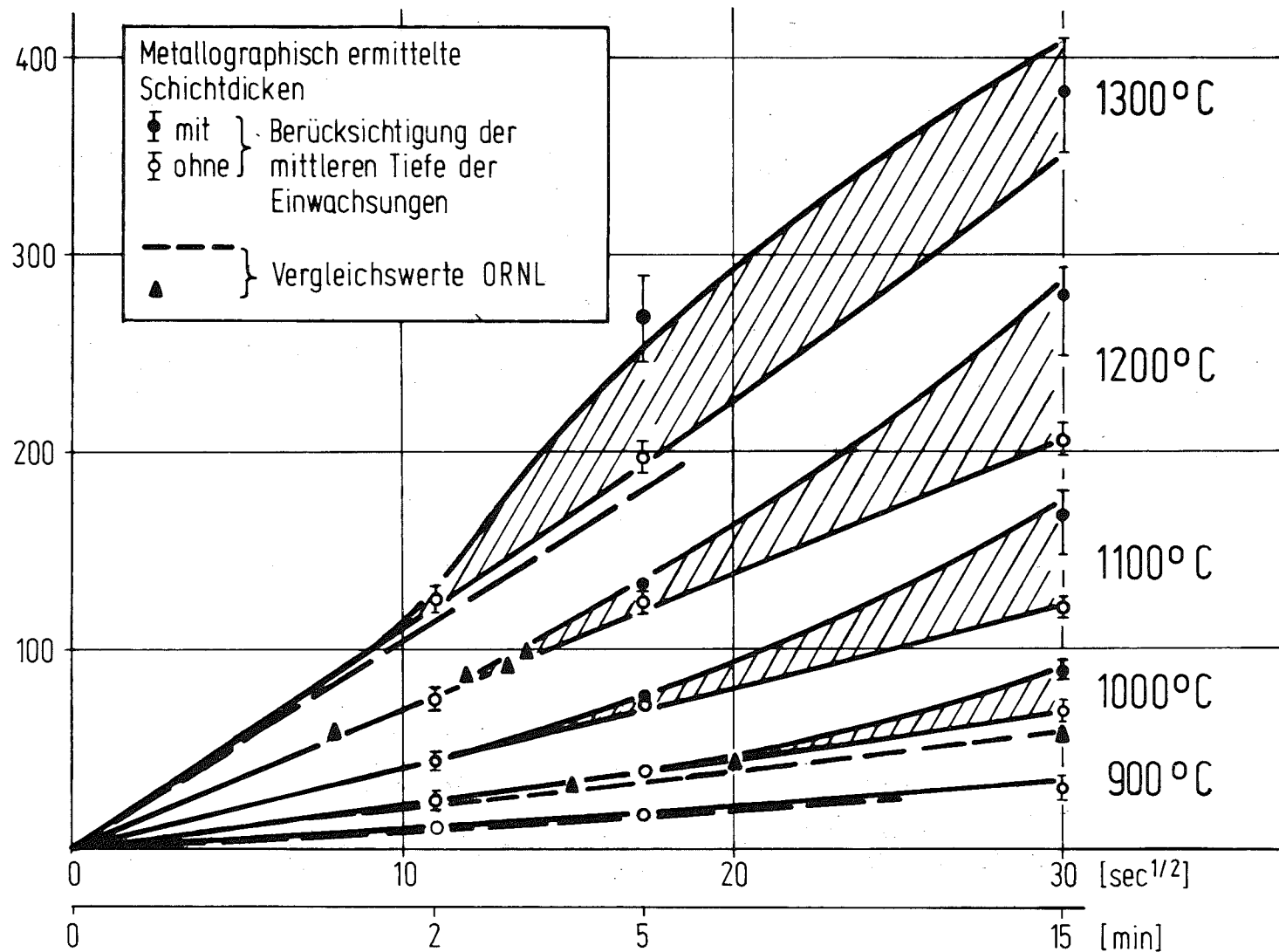


Abb.4235-22 ZIRKON-SAUERSTOFF-TEILDIAGRAMM

(nach Gebhardt, Seghezzi, Dürrschnabel und Ruh, Garrett)

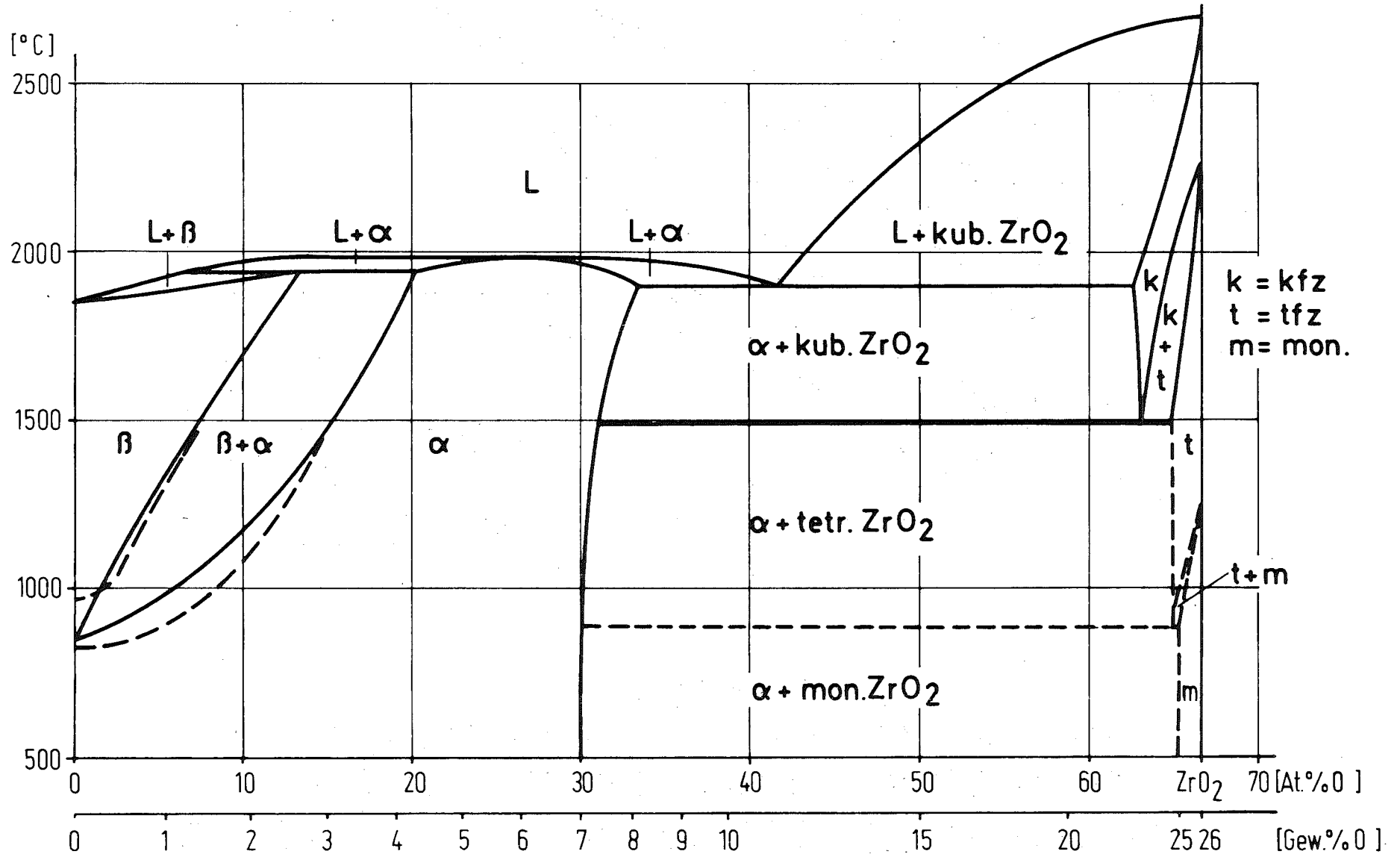


Abb.4235-23 ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

TRANSIENTE ZEIT-TEMPERATUR-VERLÄUFE MIT ANGABE DER GEWICHTS-
ZUNAHME NACH DURCHLAUFEN UNTERSCHIEDLICHER BLOWDOWN-PEAKS
(950-1200°C) MITTELWERTE AUS 3 MESSUNGEN

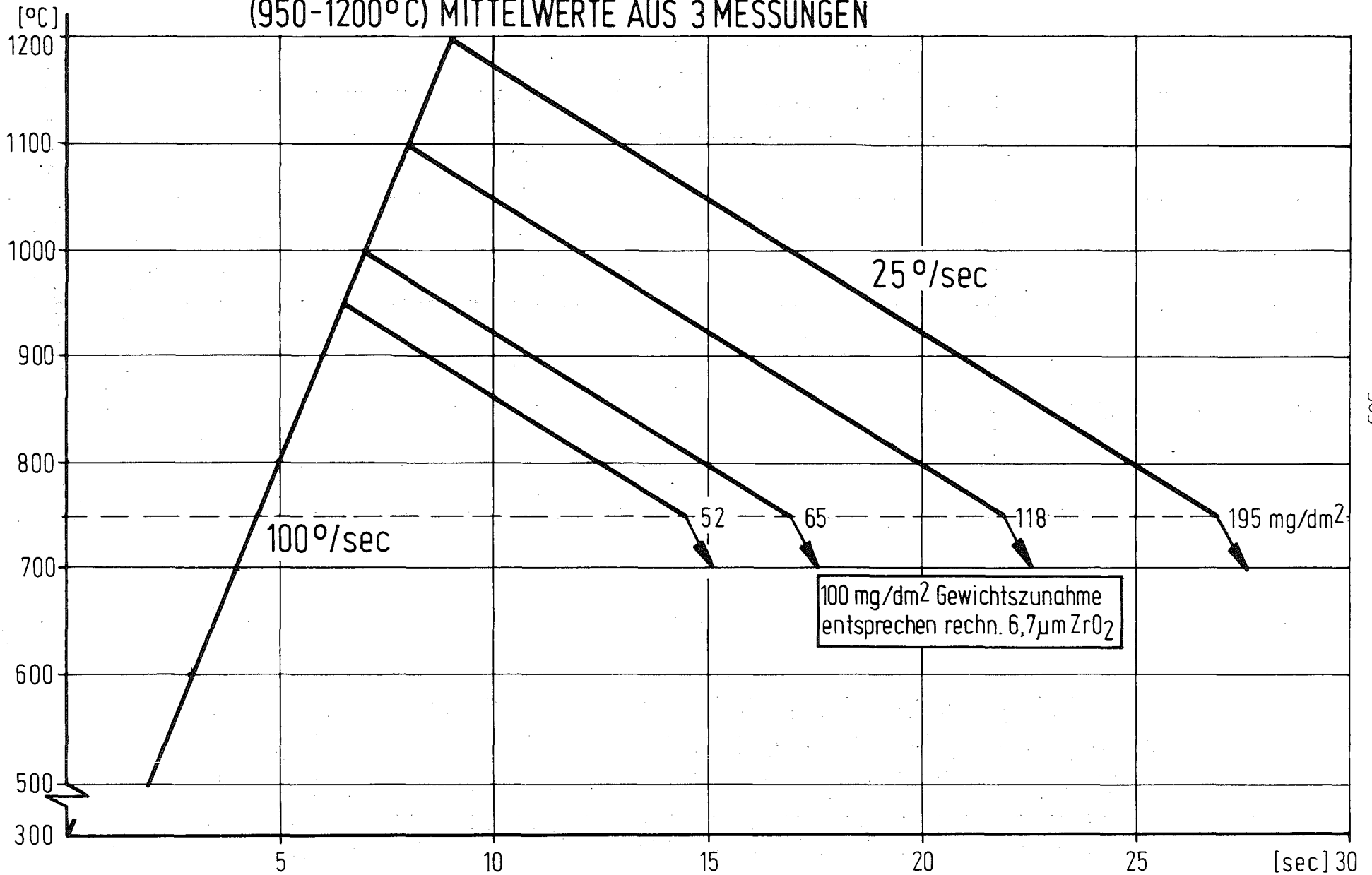


Abb.4235-24 ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

ANGENÄHERT ISOTHERME UND TRANSIENTE ZEIT-TEMPERATUR-VERLÄUFE
 MIT ANGABE DER GEWICHTSZUNAHMEN NACH VERSUCHSABBRUCH RESP. -ENDE
 (1m/s,1at) MITTELWERTE AUS 3-4 MESSUNGEN, FEHLERGRENZE ± 6%

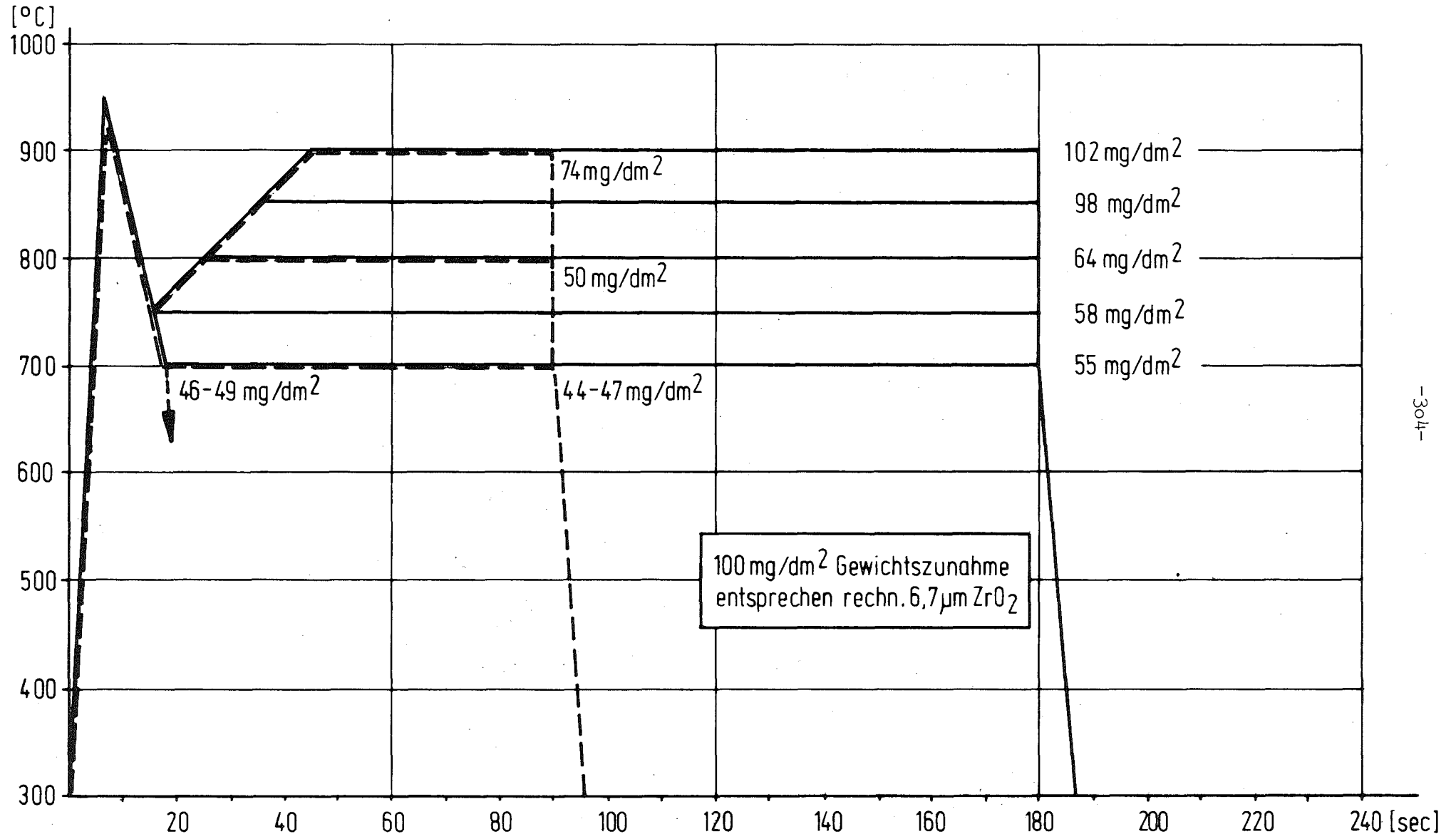
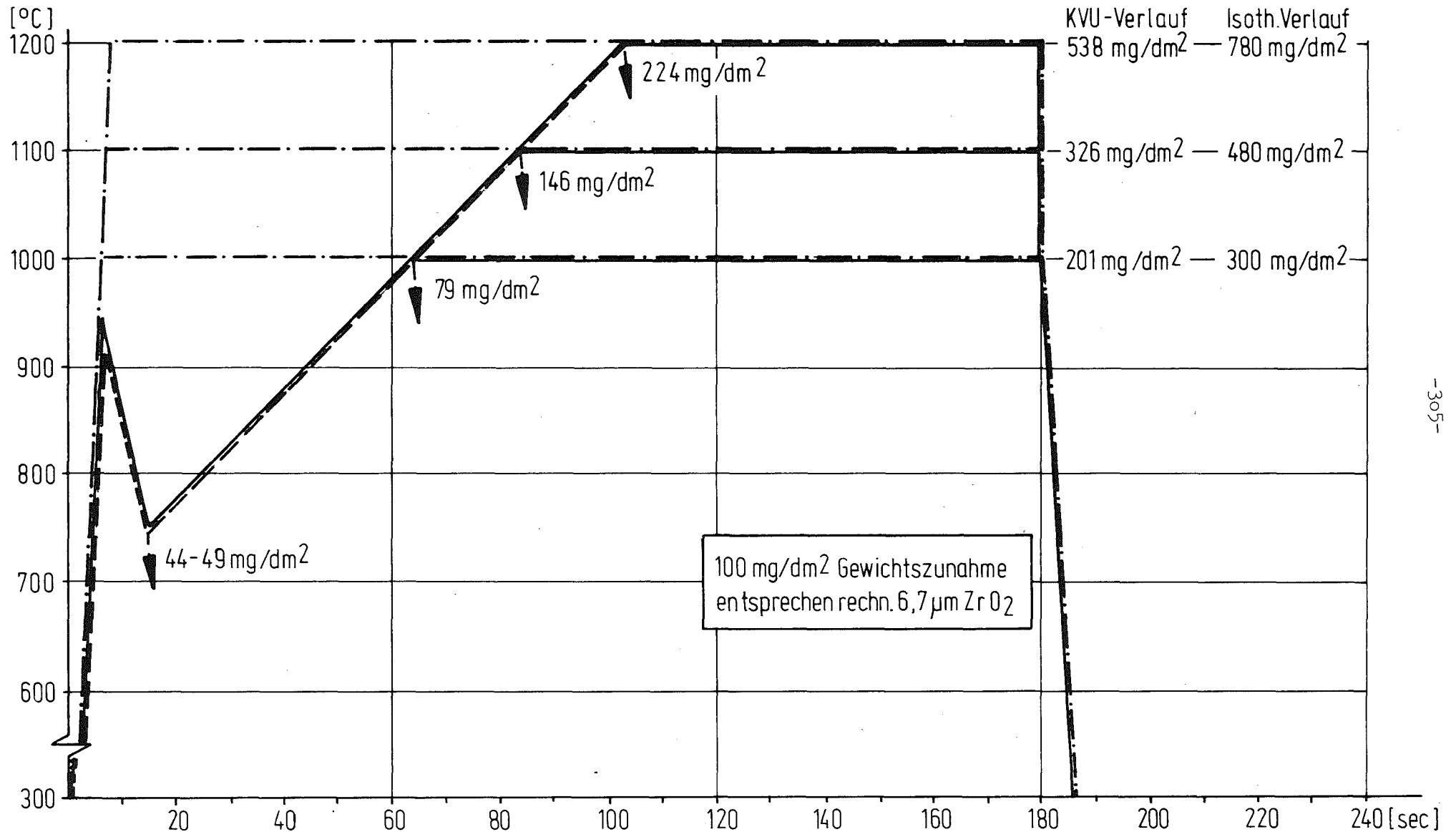


Abb.4235-25 ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

ANGENÄHERT ISOTHERME UND TRANSIENTE ZEIT-TEMPERATUR-VERLÄUFE
 MIT ANGABE DER GEWICHTSZUNAHMEN NACH VERSUCHSABBRUCH RESP. -ENDE
 (1m/s, 1at) MITTELWERTE AUS 3-4 MESSUNGEN, FEHLERGRENZE ± 6 %



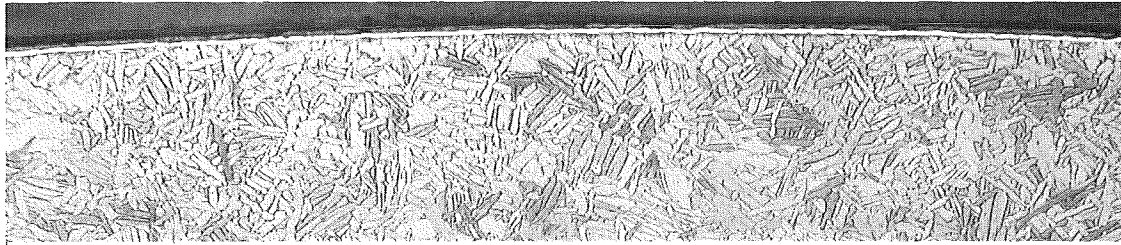
ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION Abb.4235-26

METALLOGRAPHISCHE QUERSCHLIFFE DOPPELSEITIG OXIDIERTER ROHR-
PROBEN NACH TRANSIENTEN ZEIT-TEMPERATUR VERLÄUFEN

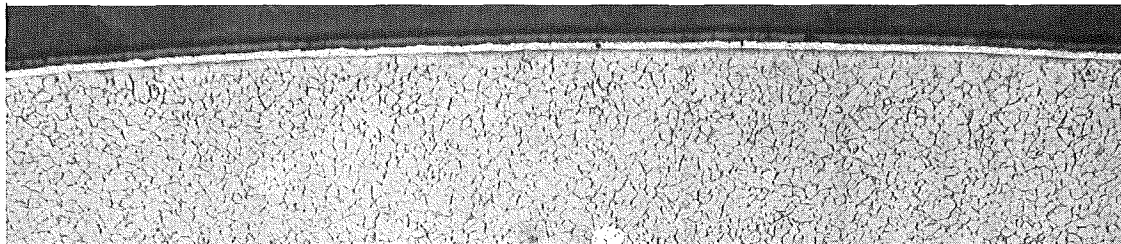
3min, 950 - 750 - 800/900/1000/1100/1200°C

50 μm \longleftarrow

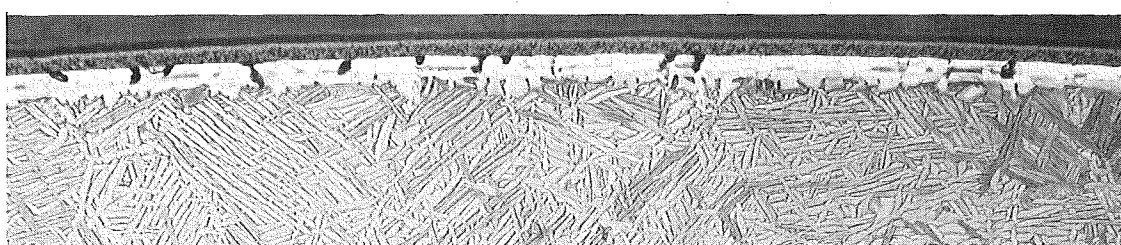
-306-



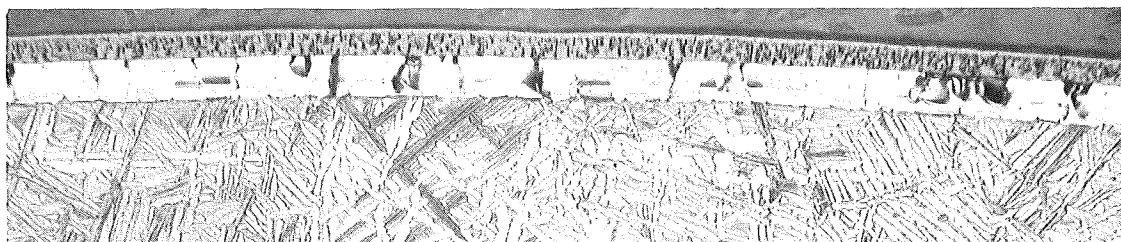
800°C



900°C



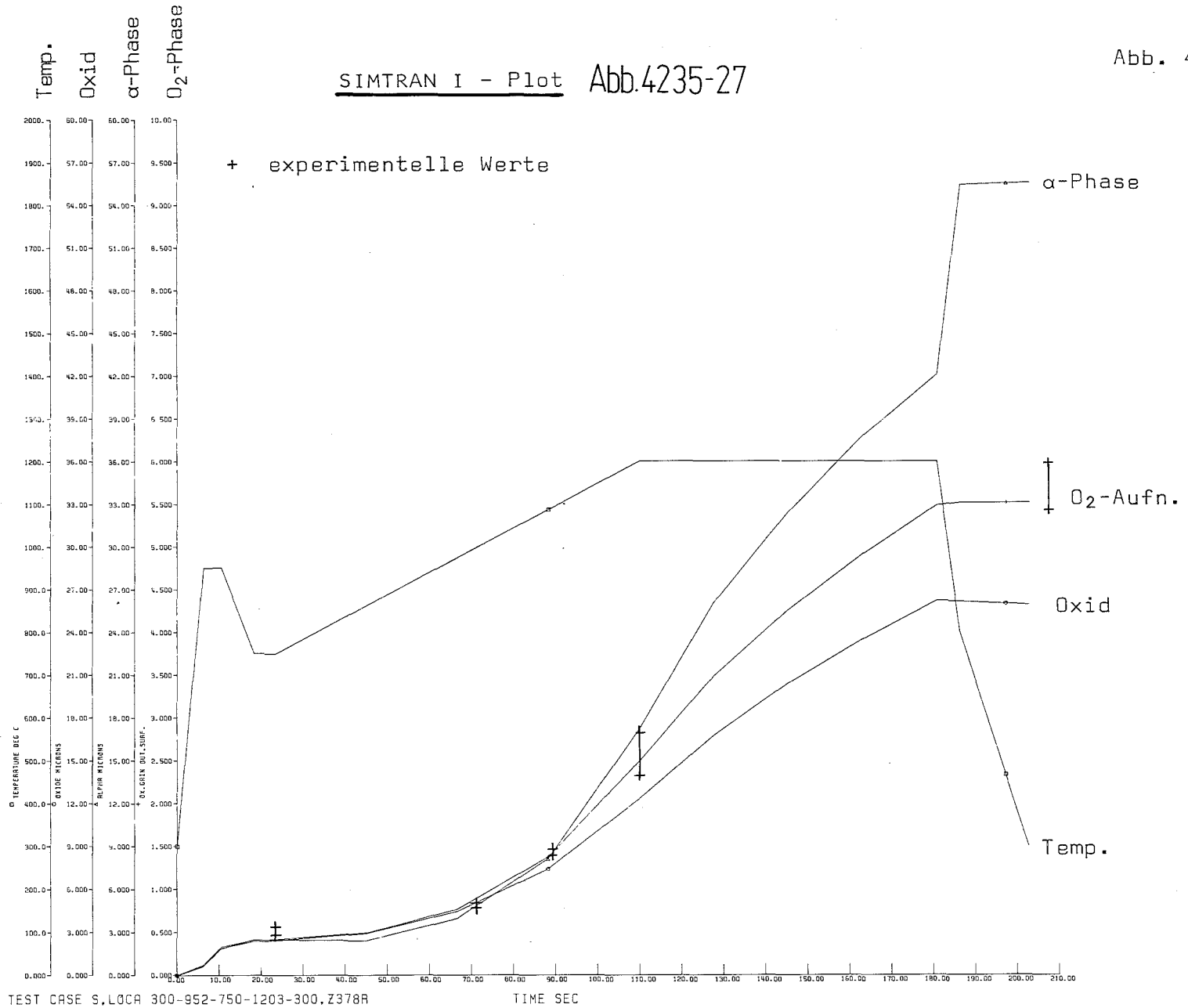
1000°C



1100°C

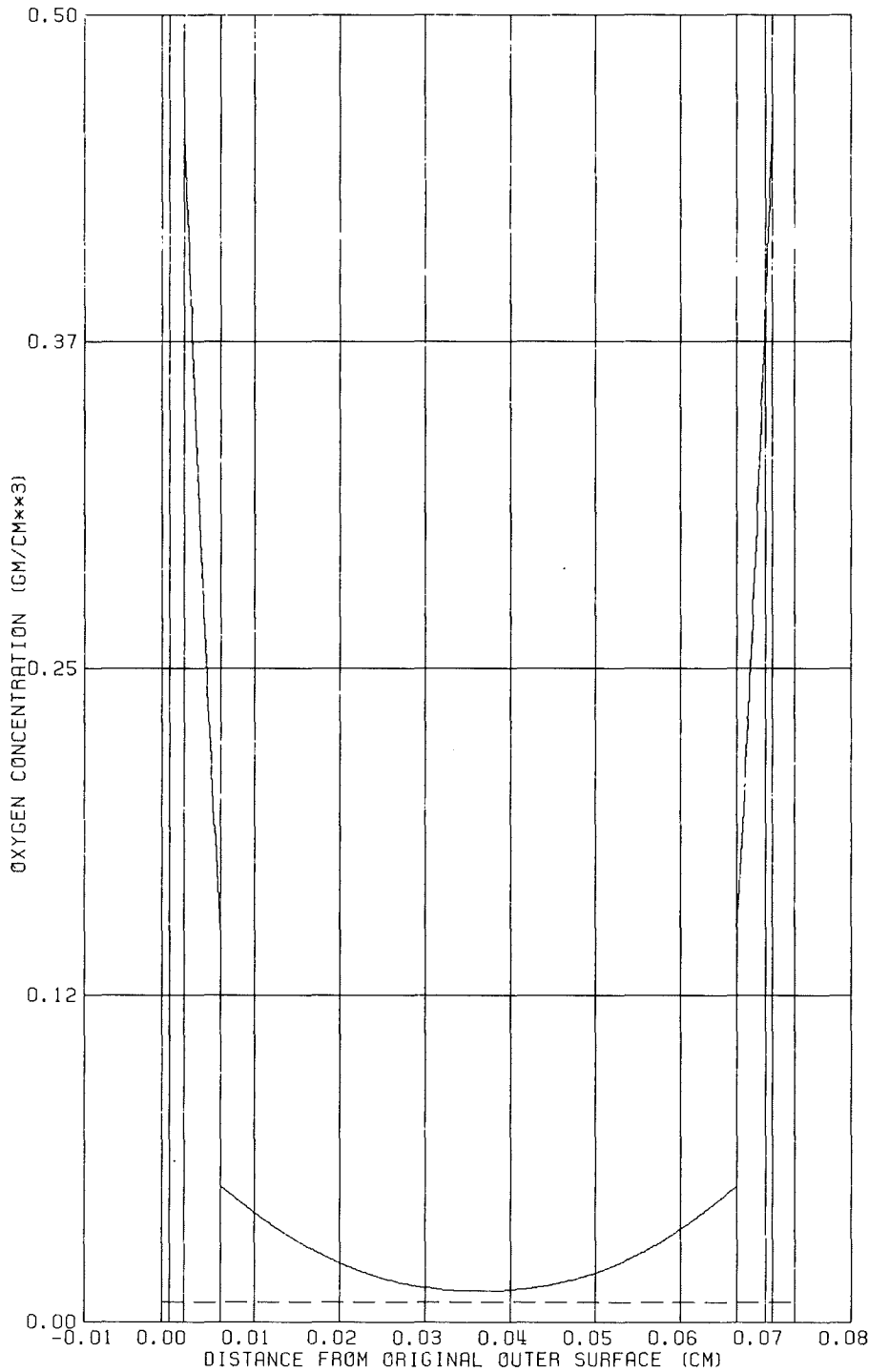


1200°C



TEST CASE S.LOCA 300-952-750-1203-300.Z378R

Temperatur, Schichtstärken und Sauerstoffaufnahme während eines hypothetischen Störfallverlaufs.



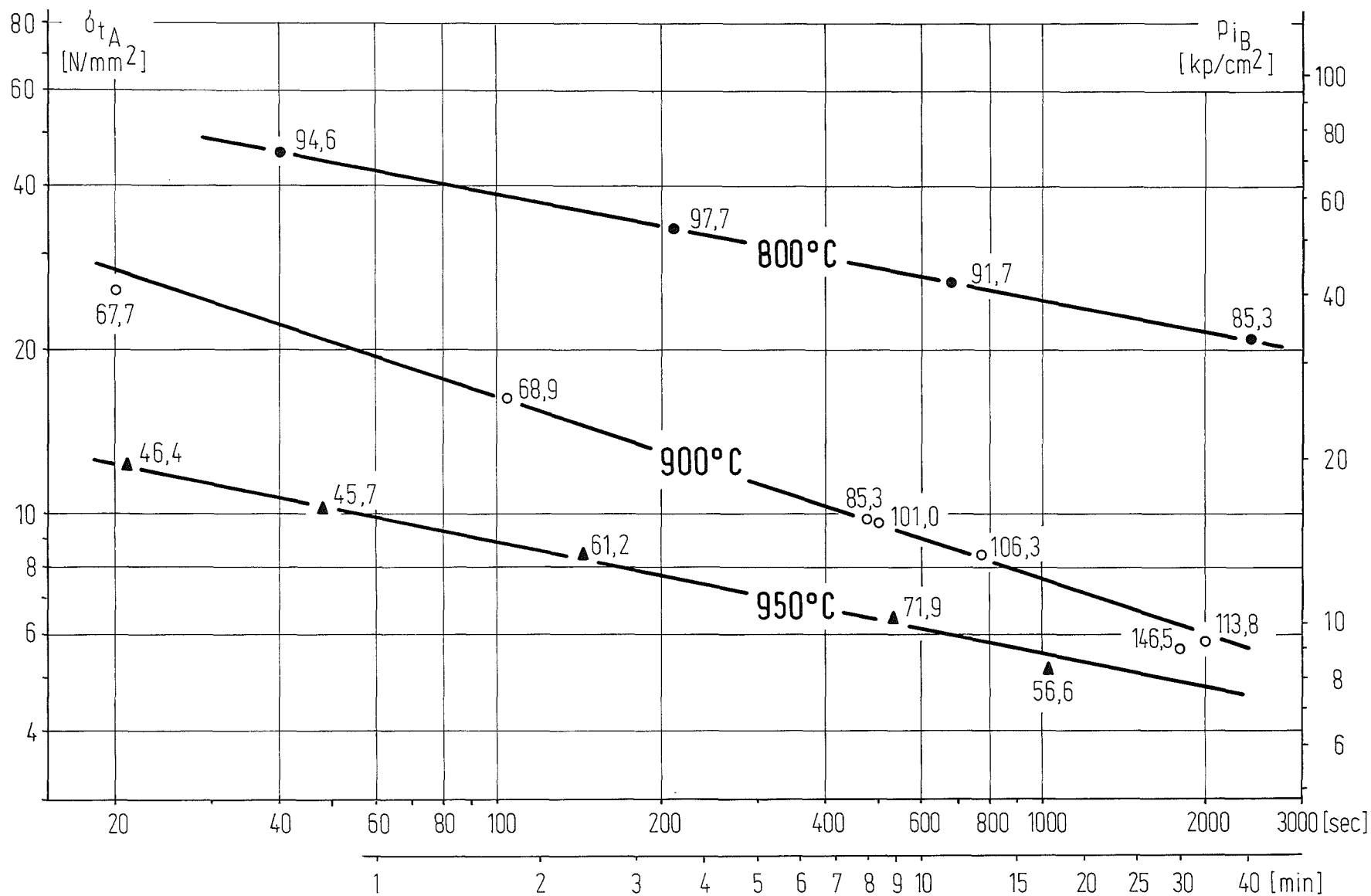
TIME=181. SEC
T= 1203. DEG. C
LAYER THICKNESS (MICRONS)
ZR02 26.3
ALPHA 26.2
BETA 41.8
606.2
OXYGEN CONTENT (MG/CM**2)
ZR02 3.83
ALPHA 3.31
BETA 1.22
TOTAL 1.06
10.82
C0 1.41
GAIN 0.54
5.50
4.78

37806.

TEST CASE S, LOCA 300-952-750-1203-300, Z378R

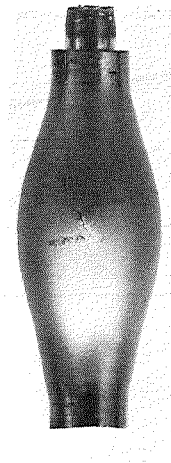
SIMTRAN I - Plot: Sauerstoff-Konzentrationsprofil in α - und β -Phase vor Abkühlung von Maximaltemperatur des hypothetischen Störfalls.

Abb. 4235-29 ROHRINNENDRUCK - KURZZEITSTANDPRÜFUNG
 VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON
 MIT ANGABE DER UMFANGSDEHNUNG IN %



ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON BEI 800°C

Frontansicht
der Berststelle



Seitenansicht
der Berststelle



t [min, s]; p_{iB} [at]
 σ_{tA} [N/mm²]; ϵ_B [%] 40'; 70,8
 46,0; 94,6

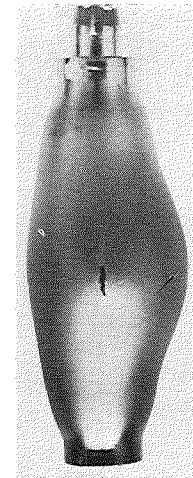
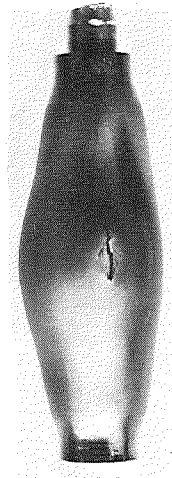
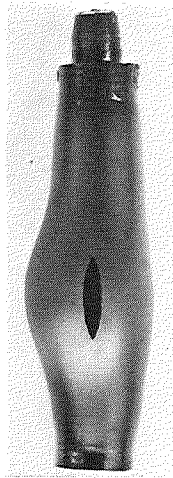
2'30'; 51,8
33,5; 97,8

11'16'; 41,2
26,7; 91,8

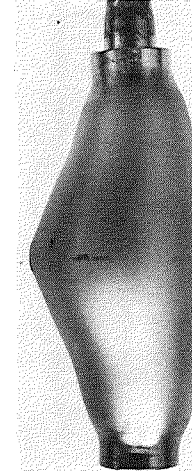
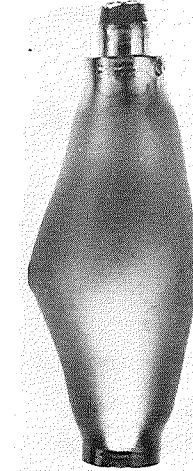
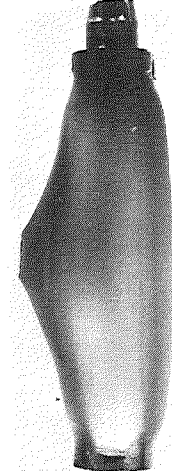
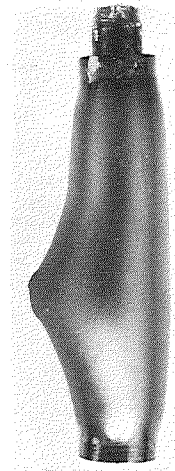
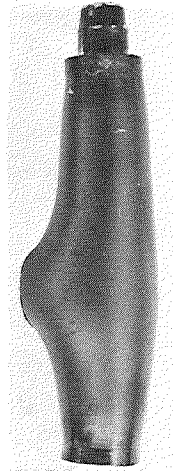
40'5"; 32,4
21,0; 85,3

ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALLOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON BEI 900°C

Frontansicht
der Berststelle



Seitenansicht
der Berststelle



t [min,s]; p_{jB} [at]
 σ_{tA} [N/mm²]; ϵ_B [%]

20''; 40,0

25,9; 67,7

1'44''; 25,0

16,2; 68,9

7'52''; 15,0

9,8; 85,3

12'46''; 13,3

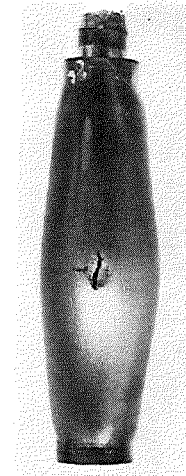
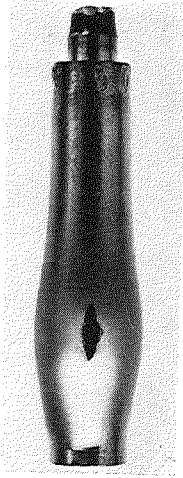
8,5; 106,0

33'14''; 9,0

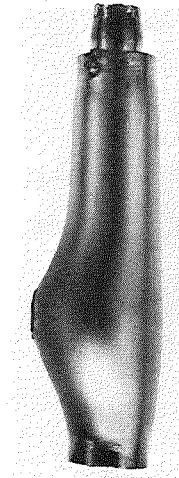
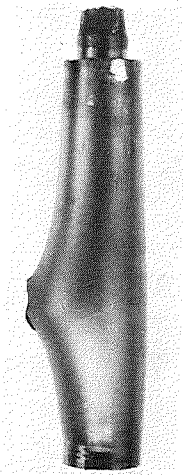
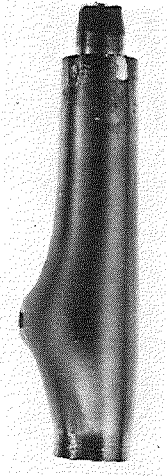
5,8; 113,8

ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON BEI 950°C

Frontansicht
der Berststelle



Seitenansicht
der Berststelle



t [min, s]; p_{iB} [at]
 σ_{tA} [N/mm²], ϵ_B [%]

21''; 19,0
12,3; 46,4

48''; 16,0
10,3; 45,7

2' 24''; 13,1
8,5; 61,2

8' 52''; 10,1
6,5; 71,9

17' 14''; 8,0
5,2; 56,6

-312-

Abb. 4.235-32

Abb.4235-33 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG
 VON ZIRCALOY 4-ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON
 GESAMTHEIT GEMESSENER MAX. UMFANGSDEHNUNGEN ALS FUNKTION DER
 TEMPERATUR

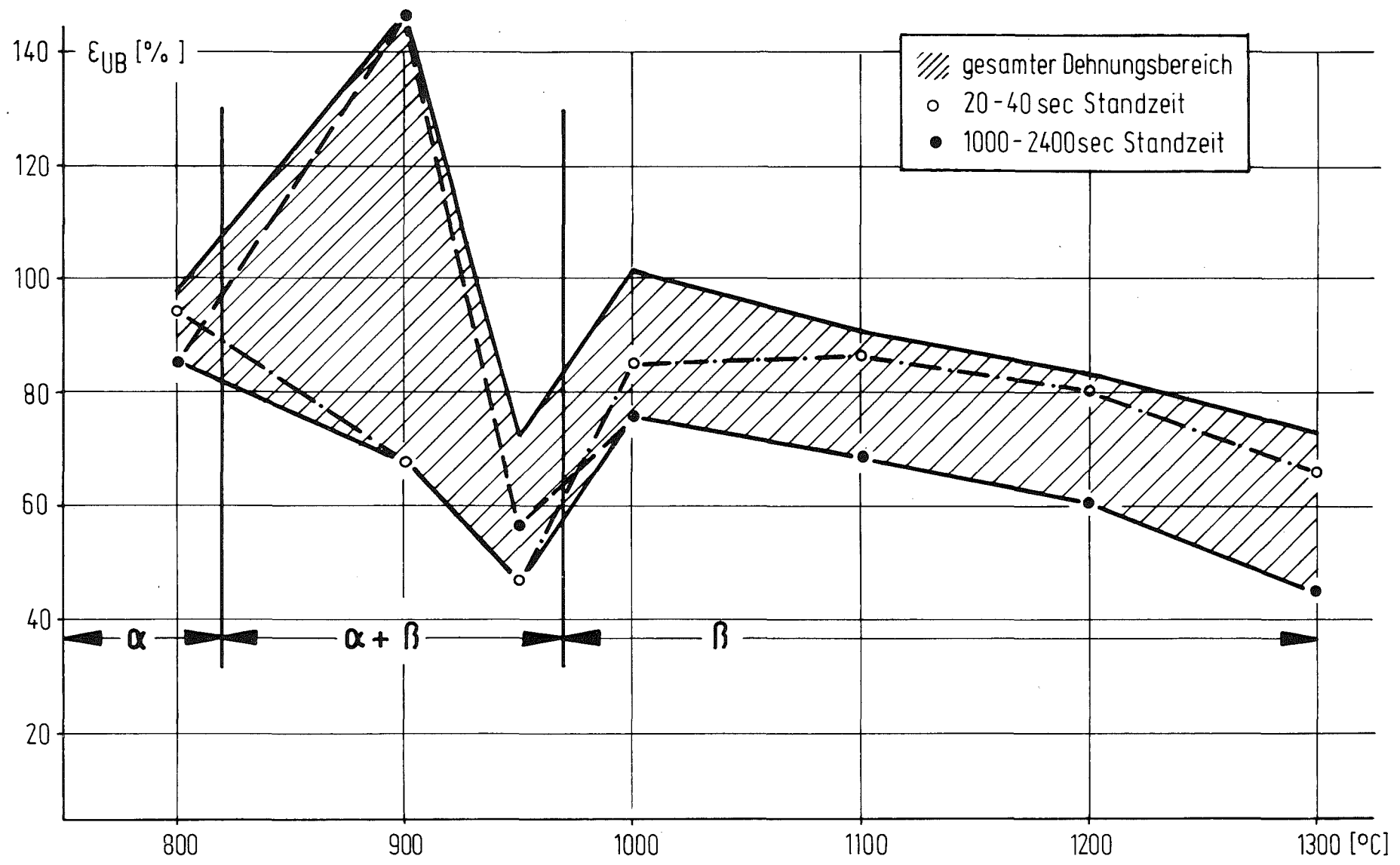


Abb.4235-34 ROHRINNENDRUCK - KURZZEITSTANDPRÜFUNG
 VON ZIRCALOY 4 - ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON

ZUNAHME DES INNEREN VOLUMENS DER KAPSELN INFOLGE KRIECH-
 DEHNUNG BIS BRUCH ALS FUNKTION DER STANDZEIT (MIT ANGABE
 DER MAX. UMFANGSDEHNUNG IN %)

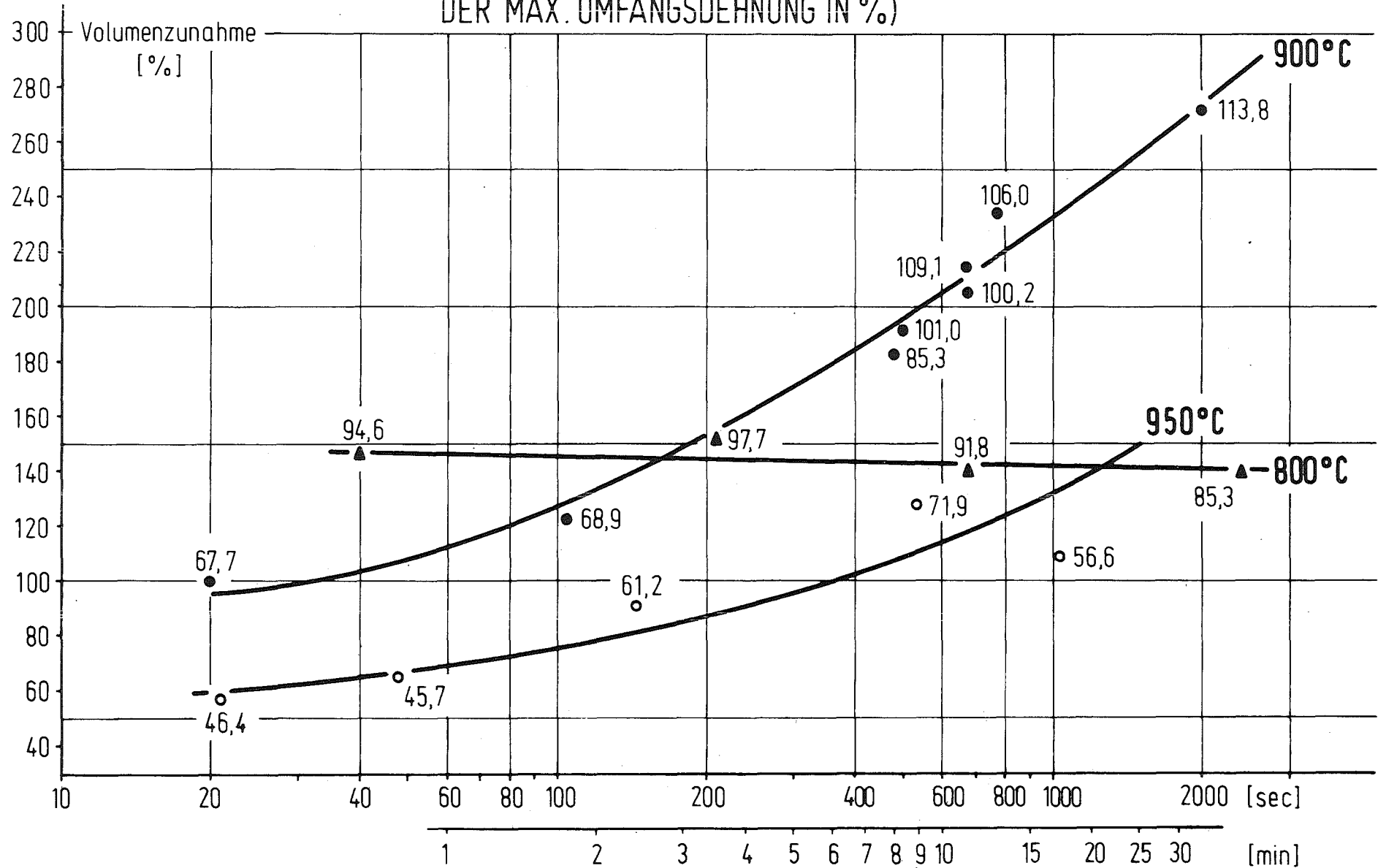
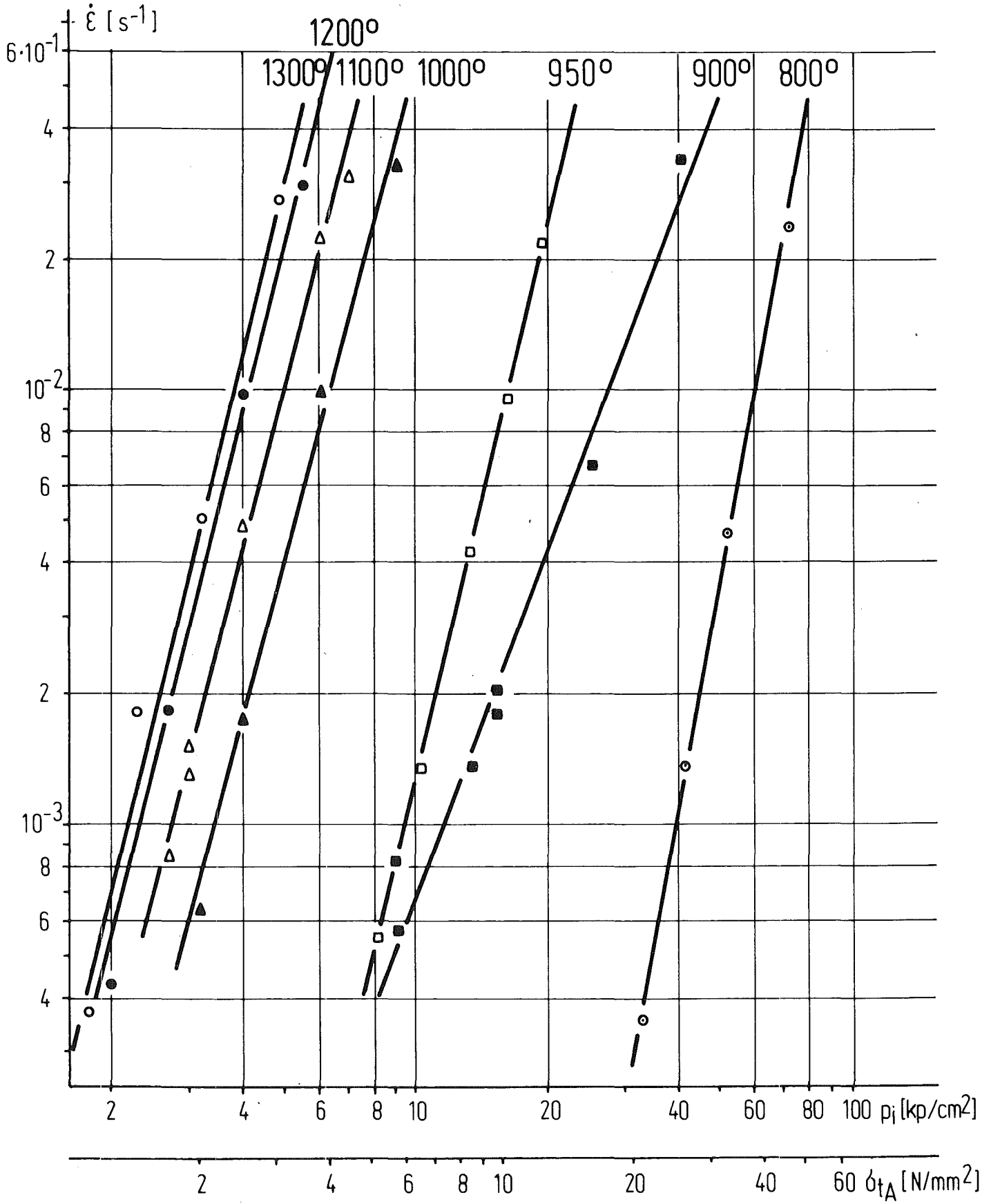


Abb.4235-35 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON KRIECHGESCHWINDIGKEIT ALS FUNKTION DER SPANNUNG (T=800-1300°C)



4235.3 Untersuchungen zum Einfluss des Oxidbrennstoffes auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren

(P.Hofmann, C.Politis, K.Kurz, H.Metzger, G.Rejman, B.Scheckel; IMF I)

Einfluss der Innenkorrosion auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-4-Hüllrohren

In Fortsetzung früherer transientser Glühexperimente an mit UO_2 -Pulver bzw. -Pellets gefüllten Zry-4-Rohrproben mit 1 bar Vorinnendruck /19/, wurden weitere Versuche, vorwiegend mit höheren Vorinnendrücken, durchgeführt. Ziel dieser Untersuchungen war es, den Einfluss der chemischen Wechselwirkungen zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial auf die mechanischen Eigenschaften des Zircaloy bei höheren Differenzdrücken und daraus resultierenden grösseren Verformungsgeschwindigkeiten zu untersuchen. Die Zry-4-Rohre kamen im Anlieferungszustand zum Einsatz. Der Brennstoff wurde vor der Verwendung zwischen 600 und 1000°C im Hochvakuum getrocknet. Die Probenpräparation erfolgte in Handschuhboxen unter Schutzgas.

Die Berstversuche erfolgten mit ca. 60 mm langen Rohrproben unter Argon (600 Torr). Die Prüflinge wurden in einen auf 1100°C gehaltenen Ofen gebracht. Je nach Füllung der Rohrproben (Argon, UO_2 -Pulver/-Pellet) lag die Aufheizgeschwindigkeit des Zry bei Temperaturen $\leq 800^\circ C$ im Bereich zwischen etwa 12 und 6°C/s. Der Vorinnendruck in den Rohrproben bei Raumtemperatur wurde zwischen 1 und 60 bar variiert. Während der Aufheizperiode kam es zu einem temperaturbedingten Druckanstieg in den Prüflingen; die Maximaldrücke betragen etwa 110 bar. Parallel zu den drucktransienten Experimenten wurden auch Versuche mit konstantem Innendruck (≤ 30 bar) durchgeführt. Neben der Hüllmaterial-Temperatur wurde bei diesen Versuchen auch der Gasinnendruck kontinuierlich gemessen.

Die Bersttemperatur der Zry-Rohre hängt von der mechanischen Beanspruchung des Zry ab, die durch den wirksamen Differenzdruck bestimmt wird. Je kleiner der Differenzdruck in den UO_2 - bzw. Ar-gefüllten Rohrproben ist, desto höher sind die Bersttemperaturen und desto länger die Glühzeiten bis zum Bersten. Im Hinblick auf die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry sollten daher kleine Differenzdrücke stärkere Reaktionen zur Folge

haben. Das Ausmass der Reaktionen an der Phasengrenze UO_2/Zry hängt aber - neben der Temperatur und Zeit - auch von den Kontaktverhältnissen ab. Bei den hier vorliegenden Verhältnissen ist zu erwarten, dass der Sauerstoff des UO_2 über die Gasphase zum Zry transportiert wird. Dem Sauerstoffpotential des UO_2 , das durch das O/U-Verhältnis und die Temperatur bestimmt wird, kommt daher für die Reaktionen mit dem Zircaloy eine besondere Bedeutung zu.

Wie die Versuchsergebnisse zeigen, variieren unter den oben beschriebenen Versuchsbedingungen die Berstdrücke (Differenzdrücke) der UO_2 und Ar-gefüllten Rohrproben unter Schutzgas zwischen etwa 1,1 und 95 bar, die entsprechenden Bersttemperaturen zwischen 1100 und 780°C und die Zeit bis zum Bersten zwischen 3300 und 55 s.

Die Berstdehnungen der Rohrproben liegen zwischen 30 und 130% und zeigen bei etwa 950°C an der Phasengrenze $(\alpha+\beta) \rightarrow \beta$ des Zry ein Minimum mit Werten $<70\%$, unabhängig von der Füllung der Rohrproben (Abb. 4235-36). Ähnlich grosse Umfangsdehnungen wurden auch von anderen Experimentatoren bei Berstversuchen mit Zry-Hüllrohren unter Schutzgas beobachtet /20,21/. Die Berstdehnungen der Rohrproben sind unter sonst gleichen Randbedingungen vom Druckverlauf in den Prüflingen abhängig, nicht aber dagegen die Bersttemperatur und der Berstdruck. Die maximalen Umfangsdehnungen allein stellen daher keine geeignete Grösse dar, um den Einfluss der Aussen- und Innenkorrosion auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren zu beurteilen.

In bezug auf die Berstdaten (Temperatur, Druck) geht bei Differenzdrücken >20 bar der Einfluss der chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry zurück. Die UO_2 -gefüllten Rohrproben und die Ar-Vergleichsproben bersten bei diesen Drücken unter Schutzgas zwischen etwa 780 und 950°C . Zwischen den drucktransienten und isobaren Berstversuchen sind keine Unterschiede festzustellen. Bei den Berstdaten ist jedoch zu beachten, dass die Aufheizgeschwindigkeiten der UO_2 - und Ar-Proben nicht gleich sind. Wie eigene Untersuchungen sowie die von D.O.Hobson und P.L. Rittenhouse /20/ bzw. von D.G.Hardy /21/ zeigen, hängt die Bersttemperatur und der entsprechende Berstdruck auch von der Aufheizgeschwindigkeit

ab. Weitere Berstexperimente mit gleichen Aufheizgeschwindigkeiten von verschiedenen Prüflingen sind daher erforderlich.

Was die Berstdehnungen anbelangt, so liegen diese bei den Experimenten unter Schutzgas und Differenzdrücken >20 bar zwischen 30 und 90%. Hinsichtlich der maximalen Umfangsdehnungen sind bei den drucktransienten Experimenten keine Unterschiede zwischen den UO_2 - und Ar-Proben festzustellen. Dagegen werden bei den isobaren Experimenten die maximalen Dehnwerte bei den UO_2 -gefüllten Rohrproben beobachtet.

Bei kleinen Differenzdrücken (<10 bar) sind im Hinblick auf die Berstdaten sowie der Berstdehnungen zum Teil Unterschiede zwischen den UO_2 - und Ar-gefüllten Rohrproben festzustellen, die noch genauer untersucht werden müssen.

Auswahl einer geeigneten Heizmethode von Zry-Rohren zum Studium der Innenkorrosion

Bei einem Kühlmittelverlustunfall (LOCA) können Hüllmaterial-Aufheizgeschwindigkeiten bis zu etwa $150^{\circ}C/s$ auftreten. Als Wärmequelle dient dabei der Brennstoff, der während des Betriebes und zu Beginn eines LOCA eine deutlich höhere mittlere Temperatur als das Hüllmaterial besitzt und daher die Hülle aufheizt. Zum Studium der Innenkorrosion, speziell zwischen Brennstoff und Hülle, sollte bei out-of-pile Experimenten der Brennstoff in etwa die gleiche Temperatur besitzen wie das Hüllmaterial. Diese Forderung stellt das wichtigste Kriterium für die Auswahl der Heizmethode für Simulationsexperimente dar.

Die Aufheizung von UO_2 -gefüllten Rohrproben mittels Wärme-Strahlung von außen, ähnlich wie sie bereits früher beschrieben wurde und wie sie bei den oben beschriebenen Experimenten angewandt wurde, ist nur für Aufheizgeschwindigkeiten bis zu etwa $25^{\circ}C/s$ geeignet. Die Temperaturdifferenz zwischen dem Hüllrohr und dem Brennstoff beträgt dabei i.a. $< 100^{\circ}C$. Aufheizgeschwindigkeiten des Hüllrohres bis zu $150^{\circ}C/s$ erhält man durch direkten Stromdurchgang und/oder durch induktive Aufheizung der Zry-Rohre. Um Aussagen über die Temperaturdifferenz zwischen dem Hüllrohr und dem Brennstoff bei so großen Aufheizgeschwindigkeiten machen zu können, wurden kurze mit UO_2 -Pellets gefüllte Hüllrohre induktiv (Hochfrequenz) auf-

aufgeheizt und der Temperaturverlauf gemessen. Die Versuchsanordnung ist in Abb.4235-37 dargestellt. Die Versuchsergebnisse zeigen, daß je nach Ausgangstemperatur, Gasfüllung und Gasdruck bei maximaler Generatorleistung die Aufheizgeschwindigkeiten zwischen 40 und 150°C/s variieren. Die Temperaturdifferenzen zwischen dem Zry (Innenoberfläche) und UO₂ (Zentraltemperatur) betragen dabei bis max. 700°C. Das UO₂ ist z.T. noch "kalt", obgleich das Hüllmaterial eine Temperatur von 900 bis 1000°C besitzt. Ähnliche Ergebnisse erhält man bei der Aufheizung der Rohre mittels direkten Stromdurchgangs. Die Temperaturverhältnisse sind bei diesen Heizmethoden relativ ungünstig, um chemische Wechselwirkungen zwischen dem UO₂ und Zry zu studieren, da sie gerade umgekehrt wie in der Praxis sind. Im Gegensatz zur Methode des direkten Stromdurchgangs besitzt die Methode der induktiven Aufheizung der Rohrproben den Nachteil, daß während der Verformung der Rohrproben die Wärme nicht mehr gleichmäßig in der ganzen Probe erzeugt wird, sondern an Stellen, an denen eine Oberflächenvergrößerung bzw. Wandstärkenminderung auftritt. Eine auftretende Beule wird daher stärker aufgeheizt als das unverformte Hüllrohr. Inwieweit dieser Effekt bei sehr hohen Aufheizgeschwindigkeiten zum Tragen kommt, müßte noch untersucht werden.

Aufgrund dieser Überlegungen scheint die Aufheizung der Rohrproben durch einen zentralen Heizleiter mit ringförmigen UO₂-Pellets die optimale Lösung darzustellen, da bei dieser Heizmethode die Temperaturverhältnisse praxisrelevant sind. U.U. kann der Brennstabsimulator auch noch zusätzlich von außen mittels Wärmestrahlung aufgeheizt werden.

Bestimmung der Hüllrohr-Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$

Die Vorversuche zur Bestimmung der Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$ der Zry-Hüllrohre mittels lichtoptischer Verfahren und zur Auswahl einer geeigneten Kamera wurden abgeschlossen. Die Experimente haben gezeigt, daß bei geeigneter Fixierung der kurzen Rohrproben die radiale Aufweitung kontinuierlich gemessen werden kann. Die Bestimmung von $\dot{\epsilon}$ erfolgt dann mittels eines Flächenanalysators, der an einen Computer angeschlossen ist. Dabei wird die Zunahme der Querschnittsfläche als Funktion der Zeit bestimmt.

Kinetik der chemischen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hüllmaterial bei hohen Temperaturen

UO₂ und Zry sind thermodynamisch nicht stabil, d.h. es kann bei höheren Temperaturen zu chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO₂ und Zry kommen /22,23,24/. Unter normalen Reaktorbetriebsbedingungen sind die Hüllmaterial-Temperaturen jedoch so niedrig, daß die chemischen Wechselwirkungen tolerierbar sind. Bei höheren Temperaturen sind aber stärkere Reaktionen zu erwarten, die neben der Temperatur und Zeit auch von den Kontaktverhältnissen UO₂/Zry und dem O/U-Verhältnis des Brennstoffes abhängen. Um Aussagen über die Art und das Ausmaß (Kinetik) der chemischen Wechselwirkungen UO₂/Zry machen zu können, wurden deshalb isotherme Reaktionssuche mit UO₂ und Zry-4 durchgeführt. Als Hüllmaterial wurde Zry-4 und als Brennstoff stöchiometrische UO₂-Pellets verwendet. Um reproduzierbare Kontaktverhältnisse zwischen dem UO₂ und Zry zu haben, wurde zwischen zwei Zry-4-Scheiben (15 mm ϕ , 4 mm hoch) ein UO₂-Pellet (9,1 mm ϕ , 6 mm hoch) mit konstantem Druck von etwa 0,65 kp/cm² belastet. Der Druck wurde mittels eines Gewichtes aufgebracht. Die Kontaktflächen UO₂/Zry waren planparallel poliert. Die Versuche erfolgten in einem Hochtemperaturofen mit Wolfram-Heizleiter unter 1 bar Schutzgas. Die Aufheizgeschwindigkeit der Versuchsproben betrug ca. 8-9°C/s. Die Temperatur wurde mittels eines Zweifarben-Mikropyrometer gemessen. Die Glühtemperaturen variierten zwischen 900 und 1300°C bei Glühzeiten zwischen 1 und 65 h.

Typische Versuchsergebnisse sind in den Abb.4235-38,39 wiedergegeben. Die Bilder zeigen die Reaktionszonen an der Phasengrenze UO₂/Zry bei verschiedenen Temperaturen. Mikrosondenuntersuchungen der Reaktionszonen müssen noch durchgeführt werden, um genaue Aussagen über deren chemische Zusammensetzung machen zu können. Abb.4235-38 zeigt die Reaktionszonen nach einer Glühung von 5,5 h bei 1100°C. Es bilden sich vom UO₂ ausgehend eine Zweiphasenzone bestehend aus α -Zr(O) und α -U gefolgt von einer Uran-Zirkonium-Legierung, die noch etwas Sauerstoff enthält sowie von α -Zr(O) und Zry. Abb.4235-39 zeigt die Phasengrenze UO₂/Zry nach einer Glühung von 3 h bei 1300°C. Es bildet sich eine 60 bis 70 μ m breite α -Zr(O)-Phase die noch (γ -U, β -Zr) mit geringen Mengen Sauerstoff enthält. Danach folgt eine sauerstoffhaltige (γ -U, β -Zr)-Legierung; zwischen dieser Phase und dem Zry-4 befindet sich α -Zr(O). Es ist nicht

anzunehmen, daß sich an der Phasengrenze bereits Gleichgewichtszustände eingestellt haben. Die Bildung von ZrO_2 konnte nicht beobachtet werden, da die notwendige Sauerstoffkonzentration aufgrund der großen Beweglichkeit des Sauerstoffs im Zry bei hohen Temperaturen offenbar nicht erreicht werden kann.

- /19/ P.Hofmann et al.
in PNS-Halbjahresbericht 2/75
KFK 2262 (1976)
- /20/ B.O.Hobson, P.L.Rittenhouse
ORNL-4727 (1971)
- /21/ D.G.Hardy
Water Reactor Safety Meeting
Salt Lake City, USA (1973)
- /22/ C.Politis
KFK 2167 (1975)
- /23/ P.Hofmann
KFK 2220 (im Druck)
- /24/ M.W.Mallett et al.
BMI-1028 (1955)

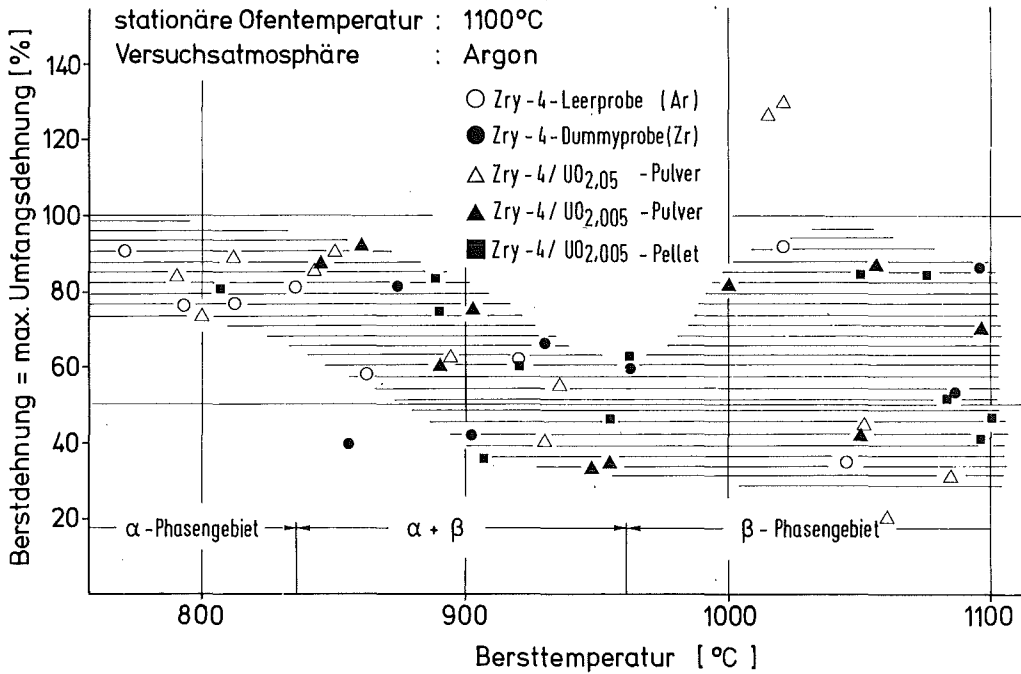


Abb. 4235-36: Burstdehnung von UO_{2+x}- bzw. Argon-gefüllten Zry-Rohrproben in Abhängigkeit der Bursttemperatur. Die Burstversuche wurden unter Schutzgas durchgeführt

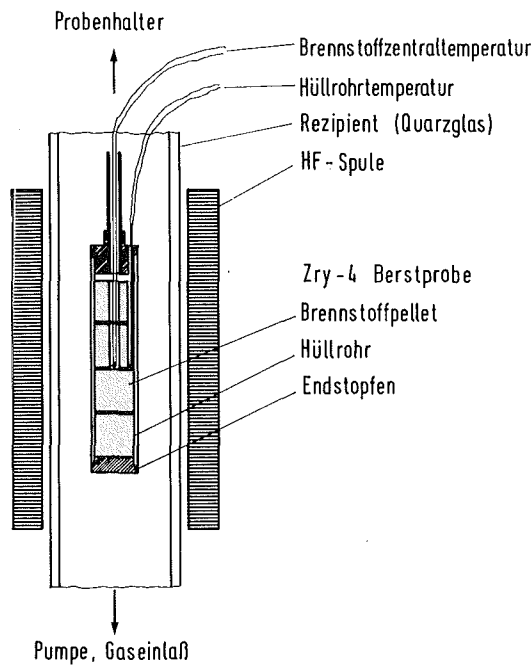


Abb. 4235-37: Versuchsanordnung bei den Experimenten zur induktiven Aufheizung von Zry-Rohrproben

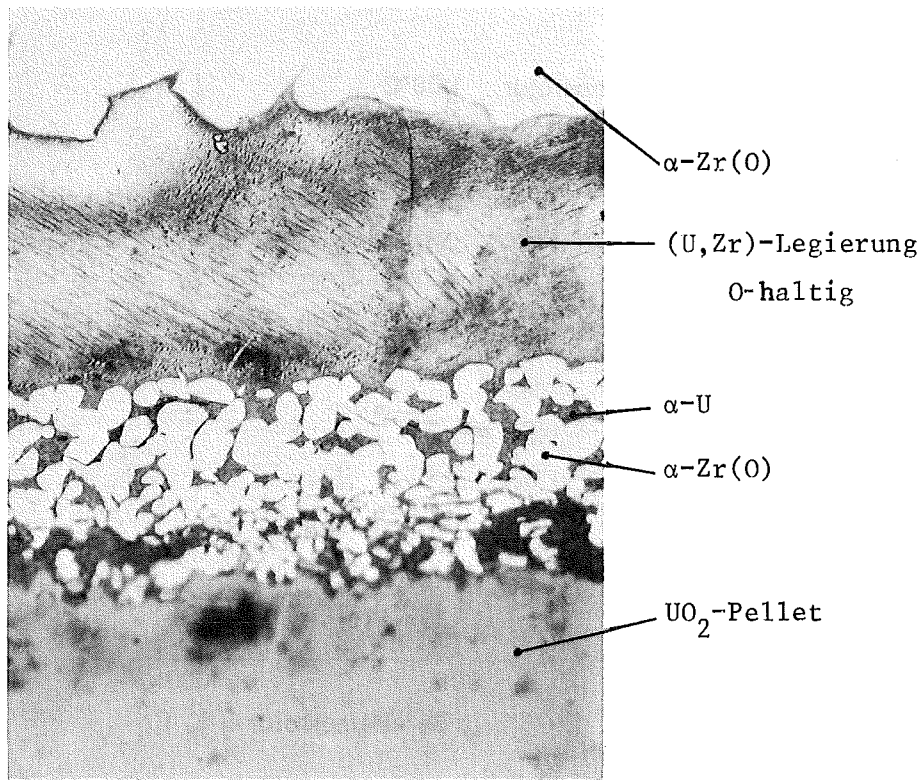


Abb.4235-38: Reaktionsprodukte an der Phasengrenze UO_2/Zry nach 5,5 stündiger Glühung bei 1100°C unter Schutzgas, geätzt, 500 x

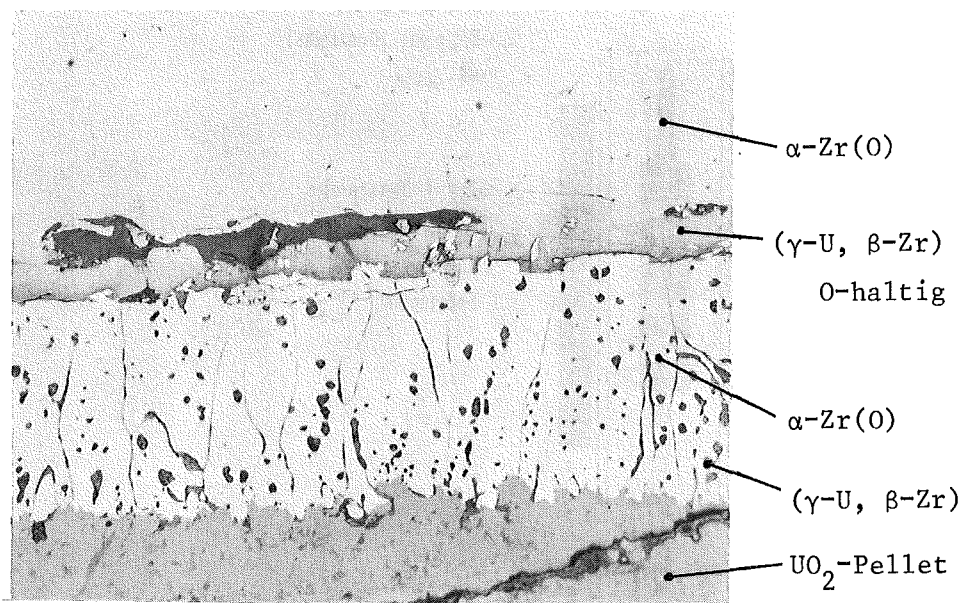


Abb.4235-39: Reaktionsprodukte an der Phasengrenze UO_2/Zry nach 3 stündiger Glühung bei 1300°C unter Schutzgas, geätzt, 200 x

PNS 4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalls

Out-of-pile Experimente mit elektrisch beheizten Einzelstäben.

(G. Class, D. Fömpe, IRE; K. Hain, F. Brüderle, H. Naschwitz, N. Paroth, G. Müller, T. Vollmer, K. Wagner, RBT)

Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Der Anlagenaufbau wurde mit Ausnahme des Teststreckenmittelteiles abgeschlossen, so daß die Gesamtanlage wie in der isometrischen Darstellung der Abb. 4236-1 gezeigt aufgebaut ist.

Druckhalter und Heißwasserkessel befinden sich auf den Galerien des 3. und 2. Obergeschosses der Technikumshalle und bilden den eigentlichen Kesselteil der Anlage, während die Teststrecke in einem eigens dafür aufgebauten zweigeschossigen Experimentiergerüst montiert ist. Umwälzpumpe und Kondensationsbehälter sind im Erdgeschoß bzw. im Keller der Halle stationiert.

Nachdem der druckwasserführende Kreislaufteil mit einer Wärmeisolierung versehen war, konnten im März Inbetriebnahmeversuche aufgenommen werden.

Wegen der noch nicht fertiggestellten Heizstäbe für die Teststreckenbeheizung war als Montagehilfe ein Distanzrohr gleicher Länge in die Teststrecke eingebaut, das lediglich einen Maximaldruck von 50 bar bei 250 °C Betriebstemperatur zuließ. Nach den Optimierungseinstellungen der Regler, der Erprobung aller sicherheitstechnischen Folgeschaltungen bei Grenzwertüberschreitungen und Auslösung mehrerer Blow-down-Vorgänge wurden am 17. Mai die Inbetriebnahmeversuche vorläufig abgeschlossen. Die Kreislaufanlage ist bis zu den genannten Betriebsbedingungen voll funktionstüchtig und betriebsbereit.

Durch nachträglich erhobene Forderungen des TÜV zur Absicherung und räumlichen Abgrenzung des Kesselbereiches wurde es notwendig, Schutzwände um den Druckhalter und Heißwasserkessel zu errichten. Eine doppelte, sich überdeckende Lage Weichholzbretter zur Energieabsorption mit anschließen-

der Blechdichthülle als Spritzschutz, beides eingelegt in eine Rahmenkonstruktion, bilden innerhalb der Technikumshalle zwei weitgehend abgeschlossene Kesselhauszellen mit Ausblaseöffnungen in nicht begehbare Bereiche.

Eine vorläufige Betriebserlaubnis wurde daraufhin durch die Überwachungsbehörde erteilt.

Ein wesentlicher Bestandteil der Versuchseinrichtung ist das zur Messung instationärer Zweiphasenmassenströme entwickelte true-mass-flow-meter, dessen Funktionsweise an einem kalten Versuchsmodell mit Luft-Wasser-Strömungen nachgewiesen wurde. In den Berichtszeitraum fallen die Konstruktion der heißen, druckfesten Ausführung und der Beginn der Fertigungsphase. Aus Termingründen werden gleich drei Meßgeräte parallel gefertigt, wovon zwei in den Versuchsstand eingebaut werden, während ein Gerät zu Eichversuchen in einer Testanordnung (IRB) eingesetzt wird. Zeitraubende Fertigungsver-suche und Materialrecherchen mußten durchgeführt werden, um die enge Beschau-felung von Rotor und Stator in der geforderten hohen Oberflächengüte erzielen zu können. Die Teilefertigung ist etwa zu 80 % abgeschlossen.

Die Detektoren und Strahlenquellen der beiden Gamma-Absorptionsmeßsysteme am Ober- und Unterplenum der Teststrecke, mit denen der zeitliche Verlauf der Kühlmitteldichten während des Blow-down-Vorganges erfaßt werden sollen, wurden vor Ort montiert und ausgerichtet. Sobald die seit längerer Zeit beantragte Umgangsgenehmigung vorliegt, werden die Nullversuche aufgenommen.

Eine weitere neu entwickelte Meßeinrichtung zur Bestimmung der Oberflächen-temperatur am Hüllrohr mit Hilfe einer speziellen Pyrometereinrichtung konnte in einer eigens dazu gebauten Eicheinrichtung erprobt werden. Die Einrichtung ist so ausgelegt und nahe der Teststrecke angeordnet, daß eine Überprüfung der Pyrometerkonstanz jeweils vor und nach einem Versuch möglich ist.

Das Schwergewicht der theoretischen Arbeiten bildete die Erstellung und Programmierung weiterer Teile des Auswerterechenprogrammes. Dabei konnten einige Routinen, die der Ermittlung von Wärmeströmen von der Wandstruktur bzw. den verschiedenen Heizstäben an das Fluid dienen, fertiggestellt und ausgetestet werden. Ebenso wurden einige Subroutinen programmiert, welche Serviceleistungen, wie Einlesen und Sortieren, Glätten und das Umgruppieren

von Daten etc. erbringen. Zur Erstellung IBM-kompatibler Datenbänder wird ein für frühere Experimente erstelltes Konvertierungs-Programm benutzt, das mit nur geringfügigen Änderungen für diesen Auswertungsfall verwendbar ist.

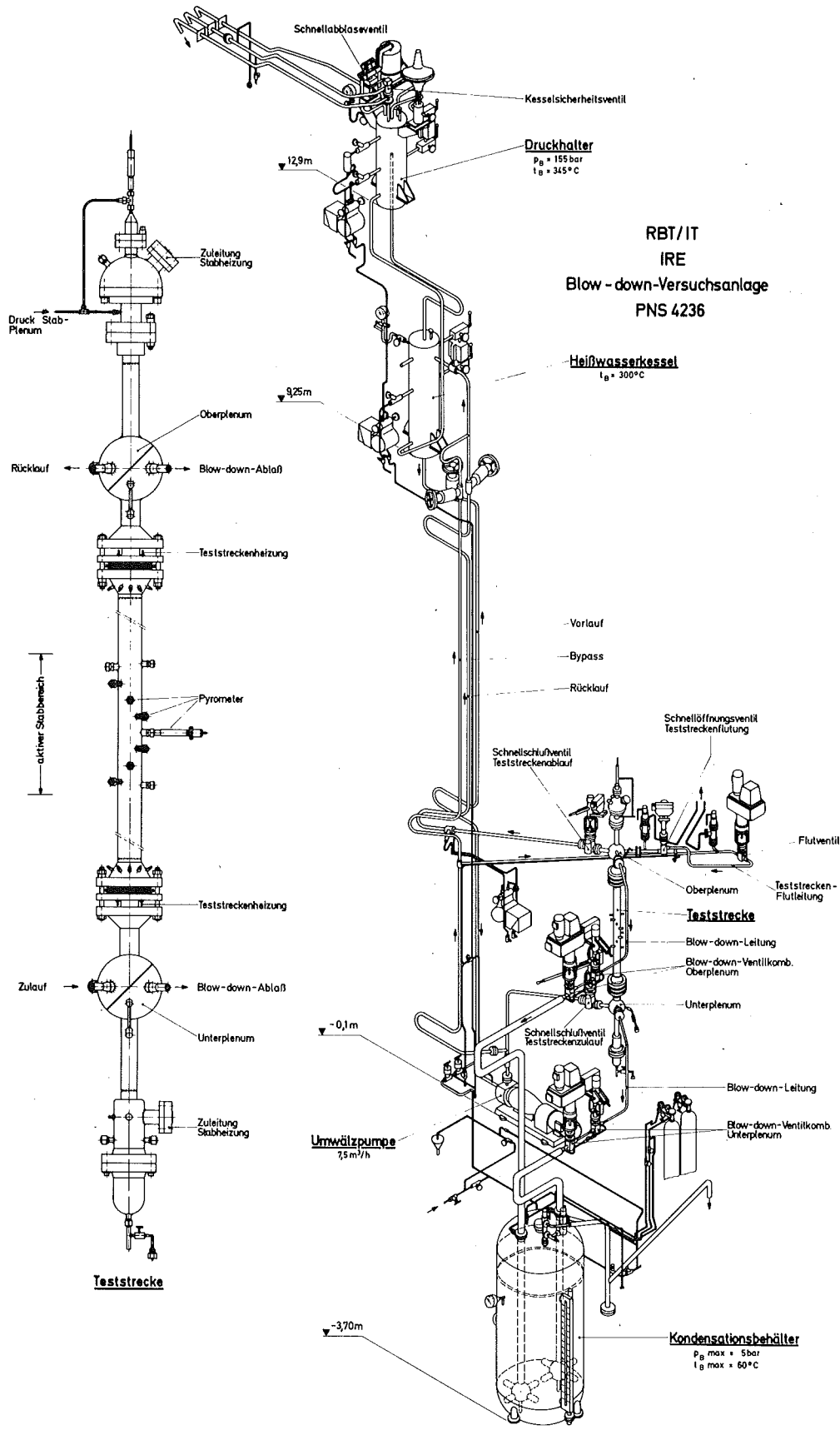
Aufgrund der verbesserten thermohydraulischen Modelle und den in RELAP3 nicht vorhandenen Möglichkeiten, verschiedene Wärmequellen in einem Core-Volumen einzusetzen sowie die Wärmeabgabe der Wandstruktur zu berücksichtigen, sollen die thermohydraulischen Interpolationsrechnungen mit RELAP4 erfolgen. Die für die Übernahme der Versuchsdaten notwendigen Programmänderungen und zusätzlichen Subroutinen wurden vorbereitet bzw. programmiert. Dabei wurde angestrebt, alle von RELAP4 gebotenen Möglichkeiten, einschließlich RESTART, zu erhalten. Aufgrund programmtechnischer Schwierigkeiten bei der Berechnung von Stoffdaten innerhalb RELAP4 konnten Testrechnungen bisher nicht durchgeführt werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nach der Montage des Teststrecken-Mittelteiles werden die Inbetriebnahmeversuche bis zu den vollen Betriebswerten der Anlage ausgedehnt werden.

Da sich aus verschiedenen Gründen Terminverschiebungen ergeben haben, ist nunmehr der Beginn der Blow-down-Vorversuche für das Ende des Jahres 1976 vorgesehen. Terminbestimmend können hierbei das true-mass-flow-meter bzw. die Erstellung der Steuerungs-Software sein.

Die weiteren theoretischen Arbeiten werden sich, neben den Bemühungen um RELAP4, auf die Erstellung der noch ausstehenden Routinen zur Überprüfung der Meßdaten hinsichtlich innerer Konsistenz und zur Interpolation der mit Wärmeübergangsvorversuchsstab. (WUS) gemessenen α -Zahlen für die Simulationsbrennstab (SIM)-Rechnungen konzentrieren. Ebenso stehen noch die Programmteile aus, die die Umwandlung der Meßdaten in Realwerte und eine evtl. Fehlerbehandlung durchführen.



4237.1: Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im Dampf-Kontaminations-Loop (DK-Loop) des FR2
(E.Karb, L.Sepold, K.Baumgärtner, G.Harbauer, W.Leiling, H.Lukitsch, K.Wagner, RBT)

1. Nachuntersuchungen des ersten nuklearen Versuchsstabes

Vom ersten gebeulten Versuchsstab wurden im Berichtszeitraum folgende Nachuntersuchungen in den Heißen Zellen durchgeführt:

- Fotografieren des gesamten Stabes, insbesondere der Beulstelle und der TE-Befestigungen.
- Vermessen des Stabes (Länge, Durchmesser an mehreren Stellen, exakte Vermessung des Beulbereiches, Rißlänge- und -breite).
- Röntgen des Stabes.
- Metallografie (Querschliffe vom Beulbereich, vom ungebeulten Bereich sowie von 2 Wand-TE).

Die wesentlichen Ergebnisse aus den Nachuntersuchungen sind:

- bleibende Längung des Stabes 5,5 mm
- Beulenlänge ca. 60 mm
- größte Umfangszunahme an der Beule 65 %
- Länge des Risses 19 mm
- Max. Rißbreite 1,3 mm

Die Gesamtaufnahmen des Stabes zeigen, daß es neben der großen Beule keine weiteren Beulstellen mehr gibt.

Einen Ausschnitt der Röntgenaufnahmen zeigt Abb. 4237.1-1.

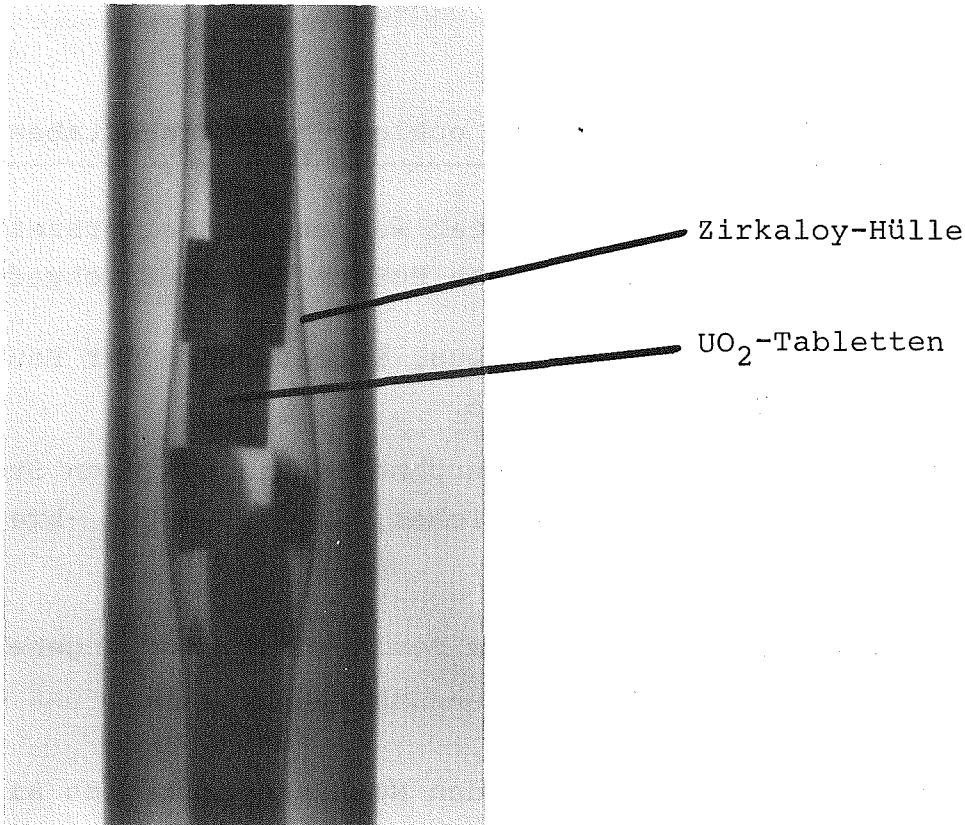


Abb. 4237.1-1
Röntgenaufnahme der Beulstelle
(Versuch A 1.1)

Man erkennt deutlich, daß die Tabletten im Beulbereich zer-
sprungen sind, während sie im ungebeulten Bereich unversehrt
sind.

Aus den Querschliff-Aufnahmen vom Übergangs- wie vom Maximalbe-
reich der Beule geht hervor, daß die Aufbeulung ziemlich kreis-
rund ist. Auf etwa 3/4 des Umfanges ist die Wandstärke konstant
geblieben, während die Dehnungen (Wandstärkeverringering) zur
Rißstelle hin immer stärker zunehmen.

2. Vorbestrahlung der Brennstäbe im FR2

Der dritte Vorbestrahlungseinsatz (Zielabbrand 20000 MWd/t_u) wurde im März dieses Jahres in den FR2-Reaktor eingebracht.

Bisher verlief die Bestrahlung aller drei Einsätze störungsfrei.

3. Datenerfassung und -auswertung

Die Fehler und Meßwertschwankungen im Datenerfassungssystem konnten Anfang dieses Jahres beseitigt werden, so daß das System CALAS die vollständige Protokollierung der Meßdaten während eines Versuches übernehmen kann.

Zur Auswertung der Versuche vom Magnetband wurde ein Rechenprogramm erstellt, das einen Ausdruck und Plot der Meßdaten als Funktion der Zeit erlaubt. Die ersten Versuche sind bereits mit diesem Programm ausgewertet worden.

4. Temperaturmessung der Stabhülle

Da sich die TE-Version bei den ersten beiden Hauptversuchen im Oktober 1975 bewährt hatte, wurde die Spezifikation dieser Vorserie ohne große Änderungen für die Hauptserie übernommen. Ausnahme: Statt des TE-Mantels aus Edelstahl W.Nr. 1.4541 wird Inconel 600 wegen der besseren Zunderbeständigkeit in Wasserdampf verwendet.

Beim Aufhämmern der Platinhülle auf das Thermoelement verhielten sich beide Mantelwerkstoffe gleich. Jedoch wurden mit unterschiedlichen TE-Kabel-Lieferungen unterschiedliche Abreißkräfte der Pt-Hülle erzielt. Nach eingehender Untersuchung aller in Frage kommenden Einflußgrößen ergab sich, daß nur die Wandstärke des TE-Mantels einen Einfluß auf den Hämmervorgang hat. Die besten Ergebnisse lieferten TE-Kabel mit $s = 0,13$ bis $0,15$ mm als Ausgangsmaterial.

Zur TE-Befestigung an vorbestrahlte Prüflinge ist eine Widerstands-Punktschweißmaschine mit Meßgeräten beschafft worden. Die Meßgeräte zur Messung von Übergangswiderstand, Schweißleistung, Strom- und Spannungswerten sollen helfen, die optimalen Einstellungen für eine reproduzierbare Schweißung unter Heißen-Zellen-Bedingungen (fernbedient !) herauszufinden.

5. Versuchskreislauf

Nach der exakten Vermessung und Eichung der neuen Meßblende zur Messung des Dampfmengenstromes erfolgte Anfang dieses Jahres der Austausch gegen die alte Blende im Kreislauf.

Bei der Eichung der neuen Meßblende ergab sich für die Durchflußzahl α folgendes:

Obwohl der Rohrdurchmesser mit NW 10 deutlich unterhalb des Gültigkeitsbereiches von 52 mm bei Normblenden liegt, entsprach der α -Wert beim vorhandenen Öffnungsverhältnis genau dem Tabellenwert der Normblenden nach DIN 1952.

Zur Verbesserung des Sauerstoffangebotes während der Transiente in der Teststrecke wurde der notwendige Dampfmengenstrom ermittelt. Ergebnis: 2 kg/h. Die Grundlage für diese Mengenstrombestimmung waren Versuche in der Apparatur des PNS 4235.2. An Zirkaloy-Rohrproben wurde die Gewichtszunahme durch Oxidation bei drei verschiedenen Dampfdurchsätzen ermittelt.

Der Mengenstrom sollte einerseits ein ausreichend hohes O₂-Angebot gewährleisten, andererseits keine Kühlwirkung des Teststabes während der Aufheizphase bewirken. Die letztere Bedingung forderte in jedem Fall laminare Strömung.

6. Vorbereitung der Versuche mit vorbestrahlten Prüflingen

Für die Montage des vorbestrahlten Prüflings in der Abschirmzelle werden umfangreiche Hilfsvorrichtungen benötigt. Diese Vorrichtungen befinden sich z.Z. in der Konstruktion. Nach der Fertigung beginnt die Erprobungsphase. Alle Komponenten sollen vor ihrem Einsatz kalt (außerhalb der Heißen Zelle) und warm getestet werden.

PNS 4237.2 Referenzversuche zu den in-pile-Experimenten
PNS 4237.1 mit elektrisch beheizten Brennstab-
simulatoren (Einzelstäbe)

(B.Räpple, J.Hauschild, M.Hespeler, W.Knappschneider,
M.Prüßmann, RBT/IT)

1. Durchgeführte Arbeiten

Nach Einbau einer neuen geeichten Meßblende für die Bestimmung des Dampfdurchsatzes im Versuchskreislauf wurden aus der ersten BSS-Heizstabserie zwei weitere Stäbe (BSS O3, BSS O2) in zahlreichen stationären und sechs transienten Versuchen auf ihr Versuchsverhalten getestet. Gleichzeitig wurden Untersuchungen zum Leistungsvergleich thermisch/elektrisch durchgeführt. Zu diesem Zweck wurde BSS O2 mit angereicherten (10%) UO_2 -Ringtabletten anstelle der Al_2O_3 -Ringpellets bestückt. Der Vorteil dieser Anordnung liegt in der Möglichkeit, mit dem gleichen Stab, also bei identischen geometrischen Verhältnissen und vor allem mit der gleichen Instrumentierung direkt vergleichbare Versuchsdaten aus beiden vorkommenden Betriebsarten (nuklear/elektrisch) zu gewinnen.

Mit dem Austausch des äußeren Dampfführungsrohres im Druckrohr wurden die Thermoelemente im äußeren Dampfkanal erneuert, die zur weiteren Untersuchung der Thermodynamik im Prüflingsbereich erforderlich waren.

Die elektrische Stromversorgung für den BSS wurde durch Einbau und Inbetriebnahme der Regeleinrichtung für die Konstanthaltung der elektrischen Leistung ergänzt. Die Regeleinrichtung wurde beim Versuchsbetrieb des BSS O2 bereits eingesetzt.

Für eine verbesserte, beulfähige BSS-Ausführung wurde ein Konstruktionsentwurf vorgelegt. Dabei wurde für die Verbindung zwischen Zry und Edelstahl eine explosionsgeschweißte Einschweißmuffe vorgesehen, so daß auf die bisher verwendete DILO-Doppeldichtung am Kopf verzichtet werden kann.

Vom IKE, Stuttgart wurden erstmals Berechnungen für den BSS angestellt. Insbesondere wurden die zeitlichen Verläufe transienter Hüllrohrtemperaturen (Aufheiz- und Abkühlphase) für Stäbe mit Al_2O_3 -Ringpellets und mit UO_2 -Ringpellets berechnet und die Ergebnisse denen von UO_2 -Volltabletten gegenübergestellt.

2. Erzielte Ergebnisse

Die Heizstäbe haben auch bei robustem Betrieb standgehalten und bei allen Versuchen störungsfrei gearbeitet. Das koaxiale Aufbauprinzip und die Heizleiteranordnung haben sich damit bewährt und können bei der weiteren Auslegung der Referenzstäbe übernommen werden.

Die Stabilisierung der interessierenden Kreislaufdaten nach Veränderung der el. Leistung stellte sich jeweils bereits nach wenigen Minuten ein. Leistungsveränderungen im Nuklearbetrieb benötigen dagegen einen ca. 10-fachen Zeitaufwand. Dies gilt auch für die Einstellung des Versuchskreislaufs auf neue Sollwerte.

Die Fehlerquellen in der Meßtechnik und Datenerfassung konnten weitgehend beseitigt werden (s. Halbjahresbericht PNS 4237.1), die Anzahl von Thermoelementen am Stab ist jedoch weiterhin eng begrenzt, so daß bereits der Ausfall einzelner TE das Versuchsergebnis beeinträchtigen kann.

Aufgrund von Abweichungen der ermittelten thermischen von der elektrischen Leistung (bis zu + 30%) vorgenommene Untersuchungen an den einzelnen Versuchskomponenten führten zu folgenden Ergebnissen:

- Die Meßeinrichtung des Kreislaufs (Bartonzellen, Meßblende) zeigte eine gute Genauigkeit.
- Die Überprüfung der elektrischen Einrichtung ergab eine sehr gute Reproduzierbarkeit der Einstellwerte bei einem Toleranzbereich im Regelverhalten (Regelgröße: Leistung) von unter 1% des Sollwertes.

- Die effektive elektrische Stabileistung konnte noch nicht exakt ermittelt werden. Mögliche Abweichungen durch bisher nicht berücksichtigte induktive Einflüsse werden auf < - 6% geschätzt.
- Spezielle Temperaturmessungen im inneren und äußeren Dampfkanaal in Prüflingsnähe als Grundlage für eine erneute rechnerische Wärmebilanz erbrachten ebenfalls keinen Aufschluß über die Leistungsdifferenz.
- Ebensowenig Aufschluß lieferten bisher die Maßnahmen, eventuelle kreislaufinterne Bypaß-Massenströme sicher auszuschließen.

Ein Vergleich der im Versuch gemessenen transienten Hüllrohrtemperaturen zeigte Unterschiede im zeitlichen Anstieg in Abhängigkeit vom Pelletwerkstoff. Die Abweichungen waren als Folge der unterschiedlichen spezifischen Stoffwerte von Al_2O_3 und UO_2 erwartet worden. Berechnungen des IKE, die in den Vergleich auch UO_2 -Vollpellets einbeziehen, hatten ähnliche Ergebnisse erbracht. Siehe hierzu Abb. 4237.2-1, unteres Diagramm.

Nachberechnungen von Versuchen im IKE ergaben für die Hüllrohrtemperaturen durchweg höhere Werte, als sie beim Versuch gemessen wurden (s. Abb. 4237.2-1, oben). Der Unterschied ist erklärbar durch die Anbringungsart der Thermolemente, mit denen zwangsläufig nicht die "wahre" Hüllrohrtemperatur gemessen wird. In einem vereinfachten Out-of-pile-Versuch wurden bereits Abweichungen von bis zu 70 K bei einer Aufheizgeschwindigkeit von ca. 10 K/s gefunden.

3. Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit Rücksicht auf die Priorität der Nuklearstabversuche kann im 2. Halbjahr 1976 nur ein beschränktes Versuchsprogramm absolviert werden. Fest eingeplant sind

- Versuche mit dem Al_2O_3 -bestückten BSS 05 aus der 1. BSS Serie, dessen Instrumentierung vorrangig auf das Problem der "wahren" Hüllrohrtemperaturen bei Transienten ausgerichtet ist.

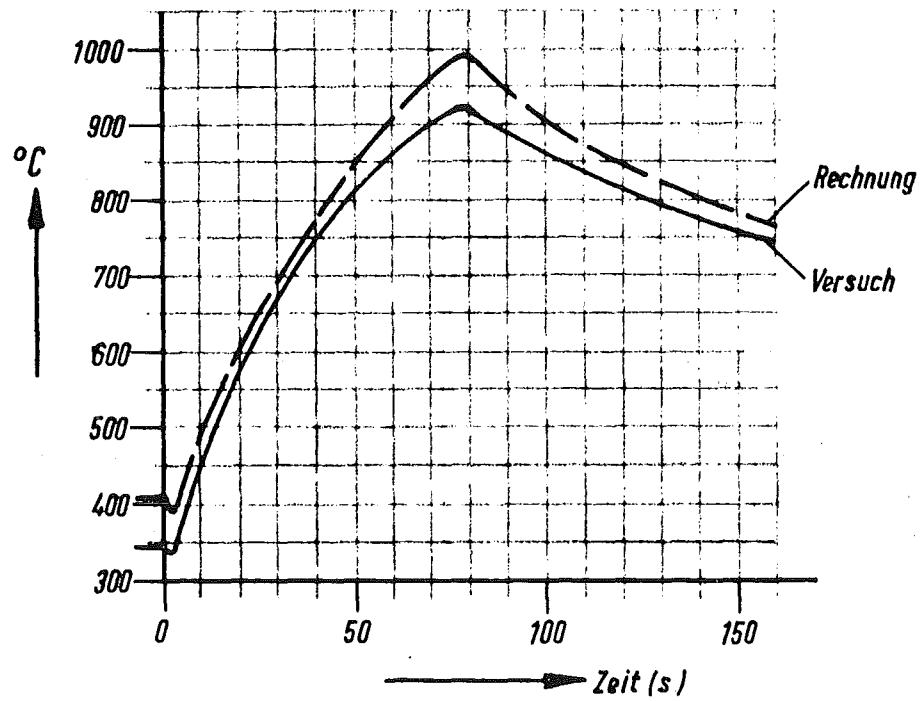
Die übrigen offenen Fragen im Zusammenhang mit dem Leistungsvergleich werden daneben auch mit BSS 05 weiter untersucht.

- Versuche mit einer vom Kreislauf des Experimentes gespeisten Out-of-pile-Anordnung (Kalorimeter), die speziell zur Klärung der Differenzen im Leistungsvergleich angestellt werden.

Die Auswertung der BSS-Vorversuche wird weitergeführt, vorläufig im wesentlichen mit Vergleichen zwischen -z.T. noch anzustellenden - Berechnungen und Meßergebnissen.

Die Anfertigung eines fortgeschrittenen, beulfähigen elektrischen Heizstabprototyps ist geplant, wird jedoch nachrangig gegenüber der HZ-Einrichtung für die Montage vorbestrahlter Nuklearprüflinge (PNS 4237.1) betrieben.

Vergleich: Rechnung - Versuch



Vergleich: Pelletanordnung (Rechnung)

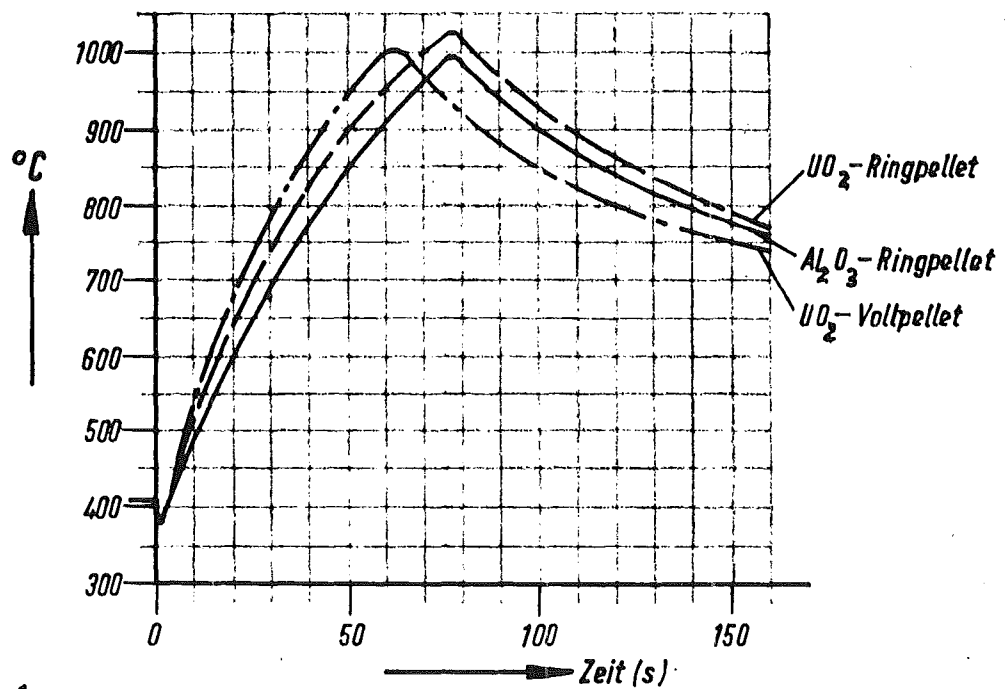


Abb. 4.237.2-1

Vergleich transienter Hüllrohr-Temperaturverläufe.

$\dot{q}_{max} = 40 \text{ W/cm}$

- 4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase von Kühlmittelverluststörfällen und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung (K. Wiehr, F. Erbacher, U. Harten, W. Just, 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. Einzelstab- und Bündelexperimente liefern Messwerte zur Überprüfung und Weiterentwicklung von Rechenprogrammansätzen des Codesystems SSYST zur Beschreibung des Brennstabverhaltens.

Im Berichtszeitraum lagen die Schwerpunkte auf der Durchführung folgender Arbeiten:

- Entwicklung und Erprobung der Brennstabsimulatoren
- Aufbau und Funktionsprüfung des Versuchsstandes
- Entwicklung und Erprobung spezieller Meßverfahren zur Erfassung des zeitabhängigen Verformungsvorganges der Zircaloy-Hülle
- Aufbau und Funktionsprüfung des rechnergesteuerten Datenerfassungs- und-übertragungssystems
- theoretische Betrachtungen und Berechnungen zum thermischen und gasdynamischen Verhalten der Brennstabsimulatoren
- Vorversuche an verkürzten Brennstabsimulatoren zur Klärung des Aufblähvorganges von Zircaloy-Hüllen

1. Brennstabsimulatoren

Die Entwicklung der Brennstabsimulatoren wurde abgeschlossen. Die Funktionsfähigkeit von Prototypen wurde bis zu Hüllrohrtemperaturen von etwa 1000°C experimentell nachgewiesen.

Zur Ermittlung der Temperaturverteilung wurden verschiedene Heizstäbe von 325 mm beheizter Länge mittels eines photographischen Verfahrens und einer Auswertung mit einem Micro-Densitometer untersucht.

Die Tests wurden sowohl stationär als auch instationär bei Heizstaboberflächentemperaturen im Bereich zwischen 860°C und 920°C und unterschiedlichen Stableistungen durchgeführt. Die Auswertung zeigte, daß eine gleichmäßige axiale Temperaturverteilung ohne lokale Temperaturspitzen erzielt werden kann und daß die Temperaturschwankungen nur etwa 2 K betragen.

Die Abb. 4238-1 und Abb. 4238-2 zeigen zusammenfassend nochmals die Auslegungskriterien und Auslegungsmerkmale sowie den schematischen Aufbau und die axiale Leistungsverteilung des Brennstabsimulators.

Nachdem durch Rechnungen nachgewiesen wurde, daß das thermische Verhalten des nuklearen Brennstabes gut vom elektrisch beheizten Brennstabsimulator nachgebildet werden kann, war das thermische Verhalten des Brennstabsimulators experimentell zu überprüfen.

Ergebnisse der Messungen wurden mit Rechenergebnissen von Wärmeleitprogrammen verglichen. Dazu standen ein im Hause entwickeltes Wärmeleitprogramm WAELP und der Modul ZET-1D des Programmsystems SSYST zur Berechnung der eindimensionalen Wärmeleitung zur Verfügung. Bei den Versuchen konnten neben der Heizleistung die Temperaturen des Inconel-Hüllrohres T_i und des Zircaloy-Hüllrohres T_a durch je drei am jeweiligen Umfang angeordnete Thermoelemente gemessen werden (Abb. 4238-3).

In stationären Versuchen wurde nachgeprüft, ob die Wärmeleitfähigkeiten der Al_2O_3 - Ringpellets und des Zircaloy-Hüllrohres sowie der Wärmeübergang in den beiden heliumgefüllten Spalten integral richtig berücksichtigt werden. Proberechnungen und Abschätzungen ergaben, daß der Wärmeübergang in den Spalten durch Wärmeleitung genau genug berücksichtigt wird, daß also Energietransport durch Strahlung oder Konvektion vernachlässigt werden kann. Die Spaltweiten haben allerdings einen starken Einfluß auf die Wärmeübertragung, da die Wärmeleitfähigkeit des Heliums klein gegenüber dem der anderen Materialien ist und demzufolge beim Durchlaufen der Spalte starke Temperaturgradienten auftreten.

Deshalb müssen bei Nachrechnungen auch unbedingt die thermischen Dehnungen und die sich daraus ergebenden Änderungen der Spaltweiten berücksichtigt werden.

Zum Vergleich der Versuche mit den Berechnungen wird eine homogene mittlere Wärmeleitfähigkeit λ_m des Systems innerer Heliumspalt - Al₂O₃ Ringpellets - äußerer Heliumspalt - Zircaloy-Hüllrohr definiert, die so beschaffen ist, daß sich das gleiche Wärmeleitungsverhalten wie beim geschichteten Körper ergibt. Derartige aus den Berechnungen mit WAELP und SSYST-ZET-1D erhaltene mittlere Wärmeleitfähigkeiten sind in Abb. 4238-3 mit experimentellen Ergebnissen durch Auftragung über der mittleren Temperatur $T_m = (T_a + T_i)/2$ verglichen. Die durchgezogene Linie stellt Ergebnisse von WAELP - Rechnungen dar. Die geringfügigen Abweichungen der SSYST - ZET-1D-Rechnungen beruhen hauptsächlich darauf, daß in WAELP zur Berücksichtigung des temperaturabhängigen Verhaltens der Materialien Stoffwertfunktionen, in SSYST jedoch Stoffwerttabellen mit Interpolationsvorschriften verwendet werden. Die gemessenen Werte der Versuchsserie 1 stimmen gut mit den berechneten Werten überein. Die Versuchsergebnisse waren allerdings nicht reproduzierbar. Die Ergebnisse der Versuchsserie 2 wurden mit demselben Brennstabsimulator gewonnen, nachdem dieser bei der Versuchsserie 1 auf über 900°C aufgeheizt worden war. Es scheinen bleibende plastische Verformungen erfolgt zu sein, die sich durch vergrößerte Spaltweiten bemerkbar machen.

Bei dem durchgeführten instationären Versuch wurde die adiabate Randbedingung durch eine regelbare Schutzheizung angenähert. Zum Zeitpunkt $\tau = 0$ wurde der Brennstabsimulator mit einer konstanten Heizleistung von $N = 25,8$ W/cm beaufschlagt. Die zeitlichen Verläufe der Heizstab- und Hüllrohrtemperatur sowie der Temperatur des Schutzrohres wurden aufgezeichnet. Die in Abb. 4238-4 wiedergegebenen gemessenen Temperaturen von Heizstab-Hülle und Zircaloy-Hüllrohr stimmen gut mit den durch SSYST-ZET-1D berechneten Temperaturverläufen überein.

Durch diese instationären Versuche bei adiabater Umgebung wurde die richtige Berücksichtigung des über den Querschnitt integrierten Wärmespeichervermögens des Simulators überprüft, das durch Terme $\rho \cdot c$ charakterisiert wird.

Spaltweiten haben in diesem Fall nur geringen Einfluß auf die Ergebnisse, da der Speicherterm $\rho \cdot c$ von Helium im Vergleich mit den Speichertermen der anderen Materialien klein ist.

Bei den Rechnungen stellte sich heraus, daß die spezifische Wärme von Al_2O_3 , die zunächst als konstant angenommen worden war, temperaturabhängig berücksichtigt werden muß. Die dadurch verursachten Fehler in den Steigungen der Temperaturverläufe betragen etwa 10%.

Durch diese Experimente und Berechnungen konnte die gute Simulationsqualität des Brennstabsimulators nachgewiesen werden.

2. Versuchsstand

Die Montage des Versuchsstandes wurde abgeschlossen. Die Funktionsprüfung mit einem instrumentierten Stabbündel aus nicht blähfähigen Brennstabsimulatoren wurde vorbereitet.

Die Abb. 4238-5 ist ein Schema des Versuchsstandes, die Abb. 4238-6 zeigt die Teststrecke mit einem Stabbündel.

3. Röntgenkinematographie

Die Röntgendurchleuchtungsanlage zur Erfassung des zeitabhängigen Aufblähvorganges der Zircaloy-Hülle hat sich in einer Vielzahl von Aufblähversuchen bewährt.

Die Abb. 4238-7 zeigt den schematischen Aufbau der Röntgendurchleuchtungsanlage. Die Abb. 4238-8 zeigt das Röntgenbild eines Brennstabsimulators mit aufgeblähter und geborstener Zircaloy-Hülle. Die Aufnahmen lassen den inneren Aufbau des Brennstabsimulators sowie dessen Verhalten während des Aufblähvorganges deutlich erkennen. Dies ist von entscheidendem Vorteil für die Interpretation der gemessenen Werte.

4. Berührungslose Temperaturmessung

Der Zusammenbau des Quotientenpyrometers wurde abgeschlossen. Durch eine Weiterentwicklung des Gerätes und Verwendung eines neuartigen elektronischen Bausteines konnte auf die Regelung der Versorgungsspannung der Photomultiplier sowie eine Meßbereichsumschaltung verzichtet werden. Hierdurch ist ein Meßbereich von 500°C bis 1000°C ohne Eingriffe in das Gerät erreichbar. Die Untersuchung, ob mit einem Weglaufen des Arbeitspunktes der Photomultiplier gerechnet werden muß und eine entsprechende Temperaturkompensation vorzusehen ist, befindet sich im Gange. Die Abb. 4238-9 zeigt das Blockschaltbild des Quotientenpyrometers.

Vor Inbetriebnahme des Gerätes muß untersucht werden, ob ein Einfluß durch sich ändernde Emissionswerte der Zircaloy-Hülle und sich ändernde Absorptionswerte des Wasserdampfgemisches auf die Meßanzeige des Gerätes vorhanden ist.

Sollte dieser Einfluß wider Erwarten nicht zu vernachlässigen sein, so muß das Gerät geeicht werden. Die Vergleichstemperatur wird mit einem Pt-Pt Rh Thermoelement mit aufgepunkteten $0,1\text{ mm } \emptyset$ Drähten ermittelt.

Mit dem Abschluß dieser Untersuchungen wird zum Ende des Jahres gerechnet.

5. Meßdatenerfassung und -übertragung

Für die Meßwerterfassung und Datenübertragung wird der zentrale CALAS - Prozessrechner eingesetzt. Die Abb. 4238-10 zeigt schematisch das gesamte System im Verbund. Die 128 Meßstellen des Versuchs werden mit einer Taktfrequenz von 10 kHz und einer Zyklusfrequenz von 10 Hz erfasst und zum CALAS - Prozessrechner übertragen. Auf zwei Bildschirmen in der Schaltwarte können alle Meßwerte vor Versuchsbeginn zur Überprüfung dargestellt werden. Während des Versuchsablaufes können vier ausgewählte Meßwerte in Kurvendarstellung zeitsynchron aufgezeichnet werden. Eine Kopiereinheit ermöglicht die Anfertigung von Kopien dieser Bildschirmhalte.

Das gesamte Meßdatenerfassungs- und Übertragungssystem wurde in Betrieb genommen und unter Verwendung der erstellten Abwicklerprogramme in mehreren Probeläufen ausgetestet. Hierbei erwies sich die Funktionsfähigkeit des Systems.

Zur Auswertung der vom Prozessrechner auf Magnetband abgespeicherten Meßdaten wurden spezielle Rechenprogramme erstellt. Diese Programme wurden weitgehend ausgetestet und bilden den Rumpf für eine Programmgruppe zur vollautomatischen Meßdatenverarbeitung und -auswertung.

6. Theoretische Arbeiten

Die theoretischen Arbeiten befassten sich mit dem Nachweis der thermischen Simulationsqualität der Brennstabsimulatoren sowie der Beschreibung der Gasströmung im Spalt zwischen Pellets und Zircaloy-Hüllrohr von den Plena zur aufblähenden Stelle.

Zum Nachweis der Simulationsqualität der Brennstabsimulatoren wurde der SSYST - Code ZET-1D verwendet. Die Rechnungen wurden jeweils für den nuklearen Stab, den Simulator mit Al_2O_3 - Ringpellets und der Vollständigkeit halber für den Simulator mit UO_2 - Ringpellets unter gleichen thermischen Anfangs- und Randbedingungen durchgeführt.

Entscheidend für die Simulationsqualität der Brennstab-Simulatoren ist eine gute Übereinstimmung der zeitlichen Verläufe der Hüllrohrtemperaturen von Simulator und nuklearem Stab bei gleicher oder definiert korrigierter Prozessführung. Die berechneten zeitlichen Verläufe der Hüllrohrtemperaturen sind in den Abb. 4238-11 bis 4238-14 dargestellt. Die Abb. 4238-11 zeigt, daß während der quasistationären Phase der adiabaten Aufheizung die zeitlichen Verläufe der Hüllrohrtemperaturen divergent sind. Beim Simulator mit Al_2O_3 - Ringpellets ist die Steigung der Transiente im Mittel um 23% und beim Simulator mit UO_2 - Ringpellets um 10% kleiner als die des nuklearen Stabes. Dies kommt daher, daß die Wärmekapazitäten der Simulatoren um die entsprechenden Prozentsätze größer sind als die Wärmekapazität des nuklearen Stabes.

Wie die Abb. 4238-12 zeigt, können jedoch bei der adiabaten Aufheizung die unterschiedlichen Steigungen der Transienten durch entsprechende Erhöhung der Heizleistung der Simulatoren ausgeglichen werden.

Im Bereich der Nebelkühlung mit einem in der Rechnung konstant angenommenen Wärmeübergangskoeffizienten von $\alpha = 150 \text{ W/m}^2\text{K}$ und einer Kühlmitteltemperatur von 423,2 K verlaufen die Transienten nahezu parallel, und zwar sowohl während des etwa 3 Sekunden dauernden Umverteilungsprozesses nach der sprungartigen Änderung der Randbedingung als auch im späteren quasi-stationären Verlauf (siehe Abb. 4238-13).

Im Quench-Bereich nach der sprungartigen Änderung in der Randbedingung von $\alpha = 150 \text{ W/m}^2\text{K}$ auf $10\,000 \text{ W/m}^2\text{K}$ stellt man kaum einen Unterschied in den Temperaturverläufen der Hülle fest, sowohl bei unterschiedlicher Temperatur unmittelbar vor dem Quenchen (Abb. 4238-13) als auch bei gleicher Temperatur (Abb. 4238-14).

Die Abb. 4238-13 zeigt, daß ein nennenswerter Unterschied in den Hüllrohrtemperaturen sich nur während der adiabaten Aufheizung ausbildet. Deswegen liegt der Gedanke nahe, diesen Unterschied durch Erhöhung der Heizleistung in der adiabaten Phase und Zurückschalten auf den Wert des nuklearen Stabes bei Einsetzen der Nebelkühlung zu korrigieren. Das Resultat ist in Abb. 4238-14 dargestellt und zeigt, daß in allen Bereichen eine gute Simulationsqualität erzielt werden kann. Es ist jedoch zu beachten, daß eine unterschiedliche Heizleistung in der adiabaten Phase eine Änderung des Wärmeinhaltes des Stabes bewirkt, welche über eine Änderung des Zustandes des Flutwassers eine Änderung der Wärmeübergangszahl der Nebelkühlung zur Folge haben kann. Aus diesem Grunde kann bei den Experimenten mit Fluten der Anspruch der exakten Simulationsqualität gegebenenfalls zugunsten der besseren Interpretierbarkeit und der dadurch nicht eingeschränkten Verifikations-Möglichkeit des SSYST-Codes zurückgestellt werden.

Die theoretischen und experimentellen Vorarbeiten zur Gasströmung im Ringspalt des Brennstabsimulators wurden fortgesetzt.

In Abb. 4238-15 wurden experimentell ermittelte Widerstandsbeiwerte in Abhängigkeit von der Reynolds-Zahl aufgetragen. Die Strömungsversuche erfolgten in einem Original-Hüllrohr, wobei die den Ringspalt begrenzende Innenfläche einmal durch glatte Stäbe und zum anderen durch Pellets gebildet wurden.

Bei glatten Ringspalten wurden die Gesetzmäßigkeiten für laminare Strömung gut durch die Versuche bestätigt. Es fällt auf, daß die Hagen-Zahl abhängig vom hydraulischen Durchmesser ist. Bei hohen Reynolds-Zahlen können die Versuche durch die Beziehung nach Blasius für turbulente Strömung in hydraulisch glatter Geometrie wiedergegeben werden.

Pellets behindern die Ausbildung der laminaren Strömung; schon bei $Re \approx 100$ kann eine Erhöhung des Widerstandsbeiwertes im Vergleich zur laminaren Strömung beobachtet werden. Nach einem weit ausgedehnten Übergangsbereich folgen die Versuche bei hohen Reynoldszahlen den Gesetzmäßigkeiten für turbulente Strömung in hydraulisch rauhen Geometrien ($f = \text{const.}$).

Um weiteren Aufschluß über die Bedeutung der Gasströmung von den Plena zur beulenden Stelle hin zu erhalten, wurden einige Rechnungen durchgeführt. Der Beulvorgang wird durch sinusförmige Deformation über etwa ein Drittel der Hüllrohrlänge simuliert. Die zeitabhängige Amplitude ϵ_{\max} dieser Deformation wird durch Approximation von aufgezeichneten experimentellen Verformungskurven vorgegeben. Die Plena-Volumen sind je 17 cm^3 . Als physikalisches Strömungsmodell wird laminare Strömung mit einer Hagen-Zahl $Ha = 96$ zugrunde gelegt.

Abb. 4238-16 gibt bei einem Ausgangsdruck von 70 bar die Verformungskurve, die entsprechenden Plenum- und Beulendrucke und die Reynolds-Zahl in Abhängigkeit von der Zeit wieder. Es kann gezeigt werden, daß lediglich kleine Spaltweiten beträchtliche Druckdifferenzen verursachen, während größere Spaltweiten nur kleine Abweichungen zwischen Plenum- und Beulendruck bewirken. Der Einfluß der Spaltweite auf den Verlauf der Reynolds-Zahl und damit auf den Massenstrom ist gering. Die im vorliegenden Beispiel errechnete maximale Reynolds-Zahl beträgt etwa $Re_{\max} \approx 50$.

Selbst bei höherem Ausgangsdruck ($p = 130$ bar) und mit der daraus folgenden steilen Verformungskurve werden maximale Reynolds-Zahlen von nur $Re_{\max} \approx 150$ erreicht. Diese Beispiele zeigen, daß beim Aufblähvorgang des Brennstabsimulators nur Strömungen mit niedrigen Reynolds-Zahlen auftreten. Daher werden auch intakte Pelletstrukturen nur vernachlässigbare Abweichungen von der laminaren Strömung bewirken.

7. Versuche

Zur Gewinnung erster Aufschlüsse über den Aufblähvorgang einer Zircaloy-Hülle wurden Vorversuche an Brennstabsimulatoren bereits beschriebenen Aufbaus mit einer indirekt beheizten Länge von 325 mm durchgeführt. Die Zircaloy-Hüllrohre werden mit Ultraschall hinsichtlich Außendurchmesser, Ovalität und Wandstärke vermessen und ausgewählt. Die Temperaturverteilung des Heizstabes wird mit einer Photo-Scanning-Methode ermittelt. Die Abb. 4238-17 zeigt schematisch den Versuchsaufbau für die Vorversuche. Bis zum Ende des Berichtszeitraumes wurden etwa 40 Versuche durchgeführt.

In Abb. 4238-18 sind gemessene Zusammenhänge zwischen Druck, Temperatur und Umfangsdehnung über der Zeit aufgetragen. Die ausgezogenen Linien geben die Zusammenhänge für 70 bar, die gestrichelten für 100 bar und die strichpunktierten für 130 bar Innendruck wieder.

Der gemessene Hüllrohrtemperaturverlauf wird entscheidend vom Aufblähvorgang, d.h. von der Art des Abhebens des Hüllrohres von seiner Wärmequelle sowie der azimuthalen Lage der Temperaturmeßstelle zur Berststelle bestimmt. Da das Hüllrohr häufig nur mit wenigen azimuthal auf dem Umfang verteilten Temperaturmeßstellen versehen ist, wird der gemessene Temperaturverlauf meist das folgende Erscheinungsbild zeigen;

Die Hüllrohrtemperatur steigt bis zum Abheben der Hülle kontinuierlich an. Mit zunehmenden Abheben des Hüllrohres wird der Wärmetransport reduziert, was sich zunächst durch ein schwächeres Ansteigen und schließlich je nach Verformungsgrad durch ein Wiederabsinken der Hüllrohrtemperatur bemerkbar macht, bevor das Rohr birst.

Würde der Temperaturverlauf jedoch bei jedem Versuch immer genau an der Berststelle gemessen werden, so würde der Hüllrohrtemperaturverlauf auch im Zeitraum stark zunehmender Umfangsdehnungen eine zunehmende Tendenz bis zum Bersten haben.

Der Stabinnendruck nimmt entsprechend dem Gasgesetz mit steigender Temperatur zu, solange die Zircaloy-Hülle keine Umfangsdehnung erfährt. Mit beginnender Verformung der Hülle fällt der Gasdruck zunächst langsam, um mit zunehmender Verformungsgeschwindigkeit, je nach Vorinnendruck und Umfangsdehnung, rasch abzunehmen. Das Bersten ist durch einen jähen Druckzusammenbruch gekennzeichnet.

Die zeitlich gemessenen Umfangsdehnungen zeigen für ihren Dehnungsbeginn, Dehnungsverlauf und für ihre Dehnungsmaxima eine deutliche Abhängigkeit vom Innendruck. Die Berst-Dehnung erreicht 36% bei einem Druck von 70 bar. Höhere Innendrucke führen zu kleineren Umfangsdehnungen.

Die aus diesen Dehnungen ermittelten Dehnungsgeschwindigkeiten zeigen zusammen mit der dazugehörigen Temperatur Werte, die typisch sind für ein normal-plastisches Verhalten von Zircaloy-Hüllrohren. Bei den bislang durchgeführten Vorversuchen traten während der Aufheizung fast immer azimutale Temperaturunterschiede am Umfang des Hüllrohres auf. Die gemessenen Werte und Zusammenhänge sind daher auch nur für solche Fälle typisch. In Abb. 4238-19 sind die eigenen Meßergebnisse in das Feld der aus der Literatur bekannten Ergebnisse eingetragen. Es fällt auf, daß bei gleichen Ausgangsdrücken eine Streubreite der Bersttemperaturen von bis zu 100°C zu existieren scheint. Die Erklärung hierfür liegt jedoch primär in der Tatsache, daß die Temperatur häufig nicht an der Berststelle selbst erfaßt wird, sondern axial oder azimutal davon versetzt. Es zeigte sich, daß je nach Dehnungsverlauf azimutale Temperaturunterschiede von bis zu 100°C entstehen.

Die Abbildung zeigt jedoch, daß die eigenen Meßergebnisse gut im Feld anderer Ergebnisse liegen.

An Hand von Abb. 4238-20 kann das Entstehen und Anwachsen von azimutalen Temperaturunterschieden erläutert werden.

Bei der Überprüfung des Heizstabes ohne Pellets und Zircaloy-Hülle ergab sich eine sehr gleichmäßige Temperatur auf seinem Umfang ($< 2^{\circ}\text{C}$ Unterschied). Aus einer Vielzahl von etwa 30 Versuchen mit dem Simulator unter Verwendung desselben Heizstabes geht hervor, daß die Berststellen der Zircaloy-Hüllrohre statistisch verteilt auf dem ganzen Umfang wiederzufinden sind und nicht in einem bestimmten Winkel zur auf dem Heizstab markierten Nullposition liegen. Die Temperaturverteilung kann daher nicht vom Heizstab selbst verursacht sein.

Über den gerade gerichteten Heizstab werden sehr eng tolerierte Ringpellets geschoben und darüber wiederum die Zircaloyhülle. Der statistisch häufigste Fall, der hierbei entsteht, ist eine gewisse exzentrische Lage zwischen Pelletzylinder und Zircaloyrohrinnenwand.

Der Fall einer absolut zentrischen Montagelage ist sehr selten. Wird ein solches, mit Helium gefülltes System aufgeheizt, so beginnen sich aufgrund unterschiedlicher Spaltweiten am Umfang der Zircaloyhülle Temperaturdifferenzen auszubilden, die stetig wachsen.

Mit beginnendem Abheben der Hülle von ihrer Wärmequelle zeigen die Temperaturmeßstellen T_1 , T_2 und T_5 das bereits beschriebene Temperaturverhalten: flacher werdender Anstieg - Temperaturmaximum - Wiederabfallen. Temperaturmeßstellen, die jedoch innerhalb des Bereiches auf dem Umfang liegen, wo das Rohr auch zum Bersten kommt, zeigen ein anderes Temperaturverhalten. Die Temperatur fällt nicht wieder ab, sondern steigt weiter an und erreicht schließlich zum Berstzeitpunkt ihr Maximum.

Die Abb. 4238-20 zeigt neben dem Temperatur-, Druck und Dehnungsverlauf über der Zeit die azimutale Positionierung der fünf auf dem Zircaloy-Rohr angeordneten Meßstellen. Aus der Abbildung ist ersichtlich, daß die Berststelle zwischen den azimutalen Temperaturmeßstellen T_3 und T_7 liegt. Da das Bersten des Rohres immer an der heißesten Stelle erfolgt, konnte auch mit der Anbringung von fünf Thermoelementen auf dem Umfang die tatsächliche Bersttemperatur nicht genau erfasst werden, sie liegt noch etwas höher als T_7 .

Die sich während des Aufblähvorganges bis zum Bersten ausbildende azimutale Temperaturdifferenz beträgt etwa 100 K. Die beschriebene unterschiedliche Tendenz der fünf Temperaturverläufe weist darauf hin, daß sich das Hüllrohr auf der heißen Seite, wo es zum Bersten kommt, offensichtlich nicht von seiner Wärmequelle, dem inneren Heizstab mit den Pellets, abhebt, während sich die kältere, der Berststelle gegenüberliegende Seite des Hüllrohres abhebt.

Die Abb. 4238-21 zeigt einige mehr oder weniger stark verformte Zircaloy-Hüllrohre. Abgesehen von der Tatsache, daß die Rohre verschieden große Umfangsdehnungen aufweisen, ist an allen Rohren deutlich zu erkennen, daß die Mantellinie auf welcher die Berststelle liegt, geradlinig verläuft.

Anfänglich bestand die Ansicht, daß diese Form durch den Rückstoßeffect des austretenden Gases beim Bersten des Rohres hervorgerufen wird.

Die Betrachtung der Röntgenfilme vom Aufblähvorgang widerlegte jedoch diese Annahme.

Aus der Zuordnung der azimutalen Temperaturmeßstellen zu den Röntgenfilmbildern geht eindeutig hervor, daß mit dem Beginn meßbarer, d.h. sichtbar werdender plastischer Verformung das Zircaloyhüllrohr an seiner kälteren Seite von der Wärmequelle abzuheben beginnt. Zu diesem Zeitpunkt hat sich aufgrund der bereits erwähnten exzentrischen Lage von Hüllrohr und Pelletssäule ein ausgeprägtes azimutales Temperaturprofil ausgebildet. Das Hüllrohr hebt mit zunehmender Umfangsdehnung an seiner kalten Mantellinie verstärkt ab, d.h. der Spalt wird immer größer und führt zu den bereits gezeigten, am häufigsten gemessenen Temperaturverläufen. Die Mantellinie auf der gegenüberliegenden Seite, also die heißere, hebt jedoch nicht oder nur wenig von seiner Wärmequelle ab, sondern, falls ein gewisser Ausgangsspalt von der Montage her vorhanden ist, wird dieser sogar noch kurz vor Erreichen der maximalen Umfangsdehnung geschlossen. Dies bewirkt das nochmalige verstärkte Ansteigen der Temperatur kurz vor dem Bersten.

Diese Maximaltemperatur an der Berststelle ist also die tatsächliche Bersttemperatur.- Wie schwierig es ist, bei indirekt beheizten Brennstabsimulatoren die Bersttemperatur genau zu bestimmen, wird hiermit deutlich.

Die Abb. 4238-8 zeigt zwei um 90° versetzte Röntgenaufnahmen von einem unsymmetrisch verformten Hüllrohr. Auf der rechten Aufnahme ist deutlich zu sehen, daß die Hülle völlig symmetrisch vom Heizer mit seiner Pelletsäule abgehoben hat. Auf der linken Aufnahme, einer Seitenansicht vom geborstenen Rohr, ist zu erkennen, daß sich die Hülle an der Seite der Berststelle ganz nah am Heizer befindet und auf der gegenüberliegenden Seite, der kalten Mantellinie, deutlich abgehoben hat.

Auf Abb. 4238-22 ist ein unverformter Brennstabsimulator und der seltene Fall eines fast symmetrisch verformten Brennstabsimulators zu sehen. Es ist leicht zu verstehen, daß, je symmetrischer eine Hülle von ihrer Wärmequelle abhebt, die auftretenden Umfangsdehnungen um so größer werden.

Die Hüllrohrtemperatur erreicht auf keiner Mantellinie vorzeitig extreme Werte durch einseitiges Anliegen, die Hüllrohrversagenstemperatur steigt nur noch langsam oder gar nicht mehr an, und das Hüllrohr erfährt während einer wesentlich längeren Verformungszeit sehr viel größere Umfangsdehnungen, bis es zum Bersten kommt.

Der typische Aufblähmechanismus von indirekt beheizten Brennstabsimulatoren erklärt, daß solche Kriechversuche unter identischen Randbedingungen eine große Streubreite von Umfangsdehnungen hervorbringen.

Extreme Dehnungswerte, wie sie bei direkt beheizten Rohrproben gemessen werden, sind jedoch bei von innen indirekt beheizten Proben nicht zu erwarten. Gleichmäßige azimutale Temperaturverteilungen wie bei der Direktbeheizung von Rohren mit gleicher Wandstärke auf dem Umfang treten sehr selten auf.

Azimutale Temperaturunterschiede werden stets dazu führen, daß das Hüllrohr im heißen Bereich zu einem relativ frühen Zeitpunkt zum Bersten kommt und somit große Umfangsdehnungen vermieden werden.

Abb. 4238-23 zeigt einen Querschnitt eines Rohrstückes, welcher 10 mm oberhalb der Berststelle eines geborstenen Rohres liegt. Der Pfeil mit "B" im Kreis zeigt auf die Berstmantellinie, also die heißeste, wo die größte Verformung stattgefunden hat. Auf der gegenüberliegenden kalten Seite (Pfeil "A") hat das Rohr vom Heizstab abgehoben und praktisch keine Wandstärkenverschwächung erlitten. Das linke Bild zeigt die glatten Konturen der unverformten Wand, das rechte Bild dagegen läßt deutlich die verschwächte Wand erkennen, die außen wegen der sich bildenden und ständig wieder aufreißenden Oxidschicht stärker zerklüftet ist.

Die Abb. 4238-24 zeigt geätzte Querschnittsschliffe der dicksten und dünnsten Wand dieses Rohrquerschnittes. Das linke Bild zeigt ein unverformtes \mathcal{L} -Gefüge, das rechte Bild läßt deutlich eine Kornstreckung in Zugrichtung erkennen.

Die Abb. 4238-25 zeigt ein Querschnittsbild der geborstenen Stelle selbst (oben) mit einer Vergrößerung der unverformten Wand (links unten) und einer Vergrößerung vom äußeren Stück der Berststelle, welches am stärksten verformt worden ist (rechts unten).

Es zeigt sich auch hier in der Berstebene, daß die Rohrwand, die der Berststelle gegenüberliegt, keine Wandstärkenverschwächung erfahren hat.

Mit Hilfe der Röntgenfilmtechnik läßt sich zeigen, daß mit Einsetzen der plastischen Verformung ein relativ langsamer und stabiler Kriechvorgang beginnt, der mit einem sehr kurzzeitigen ($< 0,01$ sec) Aufreißen des Hüllrohres beendet wird. Während dieses Aufreißen der Hülle tritt keine zusätzliche meßbare Umfangsdehnung und Wandstärkenverschwächung mehr auf.

Bei allen bisherigen Vorversuchen wurden zur Temperaturmessung der Zircaloyhüllrohroberfläche nackte Thermoelemente Pt/PtRh direkt auf die Zircaloyhülle aufgepunktet. Die 0,1 mm starken Drähte werden zu einer Perle verschweißt und flachgedrückt. Die Thermoelementspitze ist danach ein Plättchen von etwa 0,25 mm Durchmesser. Eine Schwächung des Zircaloymaterials durch den Schweißpunkt und eine Entstehung der Berststelle an der Schweißung wurde nie festgestellt.

Bei allen bisherigen Versuchen, bei denen nur ein Thermoelement auf der Zircaloy-Hülle aufgepunktet war, konnte keinerlei Beeinflussung auf die sich verformende Hülle festgestellt werden. Bei Versuchen mit drei azimuthalen Thermoelementen trat in der Ebene der Thermoelemente jedoch bereits eine ganz geringfügige Verringerung im Verformungsumfang ein. Bei Versuchen mit fünf Thermoelementen in einer axialen Ebene auf dem Umfang zeigte sich jedoch ein Bild deutlicher Beeinflussung.

Die Hüllen hatten axial zwei Stellen gleicher Umfangsdehnung von je 28%, und dazwischen lag eine Zone von nur 16% Umfangsdehnung. Die Thermoelemente wirkten dort wie ein kalter Gürtel.

In Abb. 4238-26 sind Hüllrohrtemperaturen sich verformender Zircaloy-Hüllen zum Berstzeitpunkt über dem Umfangswinkel aufgetragen.

Der Winkel $\varphi = 0^\circ$ bzw. 360° liegt auf der Mantellinie der Berststelle. Sämtliche aufgetragenen Meßpunkte stammen aus Versuchen unter identischen Versuchsrandbedingungen bei 100 bar Innendruck.

Die Meßpunkte, die zum Kurvenverlauf "1 TE" (Symbol x) führen, stammen aus Experimenten, die nur mit einem einzigen Thermoelement versehen waren. Die Kurvenzüge "3 TE" (Symbol Δ) bzw. "5 TE" (Symbol \square 1. Versuch und Symbol \circ 2. Versuch) verbinden die Meßpunkte aus Experimenten, bei denen 3 bzw. 5 Thermoelemente azimuthal in einer Ebene auf dem Umfang angebracht waren.

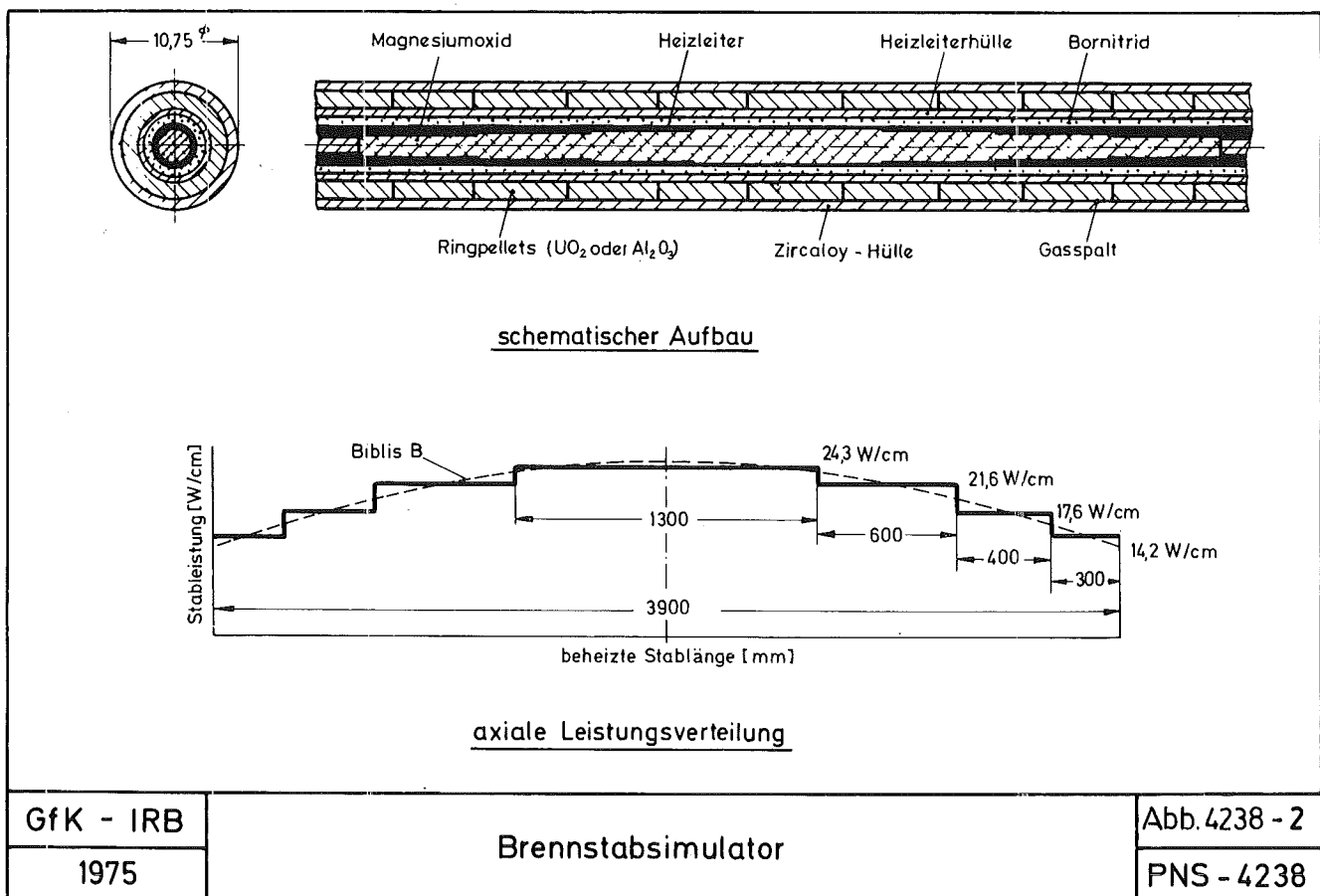
Es ist deutlich die Kühlwirkung der Thermodrähte in Abhängigkeit von der Anzahl der azimuthal angeordneten Thermoelemente zu erkennen.

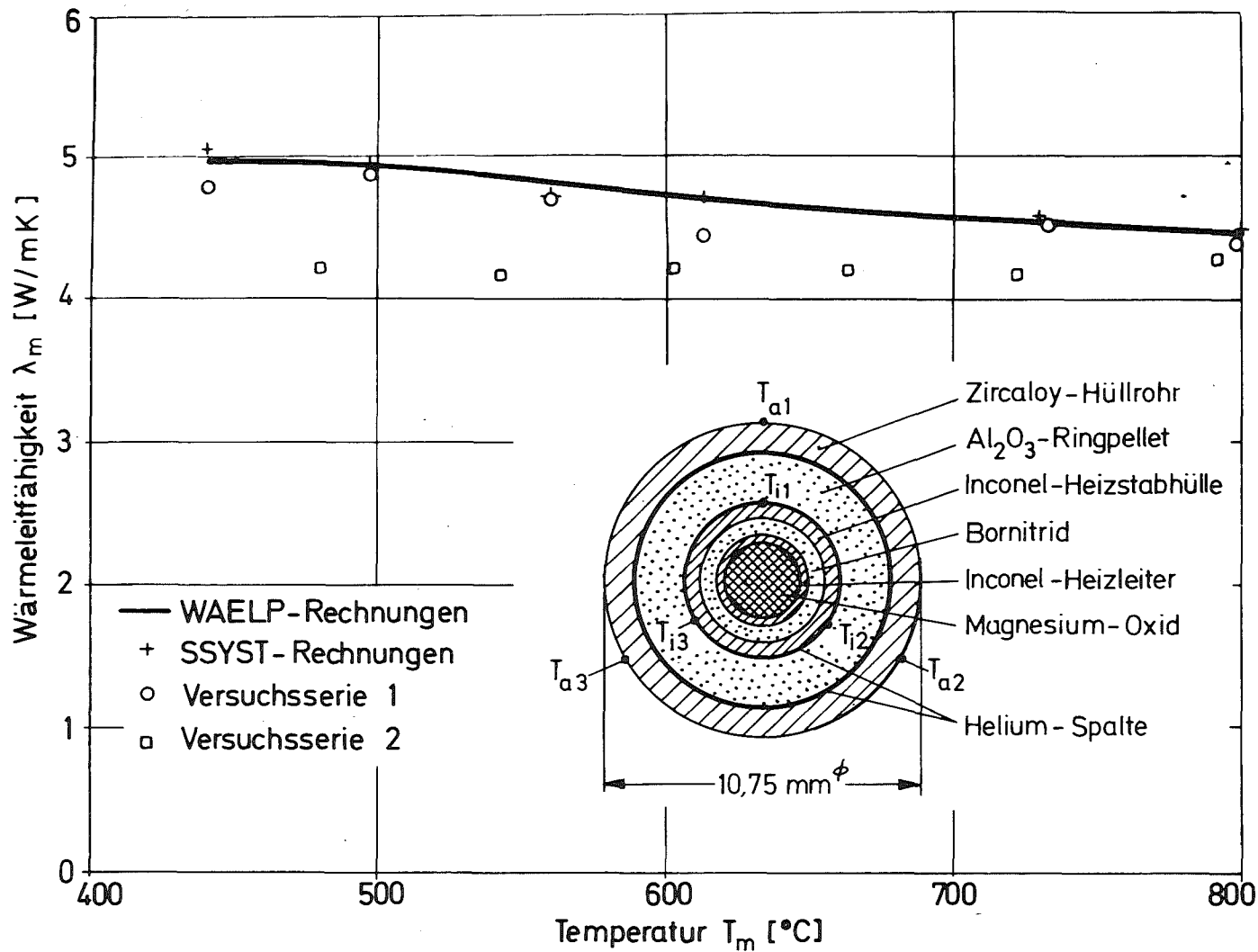
Im Bereich der heißen Mantellinie, also der Berstmantellinie, ist dieser Einfluß sehr gering, da durch den sehr engen Spalt zwischen Wärmequelle und Hülle der Wärmewiderstand sehr gering ist und das Thermoelement praktisch keine Absenkung der Hüllrohrtemperatur verursachen kann. Anders ist es jedoch auf der gegenüberliegenden Seite mit dem großen Spalt.

Mit größer werdender Anzahl von Thermoelementen auf dem Umfang sinkt die Hülltemperatur in diesem Bereich ab. Über die Beeinflussung der azimuthalen Temperaturverteilung findet dann schließlich auch eine Beeinflussung des Beulverhaltens statt. Ob und inwieweit zur Hüllrohrtemperaturmessung an sich verformenden Zircaloy-Hüllen Thermoelemente verwendet werden können, oder ob berührungslose Methoden angewendet werden müssen, muß von Fall zu Fall entschieden werden.

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 ³ , unten 16,8cm ³
echte temperaturabhängige Verhältnisse im Spalt (Gasströmung, Wärmedurchgang)	Materialien gleicher Wärmedehnung und Strahlungszahl (Al ₂ O ₃ -Ringpellet, Zircaloy - Hüllrohr)
Zircaloy - 4 - Hüllrohr, KWU - DWR	Zircaloy-4 Hüllrohr (KWU - Spezifikation): 10,75 ^φ × 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	Auslegung des Brennstabsimulators	Abb.4238-1
1975		PNS - 4238





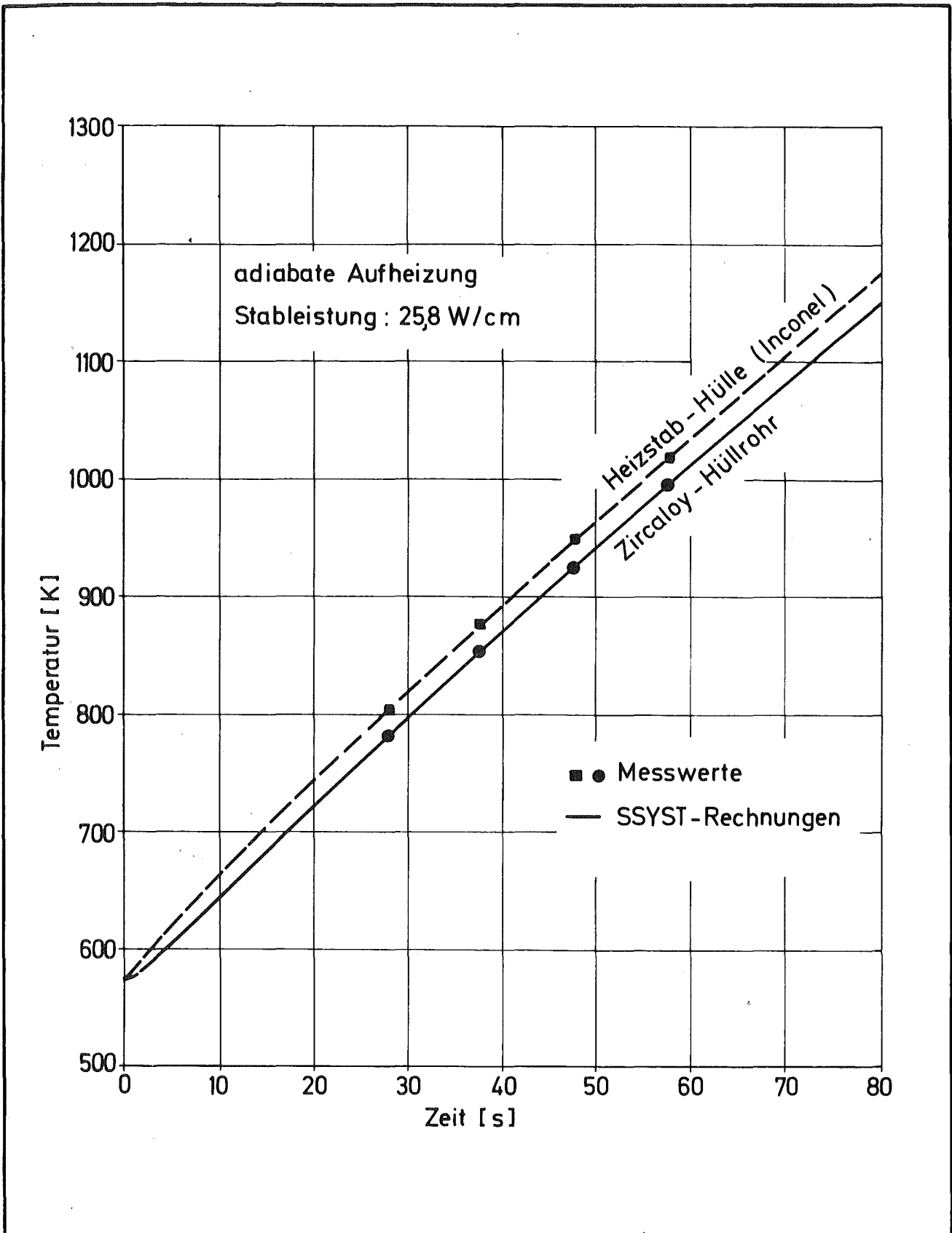
GfK-IRB

1976

Wärmedurchgang beim Brennstabsimulator

Abb.4238 - 3

PNS-4238



GfK-IRB

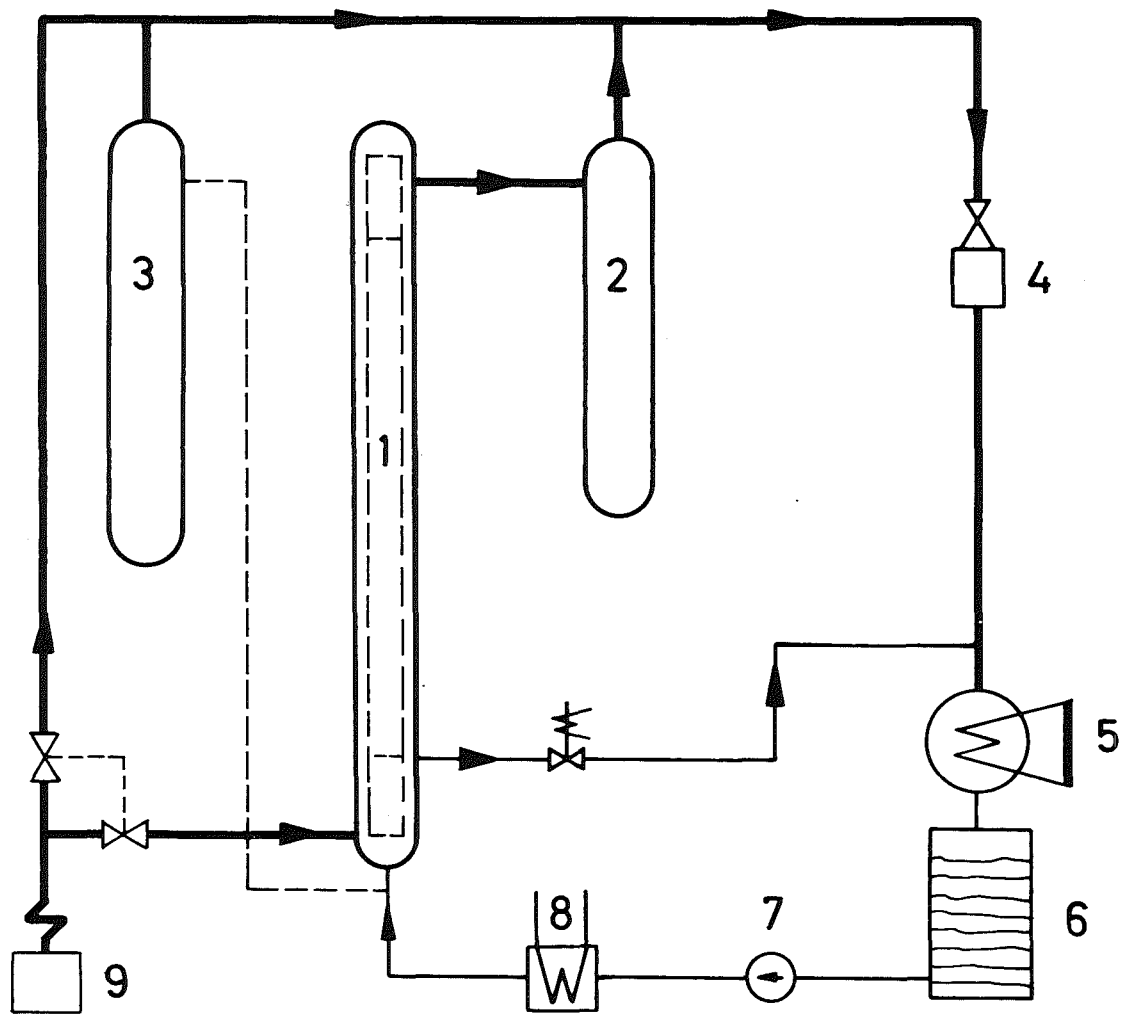
Temperatur-Transiente des Brennstabsimulators

Abb. 4238-4

1976

Vergleich zwischen Experiment und Rechnung

PNS-4238



- 1 Teststrecke
- 2 Abscheidebehälter
- 3 Containmentsimulator
- 4 Dampfumformer
- 5 Kondensator
- 6 Wasserbehälter
- 7 Einspeisepumpe
- 8 Vorwärmer bzw. Kühler
- 9 Dampferzeuger

-358-

GfK - IRB	Versuchsstand (schematisch)	Abb. 4238 - 5
1975		PNS - 4238

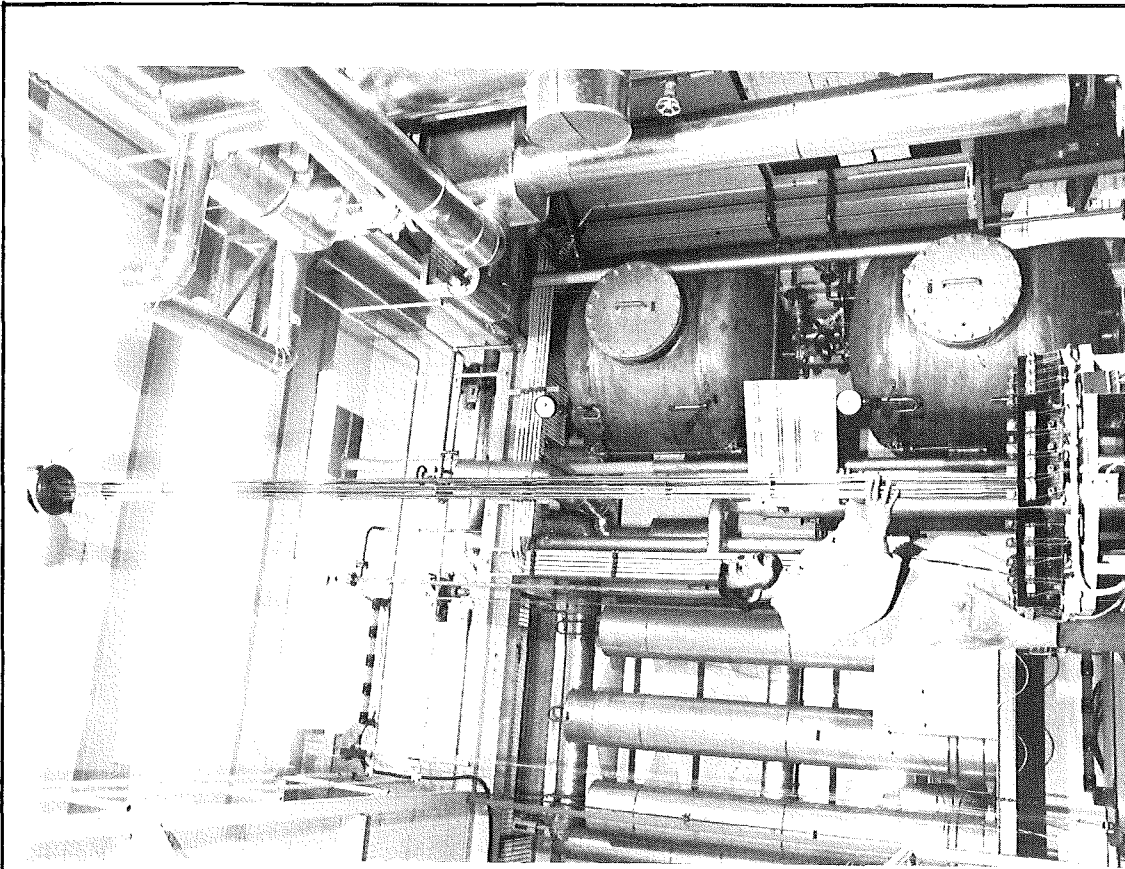
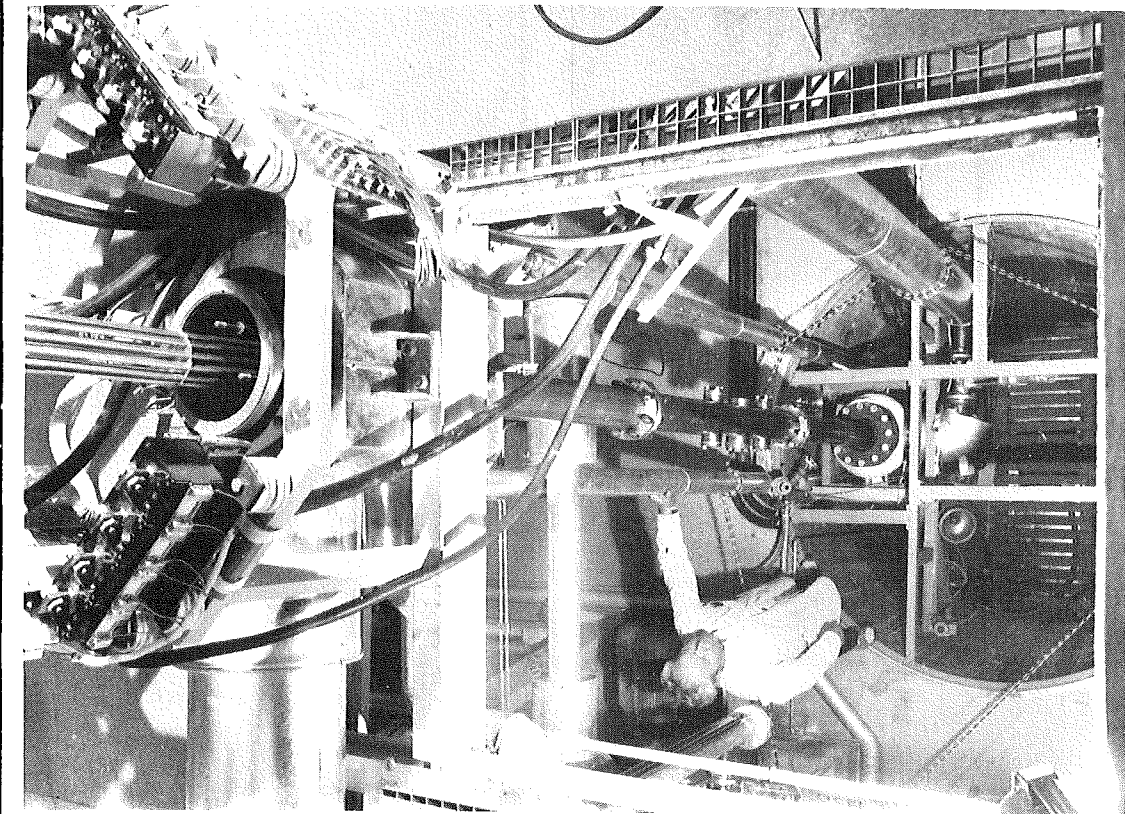


Abb.4238-6

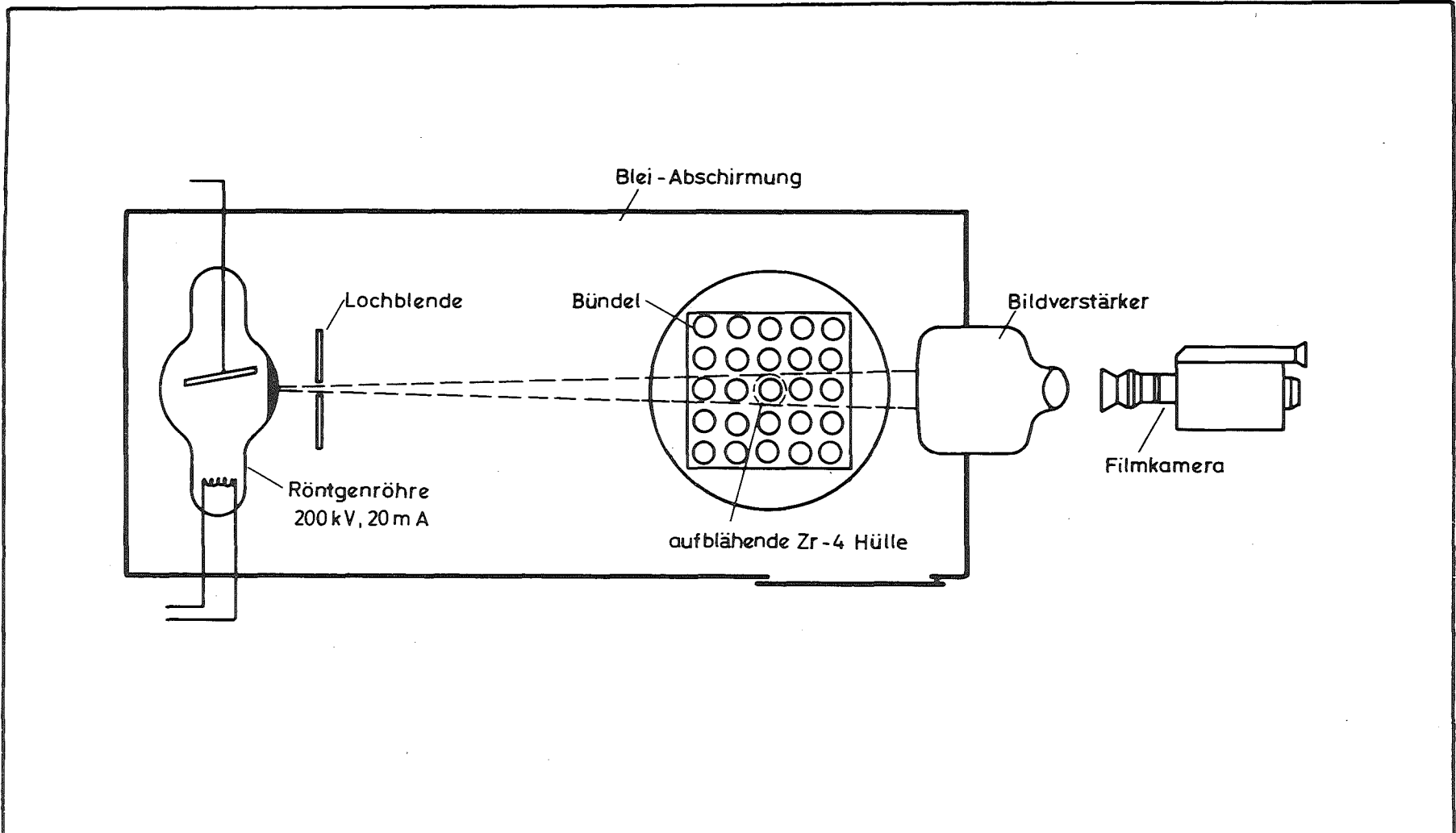
PNS - 4238

Versuchsstand



GfK - IRB

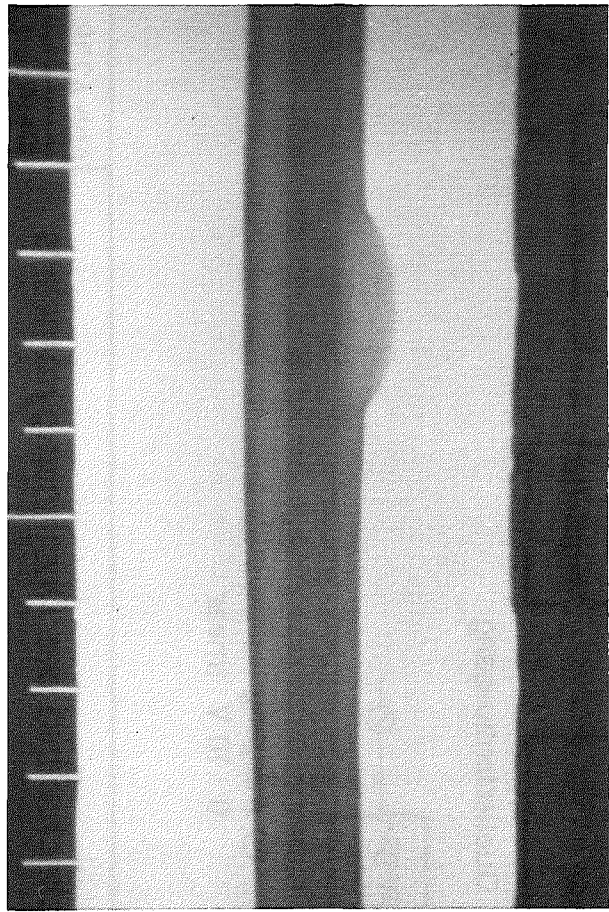
1976



GfK - IRB
1976

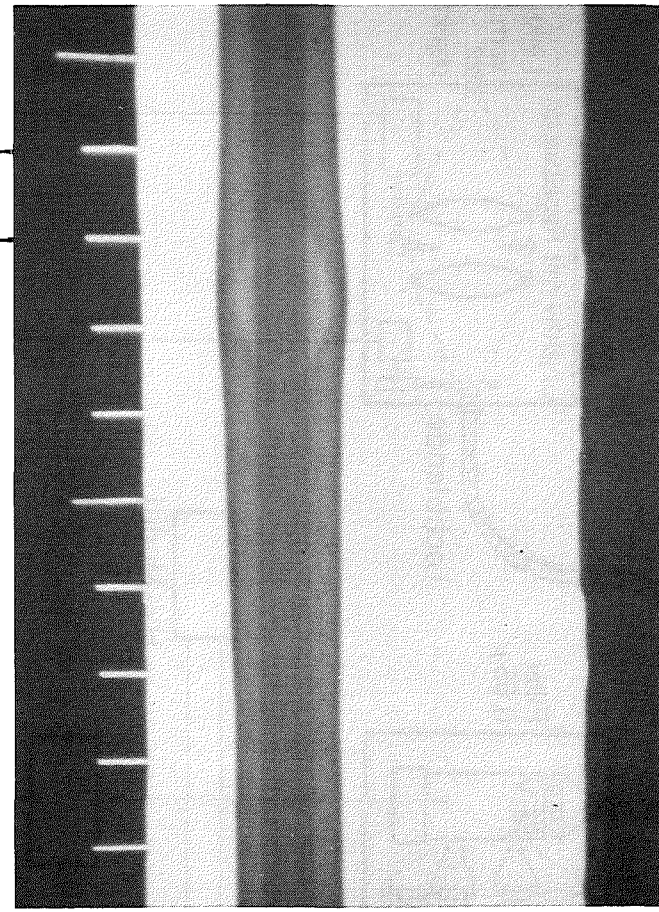
Röntgendurchleuchtungsanlage

Abb.4238 - 7
PNS - 4238



Seitenansicht

↓
10mm
↑



Draufsicht

aufgeblähte und geborstene Zirkaloy-Hülle

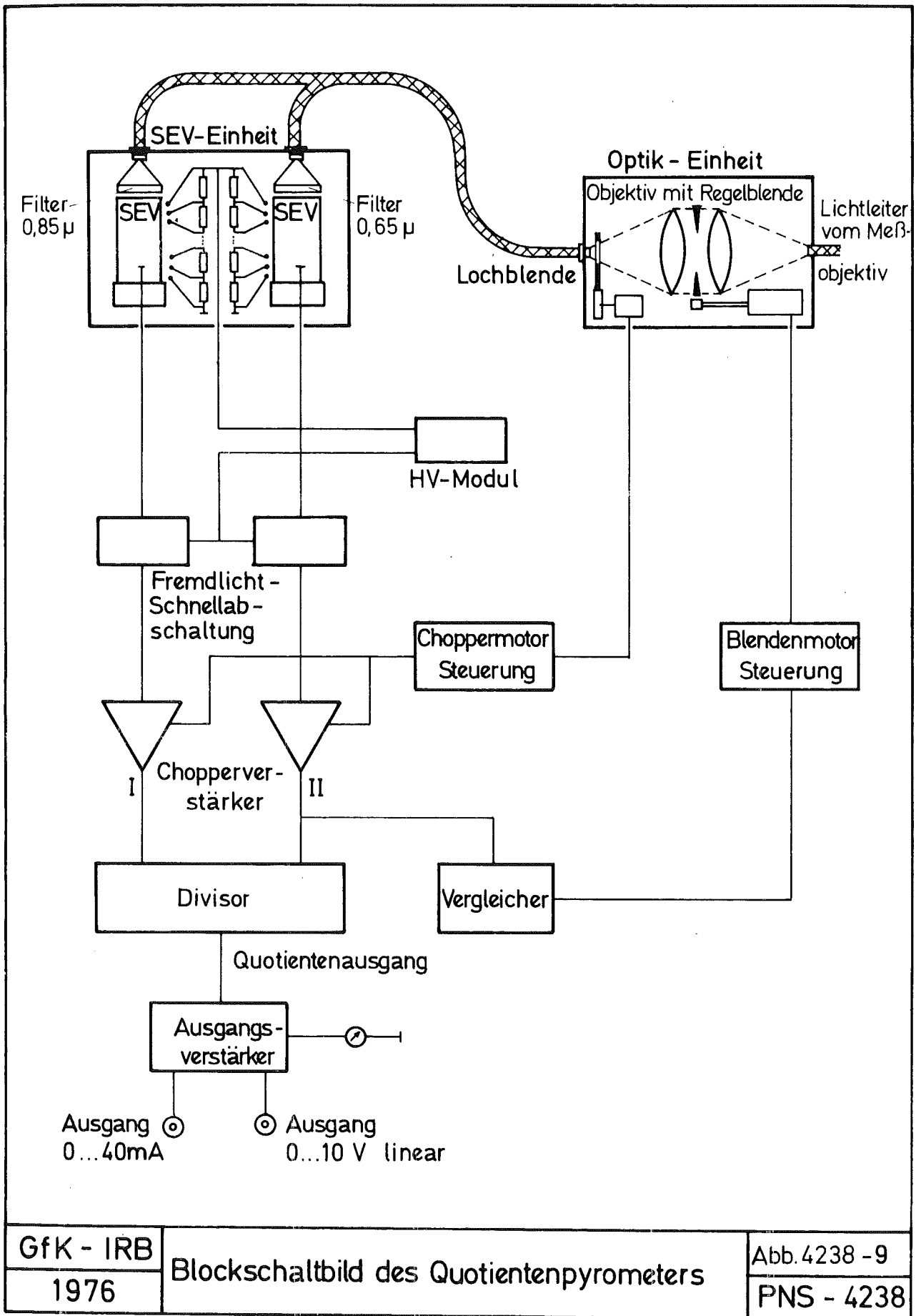
GfK - IRB

1976

Röntgenbild des Brennstabsimulators

Abb. 4238 - 8

PNS - 4238



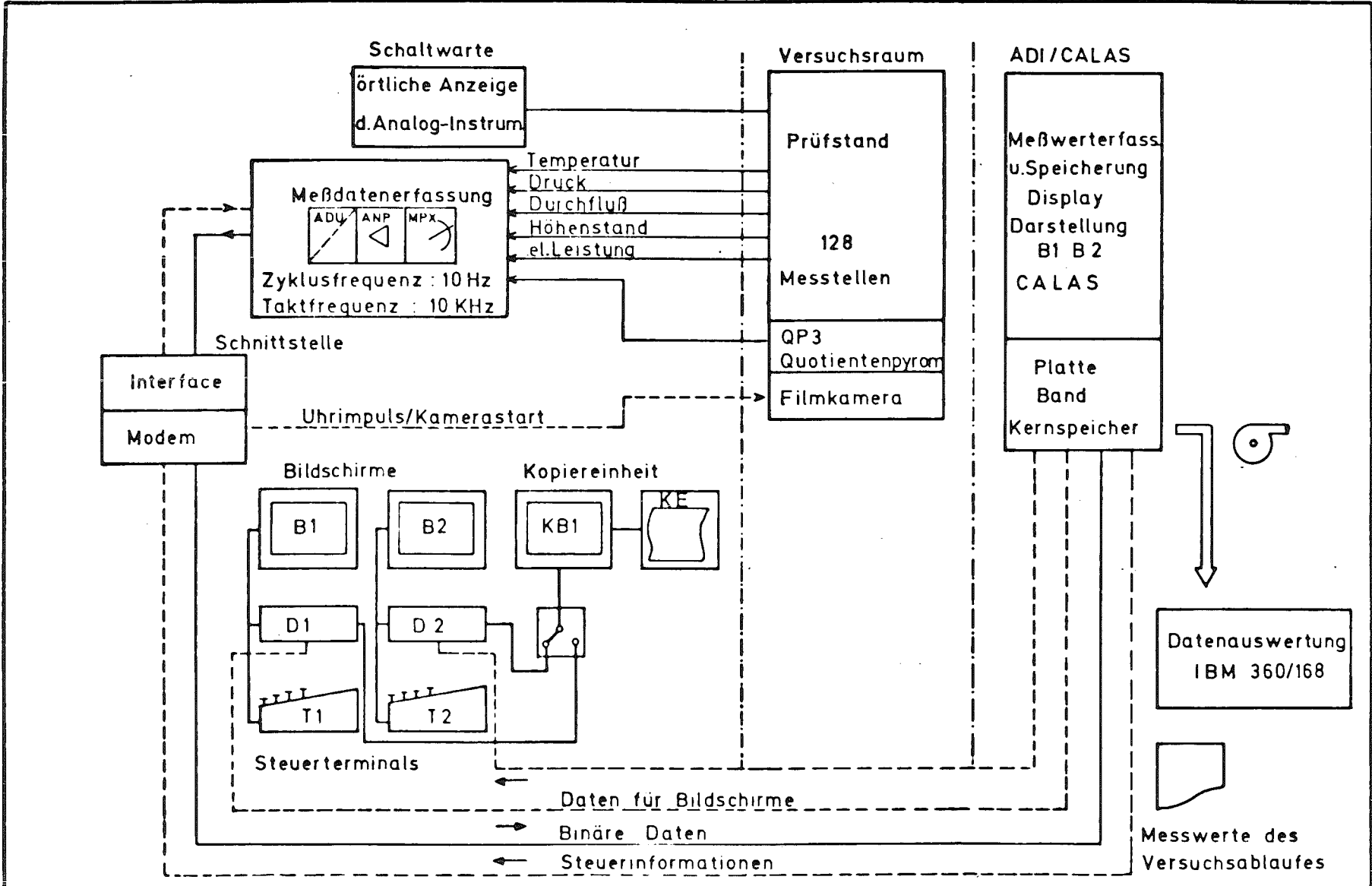
GfK - IRB

1976

Blockschaltbild des Quotientenpyrometers

Abb. 4238 - 9

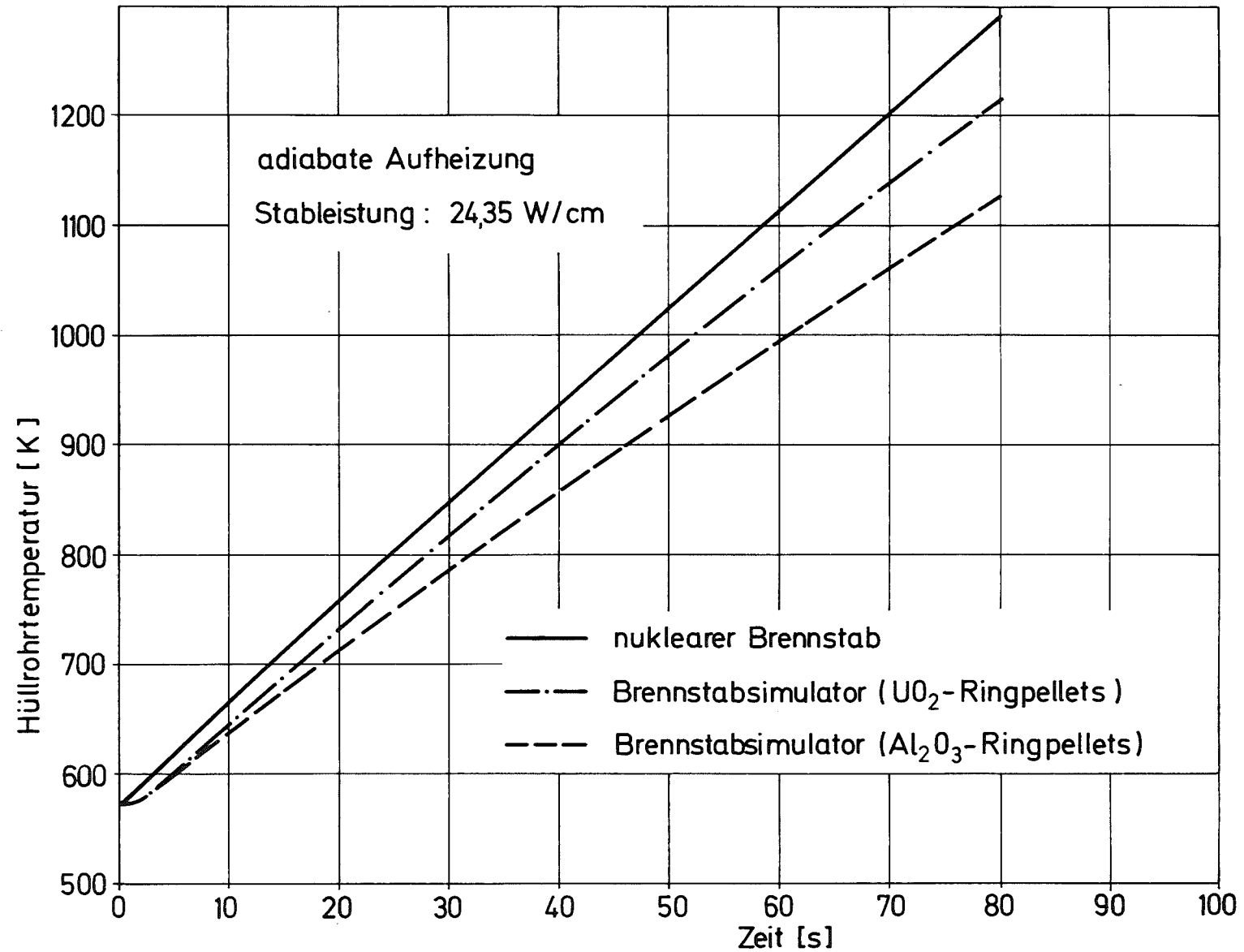
PNS - 4238



GfK - IRB
1975

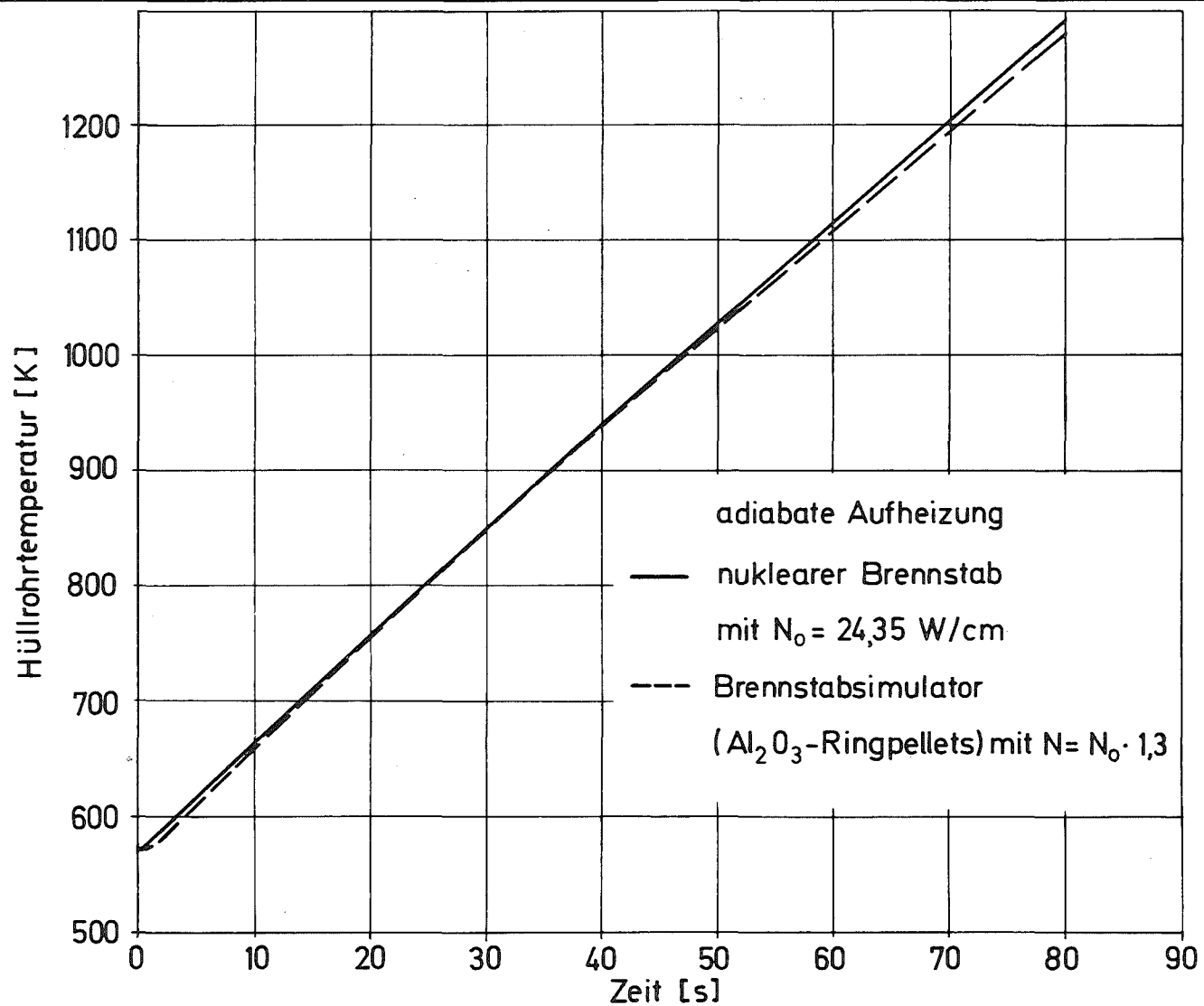
Meßwarterfassung und Datenübertragung

Abb.4238 -10
PNS-4238



-361-

GfK-IRB	Hüllrohrtemperatur - Transienten (SSYST-Rechnungen)	Abb.4238 - 11
1976		PNS - 4238



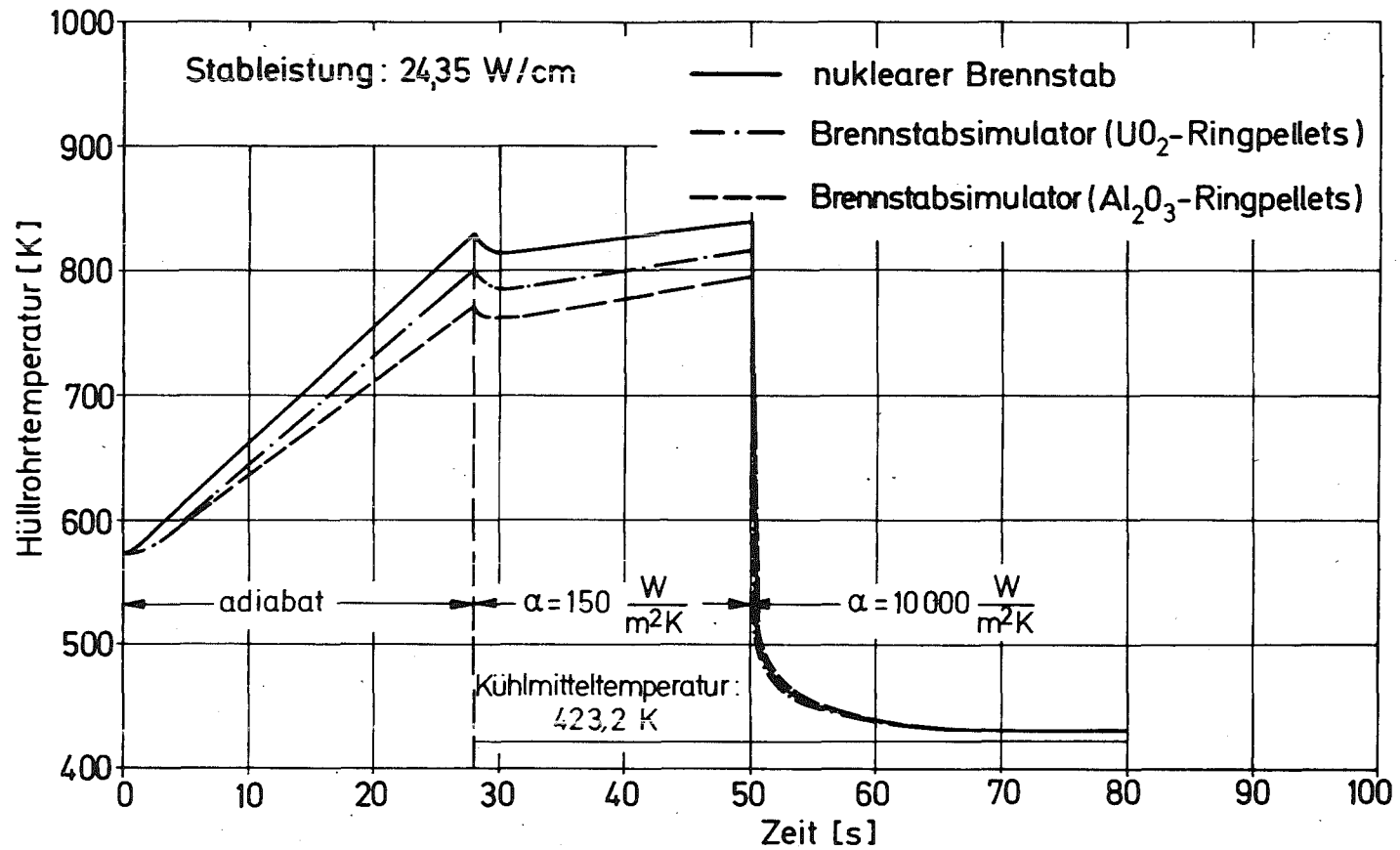
GfK-IRB

1976

Hüllrohrtemperatur - Transienten
(SSYST-Rechnungen)

Abb.4238 - 12

PNS - 4238



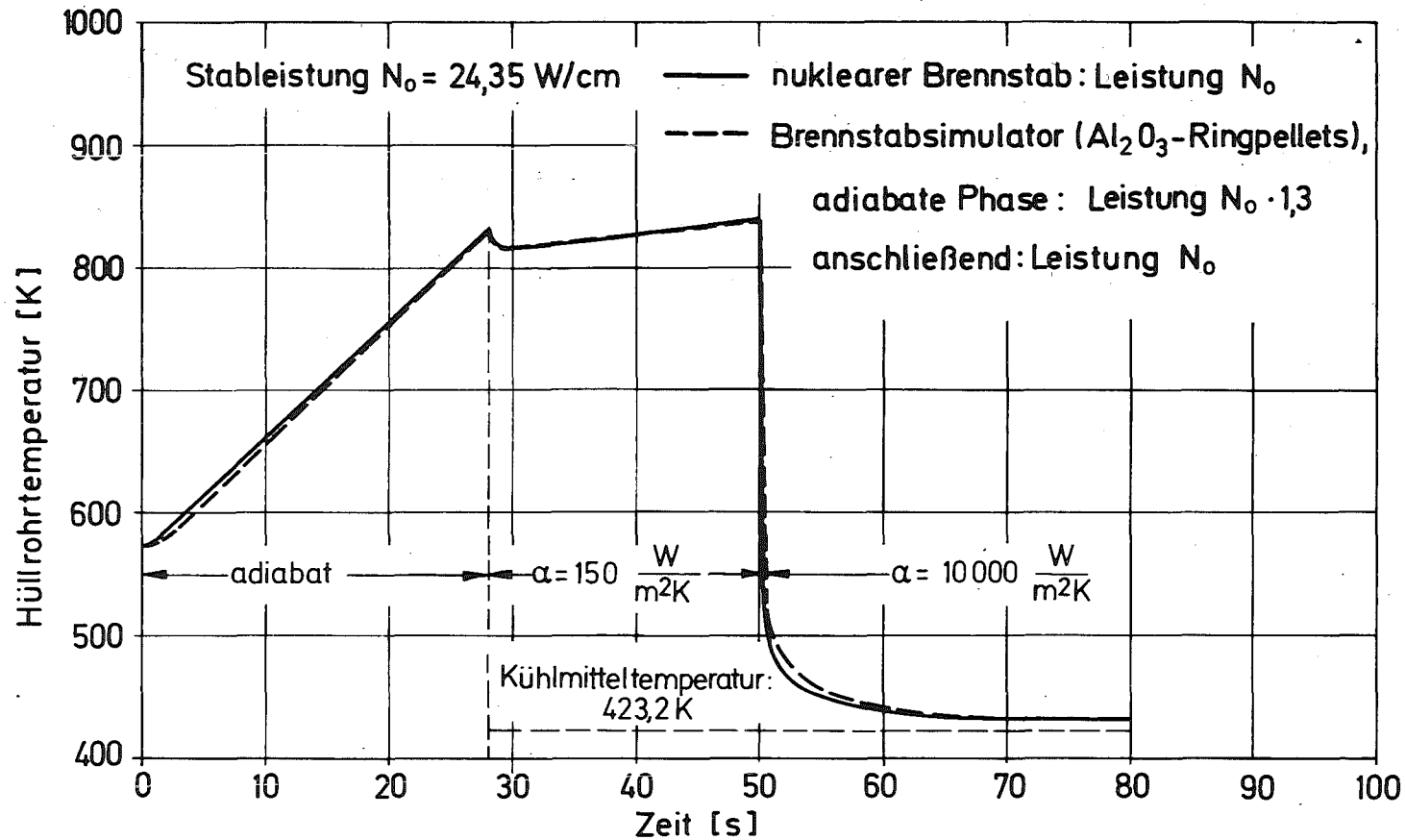
GfK-IRB

1976

Hüllrohrtemperatur - Transienten
(SSYST-Rechnungen)

Abb.4238 - 13

PNS - 4238



GfK-IRB

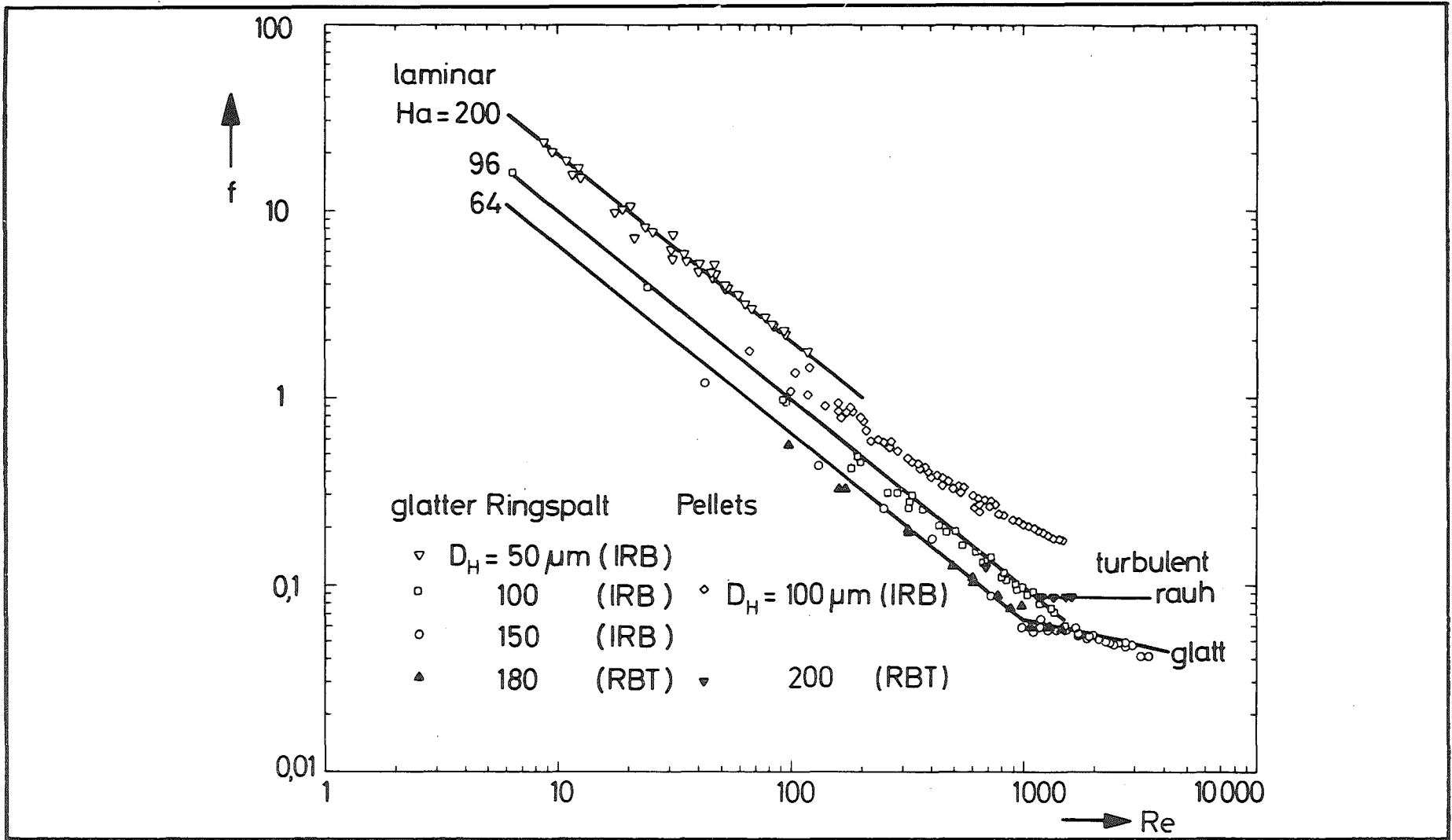
1976

Hüllrohrtemperatur-Transienten

(SSYST - Rechnungen)

Abb. 4238 - 14

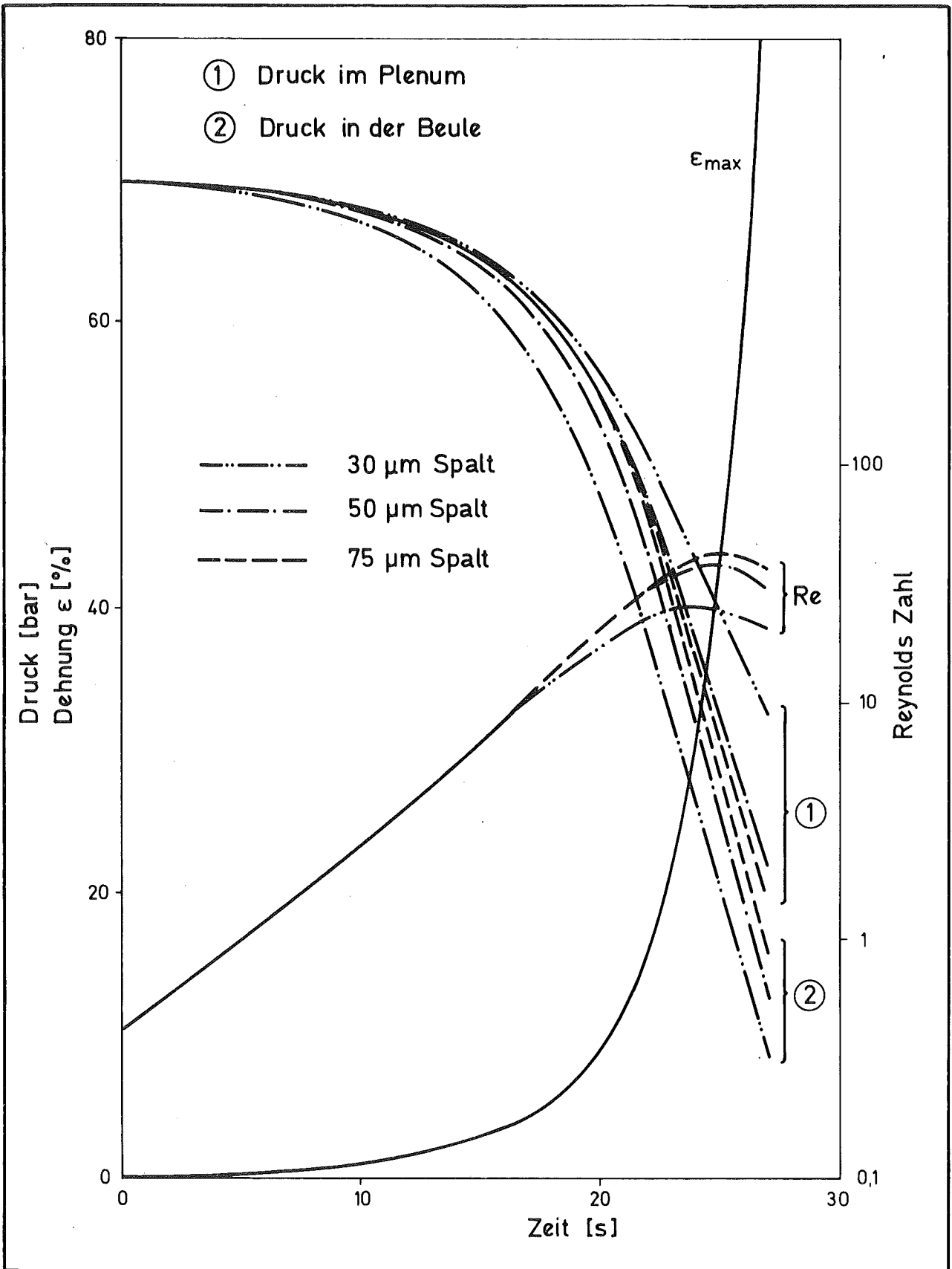
PNS - 4238



GfK - IRB
1976

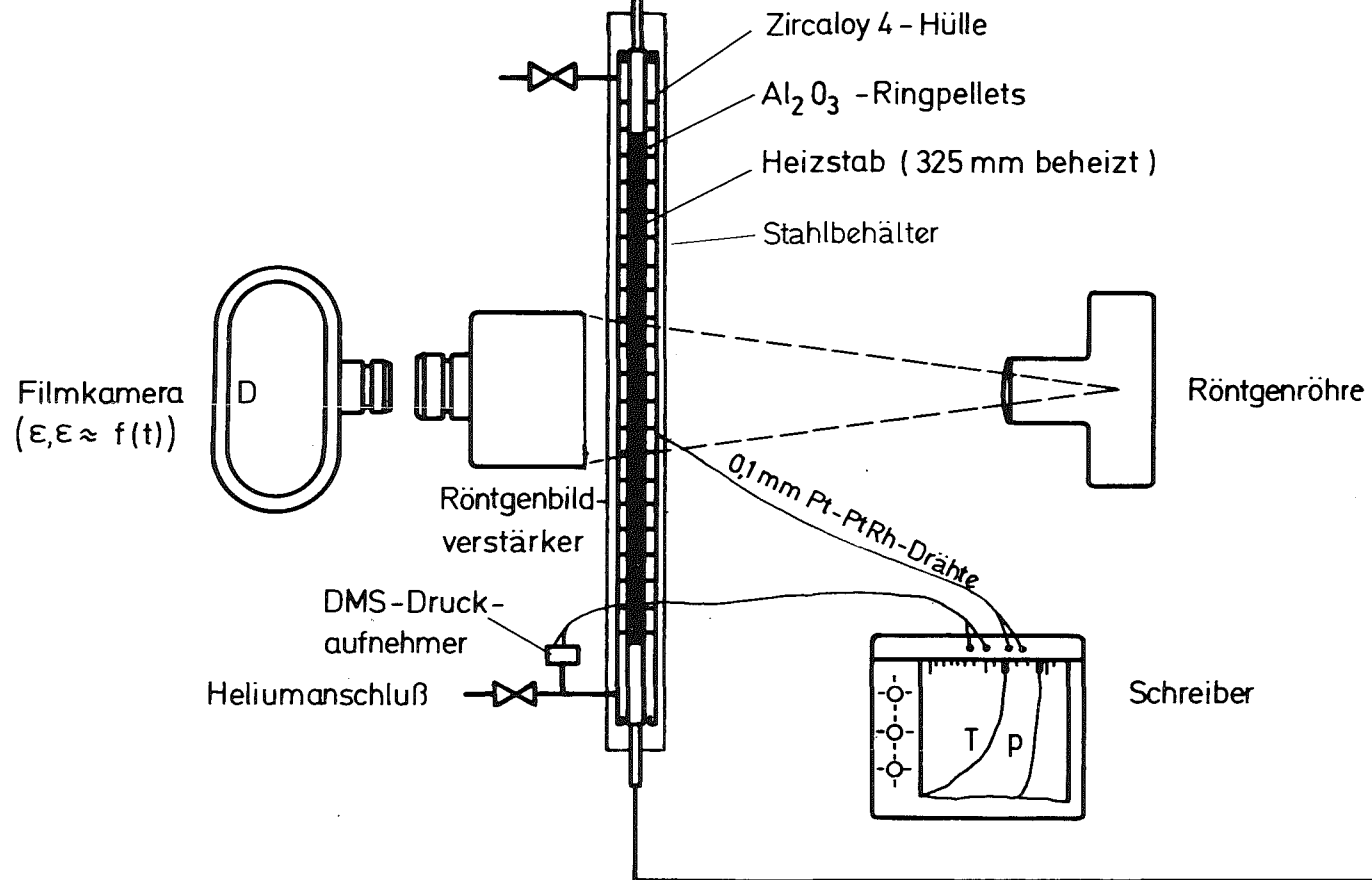
Gasströmung im Ringspalt
Widerstandsbeiwerte

Abb.4238 - 15
PNS - 4238



GfK - IRB	Gasströmung im aufblähenden Brennstabsimulator	Abb.4238-16
1976		PNS-4238

Versuchsatmosphäre: Luft



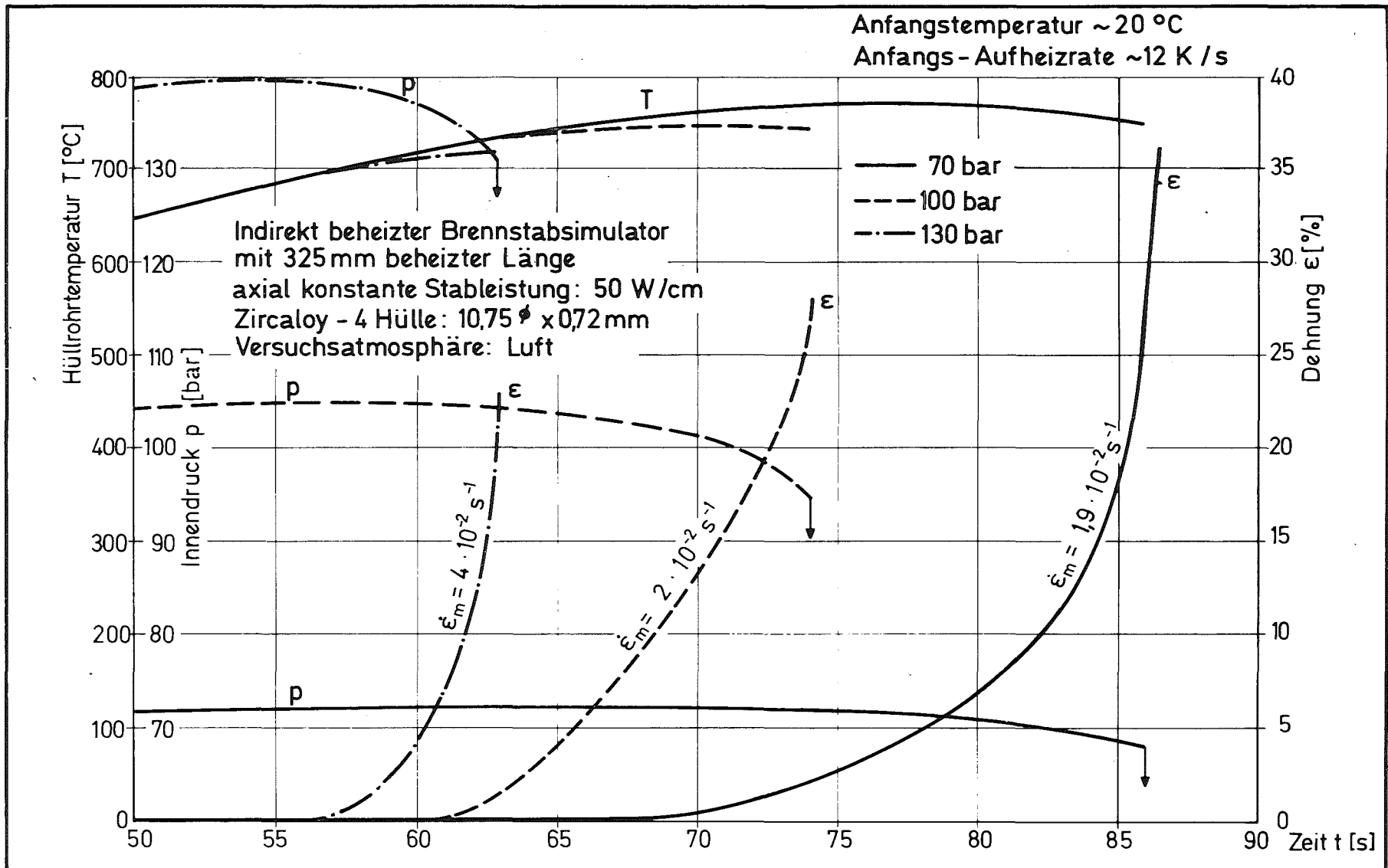
GfK - IRB

1976

Versuchsaufbau für Aufblähversuche

Abb. 4238 - 17

PNS - 4238



GfK - IRB

1975

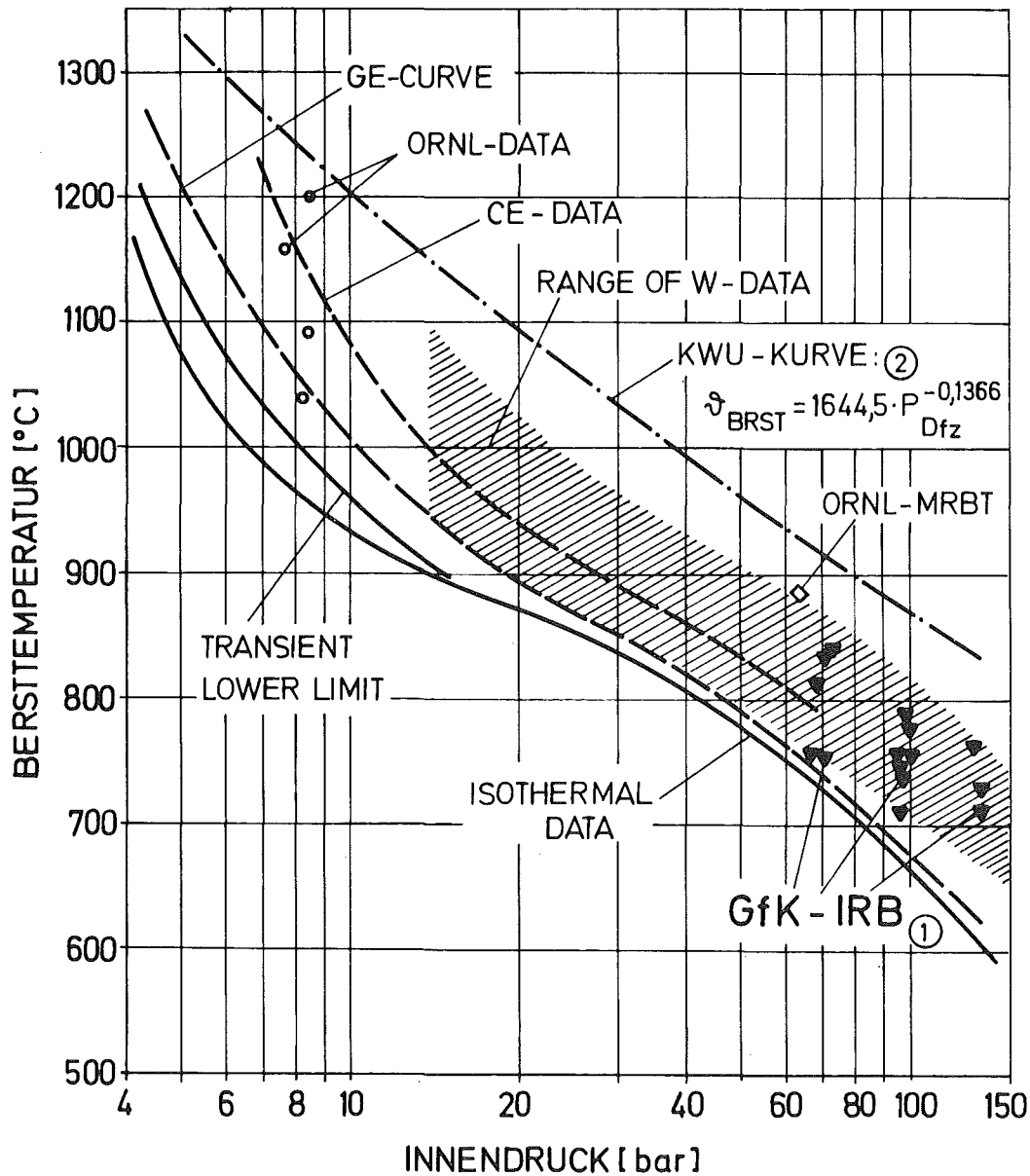
Aufblähvorgang einer Zircaloy - 4 Hülle
(Meßergebnisse)

Abb.4238 - 18

PNS - 4238

① GfK: indirekt beheizt, $\frac{d\vartheta}{d\tau} = f(\tau)$

② KWU: direkt beheizt, $\frac{d\vartheta}{d\tau} = \text{konst} = 50 - 150 \text{ } ^\circ\text{C/s}$

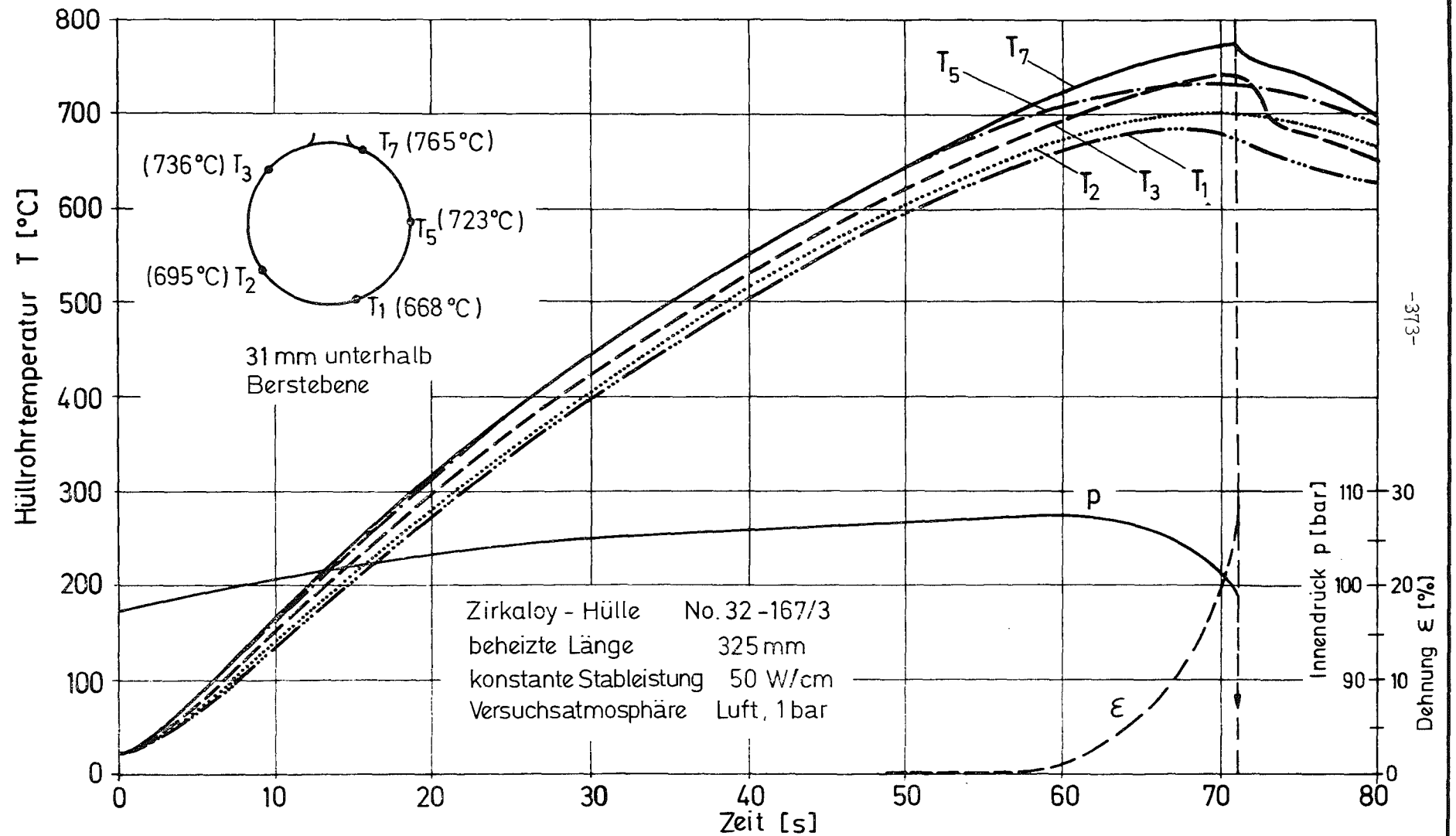


[z.T. aus: J.R. Weir, ORNL-CF-72-11-1, Nov. 72]

GfK - IRB
1976

Bersttemperatur von Zircaloy-Hüllrohren
in Abhängigkeit vom Differenzdruck

Abb. 4238 - 19
PNS-4238



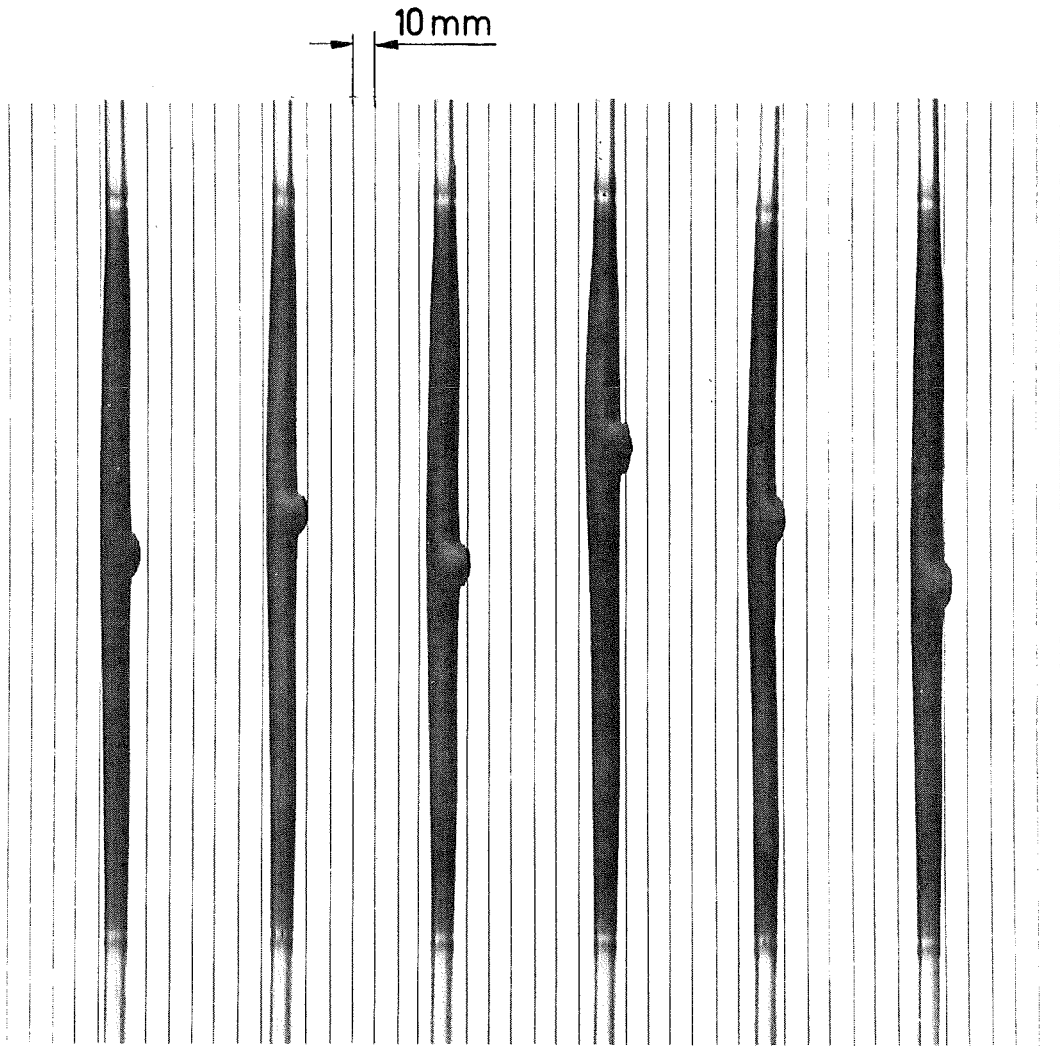
GfK - IRB

Azimutale Temperaturverteilung beim Aufblähvorgang
einer Zirkaloy - Hülle

Abb.4238 - 20

1976

PNS-4238

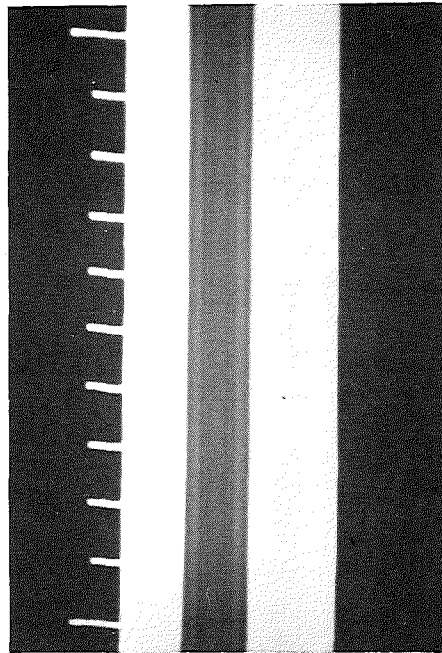


beheizte Länge: 325 mm
konstante Stableistung: 50 W/cm
Innendruck: 100 bar
Versuchsatmosphäre: Luft, 1 bar

GfK - IRB
1976

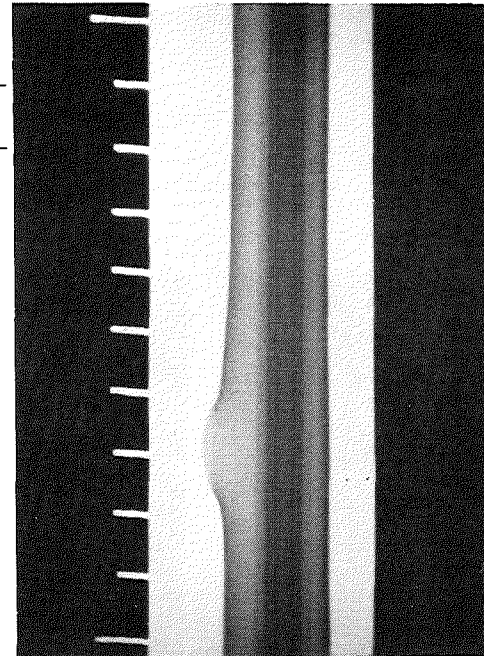
Aufgeblähte und geborstene
Zircaloy - Hüllrohre

Abb.4238-21
PNS-4238



intakte Zircaloy - Hülle

10 mm

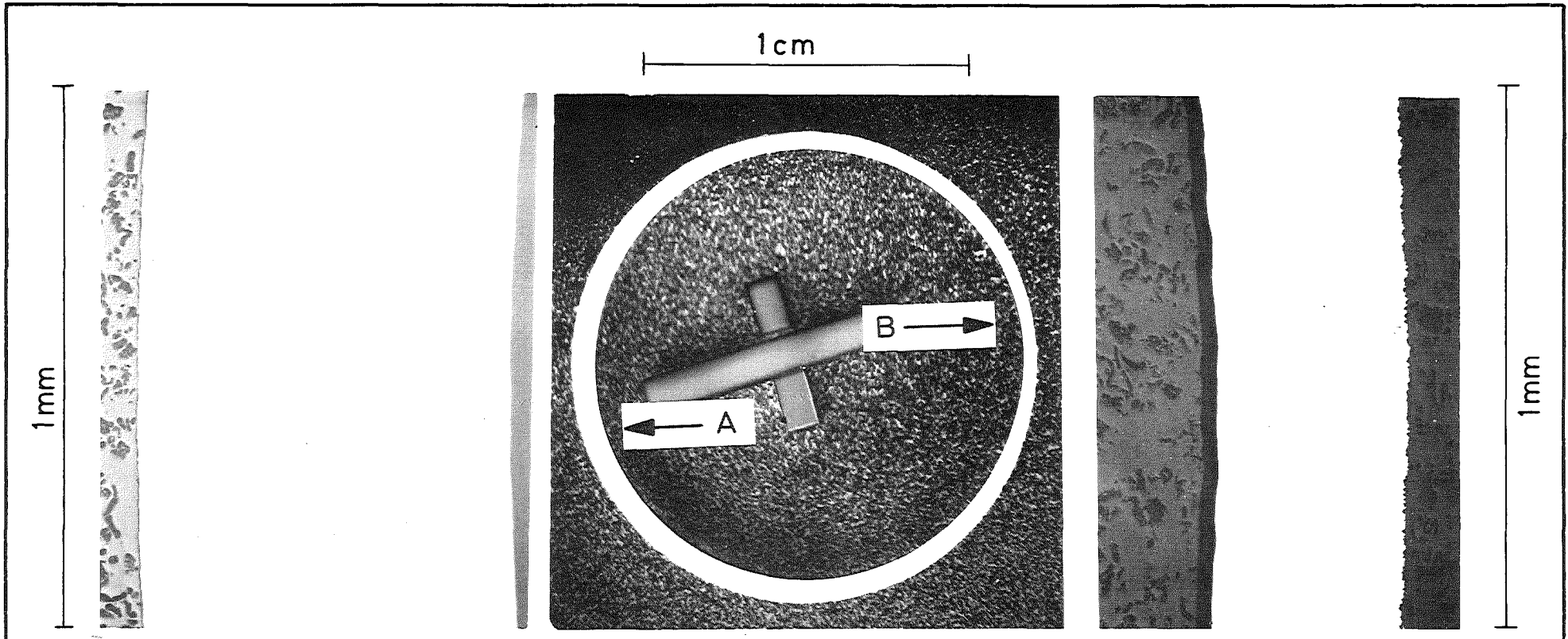


aufgeblähte und geborstene
Zircaloy - Hülle

GfK - IRB
1976

Röntgenbild des Brennstabsimulators

Abb.4238 -22
PNS - 4238

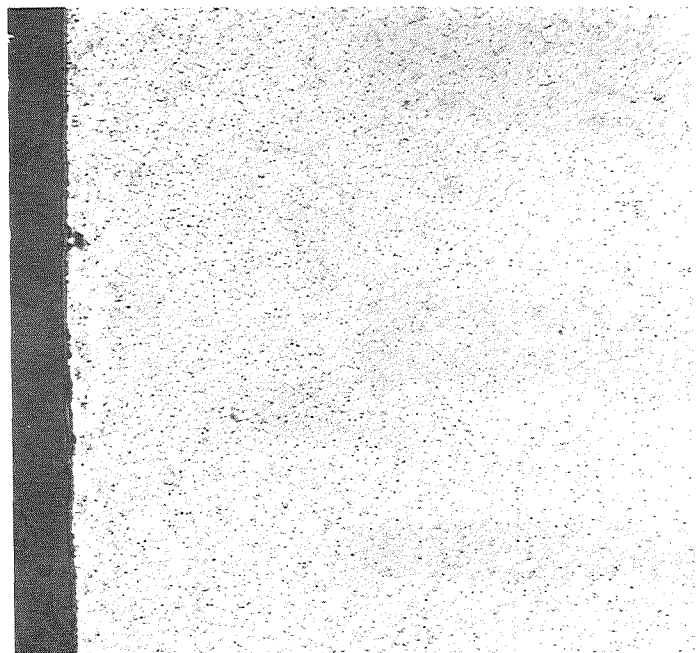


Detail A

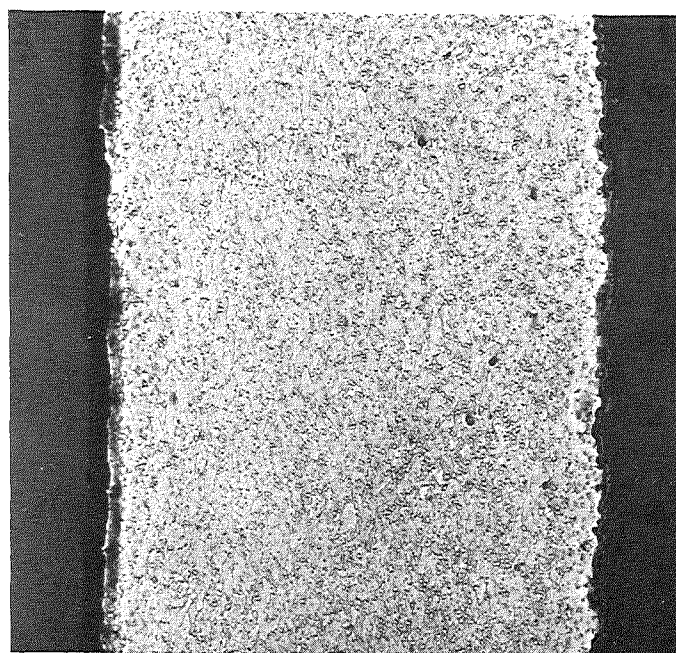
Detail B

Bersttemperatur 841°C
 Berstdruck 71 bar
 Zr-4-Hüllrohr Nr. 21-57/1
 Umfangsdehnung 33 %

GfK - IRB	Querschnitt eines Zr-4-Hüllrohres 10 mm oberhalb der Berststelle	Abb. 4238 - 23
1976		PNS-4238



0,5 mm



praktisch unverformt (A)

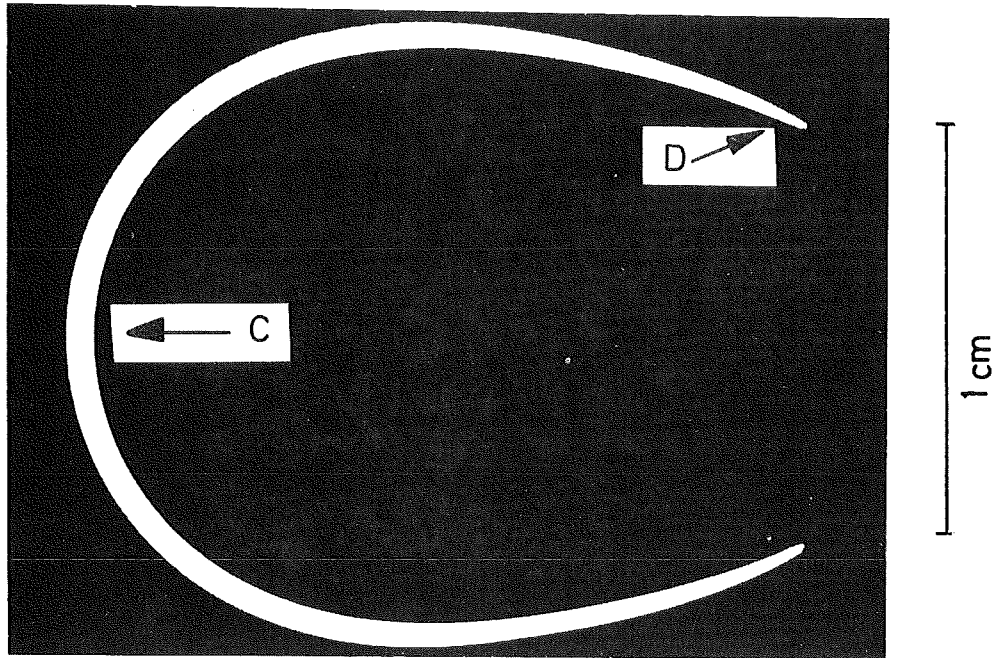
stark verformt (B)

Bersttemperatur 841 °C
Berstdruck 71 bar
Zirkaloy -4 - Hüllrohr Nr. 21 -57/1
Umfangsdehnung 33 %

GfK - IRB
1976

Schliffbilder aus Querschnitt von Zr-4-Hüllrohr 10mm oberhalb der Berststelle
Ätzung: Glycerin + HNO + HF.

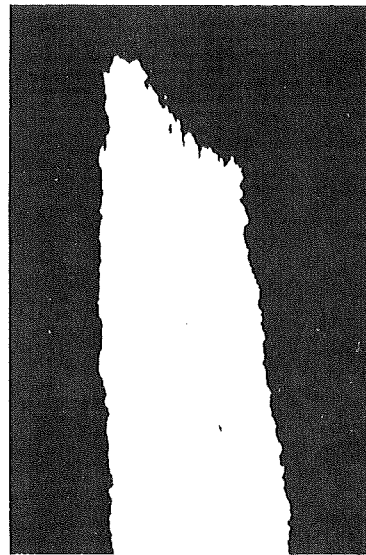
Abb. 4238 - 24
PNS-4238



Detail C



Detail D



Bersttemperatur 841 °C
Berstdruck 71 bar
Zr-4-Hüllrohr Nr. 21-57/1
Umfangsdehnung 37 %

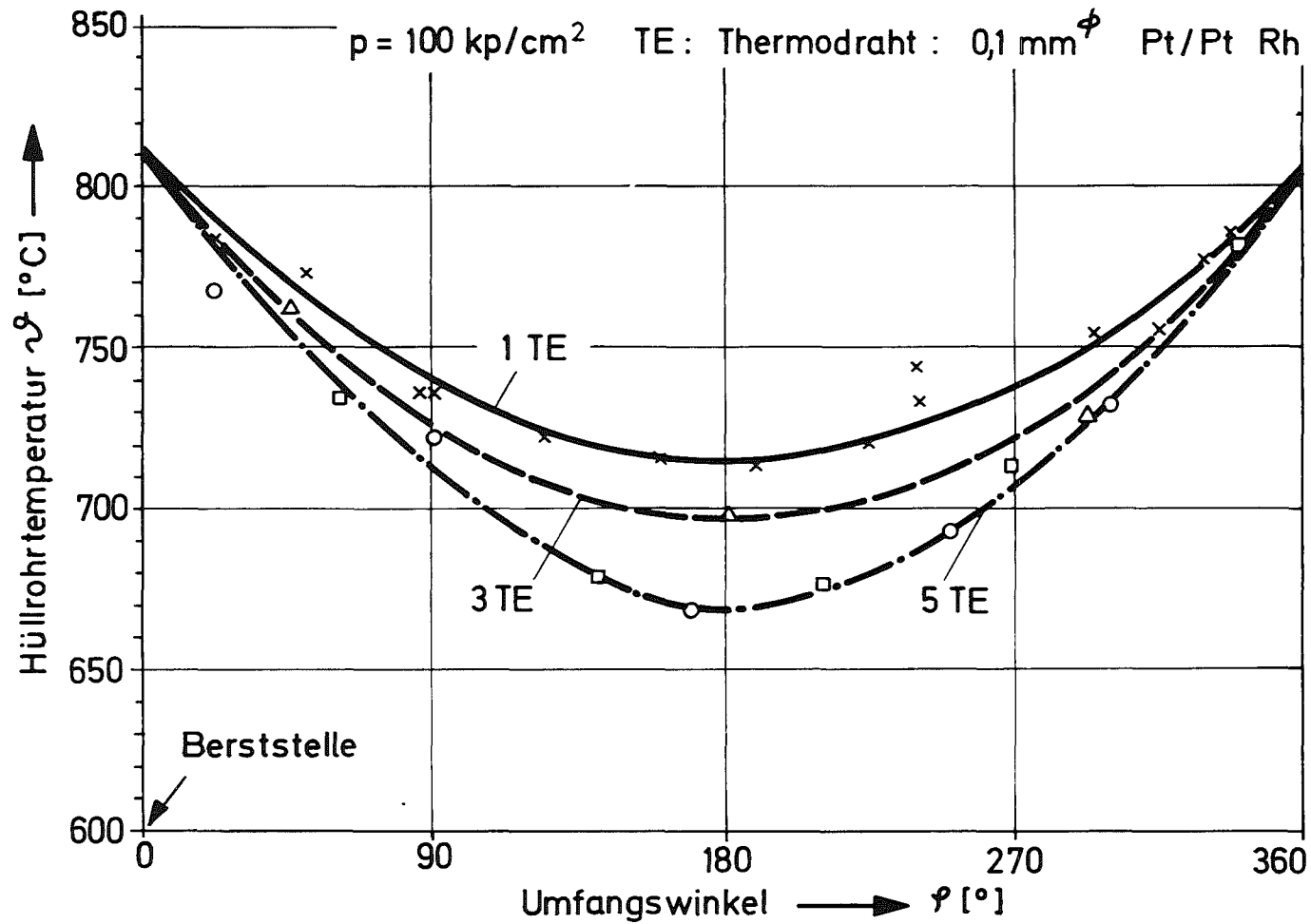
GfK-IRB

1976

Querschnitt der Berststelle
eines Zr-4-Hüllrohres

Abb.4238-25

PNS-4238



-379-

GfK - IRB	Azimutale Temperaturverteilung verformter Zr-Hüllen zum Berstzeitpunkt	Abb.4238- 26
1976		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, W. Götzmann, U. Harten, K. Hitzig, P. Ihle, H. Kreuzinger, A. Megerle, K. Rust, Ha. Schmidt, He. Schneider - IRB)

Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluß einer durch aufgeblähte Brennstabhüllen entstandenen Kühlkanalblockade auf die Kühlwirkung hinter der Blockade während der Flutphase zu bestimmen. Die Größe und die Form der Blockade werden variiert. Zur Interpretation der aus den Meßdaten errechneten Wärmeübergangszahlen und zum besseren Verständnis des Einflusses der Kühlkanalblockaden soll durch Anwendung der Schnellfilmtechnik ein Einblick in die zweiphasige Strömung gewonnen werden.

Schwerpunkte der Arbeiten im Berichtszeitraum lagen auf:

- dem Einfahren der Teststrecke mit teilweise instrumentierten Stäben,
- der Verbesserung des Sicherheitssystems und einzelner Kreislaufdetails,
- der Erprobung der Meßdatenerfassung und -verarbeitung,
- der Entwicklung der Filmtechnik zur Strömungsvisualisierung und
- der Aufnahme des Versuchsbetriebes mit voll instrumentierten Stäben ohne Blockaden.

1. Kreislauf und Stromversorgung

Neben kleinen Verbesserungen am Kreislauf, die die Handhabung erleichtern, wurde zur Verkürzung der Anfahrzeit sowie zur Einhaltung einer konstanten Dampfeintrittstemperatur ein 40 KW-Überhitzer unmittelbar vor dem Eintritt in den Versuchskreislauf eingebaut.

Die Stromversorgung für die indirekt elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren wurde im Berichtszeitraum mit einer verbesserten Regelung ausgestattet und eingefahren. Die Ansteuerung der Leistungsschalter mußte geändert werden, um eine zufällige Wiedereinschaltung nach Ansprechen des Sicherheitssystems auszuschließen. Die Totzeit zwischen Störsignal und effektiver Abschaltung wurde durch diese Maßnahme nicht vergrößert.

Das für den stationären Betrieb geeignete und bewährte Stabüberwachungssystem für Maximalstrom und Maximaltemperatur wurde erweitert um eine Einzelstabüberwachung, die vorwiegend bei Leistungstransienten eine bessere Sicherung der Bündel gegen Zerstörung bietet. Weichen die Teilströme durch die einzelnen Heizstäbe um einen einstellbaren Betrag voneinander ab, wird eine Abschaltung herbeigeführt. Für die Versuchsauswertung ergibt sich außerdem eine Information darüber, innerhalb welcher Grenzen die Leistungen der einzelnen Stäbe zu jedem beliebigen Zeitpunkt der Flutphase mit Sicherheit lagen.

2. Teststrecke

Die Konstruktion der Teststrecke hat sich bei den Probelaufen mit 4 nicht instrumentierten und 1 instrumentierten Stab jeweils ohne Blockade durch den gesamten Parameterbereich bewährt. Die anfänglichen Dichtigkeitsschwierigkeiten an der Längsdichtung und an den Sichtfenstern während der

Benetzungsphase wurden insoweit behoben, daß bei Kastentemperaturen bis zu etwa 550 Grad C keine Lecks mehr auftraten.

Bei höheren Kastentemperaturen werden die zu einem elastischen Zusammenspannen der geteilten Teststrecke erforderlichen Tellerfedern bleibend verformt, wodurch beim Fluten Lecks entstehen. An den Sichtfenstern mußten die Spann- und Haltebrillen verstärkt werden, da sich die ursprüngliche Ausführung im höheren Temperaturbereich bei Passieren der Benetzungsfront bleibend verformte. Nach Anbringen einer größeren Zahl von Spannbügeln blieb die Längsdichtung der Teststrecke auch in der Benetzungsphase dicht, sofern die Kastenwandtemperatur die oben angegebene Grenze von 550 Grad C nicht überschritten hatte. Nach Teststreckentemperaturen von max. 600 Grad C wurde die Teststrecke mit der ersten Stabreihe ohne Schwierigkeiten demontiert. Die Reibung der Abstandshalter an den kalten Stabenden war jedoch so groß, daß sich die Stäbe während der Aufheizphase durchbogen und 2 Abstandshalter in der heißen Zone verbogen. Eine Vergrößerung der bisherigen Zuglast von 10 kp pro Stab schien nicht zweckmäßig. Beim Einbau der 2. Stabreihe wurden vielmehr die Federkräfte der Abstandshalterlamellen verringert. Die bisher damit gemachten 7 Flutvorgänge hatten keine Geometrieänderung mehr zur Folge.

3. Heizstäbe und Instrumentierung

Nach ca. 40 Versuchen und 18 Flutvorgängen in der Teststrecke ist bislang kein Heizstabfehler aufgetreten. Zwei Kurzschlüsse, verursacht durch Wasserbrücken an den unteren Stabanschlüssen, führten zu Schnellabschaltungen. Die Stäbe wurden nicht beschädigt. Nach Verdampfen der Wasserbrücke brannten jedoch im Lichtbogen die parallel verlaufenden Thermoelemente durch. Bei den o.g. Störfällen war das verbesserte Sicherheitssystem mit der Einzelstabüberwachung noch nicht eingesetzt.

Hiermit und aufgrund der inzwischen geänderten Isolierung kann dieser Störfall nicht mehr eintreten. Während des Betriebes war der Ausfall eines Thermoelementes zu verzeichnen, der jedoch leicht behoben werden konnte, da es sich um eine mangelhafte Isolierung im Anschlußstecker handelte. Die im vorigen Berichtszeitraum angedeutete Änderung der Blockadebefestigung auf dem Brennstabsimulator wurde überprüft und nach positivem Ergebnis der Funktionstests festgelegt.

4. Erfassung der Versuchsdaten

Nach Wiedereinbau des schnellen Datenerfassungssystemes in die Schaltwarte im Dezember 1975 erfolgte eine Reihe von Funktionstests, wobei verschiedene soft-ware- und vor allem hard-ware-Fehler auftraten. Seit Mai 1976 ist zwar die Anlage betriebsbereit, aber die Verstärkerdrift ist noch nicht zufriedenstellend klein.

Die im vorigen Halbjahresbericht beschriebenen Programme zur Datenerfassung und Datenreduktion wurden erstellt und erprobt. Sie sind nahezu identisch mit den unter PNS 4238 beschriebenen. Zur Datensicherung und Analyse schneller Vorgänge (größer 10 Hz) werden 14 Meßwerte kontinuierlich auf Analogband aufgezeichnet, unabhängig von der o.g. Datenerfassung. Eine Auswertung erfolgt jedoch nur im Bedarfsfall.

5. Auswertung

Zur Berechnung der Wärmeübergangszahlen aus den gemessenen Hüllrohrtemperaturen steht das HETRAP-Programm (1) zur Verfügung. Dieses Programm löst das inverse Wärmeleitproblem für eine eindimensionale Geometrie, wobei die Wärmeübergangs-

zahlen an der Staboberfläche aus Temperaturen berechnet werden sollen, die in der Hüllrohrwand gemessen werden. Es hat sich jedoch gezeigt, daß das Programm auf Thermoelement-Rauschen, welches vorallem durch die Thyristor-gesteuerte Leistungsregelung verursacht wird, empfindlich reagiert. Schon geringfügige Temperaturschwankungen führen bei der Extrapolation auf die Staboberfläche zu erheblichen Schwankungen in der berechneten Wärmeübergangszahl. Aus der Literatur (2) ist die sogenannte BECK'sche Methode zur Dämpfung solcher Schwankungen bekannt. Bei dieser Methode wird zur Berechnung der Wärmeübergangszahl für einen Zeitschritt der Wärmestrom an der Staboberfläche für mehrere Zeitschritte (Advanced Time Steps) konstant gehalten und so lange variiert, bis die Summe der quadratischen Abweichungen zwischen gemessener und für den Ort des Thermoelementes berechneter Temperatur ein Minimum annimmt. Dadurch, daß die Summe der Temperaturabweichungen für alle Advanced Time Steps minimiert, der so erhaltene Wärmestrom jedoch nur für einen Zeitschritt verwendet wird, ergeben sich im allgemeinen Abweichungen zwischen gemessener und berechneter Temperatur. Um dies zu vermeiden, wurde die BECK'sche Methode durch Hinzufügen einer Integralkorrektur, mit der das Integral

$$\int_0^t (T_{\text{gemessen}} - T_{\text{berechnet}}) \cdot dt$$

im Mittel zu Null gemacht wird, modifiziert.

Mit dem so verbesserten HETRAP-Programm wurde eine Reihe von Testfällen berechnet. Abb.4239-1 zeigt einen Querschnitt des verwendeten Heizstabes. Es wurde zunächst ein zeitlicher Verlauf der Stableistung, der Kühlmitteltemperatur und der Wärmeübergangszahl an der Staboberfläche vorgegeben und das Temperaturfeld im Stab als Funktion der Zeit berechnet. Von diesem Ergebnis, welches in Abb. 4239-2 dargestellt ist, wurden die Temperaturen am Ort des Thermoelementes in vorgegebenen zeitlichen Intervallen (z.B. 0,05 sec.) als fiktive Meßwerte übernommen. Dann wurde umgekehrt versucht, den zu diesen fiktiven Meßwerten gehörenden Verlauf der Wärmeübergangszahl zu be-

rechnen. Im Idealfall müßte der berechnete Verlauf identisch mit dem vorgegebenen sein.

Abb. 4239-3 zeigt das Ergebnis dieser Rechnung. Aus einem Vergleich der Abb. 4239-2 und 4239-3 ist ersichtlich, daß der Verlauf der Wärmeübergangszahl identisch ist. Bei diesem theoretischen Fall mit den fiktiven Meßwerten kann die Verwendung von Advanced Time Steps keine Verbesserung sondern nur ein Verschmieren von sprungförmigen Änderungen der Wärmeübergangszahl ergeben, wie Abb. 4239-4 zeigt. Um die Methode der Advanced Time Steps zu testen, wurden die fiktiven Meßwerte des ersten Falles unter Verwendung eines Zufallgenerators um $\pm 2K$ gestreut und dann aus den gestreuten Temperaturen die Wärmeübergangszahl berechnet. Variiert wurde die Anzahl der Advanced Time Steps (NADVAN). In den Abb. 4239-5 und 4239-6 ist das Ergebnis für NADVAN=0 und 3 dargestellt.

Die durch die Extrapolation in die Zukunft erzielte Verbesserung ist deutlich zu sehen. Die Wärmeübergangszahl schwankt bei NADVAN = 3 wesentlich weniger, ohne daß der sprungförmige Verlauf zu sehr verschmiert wurde. An diesem Programm werden zur Zeit weitere Verbesserungen vorgenommen. Es ist z.B. vorgesehen, neben dem verwendeten, expliziten Integrationsverfahren ein gemischt explizit - implizites Verfahren einzubauen, wobei das Programm selbst das jeweils optimale Integrationsverfahren auswählt.

6. Entwicklung der Filmtechnik zur Strömungsvisualisierung

Um die aus den Meßwerten errechneten Wärmeübergangszahlen interpretieren zu können und vor allem den Einfluß der Kühlkanalblockaden verstehen zu können, soll durch Anwendung der Schnellfilmtechnik ein Einblick in die zweiphasige Strömung gewonnen werden.

Bei der Anwendung der Zeitdehnerfotografie können dabei Aussagen über Tropfenspektrum und Tropfengröße sowie mit Einschränkung über die Bewegungsrichtung der Tropfen in Abhängigkeit von den äußeren Parametern des Systems gewonnen werden.

Die auftretenden, experimentellen Schwierigkeiten lassen sich im wesentlichen in die folgenden drei Punkte fassen:

- Verhinderung der Temperaturabsenkung der Brennstabsimulatoren in der Ebene der Sichtfenster,
- möglichst langes Verzögern der Sichtfensterbenetzung im Inneren der Teststrecke,
- Erstellung scharfgezeichneter Filmaufnahmen, die einer detaillierten Auswertung zugänglich sind.

Die Vorversuche zur Strömungsvisualisierung wurden an einer getrennten Testeinrichtung durchgeführt. Es wurde eine einfache Zweistabanordnung gewählt, die umgeben ist von einem dünnwandigen, rechteckigen Kühlkanal. Durch diesen Aufbau der Teststrecke wird zwar die Geometrie des Kühlkanals weniger gut simuliert, die thermische Simulation benachbarter Stäbe gelingt dagegen bei entsprechender Beheizung der umgebenden Kastenwände recht gut. Zu diesem Zweck sind auf den Kastenwänden regelbare Widerstandsheizer aufgebracht, die es erlauben, der Kühlkanalberandung ein bestimmtes Temperaturprofil aufzuprägen. Dadurch wird erreicht, daß die Benetzungsfront an der Kastenwand und an den Brennstabsimulatoren nahezu gleichzeitig fortschreitet.

Diese wichtige Voraussetzung der Simulation thermodynamischer Ähnlichkeit wird im Bereich der Sichtfenster empfindlich gestört, da zum einen hier eine äußere Beheizung der Kastenwand fehlt, zum anderen die Stäbe Wärme an die Umgebung abstrahlen, so daß eine starke Absenkung der Stabtemperaturen im Bereich der Sichtfenster festzustellen war. Dies wurde durch Wahl geeigneter, im Infrarotbereich stark absorbierender Gläser in Form von Doppelscheiben sowie durch Verwendung außen angeordneter Infrarotstrahler vermieden. Durch diese Maßnahme wurde erreicht, daß die Scheibentemperatur nahezu identisch mit der Kastenwandtemperatur ist und die Störung des Temperaturprofils in den Stäben durch die Fenster vernachlässigbar klein wird. Durch hohe Scheibentemperaturen bleiben die Sicht-

fenster bis kurz vor dem Eintreffen der Benetzungsfront trocken, so daß die Strömung bis zum Durchwandern der Quenchfront beobachtet werden kann.

Scharfgezeichnete Filmaufnahmen werden durch eine Blitzlichteinrichtung mit einer Einzelblitzdauer von 20 ns ermöglicht. Als Lichtquelle dient eine Funkenstrecke, welche sich zur Erhöhung der Lichtausbeute in einer Edelgasatmosphäre befindet. Die Blitzfolge wird durch einen speziellen Impulsgeber von der Kamera aus gesteuert. Die Abbildungen 4239-7 bis 4239-10 stellen Einzelbilder aus Zeitdehnerfilmen dar und sollen den Eindruck von den erzielten Ergebnissen vermitteln. Die Bilder 4239-7 und 4239-9 wurden an der Teststrecke ohne Heizstäbe, die Bilder 4239-8 und 4239-10 an der Teststrecke mit Heizstäben aufgenommen.

Die Flutrate betrug in beiden Fällen 9 Ltr/min; dies entspricht im Fall der leeren Teststrecke einer Kaltflutgeschwindigkeit von 13.8 cm/sec, im anderen Fall einer Geschwindigkeit von 20.8 cm/sec.

Bei den Bildern 4239-7 und 4239-8 befand sich die Benetzungsfront 2200 mm unterhalb der Beobachtungsebene (d.h. unmittelbar nach dem Eintritt in die beheizte Zone), bei den Bildern 4239-9 und 4239-10 dagegen 550 mm unterhalb der Beobachtungsebene. Die mittlere Kastentemperatur bei Flutbeginn betrug 650 °C und die mittlere Oberflächentemperatur der Stäbe 730 °C.

Der Abbildungsmaßstab beträgt 1:1,15, d.h. die geometrischen Abmessungen sind geringfügig größer als in Wirklichkeit.

Der Flutvorgang bei der Versuchsanordnung ohne Stäbe ist zeitlich kürzer als mit Stäben, d.h. es strömt weniger Wasser in Form von Dampf oder Tropfen aus dem Strömungskanal. Auf Bild 4239-7, also rund 2 m oberhalb der Benetzungsfront, liegt die Strömungsgeschwindigkeit des Dampfes bei 2 m/sec. In der Dampfströmung werden Tropfen mit einem Durchmesser von mehr als 1 mm mitgeführt. Häufig schweben Wasserfetzen in der Strömung.

In Bild 4239-9 liegt die Benetzungsfront rund 0,5 m unterhalb des Beobachtungsortes. Der Strömungskanal ist mit einer vor-

und rückströmenden Schaumzone gefüllt.

Bei der Versuchsanordnung mit beheizten Stäben wird zum einen mehr einströmendes Wasser verdampft, zum anderen versperren die Brennstabsimulatoren etwa 1/3 der Querschnittsfläche. Dies und wohl auch eine Überhitzung des Dampfes sind die Ursache für Strömungsgeschwindigkeit des Dampfes von 12,5 m/sec im Bild 4239-8. Die hohe Strömungsenergie führt zur Bildung eines feinverteilten Tropfenspektrums mit Tropfendurchmessern von weniger als 1 mm.

In Bild 4239-10, d.h. ungefähr 0,5 m oberhalb der Benetzungsfrent gleicht sich bei einer Dampf-Strömungsgeschwindigkeit von 3,8 m/sec das Tropfenspektrum dem von Bild 4239-7 an.

Zu einer einheitlichen Tropfengröße trägt offensichtlich die Zahl der im Strömungskanal befindlichen Abstandshalter bei. Auf Bild 4239-8 passiert die Strömung 3 Abstandshalter, auf Bild 4239-10 dagegen nur 1 Abstandshalter.

Bei Verminderung der Flutrate oder Variation der Ausgangstemperatur wird eine zeitliche Änderung des Flutvorganges beobachtet, wobei der Massenstrom (variiert zwischen $2 \div 8$ Ltr/min.) ein stärkerer Parameter als die Ausgangstemperatur (variiert zwischen $630 \div 830$ °C) ist.

Pulsierende Strömungen mit Druckspitzen ≤ 1 bar führen offensichtlich zu kürzeren Zeiten bis zur Benetzung.

7. Ausblick auf den geplanten, weiteren Fortgang

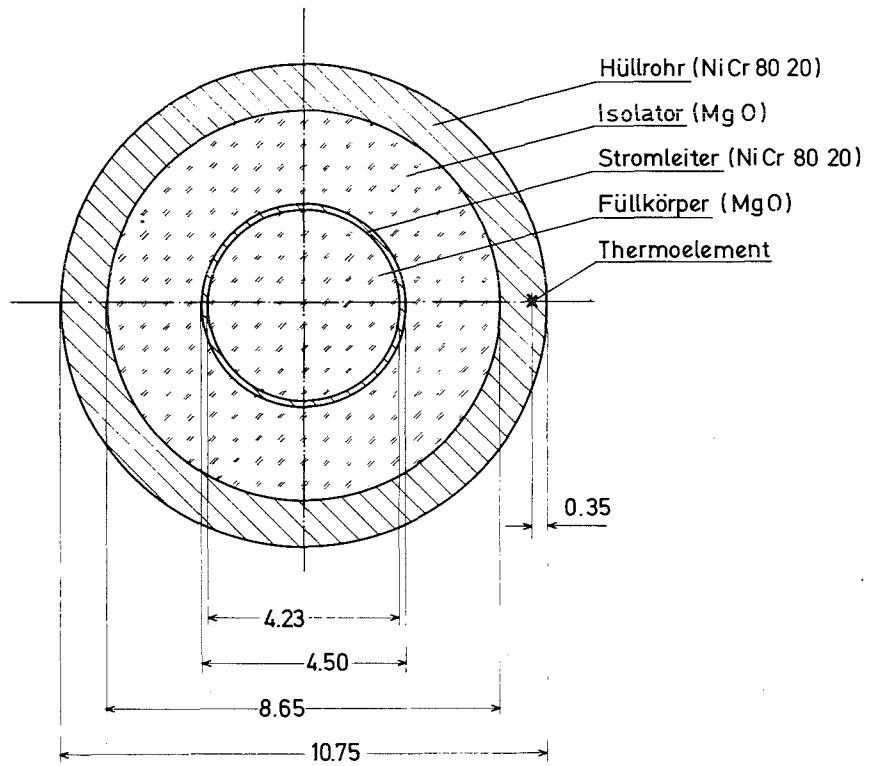
Mit den eigentlichen Versuchen wurde begonnen. Um eine Basis zu erhalten, werden zunächst Tests ohne Kühlkanalblockaden durchgeführt.

Um den Wandeinfluß zu verringern, wurde eine außen angebrachte Heizung der Teststrecke konzipiert und der Bestellvorgang eingeleitet.

Nach ca. 20 Versuchen ohne Blockaden werden Kühlkanalblockaden eingebaut und der interessierende Parameterbereich untersucht.

Versuche mit einem 5 x 5 großen Stabbündel werden vorbereitet.

- (1) S. Malang,
HETRAP: A Heat Transfer Analysis Program,
ORNL-TM-4555, Sept. 1974
- (2) J.V. Beck,
Nonlinear Estimation Applied to the Nonlinear Inverse
Heat Conduction Problem,
Int. J. Heat Mass Transfer, 1970, VOL. 12, pp. 703-716



Querschnitt durch einen Heizstab

Abb. 4239 - 1

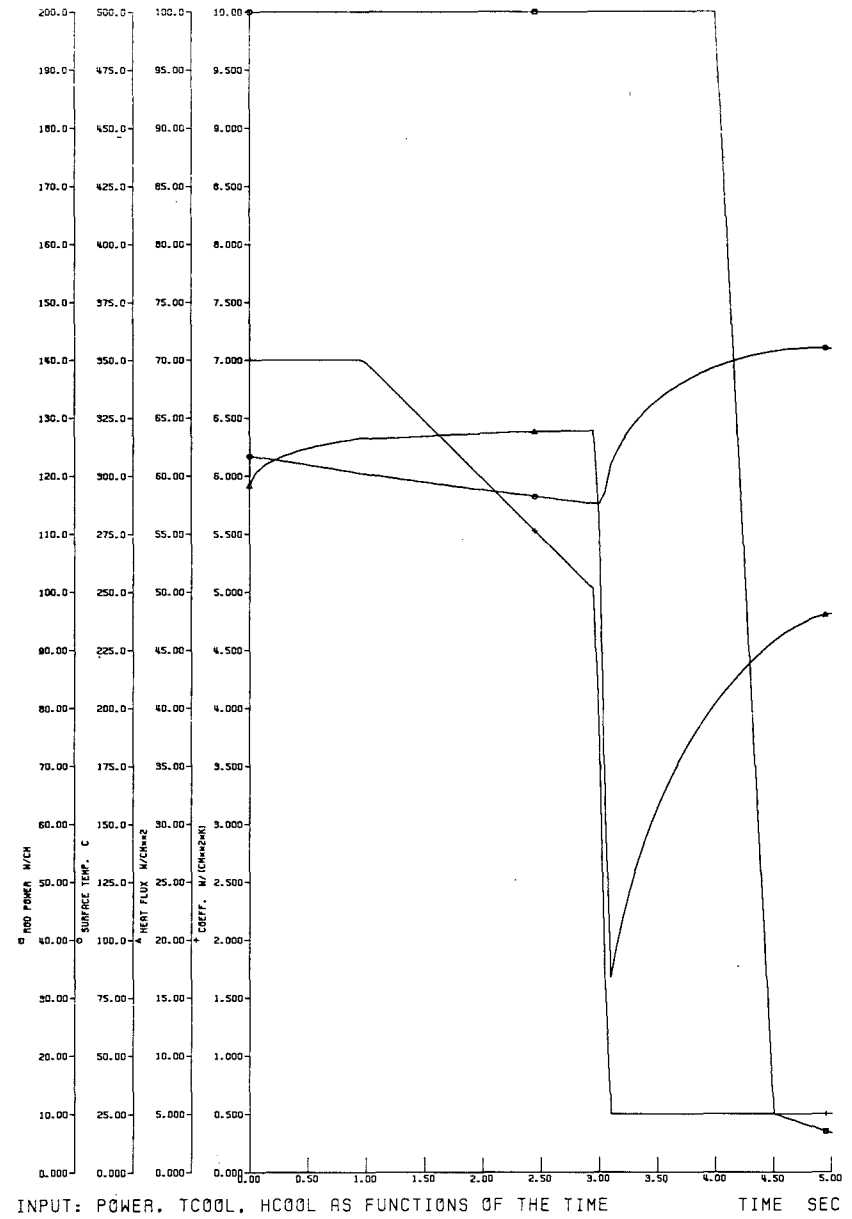


Abb. 4239 - 2

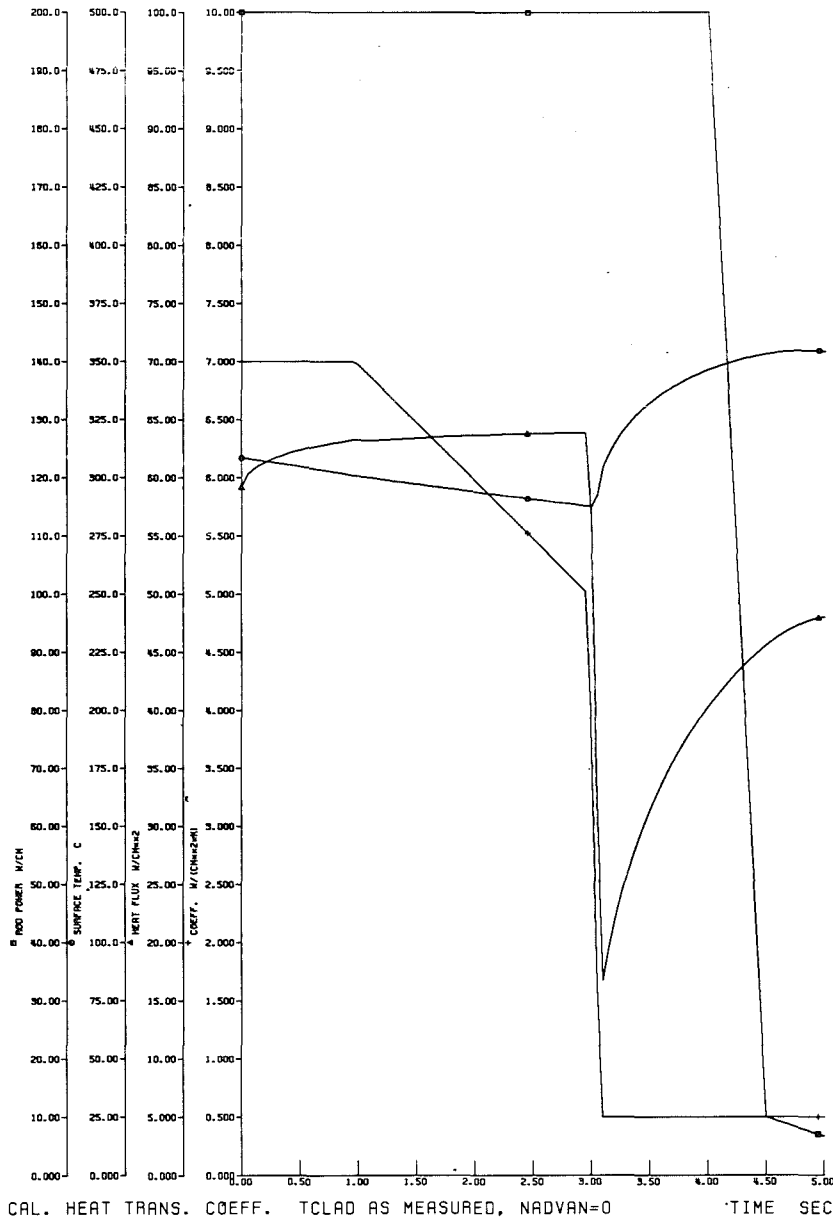


Abb. 4239 - 3

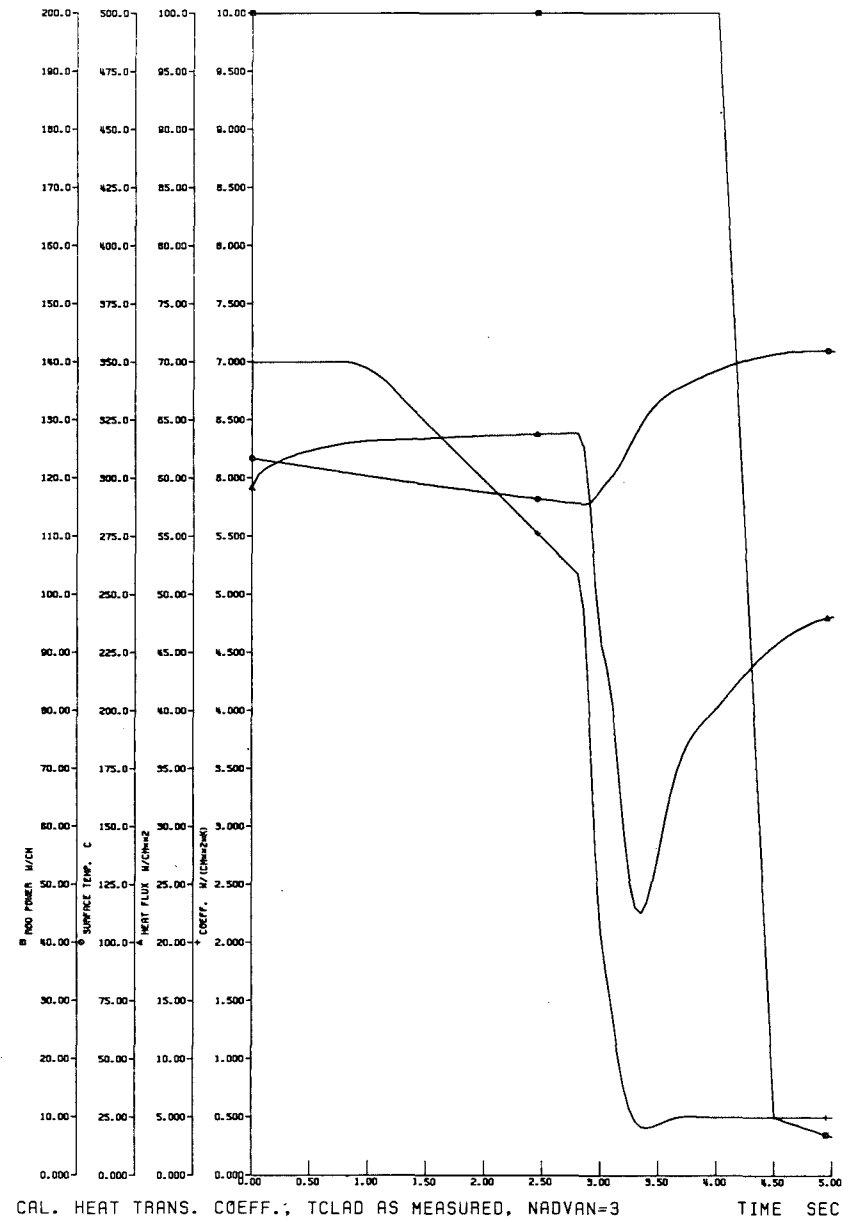


Abb. 4239 - 4

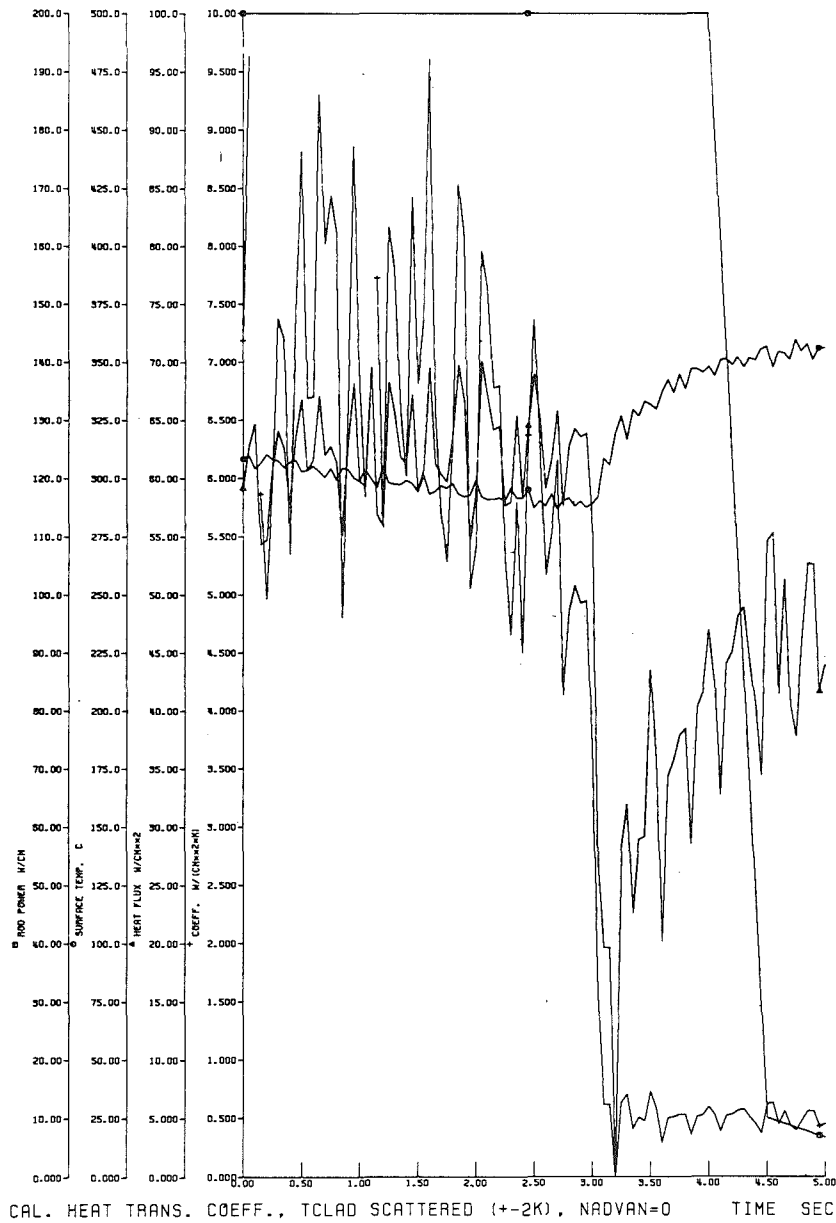


Abb. 4239 - 5

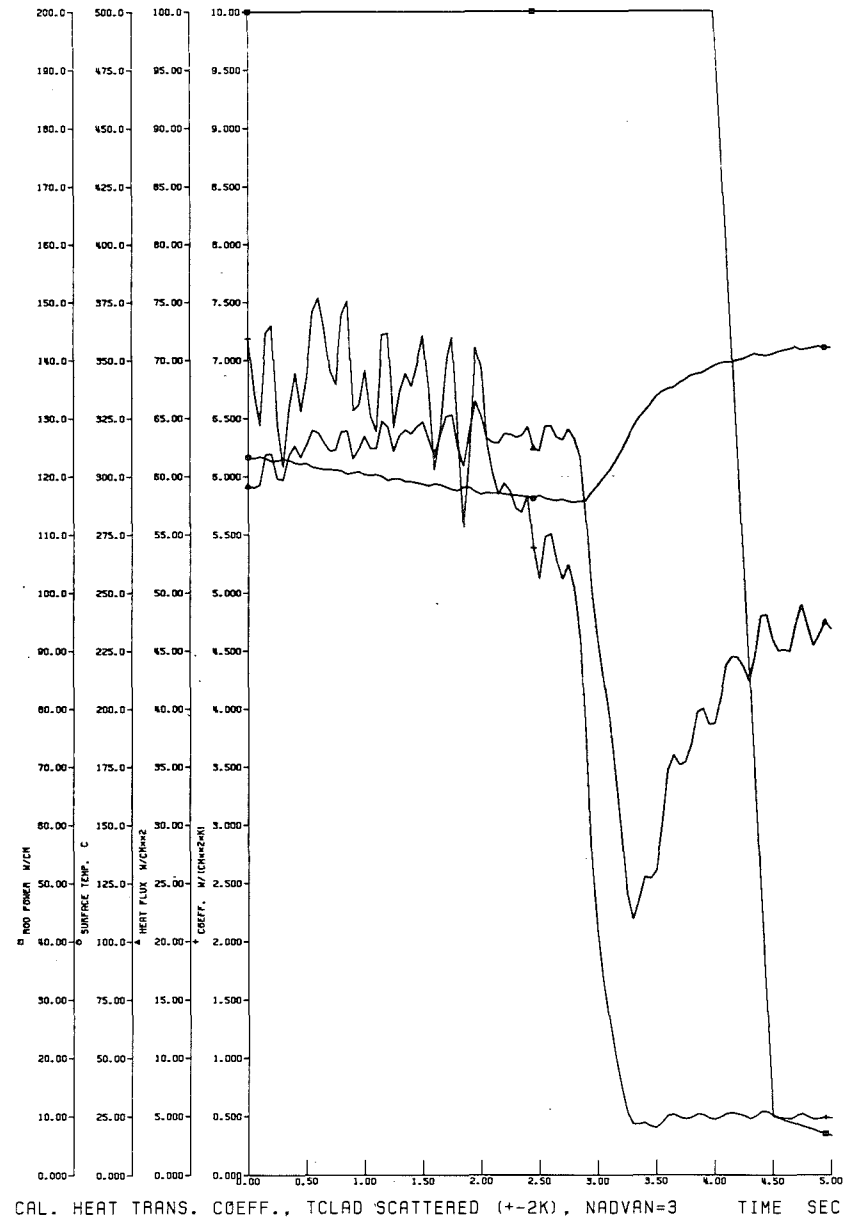


Abb. 4239 - 6

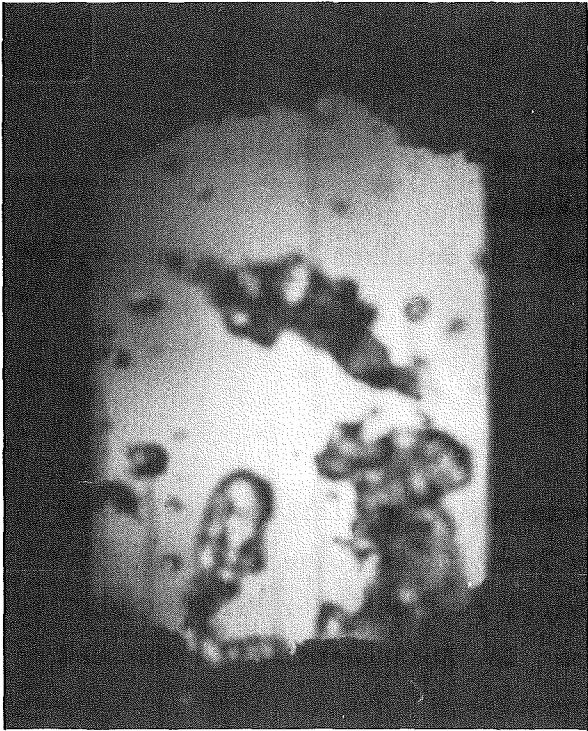


Abb. 4239 - 7

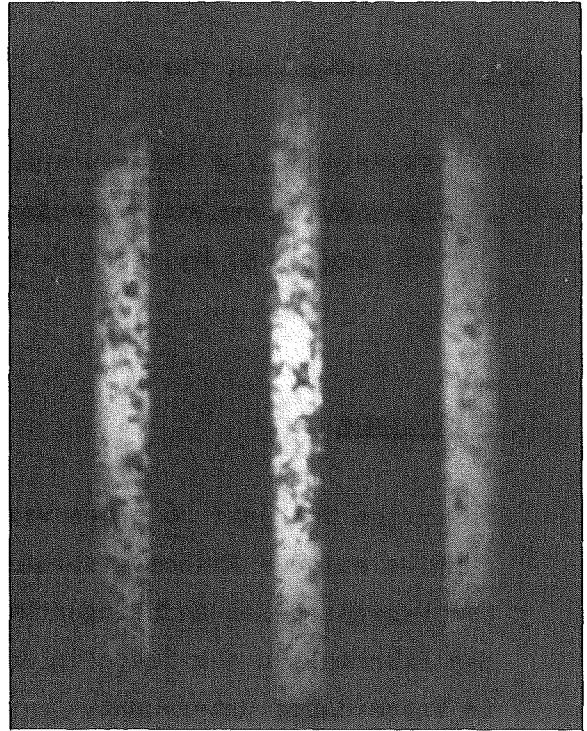


Abb. 4239 - 8



Abb. 4239-9

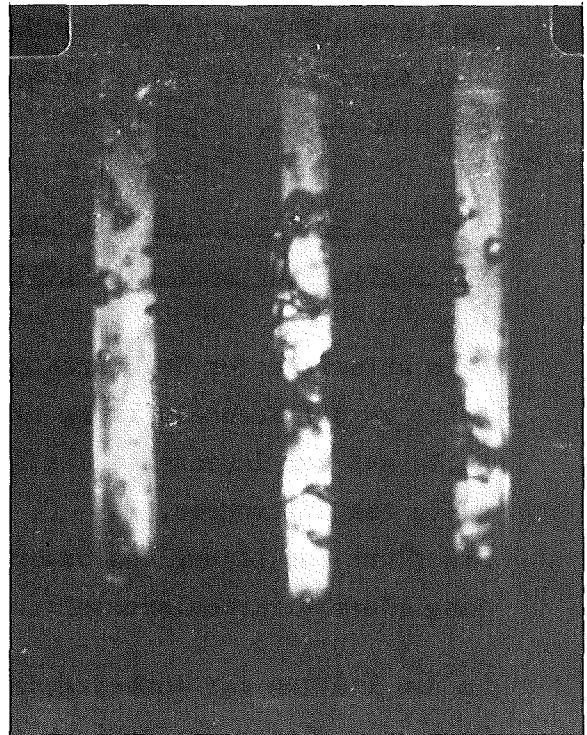


Abb. 4239-10

Strömungszustände beim Fluten

4240 Coreschmelzen von LWR

4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO_2 -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung

(S. Hagen, E. Mackert, H. Malauschek, H. Schülken, K. Wallenfels, RBT)

1. Einleitung

Im ersten Halbjahr 76 haben wir Untersuchungen zum Einfluß des Wasserdampfes auf das Abschmelzverhalten des Brennstabes (ohne Abstandshalter) bei verschiedenen Aufheizgeschwindigkeiten durchgeführt. Ferner wurde das Abschmelzen der Stäbe in Kontakt mit dem Abstandshalter in He und in Wasserdampf untersucht.

Da die beim Aufheizen in Wasserdampf zwischen Stab und Abstandshalter entstehende Oxidschicht die Wechselwirkung deutlich reduziert und damit das Abschmelzverhalten stark beeinflusst, wurden Versuche mit voroxidierten Stäben in He durchgeführt. Diese sollten den Einfluß der beim Normalbetrieb eines Leichtwasserreaktors entstehenden Oxidschichten simulieren.

2. Versuche an Einzelstäben (ohne Abstandshalter) in Wasserdampf mit variabler Aufheizgeschwindigkeit

Beim Aufheizen des UO_2 -Zircaloy-Brennelementstabes in Wasserdampf tritt zu der Wechselwirkung zwischen dem UO_2 -Pellet und der Zircaloy-Hülle auf der Innenseite die Zirkon-Wasserdampfreaktion auf der Außenseite des Hüllrohres.

Sie führt zur Lösung von Sauerstoff im Zircaloy und dann zur Ausbildung eines Zirkonoxidmantels.

Um den Einfluß der Aufheizgeschwindigkeit auf die Ausbildung und das Verhalten dieser Oxidschicht zu untersuchen, wurden Brennstabsimulatoren in Wasserdampf mit $0,75 \text{ } ^\circ\text{C/s}$ bis $3,5 \text{ } ^\circ\text{C/sec}$ aufgeheizt. Die erkalten Stäbe sind in Abb. 4241-1 wiedergegeben. Bei allen Stäben hat sich

eine glatte, den Stab gleichmäßig überziehende Oxidschicht gebildet.

Die Schichtdicke dieser Hülle nimmt bei schnellerem Temperaturanstieg ab, weil dann bis zum Erreichen der Schmelztemperatur viel weniger Zeit für die Oxidation zur Verfügung steht. Man sieht dies an den rechts oben neben den Stäben wiedergegebenen radialen Schnitten der Oxidhüllen. Von der ursprünglichen Zry-Hülle sind zwischen 80 % bis 40 % oxidiert.

Bis auf die Löcher, aus denen die Schmelze austrat, sind die in der Abbildung fehlenden Hüllrohrteile erst beim Abkühlen abgeplatzt. Während des Temperaturanstiegs war bei allen Stäben eine glatte, gleichmäßige Hülle vorhanden. Die kleinen Löcher, aus denen die Schmelze herausschoß, bildeten sich bei Oberflächentemperaturen von ca. 1900°C. Die unter der abgeplatzen Oxidschicht zum Vorschein kommenden glatten Flächen ohne Pelletstruktur beweisen, daß flüssige Schmelze aus Restzirkaloy und UO_2 vollständig in der Oxidhülle eingeschlossen war und in diesem Zustand auch wieder erstarrte.

Das Austreten der Schmelze aus der Oxidhülle bei den in Wasserdampf aufgeheizten Stäben erfolgt heftig in Form von einzelnen Schüben und ist mit dem langsamen gleichmäßigen Abfließen beim Aufheizen in Schutzgas nicht mehr zu vergleichen. Das Material schießt nicht nur beim ersten Austritt heftig aus der Hülle hervor, sondern auch die späteren Ausbrüche erfolgen eruptionsartig. Die Löcher scheinen sich am Anfang durch erstarrende Schmelze wieder zu verschließen. Bilder von Filmaufnahmen eines mit 2,5 °C/sec in Wasserdampf aufgeheizten Stabes sind in Abb. 4241-2 wiedergegeben.

Die Dauer des Austritts ist im allgemeinen kleiner als 1/3 sec, da mit diesem Zeitabstand die Bilder des 16 mm - Filmes aufgenommen wurden und das Herausquellen der Schmelze nur auf einem Bild zu sehen ist.

Beispiele für diese am Anfang auftretenden Austrittsphasen sind in der ersten Reihe wiedergegeben. In der 2. und 3. Reihe sind dann jeweils Gruppen von 3 aufeinanderfolgenden Aufnahmen dargestellt. In der obersten Reihe von Abb. 4241-2 sprühen gleichzeitig in verschiedenen Richtungen Tropfen auseinander, die wegen der langen Belichtungszeit, die automatisch mit der Bildfrequenz verbunden ist, als Bahn erscheinen.

In der 2. Reihe schießt das Schmelzgut auf eine Richtung konzentriert waagrecht als dichter Strahl aus dem Stab hervor, wie an der großen Helligkeit zu sehen ist. In den folgenden Bildergruppen tritt aus dem gleichen Loch wieder Schmelze aus. Jetzt weniger heftig, doch bei der 2. Gruppe der 2. Reihe noch mit soviel Druck, daß die Schmelze auf einer gekrümmten Bahn den Stab verläßt.

3. Versuche an Einzelstäben mit Abstandshalter in He und Wasserdampf

Die Abstandshalter aus Inconel halten mit einem vertikalen Abstand von ca. 50 cm im DWR-Brennelement die Stäbe in der gewünschten Position und haben damit an den Berührungsstellen Brennstab-Abstandshalter einen innigen Kontakt. Da Zircaloy mit den Bestandteilen des Inconels verschiedene Eutektika bildet - mit Schmelzpunkten ab ca. 950 °C - kann es hier zum Abschmelzen der Hülle weit unter der Schmelztemperatur des Zircaloy kommen. Es ist aber zu beachten, daß das Einstellen der für die Schmelzpunkterniedrigung notwendigen Konzentration von Inconel und Zircaloy ein Prozeß ist, der erst beim Aufheizen selber abläuft, wobei als Ausgangssituation die Materialien räumlich vollständig getrennt sind.

3.1 Versuche in Inertgas

Die ersten Aufheizversuche mit Abstandshaltern in He (Abb. 4241-3) hatten gezeigt, daß in nicht oxidierender Atmosphäre, bei 1000 °C, die ersten leichten Anschmelzerscheinungen an der Berührungsfläche beginnen. Bei 1250 °C verursacht das herunterlaufende Schmelzgut ein Anschmelzen der Hülle schon über den Abstandshalterbereich hinaus. Beim Erreichen von 1830 °C ist praktisch die gesamte Zircaloy-Hülle abgeschmolzen. (In Abb. 4241-3 befand sich der Abstandshalter bei diesem Stab ganz am oberen Ende.)

Die UO₂-Pellets sind an einigen Stellen zwar oberflächlich angegriffen, ihre Struktur blieb jedoch erhalten.

Diese schon bei relativ niedrigen Temperaturen auftretenden Schmelzerscheinungen sind nur im Grenzfall von Bedeutung, da das Vorhandensein völlig oxidfreier Hüllen sehr unwahrscheinlich ist. Schon bei normalem

Betrieb werden die Stäbe leicht anoxidiert und erst recht im Unfallreaktor wird zumindest am Anfang eine oxidierende Atmosphäre vorliegen.

3.2 Versuche in Wasserdampf

Durch die Ausbildung einer Oxidschicht zwischen Stab und Abstandshalter wird hier die Wechselwirkung zwischen Zircaloy und Inconel merklich verringert.

Wie Abb. 4241-4 zeigt, ist beim Aufheizen des Stabes mit Abstandshalter in Wasserdampf bis 1200 °C Oberflächentemperatur des Stabes noch keinerlei Reaktion an der Kontaktfläche zu beobachten. Die erste leichte Veränderung der Oberfläche macht sich bei 1250 °C bemerkbar, einer Temperatur, bei der in He der Abstandshalter schon ganz abgeschmolzen war. Bei 1450 °C findet eine Verformung des Steges und bei 1550 °C eine Verformung des gesamten Abstandshalters statt. Der Schmelzbeginn liegt unter 1700 °C. Bei 1780 °C ist der Abstandshalter weitgehend und bei 1830 °C vollkommen geschmolzen.

Das erstarrte Schmelzgut hat ein lockeres, bröckeliges Aussehen. Unter der Schmelze ist die Oxidhülle im wesentlichen noch vorhanden, im Gegensatz zu der bei diesen Temperaturen völlig abgeschmolzenen Zircaloyhülle beim Aufheizen in He. In Wasserdampf hat sich die Reaktion auf dem Bereich des Abstandshalters beschränkt.

3.3 Versuche an voroxidierten Stäben in He

Auch beim Betrieb eines Leichtwasserreaktors unter Normalbedingungen findet eine langsame Oxidation der Hüllrohre statt. Nach einer Betriebszeit von etwa 1000 Tagen hat die sich bildende Oxidschicht ungefähr eine Stärke von ca. 20 µm. Ein Brennstab, der sich nach einem LOCA mit versagender Notkühlung aufheizen würde, hätte auch beim völligen Fehlen von Wasserdampf damit eine Oxidschicht.

Um den Einfluß von Oxidschichten in diesem Stärkenbereich zu untersuchen, wurden Brennstabsimulatoren bis zu einer Schichtdicke von je 10, 20 und 50 µm

voroxidiert. Die Stäbe wurden danach in He bis auf 1800 °C aufgeheizt. Schon die 10 µm starke Oxidschicht erhöht den Beginn der Schmelzercheinungen auf ca. 1350 °C. Die 20 µm starke Oxidschicht verändert den Schmelzbeginn auf ca. 1400 °C. Bei der 50 µm starken Oxidschicht hat der Schmelzbeginn sich in die Nähe von 1700 °C verschoben. Während bei den 10 µm und 20 µm starken Oxidschichten noch ein merklicher Anteil der Hülle bis zum Erreichen von 1800 °C abfließt, ist bei den auf 50 µm voroxidierten Stäben ein Abschmelzen der Hülle außerhalb des Abstandshalterbereiches nicht festzustellen.

Die vom Normalbetrieb herrührende mittlere Oxidschicht liegt damit in einem Bereich, in dem schon eine merkliche Verminderung der Wechselwirkung zu erwarten ist. Sie allein reicht aber noch nicht aus, um die Beeinflussung des Hüllrohres durch den schmelzenden Abstandshalter auf seine Berührungsfläche mit der Hülle zu begrenzen, wie dies beim Aufheizen in Wasserdampf der Fall ist.

4. Aufbau eines Strahlungsovens für Stäbe mit Vollpellets

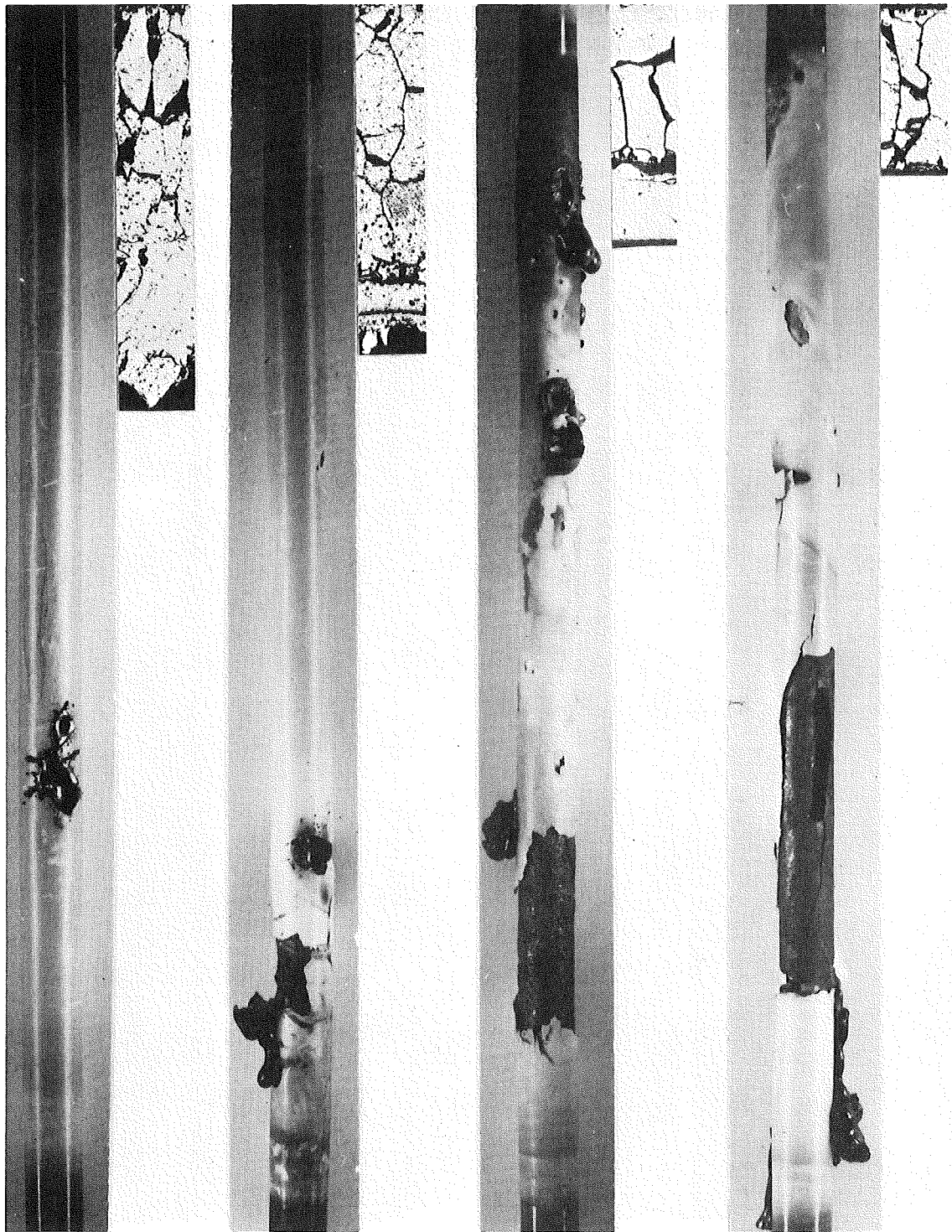
In den von uns verwendeten Prüflingen simulieren wir die Nachwärme durch elektrisches Aufheizen mit Hilfe des zentralen W-Heizstabes. Dies stellt die sicherste und ökonomischste Art dar, die Wärmezufuhr wie bei der nuklearen Aufheizung im Innern des Stabes einzuspeisen. Auf der anderen Seite ist der W-Stab im Simulator aber auch eine mechanische Stütze, die die Stabilität der Anordnung verändert. Um den Einfluß des W-Stabes untersuchen zu können, haben wir daher mit der Entwicklung einer Heizvorrichtung begonnen, die es erlaubt, den Brennstab mit und ohne stützenden W-Stab aufzuheizen.

Hierfür wurde ein Einsatz für unseren Versuchskessel konstruiert, der es gestattet, Stäbe mit Vollpellets durch Strahlung aufzuheizen. Einen Querschnitt dieses Einsatzes zeigt Abb. 4241-5.

Das Heizrohr besteht aus Al 23 und kann durch Tantaldrähte im Innern auf 1950 °C aufgeheizt werden.

Um das Heizrohr vor starken radialen Temperaturgradienten zu schützen, befindet es sich innerhalb eines beheizten Strahlenschirms, der zur

Senkung von Strahlungsverlusten wiederum von einem unbeheizten Strahlenschirm umgeben ist. In dem Ofen können die Stäbe wahlweise in Schutzgas oder in Dampf aufgeheizt werden.



0,75 °C/sec

1,5 °C/sec

2,5 °C/sec

3,5 °C/sec

ABB. 4241-1:

PNS
4241

In Wasserdampf mit verschiedenen Temperaturanstiegen abgeschmolzene Stäbe.

GfK
RBT

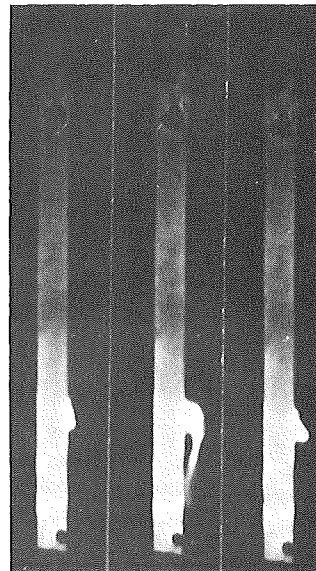
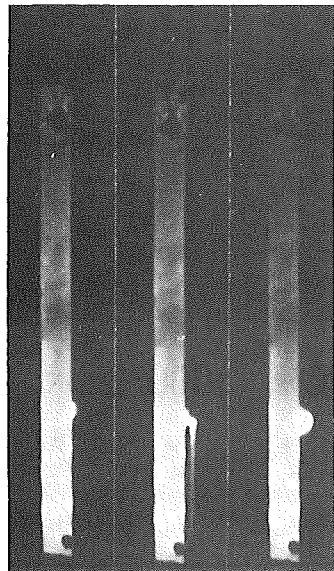
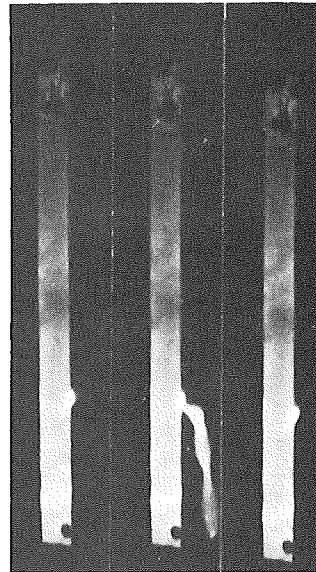
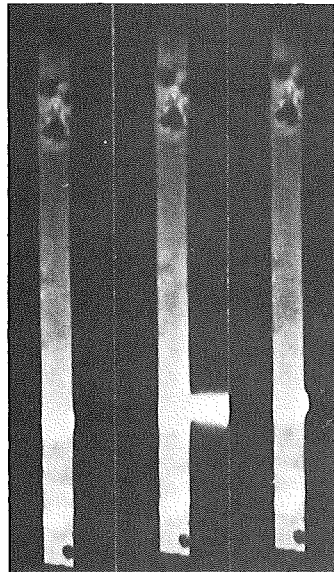
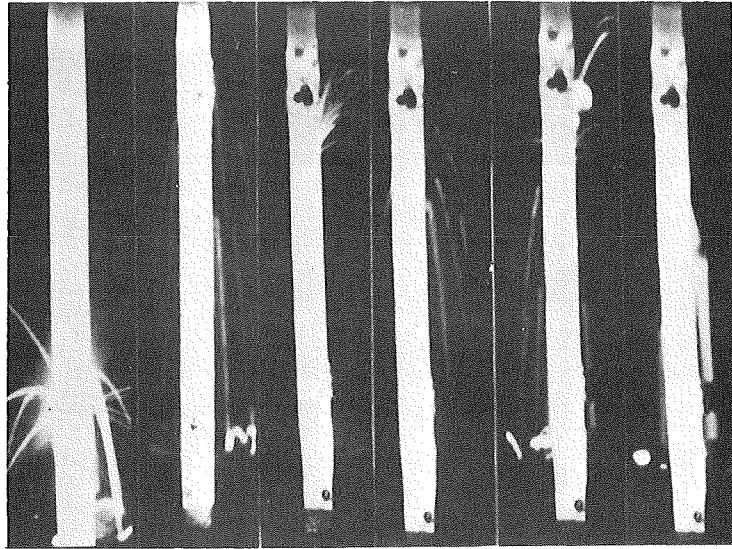
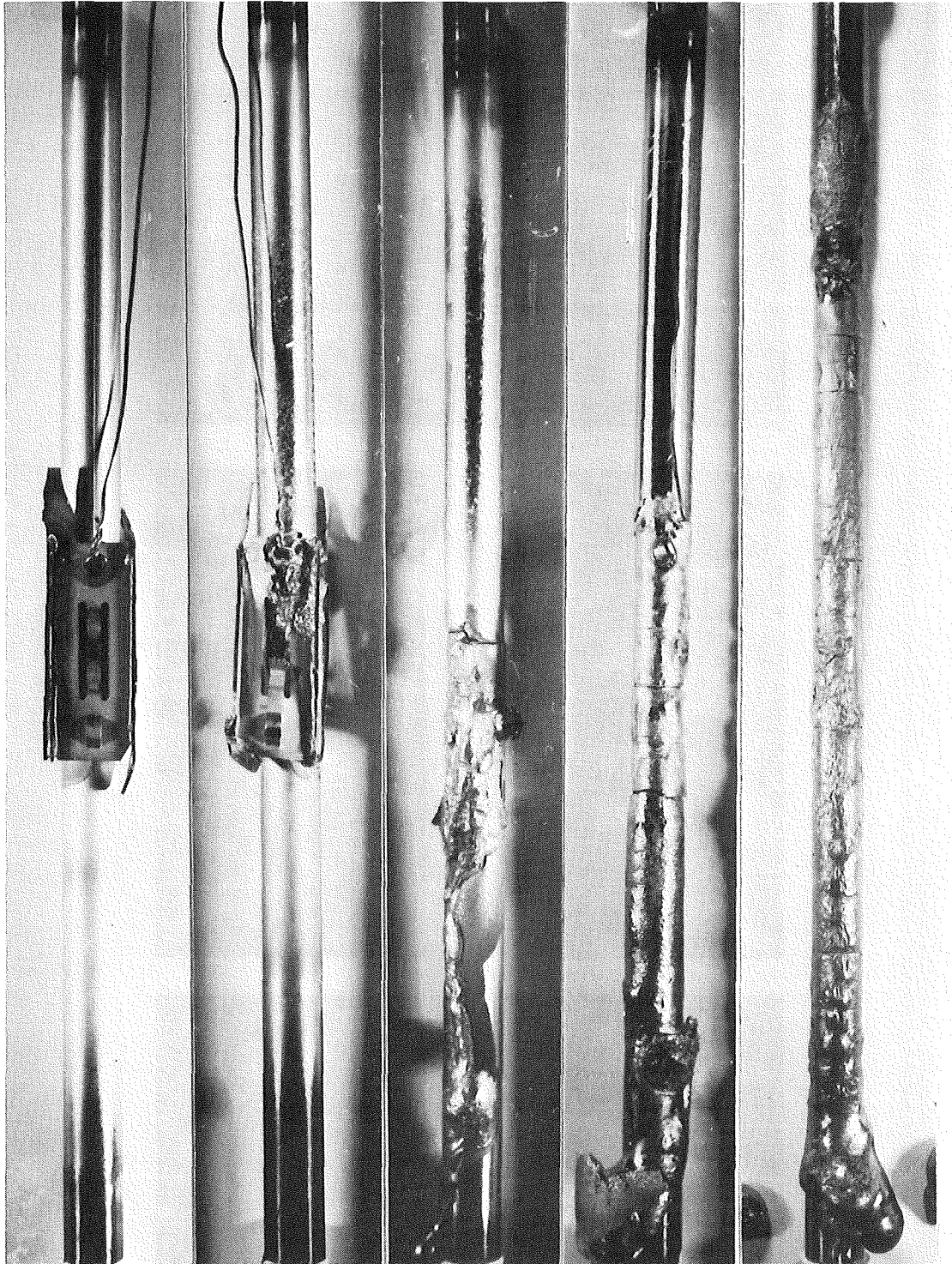


ABB. 4241-2:

PNS
4241

Austritt der Schmelze in Wasserdampf

GfK
RBT



1000°C

1150°C

1250°C

1600°C

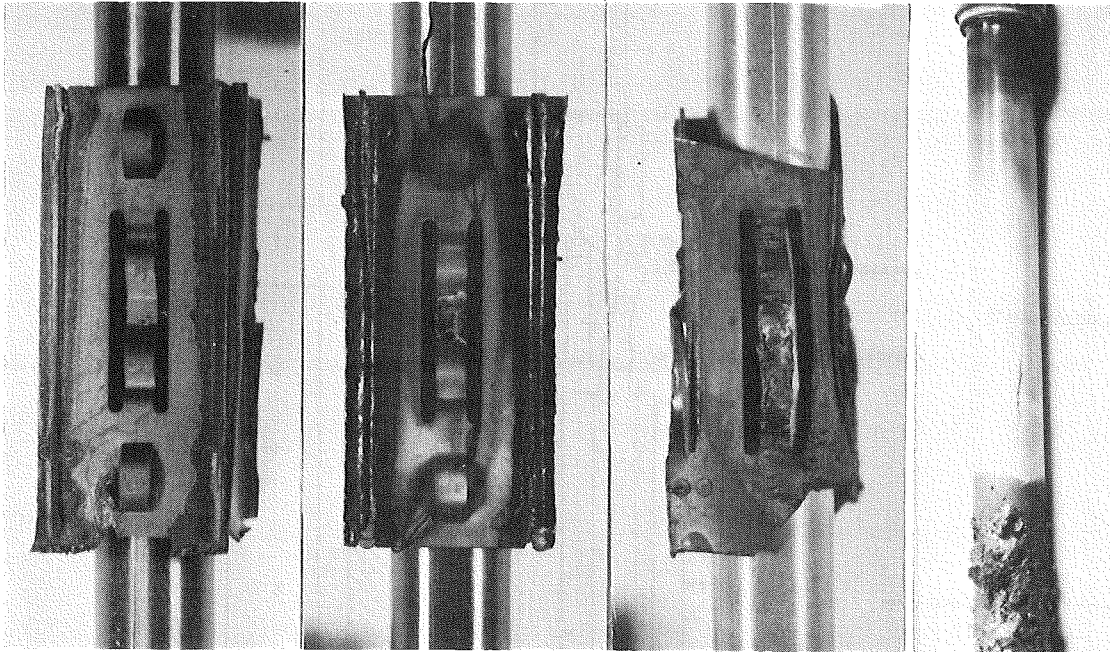
1830°C

ABB. 4241-3

PNS
4241

Einfluß des Abstandshalters auf das
Abschmelzverhalten in Schutzgas. Ver-
schiedene Maximaltemperaturen.

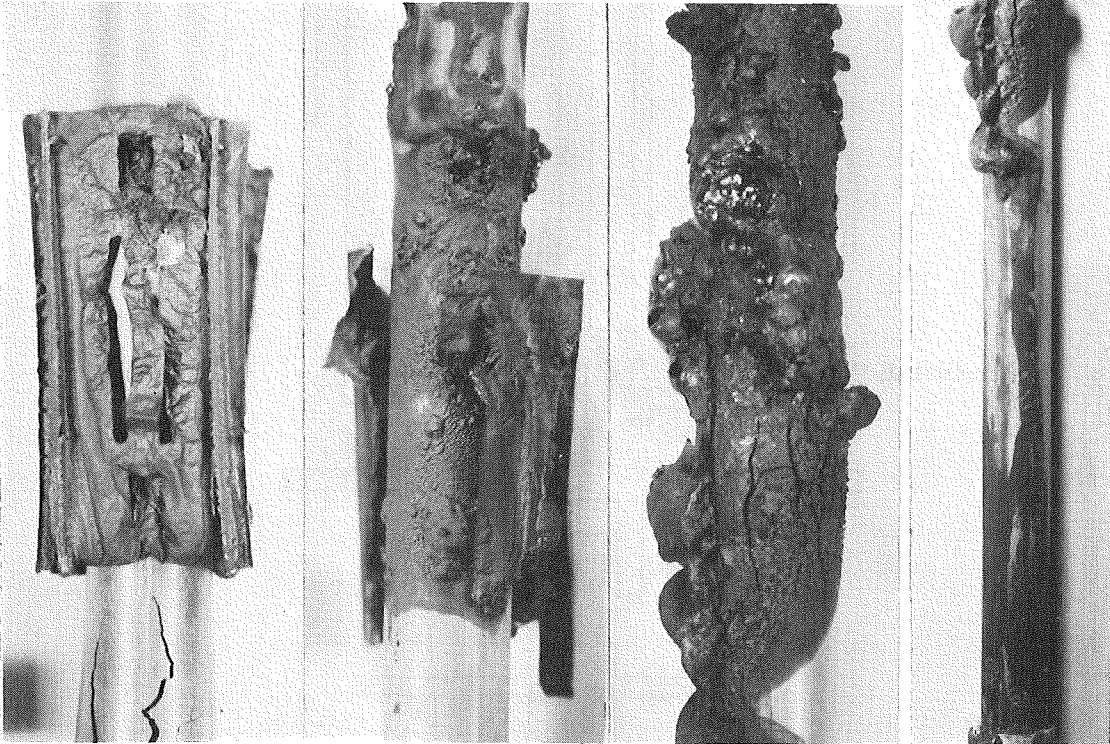
GfK
RBT



1200°C

1250°C

1450°C



1550°C

1780°C

1830°C

ABB. 4241-4

PNS
4241

Abschmelzverhalten der Stäbe mit Abstandshalter in Dampf. Verschiedene Maximaltemperaturen.

GfK
RBT

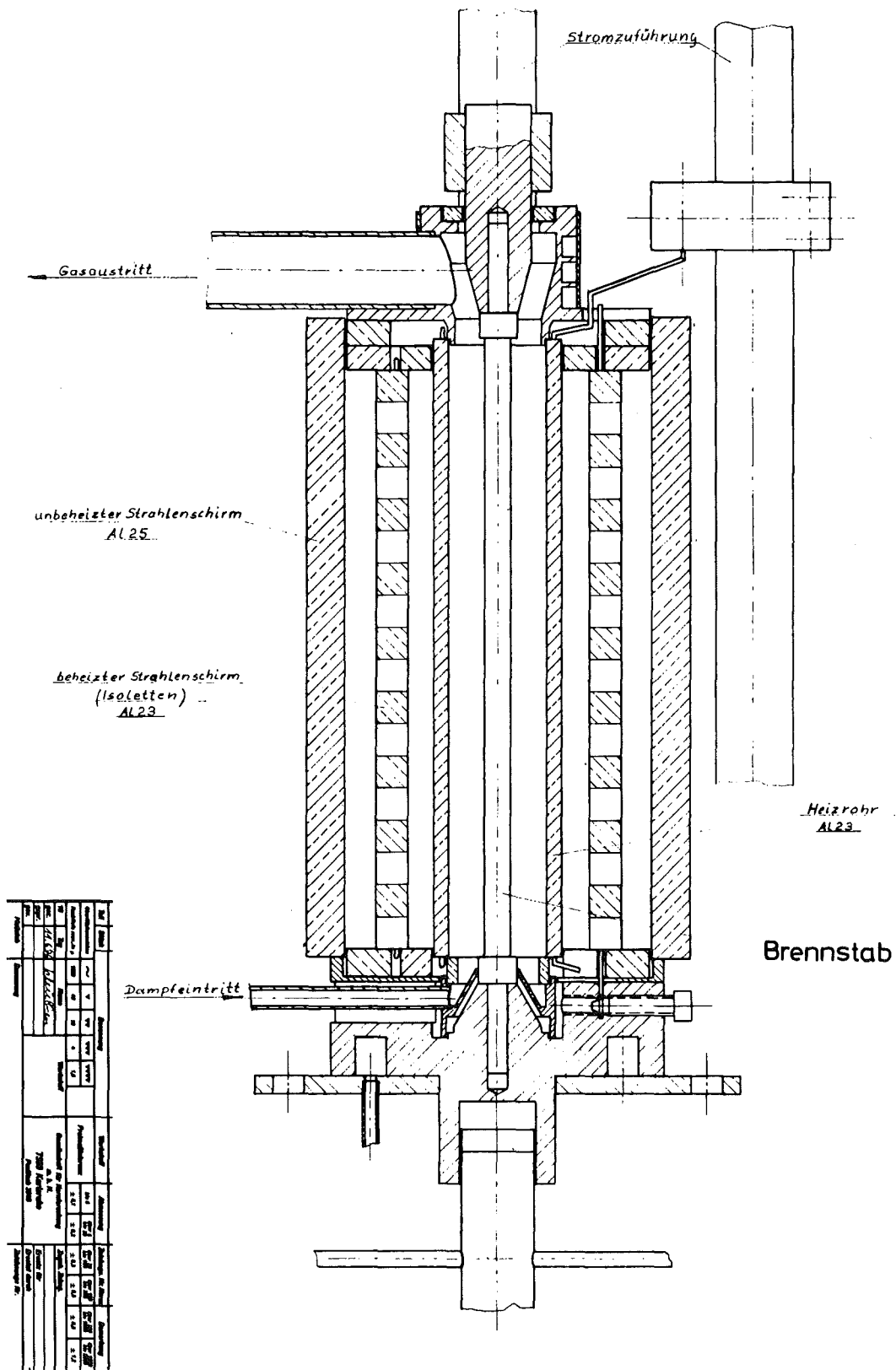


ABB. 4241-5

PNS
4241

Strahlungsofen für Stäbe mit Vollpellets.

GfK
RBT

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen

(H. Albrecht, W. Krause, H. Wild, Institut für Radiochemie;
D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, Abtei-
lung Reaktorbetrieb und Technik;
M.F. Osborne, Delegierter der US-NRC)

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 physikalischen und chemischen Eigenschaften der Freisetzungsprodukte gewonnen werden, die für die Ausbreitung dieser Produkte im Containment und in der Umgebung von Bedeutung sind.

Mit der Schmelzanlage SASCHA, in der zur Zeit Coriumproben bis 60 g auf Temperaturen bis zu ca. 3000°C erhitzt werden können, wurde im Berichtszeitraum eine Serie von insgesamt 21 Freisetzungsversuchen mit inaktivem Schmelzgut durchgeführt. Eine detaillierte Beschreibung der Versuchsdurchführung und Auswertung findet sich in früheren Halbjahresberichten (1,2); hier soll deshalb direkt auf die ersten vorliegenden Ergebnisse eingegangen werden.

1. Freisetzung inaktiver Corium-Komponenten in Luft, Wasserdampf und Argon

In Tab.4243-1 ist eine Zusammenstellung der wichtigsten Parameter bei den durchgeführten Versuchen wiedergegeben. Der Schwerpunkt lag dabei auf der Untersuchung der Freisetzung unter einer Luftatmosphäre. Die Auswertung der Experimente unter Argon und Wasserdampf hat erst begonnen, so daß dafür nur einige vorläufige Ergebnisse mitgeteilt werden können.

Tab. 4243-1: Angaben zu den Freisetzungsversuchen mit inaktivem Corium

	Argon	Luft	Wasserdampf
Zahl der Versuche	3	13	5
höchste erreichte Temperatur, T_{\max} ($^{\circ}\text{C}$)	2670-2800	2150-2850	2270-2900
Zeitdauer bei $T_{\geq 90\% T_{\max}}$ (min)	2,4-3,3	0,5-5,5	0,9-8,3
Aufheizgeschwindigkeit ($^{\circ}\text{C}/\text{min}$)	120	120	120
Druck (bar)	1,0-1,9	1,0-2,0	1,5-1,9
Gasdurchfluß (l/min)	4,2-5,0	1,1-10,0	4,5-10,5

In allen Fällen wurde die Freisetzung der folgenden Elemente aus der Corium-Schmelze untersucht:

Fe, Cr, Mn, Ni, Co, Mo, Sb, Zr und U .

Die Freisetzungsprodukte werden im Gasstrom durch ein aus 3 Glasteilen bestehendes Absaugsystem und ein ca. 50 cm langes Stahlrohr zu einer Meßfilterstrecke geführt, wo sie auf Membranfiltern aus Zellulose-Acetat quantitativ abgeschieden werden.

Zur Bestimmung der gesamten Freisetzung mußten jedoch neben den Filterniederschlägen auch die Ablagerungen auf dem Transportweg zwischen dem Schmelztiegel und den Filtern analysiert werden. Dies geschah im Falle der Glasteile durch chemisches Ablösen der Niederschläge (2 h kochen in halbkonz. HNO_3), durch Eindampfen der Lösung und aktivierungsanalytische Untersuchung eines Lösungsaliquots. Im Falle des Stahlrohres wurde auf eine entsprechende Analyse verzichtet, weil die Ablagerungen dort nur schätzungsweise 5 % der gesamten Freisetzung ausmachten (s.u.).

1.1 Freisetzung in Luft

Die Abb. 4243-1 zeigt die Massenverteilung der freigesetzten Stoffe auf den

3 Glasteilen des Transportsystems und auf den Membranfiltern. Die angegebenen Zahlenwerte stellen Mittelwerte aus 6 verschiedenen Versuchen dar, bei denen Maximaltemperaturen zwischen 2700 und 2850°C erreicht wurden. Es ist zu sehen, daß der Anteil der Ablagerungen in der Transportstrecke in Richtung auf die Filter sehr schnell abnimmt, weshalb die übrigen Teile des Rohrsystems nicht weiter analysiert wurden.

Aus Abbildung 2 geht hervor, daß die Rückhaltewirkung des Glasgefäßes über der Schmelze nicht für alle Elemente gleich ist: von der insgesamt freigesetzten Menge der Elemente U, Zr und Mo werden zwischen 80 und 95 % an der Glaswand abgeschieden, von Mn und Sb sind es nur ca. 30 %.

In Abbildung 3 sind für den gleichen Temperaturbereich wie oben Mittelwerte für die totale relative Freisetzung der Coriumkomponenten angegeben, d.h. die Summe der auf den Glasteilen und auf den Filtern gefundenen Anteile eines jeden Elements, bezogen auf die Ausgangszusammensetzung des Coriums.

Als wichtigste Einflußgröße auf die Freisetzung erwies sich die während der Versuche erreichte Maximaltemperatur des Schmelzgutes.

Das Ergebnis einer systematischen Untersuchung dieses Einflusses ist in Abbildung 4 dargestellt. Dort sind die auf den Membranfiltern gefundenen relativen Elementanteile als Funktion der jeweiligen maximalen Versuchstemperatur aufgetragen. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurden die Kurven für Co und Ni in dieser Abbildung weggelassen; sie liegen etwas niedriger als die Kurve für Fe und fallen teilweise mit den Werten für Zr zusammen.

In dieser logarithmischen Darstellung zeigt sich für die meisten Elemente ein nahezu linearer Verlauf bis zu den höchsten Versuchstemperaturen. Nur die Kurven von Sb und Mn scheinen sich asymptotisch einem Maximum zu nähern. Es ist außerdem festzustellen, daß die Freisetzungswerte in dem betrachteten Temperaturintervall von 2150^o-2850^oC um etwa 1,5 bis 2,5 Größenordnungen zunehmen.

Eine Abhängigkeit der Freisetzung in Luft vom Atmosphärendruck oder von der Strömungsgeschwindigkeit des Transportgases ließ sich bei der Variation dieser Parameter (vgl. Tab. 4243-1) nicht feststellen.

1.2 Freisetzung in Dampf und Argon

Bei Freisetzungsversuchen unter Wasserdampf und Argon ist ein ganz anderes

Verhalten des Schmelzgutes zu beobachten als unter Luft. Während unter Luft bei Temperaturen $\geq 2400^{\circ}\text{C}$ heftige Oxidationsreaktionen einsetzen, durch welche dichte Rauchschwaden entstehen und glühende Schmelzpartikel mit Massen bis zu ca. 1 g aus der Schmelze herausgeschleudert werden, verläuft die Aufheizung unter Wasserdampf und Argon wesentlich ruhiger. Es bilden sich zwar Flammen über dem Tiegel, doch in keinem Versuch wurde verspritztes Schmelzgut außerhalb des Tiegels gefunden. Unter Argon neigt die Schmelze dazu, im Tiegel hochzusteigen und die Innenwand bis an den oberen Rand zu benetzen.

Als Folge dieses unterschiedlichen Verhaltens ergab sich für Wasserdampf eine wesentlich geringere Freisetzung als für Luft; quantitative Werte lassen sich vorläufig jedoch nicht angeben, da die Auswertung noch nicht abgeschlossen ist.

Ähnliches gilt für die Versuche unter Argon. Dort wurde bei vergleichbaren Maximaltemperaturen und Gasdurchsätzen nur der Atmosphärendruck variiert. Die bisher vorliegenden Analysendaten für die Freisetzungsprodukte auf den Membranfiltern lassen eine starke Druckabhängigkeit vermuten (Zunahme der Freisetzung mit abnehmendem Druck). Dieses Ergebnis muß jedoch erst mit der Auswertung für die Ablagerungen in der Transportstrecke verglichen und durch einige weitere Versuche bestätigt werden.

2. Diskussion der Ergebnisse

Obwohl die bisherigen Freisetzungsversuche noch ohne Spaltprodukte in der Coreschmelze durchgeführt wurden, sind die Ergebnisse in mehrfacher Hinsicht von Interesse: Die untersuchten Elemente bilden während des Reaktorbetriebes eine größere Zahl von Aktivierungsprodukten (z.B. Cr-51, Mn-56, Co-60, Np/Pu-239), einige von ihnen sind außerdem mit wichtigen Spaltprodukten identisch (Zr, Mo). In einer Coreschmelze liefern sie einen erheblichen Beitrag zur Gesamtaktivität und zur Nachwärmeleistung ($\geq 10\%$ in den ersten Tagen).

Abgesehen von diesem radiologischen Aspekt spielt aber auch die Freisetzung der inaktiven Corium-Anteile eine wichtige Rolle, weil durch sie die Konzentration der Aerosole über der Schmelze bestimmt wird und

davon dann das Transport- und Ablagerungsverhalten der Spaltprodukt-Aerosole in starkem Maße abhängt.

Der experimentelle Befund, daß ein relativ hoher Anteil der Freisetzungserzeugnisse schon im ersten Teil der Transportstrecke (dem Glaskolben) abgetrennt wurde, läßt für einen hypothetischen Coreschmelzen-Unfall den Schluß zu, daß man dem RDB wahrscheinlich eine beträchtliche Rückhaltewirkung für die freigesetzten Aktivitätsträger zuschreiben kann.

Dies ist besonders für die Plutonium-Isotope von Bedeutung, deren Verhalten dem des freigesetzten Urans voraussichtlich sehr ähnlich ist.

Ein Vergleich mit theoretischen Aussagen über die Freisetzung der einzelnen Elemente ist bisher nicht auf quantitative Weise möglich, denn eine Coriumschmelze stellt bei Temperaturen von 2500°C und darüber ein so kompliziertes Vielstoffsystem dar, daß man weder über die chemische Form der einzelnen Komponenten noch über die Dampfdrücke der in Frage kommenden Verbindungen zuverlässige Aussagen machen kann.

Aufgrund von qualitativen Überlegungen, z.B. durch Betrachtung der Siedepunkte der elementaren Formen oder der niederen Oxide, kann man jedoch in vielen Fällen vorhersagen, für welche Komponenten die höchsten bzw. die niedrigsten Freisetzungswerte zu erwarten sind. In dieser Hinsicht erscheint z.B. die experimentell gefundene, relativ hohe Freisetzung von Mn und Sb durchaus verständlich.

3. Fortsetzung des Versuchsprogramms

Nach der Durchführung einiger weiterer Freisetzungsversuche mit inaktivem Corium ist der Übergang zu schwach aktivem Schmelzgut vorgesehen. Durch die Anwendung der direkten γ -Spektrometrie zum Nachweis der Freisetzungserzeugnisse auf den Filtern und an den Wänden des Transportsystems ergeben wesentliche praktische Vorteile gegenüber der Aktivierungsanalyse. Vor allem besteht dann die Möglichkeit, durch kontinuierliche γ -Messung während der Schmelzversuche die Freisetzungsraten als Funktion der Temperatur und Zeit wesentlich genauer zu bestimmen.

Für die ersten Versuche dieser Art werden die Stahl- und Zircaloy-Komponenten des Coriums schwach aktiviert; anschließend werden hauptsächlich

Fissium-Pellets verwendet, die aus einer homogenen Mischung von UO_2 mit den wichtigsten Spaltprodukten bestehen (1,2). Die Schmelzgutmasse beträgt bei diesen Versuchen zunächst 30 g. Später sind in der gleichen Schmelzanlage Versuche mit 300 g und ca. 3 kg vorgesehen, um die Extrapolierbarkeit der Ergebnisse über eine bzw. zwei Größenordnungen zu prüfen. Außerdem können so der Einfluß des Oberflächen/Volumen-Verhältnisses der Schmelze auf die Freisetzung und der Einfluß der erhöhten Aerosolkonzentration über der Schmelze auf das Transport- und Ablagerungsverhalten untersucht werden.

4. Weiterer Ausbau der experimentellen Einrichtungen

4.1 Erhöhung der Generatorleistung

Aufgrund von Vorversuchen mit 500 g Corium (1) und 3 kg Stahl, sowie anhand von theoretischen Berechnungen ergab sich, daß zum Aufheizen von 3-5 kg Corium auf $2800^{\circ}C$ eine Wärmeleistung von ca. 30 kW im Schmelzgut entbunden werden muß. Mit der induktiven Übertragung dieser Leistung sind jedoch Verlustleistungen von ca. 80 kW im Induktor und in den Zuführungen verbunden, so daß für die Versuche im größeren Maßstab ein Generator mit einer Ausgangsleistung von ca. 110 kW am Schwingkreis benötigt wird.

Bei einer Frequenz von 500 kHz ergibt sich an der Zuführung zur Spule eine Spannung von ca. 1500 V - ein Wert, der wegen der Gefahr von elektrischen Überschlüssen die geforderte Leistungsübertragung voraussichtlich unmöglich macht. Es wurde daher beschlossen, eine Arbeitsfrequenz von 50 kHz zu wählen, wodurch die Spannung am Induktor auf Werte ≤ 250 V reduziert wird.

Gleichzeitig steigt jedoch die mit der Induktion verbundene Schmelzbadbewegung und die Überhöhung der Schmelzbadkuppe um etwa den Faktor 3 an. Die auf diese Weise erzwungene Konvektion der Schmelze führt u.U. zu einer Verstärkung der Freisetzung, was bei der späteren Interpretation der Ergebnisse zu berücksichtigen ist. Ein Vergleich zwischen der freien und der induktiv beeinflussten Konvektion der Schmelze müßte jedoch in jedem Fall durchgeführt werden, d.h. auch bei der Wahl einer höheren Arbeitsfrequenz.

4.2 Anpassung der Induktorkühlung

Durch die Erhöhung der induktiven Heizleistung ergibt sich die Notwendigkeit, auch die Induktorkühlung zu intensivieren. Bei der zu erwartenden Wärmestromdichte von 140 W/cm^2 wird Wasser als das geeignetste Kühlmittel angesehen.

Zur Durchführung von Schmelzexperimenten unter Wasserdampf-Atmosphäre bei 1 bar Überdruck muß der Induktor jedoch mit Heißwasser gekühlt werden. Nur so läßt sich vermeiden, daß Tropfenkondensation auftritt und der Wasserdampf unter starkem Druckfall ausregnet.

Ein entsprechendes Heißwasser-Heiz-Kühl-Aggregat wurde spezifiziert und soll in Kürze zusammen mit dem größeren Generator in Auftrag gegeben werden.

4.3 Einrichtung einer Boxenanlage zur Herstellung von schwach aktivem Fissium

Die Vorbereitungen zur Herstellung von schwach aktiven Fissium-Proben (1,2) wurden planmäßig fortgesetzt. Die Ausstattung von 5 gasdichten Boxen mit fernbedienbaren Einrichtungen zum Einwiegen der vorbestrahlten Fissium-Bestandteile, zum Mahlen und Mischen, sowie zur Herstellung von kaltgepreßten Pellets ist weitgehend abgeschlossen. Etwas verzögert hat sich dagegen die Fertigstellung eines widerstandsbeheizten Ofens, in dem bis zu 50 Pellets gleichzeitig unter Schutzgas bei Temperaturen bis zu 1800°C gesintert werden können. Der Ofen ist mit einem programmierbaren Regler versehen, der es gestattet, einen gleichmäßigen und reproduzierbaren Temperaturverlauf in allen Phasen des Sinterprozesses (Aufheizen, Halten auf verschiedenen Temperaturniveaus, Abkühlen) einzuhalten.

Es soll jetzt damit begonnen werden, die einzelnen Arbeitsschritte der Fissium-Herstellung mit inaktivem Material zu erproben.

Literatur

- (1) 2. Halbjahresbericht 1975 des PNS, KFK-2262 (1976)
- (2) 1. Halbjahresbericht 1975 des PNS, KFK-2195, S. 318-337 (1975)

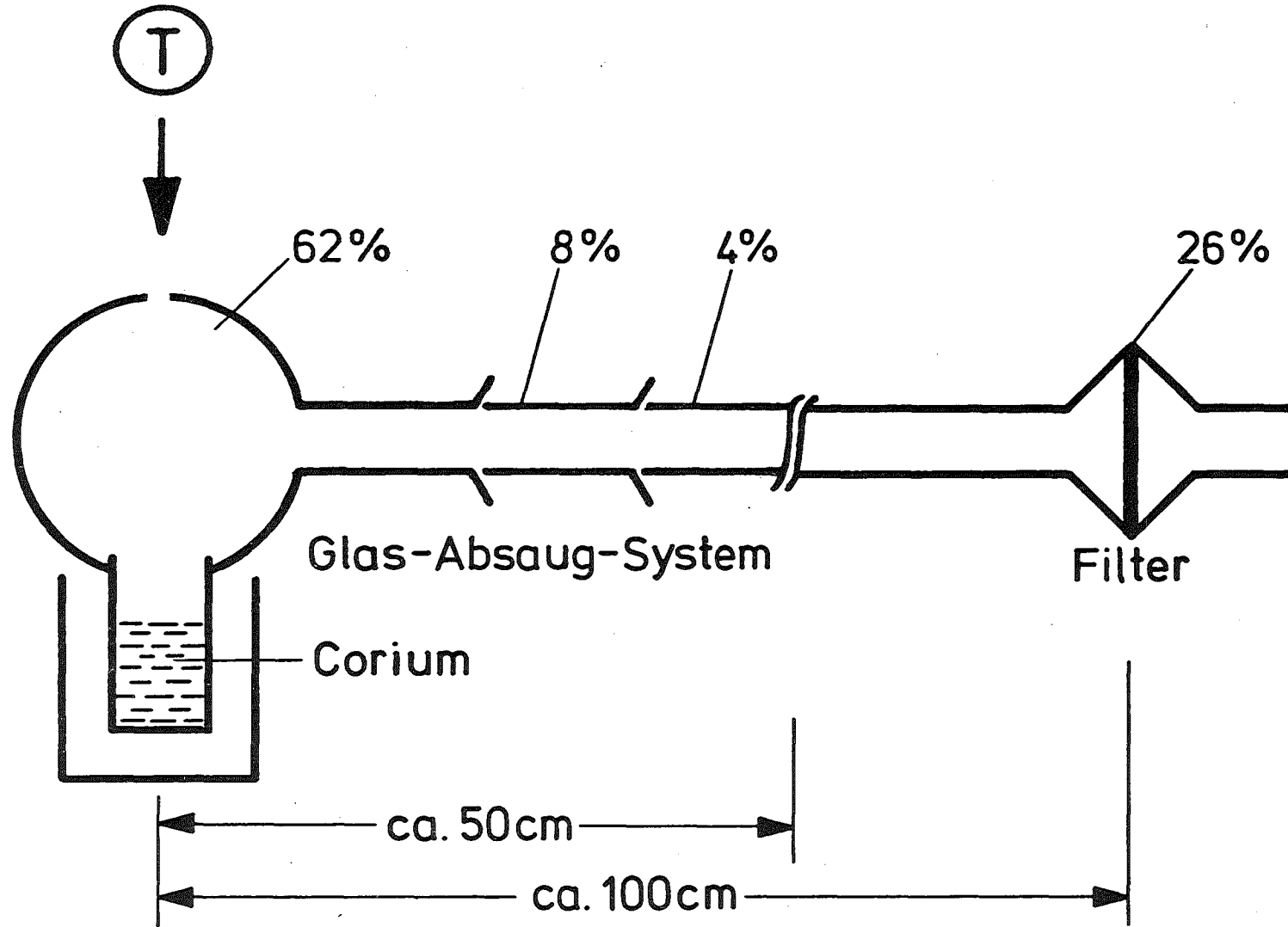


Abb. 4243-1: Massenverteilung der Freisetzungsprodukte

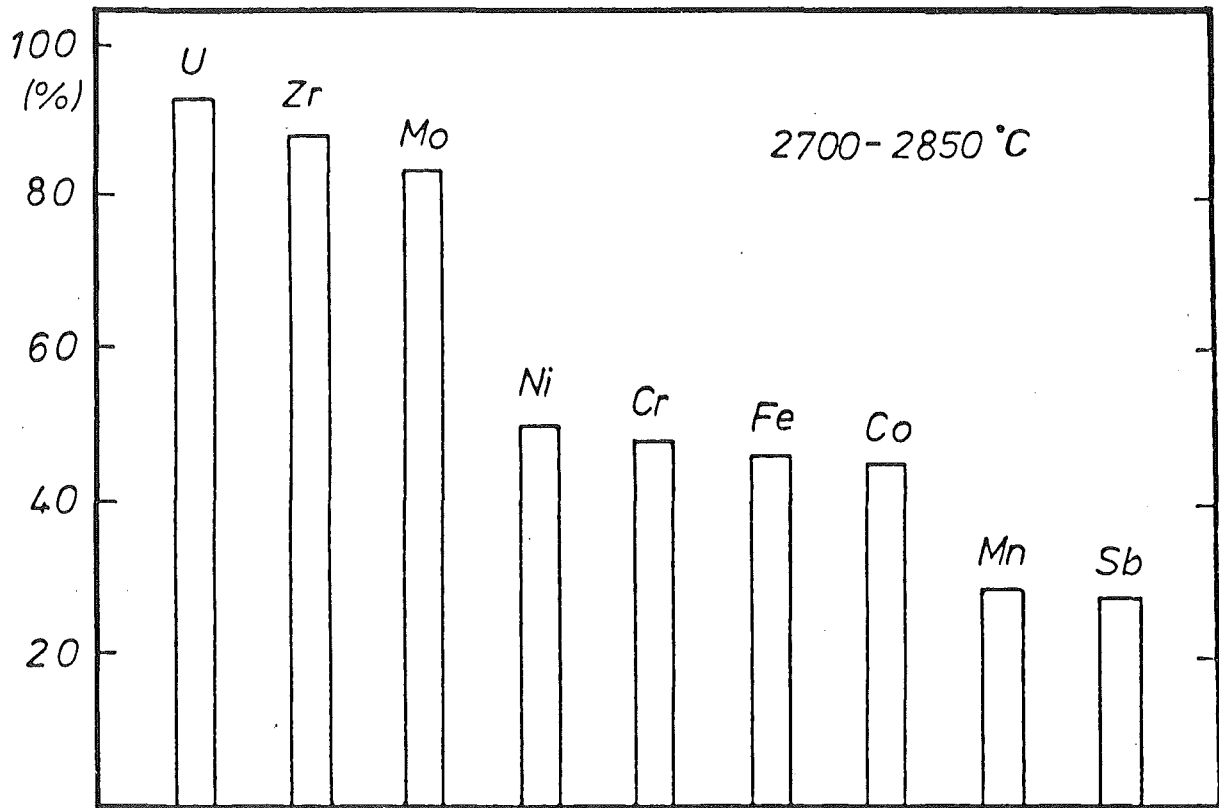


Abb. 4243-2: Anteil der Freisetzungserzeugnisse auf dem Glassystem, bezogen auf die gesamte Freisetzung

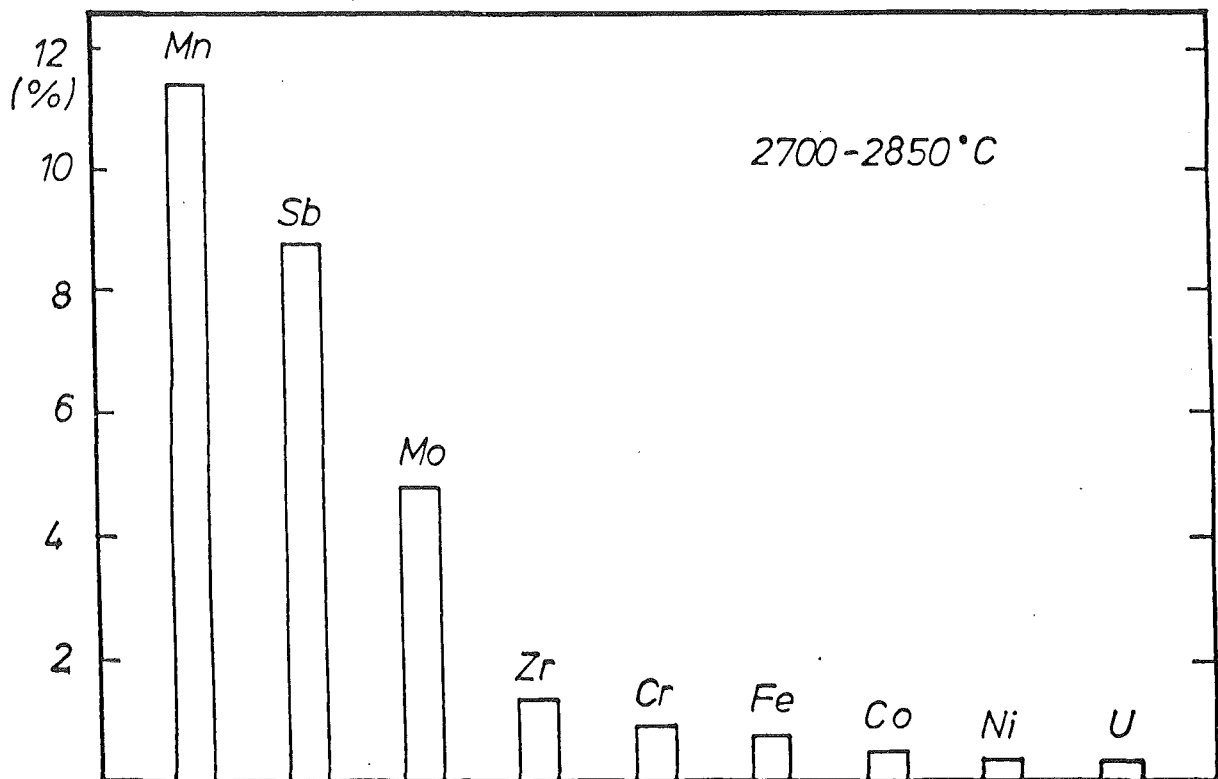


Abb. 4243-3: Anteil der insgesamt freigesetzten Elemente, bezogen auf die Ausgangsmengen im Schmelzgut

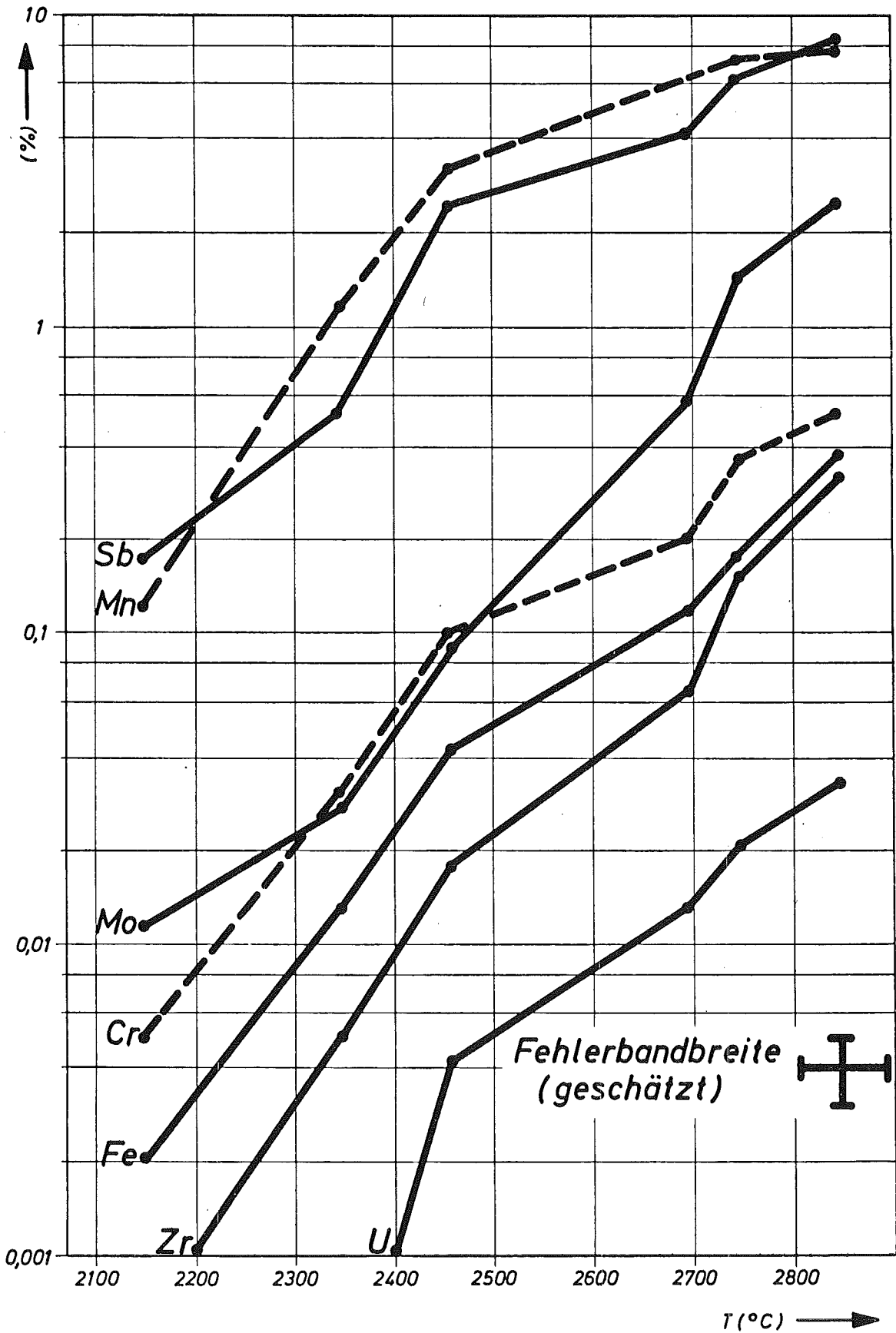


Abb. 4243-4: Auf den Membranfiltern gefundene Freisetzunganteile der wichtigsten Coriumkomponenten als Funktion der Maximaltemperatur (Luft, 1-2 bar); die Meßpunkte entsprechen einer Integration über die gesamte Zeitdauer eines Versuches.

4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen

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

Konstitutionsuntersuchungen

Es wurden experimentelle Gleichgewichtsuntersuchungen in dem Schnitt $\text{UO}_2\text{-Zr}(\text{O}_{0.42})^+ \text{-Fe}$ des 4-Stoffsystems U-Zr-Fe-O durchgeführt. In diesem Schnitt können die Phasenbeziehungen des komplexen Systems UO_2 -Zircaloy-Stahl bei sehr schwach oxidierenden Bedingungen modellmässig betrachtet werden.

Die Ergebnisse der Versuche sind in den Abb.4244-1 bis 4244-3 als isotherme Schnitte für 1000, 1500 und 2000°C dargestellt. Die Einstellung der Phasengleichgewichte war wegen der Vielzahl der Gleichgewichtsphasen

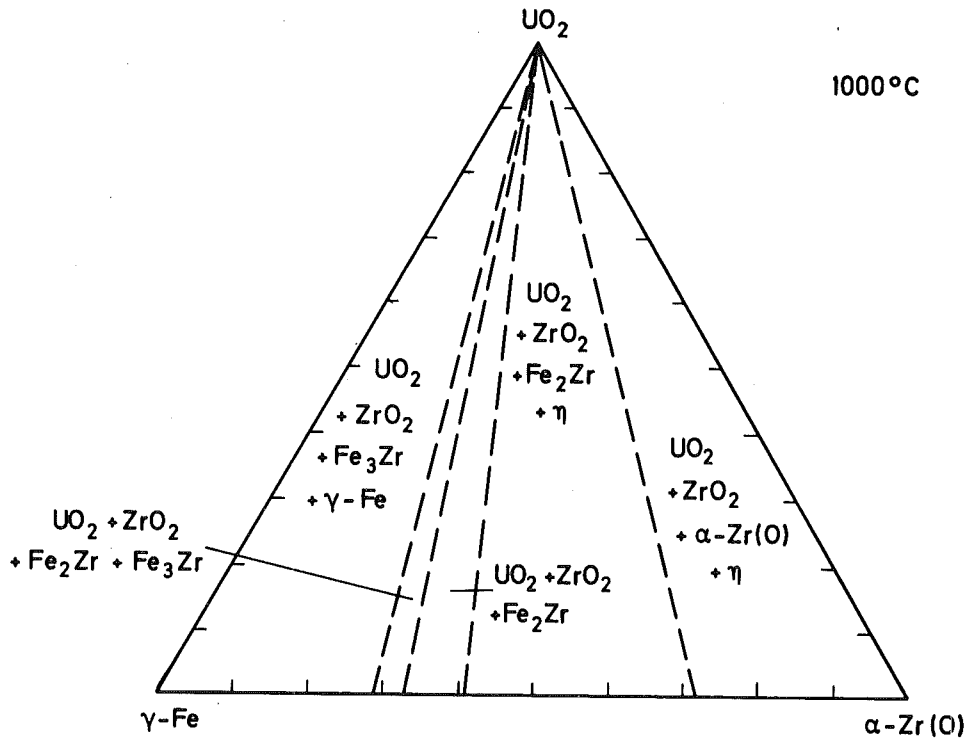


Abb. 4244-1: Phasenbeziehungen im Schnitt $\text{UO}_2\text{-Zr}(\text{O}_{0.42})\text{-Fe}$ bei 1000°C

+) Die Zusammensetzung $\text{Zr}(\text{O}_{0.42})$ entspricht etwa dem sauerstoff-gesättigten α -Zirkon " $\alpha\text{-Zr}(\text{O})$ ".

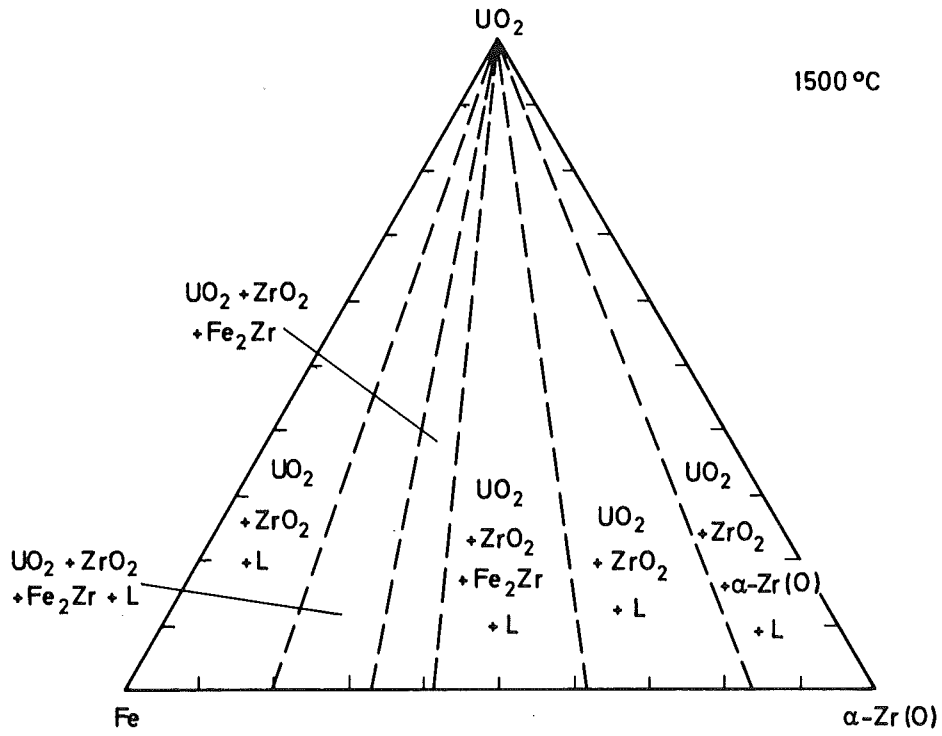


Abb. 4244-2: Phasenbeziehungen im Schnitt
 UO_2 -Zr($O_{0.42}$)-Fe bei $1500^\circ C$

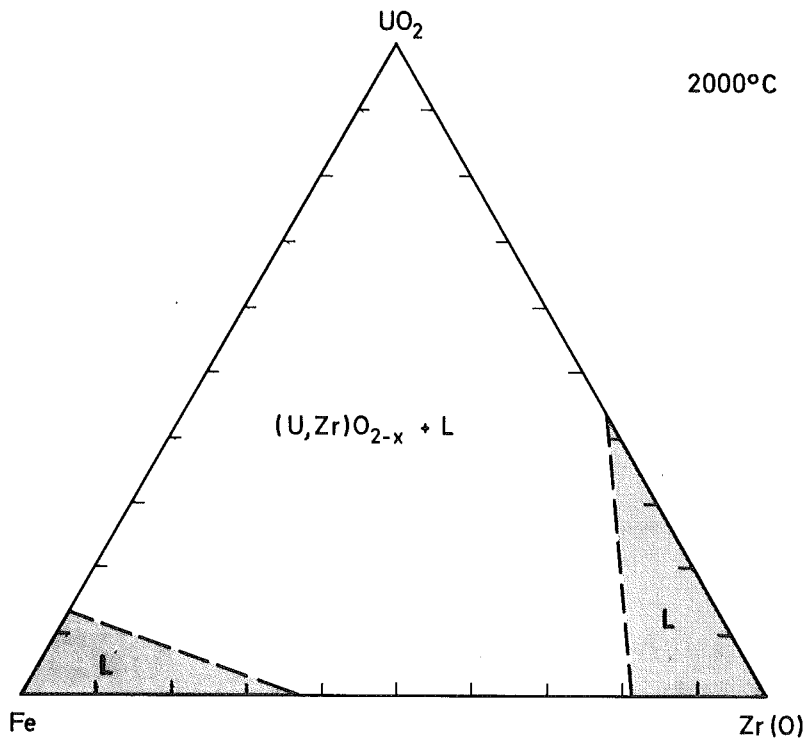


Abb. 4244-3: Phasenbeziehungen im Schnitt
 UO_2 -Zr($O_{0.42}$)-Fe bei $2000^\circ C$

(bis zu vier) in den einzelnen Feldern erschwert, so dass selbst nach Versuchszeiten >100 Std. bei 1000°C noch Ungleichgewichte vorlagen. Die Phasenbeziehungen in diesem Schnitt bei 1000 und 1500°C erinnern an diejenigen des Schnittes UO_2 -Zr-Fe /1/, insofern als eine ähnliche Phasenaufteilung mit den gleichen Phasen, vermehrt jeweils um die Phase ZrO_2 , beobachtet wird. Die η -Phase besitzt hier jedoch keinen eigenen Existenzbereich bei 1000°C, sondern tritt nur gemeinsam mit anderen Phasen auf; das gleiche gilt auch für die Zr-reiche Schmelze bei 1500°C. Der isotherme Schnitt bei 2000°C zeigt eine Unterbrechung des Schmelzenfeldes auf der Linie Fe-Zr(O), die im Widerspruch zu einer vorläufigen Abschätzung der Ausdehnung des metallischen Schmelzenfeldes im ternären System Fe-Zr-O bei 2000°C steht /2/. Dieser Abschätzung lag eine lineare Interpolation zwischen den binären Randsystemen Fe-O und Zr-O zugrunde. Nach den neuen experimentellen Befunden ist nun gesichert, dass die Grenze der Sauerstofflöslichkeit der metallischen Schmelze nicht linear, sondern gekrümmt verläuft, wobei sich für den mittleren Mischungsbereich der metallischen Fe-Zr-Schmelze niedrigere Sauerstoffgehalte ergeben. Für eine endgültige Festlegung dieser Phasengrenze sind weitere Experimente erforderlich.

Reaktionsuntersuchungen

a) Reaktionsverhalten von vollständig oxidiertem Corium E

Bei diesen Experimenten wurden alle Komponenten des Corium in oxidiertem Form eingesetzt. Bei etwa 1400°C kann man erste flüssige Phasen beobachten. Oberhalb ca. 1900°C sind nur flüssige Phasen festzustellen. Es bildet sich eine homogene Oxidschmelze. In der erstarrten Corium-EX3-Probe sind die verschiedenen Phasen statistisch über den Probenquerschnitt verteilt, es ist keine Entmischung zu beobachten (Abb. 4244-4).

Mikrosondenuntersuchungen von Corium-EX3-Proben, die im Induktionsofen geschmolzen wurden, lassen im wesentlichen drei Phasen erkennen (Abb. 4244-5);

- zwei (Fe,Ni)-Mischoxidphasen mit unterschiedlichen Chromoxidanteilen
- eine (U,Zr,O)-Phase, die in ihrer Zusammensetzung starke Inhomogenitäten aufweist.

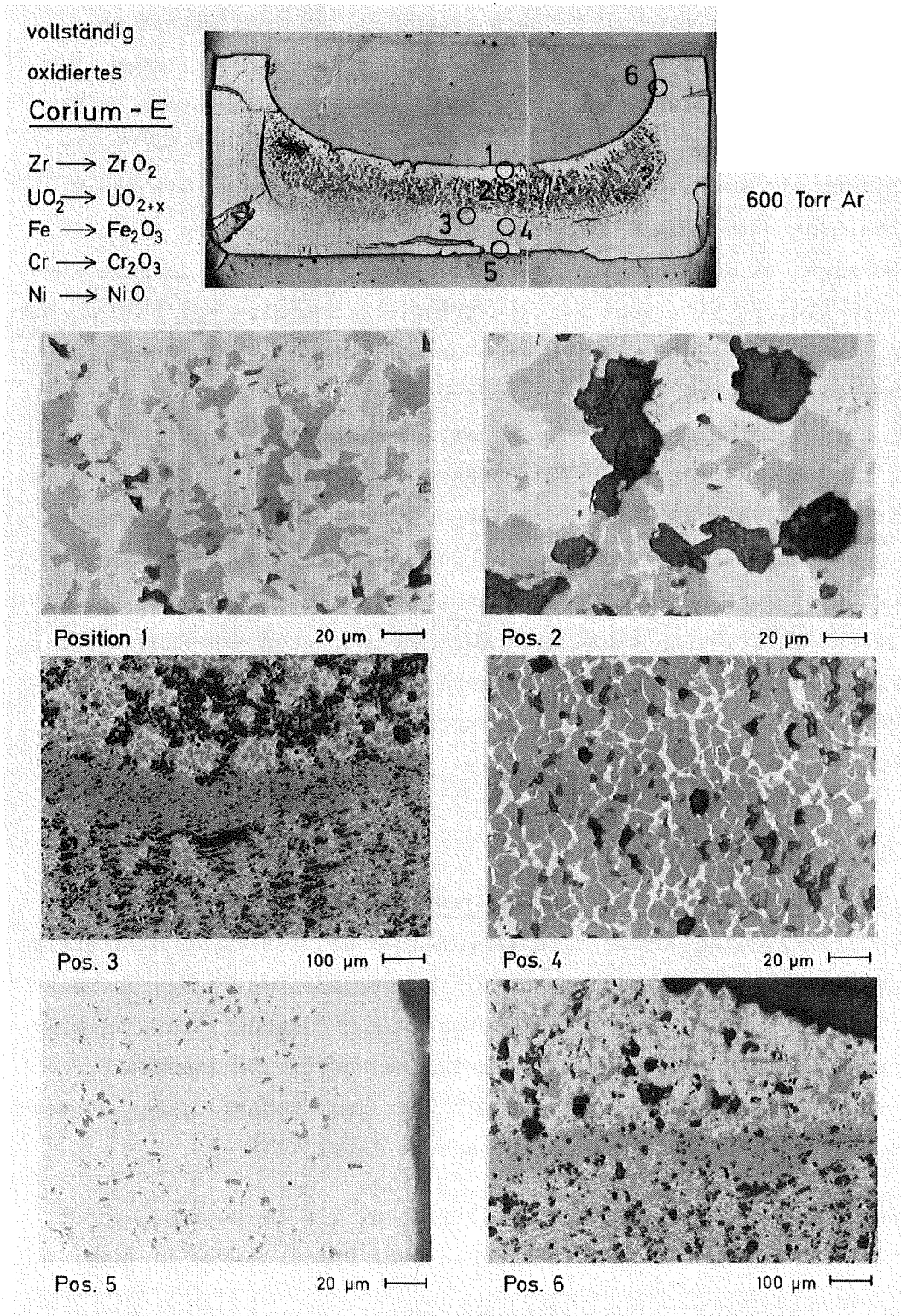


Abb. 4244-4: Reaktionsverhalten von vollständig oxidiertem Corium-E3 bei 1900°C/2 Min. unter Schutzgas. Es bildet sich eine homogene oxidische Schmelze. Die Phasen sind statistisch über den Probenquerschnitt verteilt. Tiegelmateriale: ThO_2 .

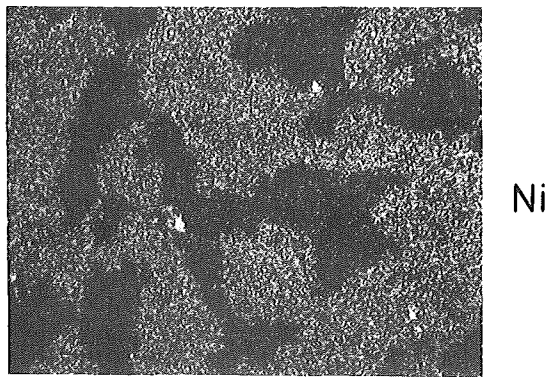
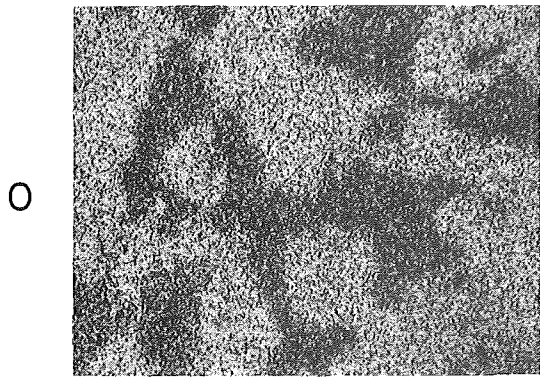
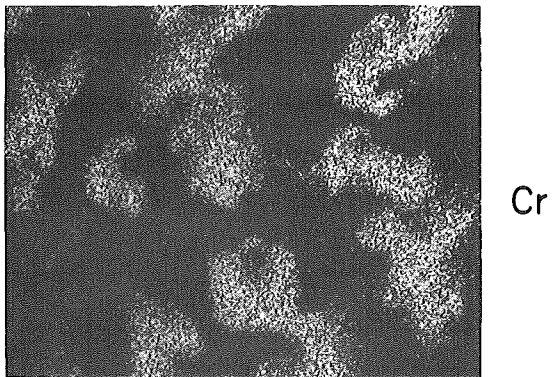
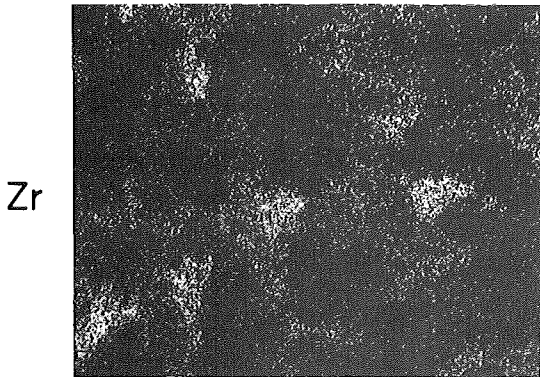
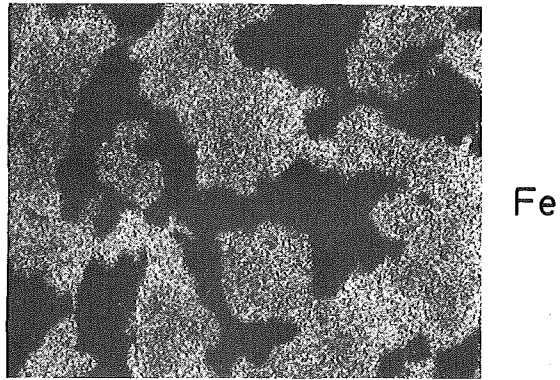
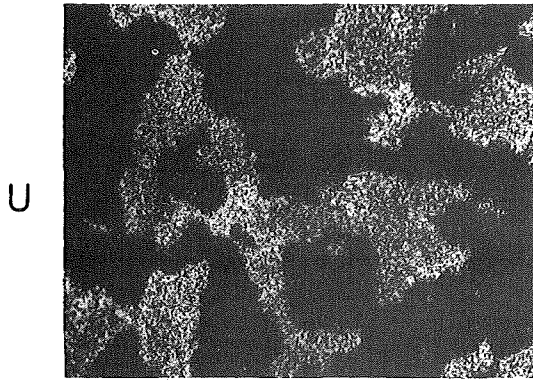
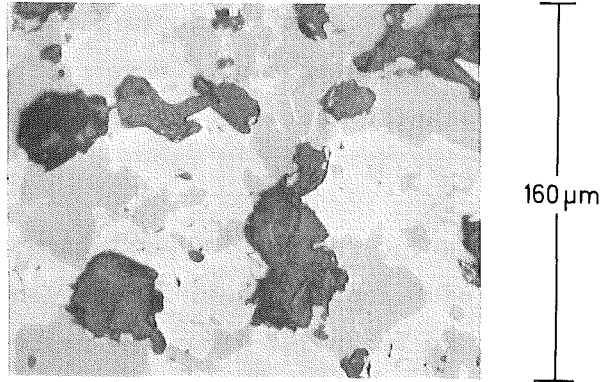
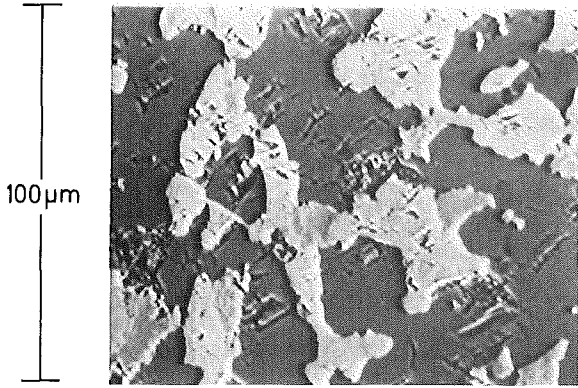


Abb. 4244-5: Mikrosondenaufnahmen einer bei 1900°C/2 Min. unter Ar geschmolzenen vollständig oxidierten Corium-EX3-Probe. Es bilden sich im erstarrten Zustand drei verschiedene Oxidphasen

Die im Lichtbogenofen unter 5 bar Argon geschmolzenen Corium-EX3-Proben zeigen im erstarrten Zustand in geringen Mengen noch eine metallische Phase Ansonsten sind die verschiedenen Oxidphasen gleichmässig über den Querschnitt verteilt, d.h. es findet hier keine Entmischung im flüssigen Zustand statt.

Die integralen chemischen Zusammensetzungen der Corium-EX3-Proben, die im Induktionsofen bzw. Lichtbogenofen unter Schutzgas geschmolzen wurden, sind in Tab. 4244-1 zusammengestellt. Im Cr-, U- und Zr-Gehalt treten stärkere Abweichungen zwischen den verschiedenen Proben auf. Der Chromverlust ist beim Schmelzen von Corium-E3 im Lichtbogenofen, infolge der wesentlich höheren Temperaturen etwas grösser als im Induktionsofen. Die hohen Temperaturen im Lichtbogenofen sind offenbar auch der Grund für das Auftreten von metallischen Phasen im Corium-EX3. Speziell das NiO

Element	Corium-E3 Ausgangsmaterial		Corium-EX3 nach dem Schmelzen im			
			Induktionsofen (0,8 bar Ar)		Lichtbogenofen (5 bar Ar)	
	Gew.%	At.%	Gew.%	At.%	Gew.%	At.%
	Zry → ZrO ₂					
	Fe → Fe ₃ O ₄					
	Cr → Cr ₂ O ₃					
	Ni → NiO					
Fe	30,6	22,2	34,1	24,8	33,7	25,5
Cr	7,7	6,0	12,2	9,5	7,9	6,4
Ni	4,3	3,0	5,0	3,4	4,0	2,9
U	25,1	4,3	19,6	3,3	24,7	4,4
Zr	8,3	3,7	6,3	2,8	8,1	3,8
O	23,9	60,6	22,1	56,0	21,6	57,0
C	0,08	0,3	0,02	0,05	0,01	<0,03
Th	-	-	<0,7	<0,1	-	-

Tab. 4244-1: Integrale chemische Zusammensetzung von vollständig oxidiertem Corium-E (Corium-E3) vor und nach dem Schmelzen unter Schutzgas

ist bei den hohen Temperaturen wie sie im Lichtbogenofen herrschen, thermodynamisch nicht stabil (hoher Sauerstoffpartialdruck) und gibt einen Teil des Sauerstoffs ab.

b) Reaktionsverhalten von Spaltprodukten in Corium A

Corium A-Proben mit Spaltprodukten, entsprechend 10 bzw. 20% Abbrand, wurden im Lichtbogen sowie in ThO_2 -Tiegeln in einem widerstandsbeheizten Hochtemperaturofen erschmolzen. Als häufigste Spaltprodukte wurden Ce als CeO_2 , Nd (stellvertretend für Y, La, Pr, Nd, Pm, Sm und Eu) als Nd_2O_3 , Sr (stellvertretend für Sr und Ba) als SrO, Zr als ZrO_2 sowie Mo und Ru (stellvertretend für Ru, Rh und Pd) in metallischer Form eingeführt. Cs und einige flüchtige Spaltprodukte geringerer Ausbeute, wie z.B. Te und J, wurden bei diesen Versuchen nicht berücksichtigt. Das makroskopische Verhalten der Schmelzen im Lichtbogen sowie in ThO_2 -Tiegeln glich wie erwartet, jenem der spaltproduktfreien Schmelzen. Abb. 4244-6 zeigt den Anschliff einer im ThO_2 -Tiegel geschmolzenen Probe. Die Gewichtsverluste waren bei allen Schmelzversuchen gering. Sie lagen bei den im Lichtbogen erschmolzenen Proben bei 4% und bei den im ThO_2 -Tiegel erschmolzenen Proben bei 2%. Während sich die Stahlbestandteile

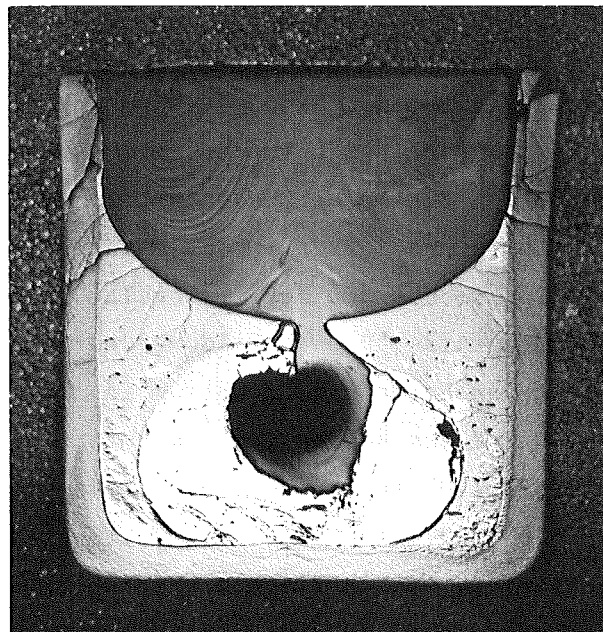
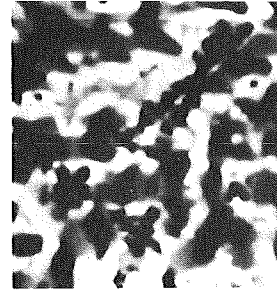
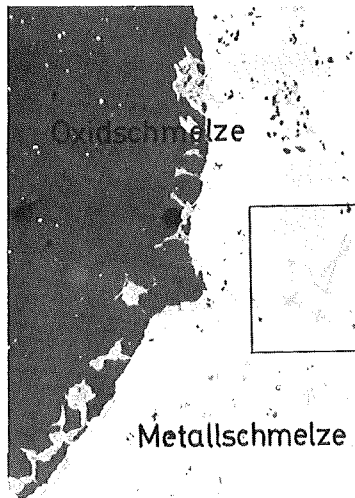


Abb. 4244-6: Schliffbild einer im ThO_2 -Tiegel geschmolzenen Corium A-Probe mit Spaltprodukten entsprechend 20% Abbrand

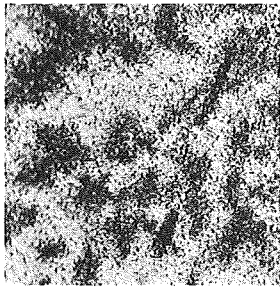
fast nur in der Metallschmelze wiederfinden, löst sich Uran und Zirkon sowohl in der Stahl- als auch in der Oxidschmelze. Das Gewichtsverhältnis entspricht mit 1,6 für den Urangehalt im Oxid zu dem im Metall und 1,1 für den Zirkongehalt im Oxid zu dem im Metall vollkommen den Befunden in Corium A ohne Spaltprodukte /vgl. KFK 2242/. Die Verteilung der Spaltprodukte auf die oxidische Phase einerseits und auf die metallische Phase andererseits, ist vom Sauerstoffpartialdruck in der Schmelze abhängig. Hierbei ist jedoch zu berücksichtigen, dass die Spaltprodukte aus der Reihe der Erdalkalimetalle, der Seltenen Erden und Zirkon im Brennstoff in oxidischer Form vorliegen. Sie wurden deshalb hier auch als Oxide eingegeben, während die Platinmetalle im Brennstoff in metallischer Form auftreten. Mo wird je nach Stöchiometrie und Abbrand des Brennstoffs in oxidischer oder metallischer Form vorliegen.

Die Verteilung der Spaltprodukte im geschmolzenen Corium A wurde mit der Röntgenfluoreszenzanalyse (bisher nur qualitativ) sowie mit der Mikrosonde untersucht. Abb. 4244-7 zeigt Schliffbild und Röntgenbilder der Metallphase von Corium A und Abb. 4244-8 jene der Oxidphase. Es wird deutlich, dass die Seltenen Erden nur in der Oxidphase, die Platinmetalle und Mo nur in der Metallphase auftreten. Zirkon tritt sowohl im Oxid als auch im Metall auf. Die dreiwertigen Seltenen Erden verhalten sich hier also anders als die ebenfalls stabilen Oxidbildner Uran und Zirkon. Hierfür kann die noch höhere Stabilität der Oxidphasen der Seltenen Erden verantwortlich sein, jedoch auch eine geringere Legierungstendenz der Seltenen Erden mit Stahlkomponenten. Die Metallphase enthält etwa 0,7 Gew.% Sauerstoff. Dieser ist an Uran und Zirkon in der Metallphase gebunden. Abb. 4244-7 zeigt eine Stelle, wo aus der Metallschmelze beim Abkühlen Zr(O) dendritisch ausgeschieden wurde. Dieses Bild verdeutlicht das Fehlen von Spaltprodukten der Seltenen Erden und Strontium in der Metallphase. Besonders aufschlussreich ist das Konzentrationsprofil der Elemente über einem sphärischen Oxidpartikel in der Metallschmelze von Corium A. Abb. 4244-9 zeigt das Schliffbild dieser Stelle einer im Lichtbogen geschmolzenen Probe. Im Gegensatz zu den in Tiegelern erschmolzenen Proben, enthalten die Lichtbogenproben auch in der Metallschmelze grössere Oxidpartikel, die offensichtlich in den turbulenten Strömungen innerhalb der Probe beim Schmelzen und die plötzliche Abkühlung ihre Ursache haben.

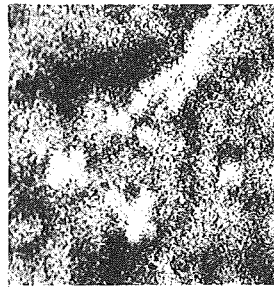


Probenstrombild (neg.)

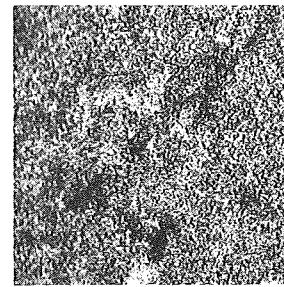
Schliffbild



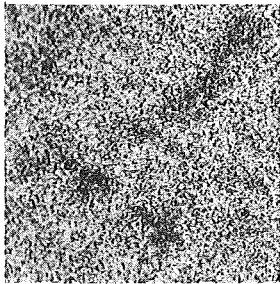
Uran



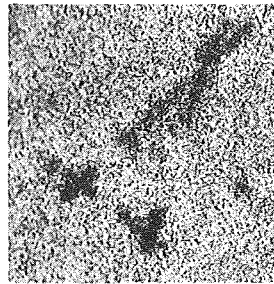
Zirkon



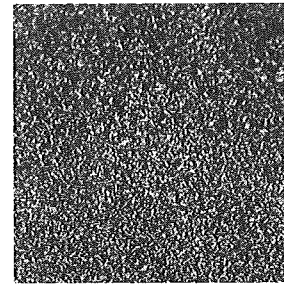
Chrom



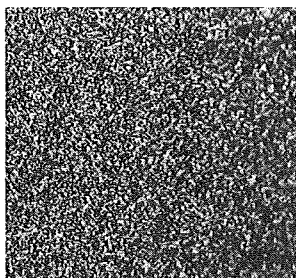
Eisen



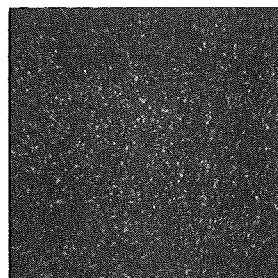
Nickel



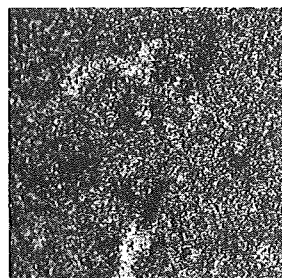
Cer



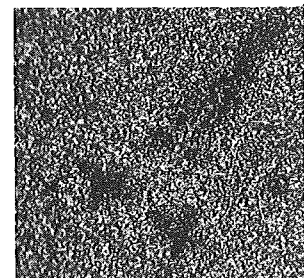
Neodym



Strontium

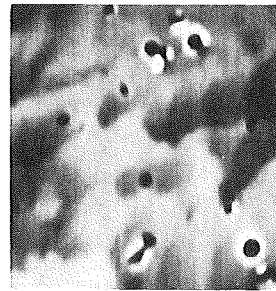
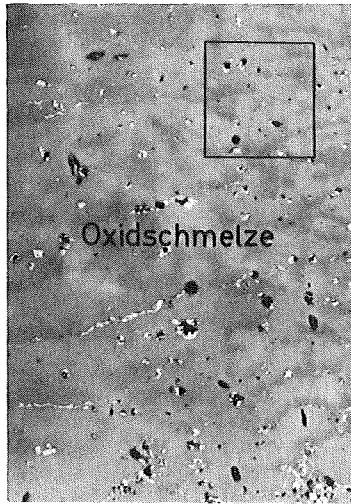


Molybdän



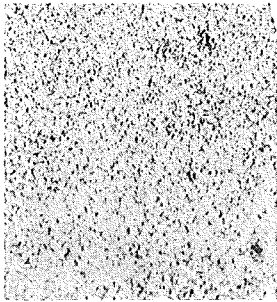
Ruthenium

Abb. 4244-7: Schliffbild und Röntgenbilder der Metallphase einer im Lichtbogen geschmolzenen Corium A-Probe mit Spaltprodukten entsprechend 20% Abbrand

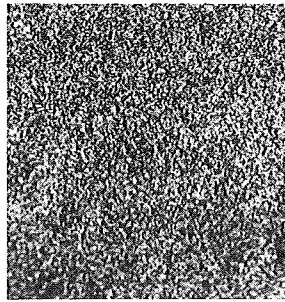


Probenstrombild (neg.)

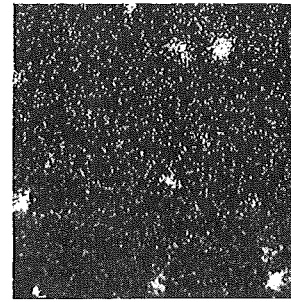
Schliffbild



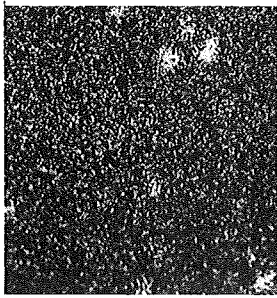
Uran



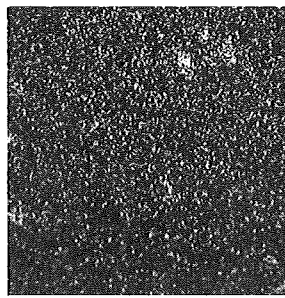
Zirkon



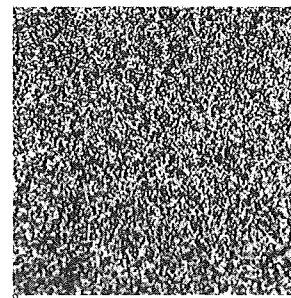
Chrom



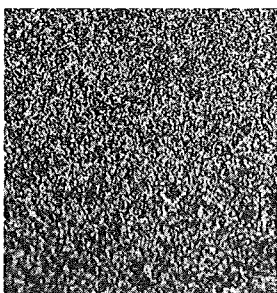
Eisen



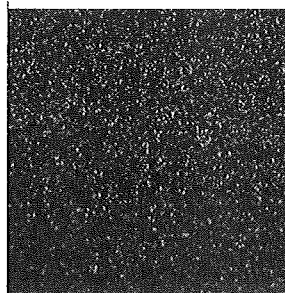
Nickel



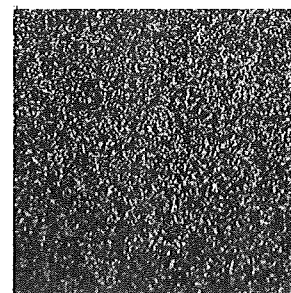
Cer



Neodym



Molybdän



Ruthenium

Abb. 4244-8: Schliffbild und Röntgenbilder der Oxidphase einer im Lichtbogen geschmolzenen Corium A-Probe mit Spaltprodukten entsprechend 20% Abbrand

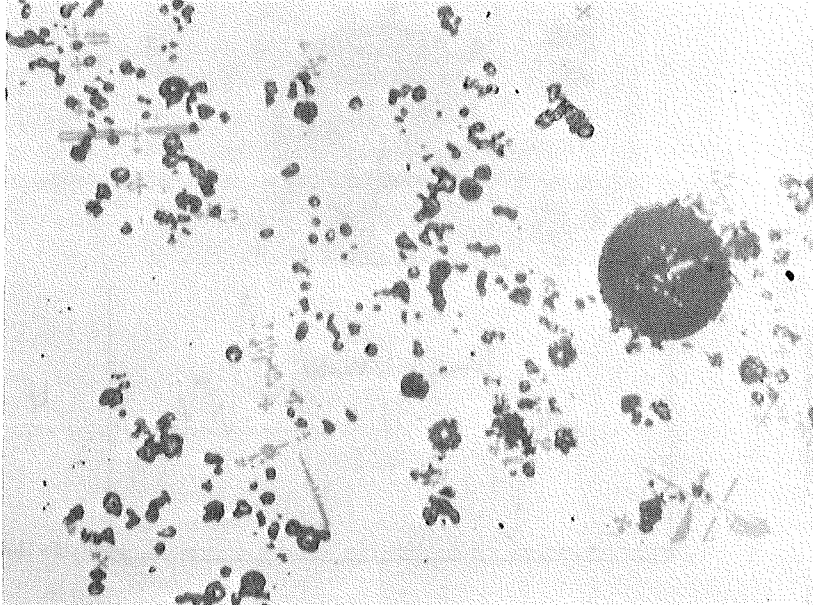


Abb. 4244-9: Schliffbild einer Probe aus der Metallphase einer im Lichtbogen geschmolzenen Corium A-Probe mit Spaltprodukten entsprechend 20 % Abbrand

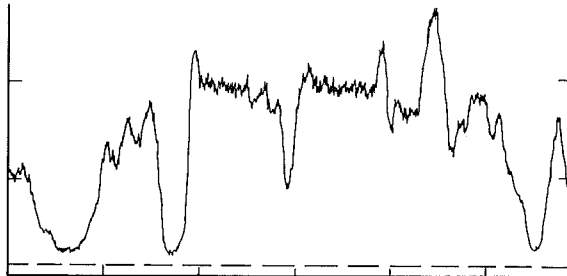
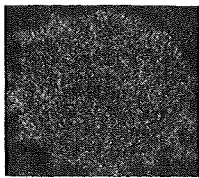
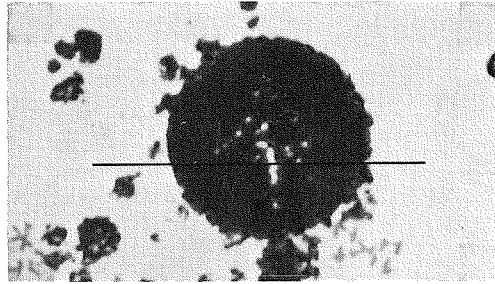
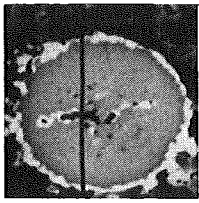
Deutlich zeigt sich bei den Konzentrationsprofilen (Abb. 4244-10) die Verteilung der Elemente auf die Oxid- und Metallphase. Strontium als Repräsentant der Erdalkalielemente ist nicht mit aufgenommen, da sich eine Überlappung des Linienprofils mit dem des Chroms in der dritten Ordnung ergab. Molybdän tritt hier nur in der Metallphase auf. Im Gegensatz zu den Platinmetallen kann jedoch Mo bei höherem Sauerstoffangebot, d.h. bei oxidierender Atmosphäre auch teilweise in der Oxidschmelze gelöst sein.

c) Reaktionsverhalten der Coreschmelze mit aufgeschmolzenem Beton

Nach dem Versagen des Druckbehälters gelangt die Coreschmelze in das Containment und wird hier mit Beton in Wechselwirkung treten, wobei dieser durch den Wärmeinhalt der Coreschmelze verflüssigt wird und sein Gehalt an H_2O und CO_2 freigesetzt wird. Die chemischen Reaktionen zwischen der Coreschmelze und dem erschmolzenen Beton werden durch isotherme Tiegelversuche in inerter Atmosphäre untersucht. Die ersten Ziele dieser Untersuchungen sind u.a. die Ermittlung

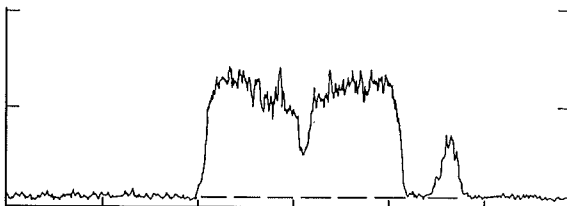
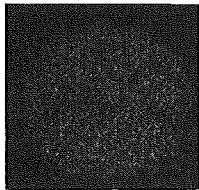
- a) der Phasen und ihrer Verteilung im geschmolzenen und im erstarrten Zustand,
- b) der Schmelz- und Erstarrungstemperaturen der Phasen,
- c) des Einflusses des Oxidationsgrades auf das Reaktionsverhalten.

a)



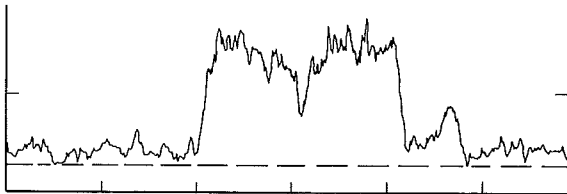
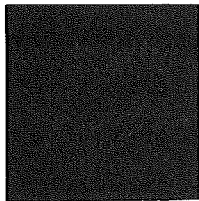
U

U - Untergrund



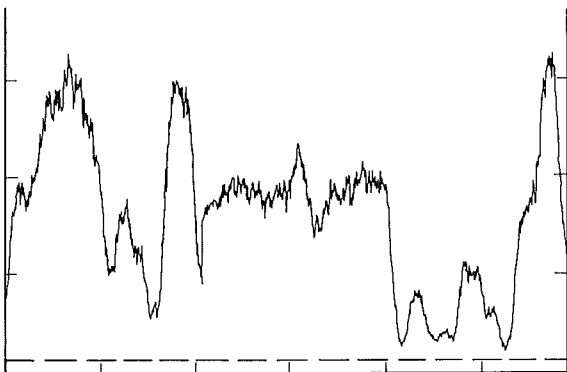
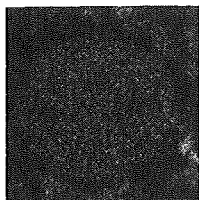
Nd

Nd - Untergrund



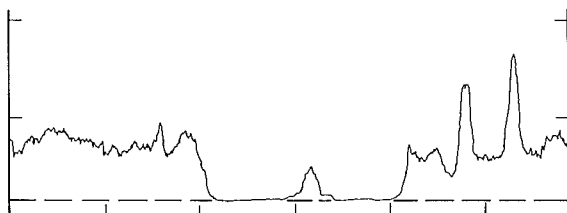
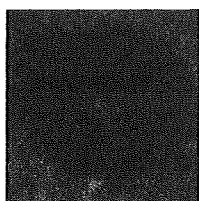
Ce

Ce - Untergrund



Zr

Zr - Untergrund

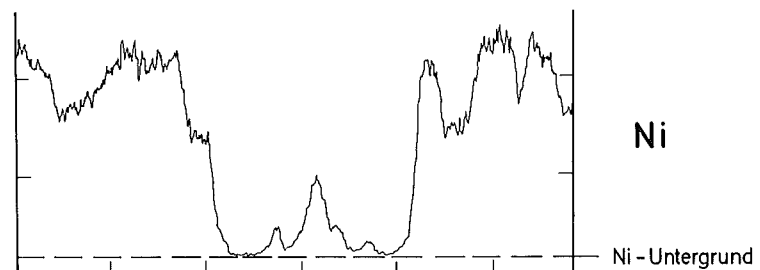
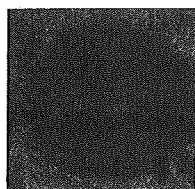
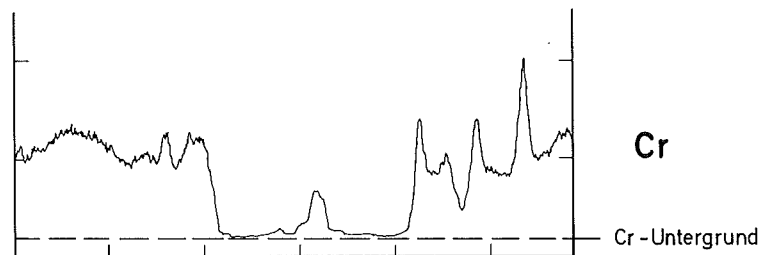
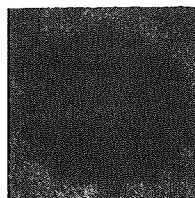
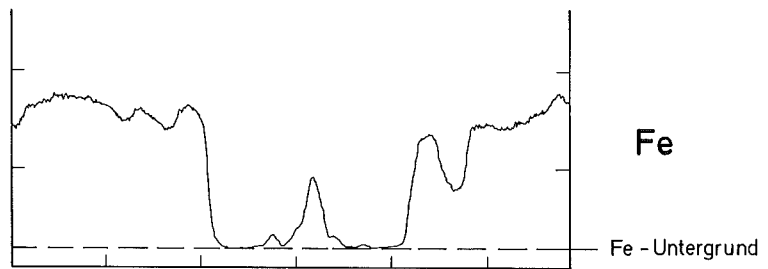
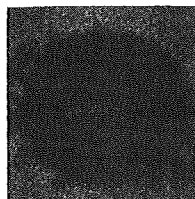
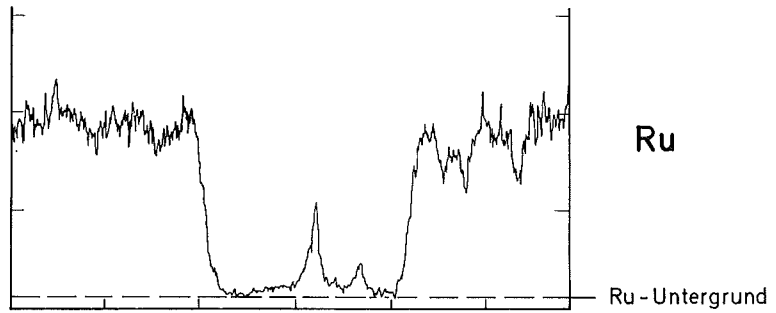
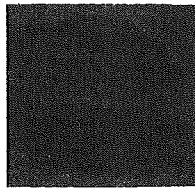
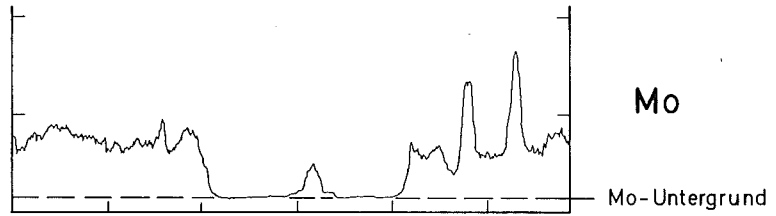
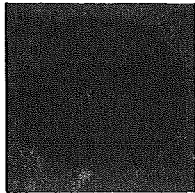
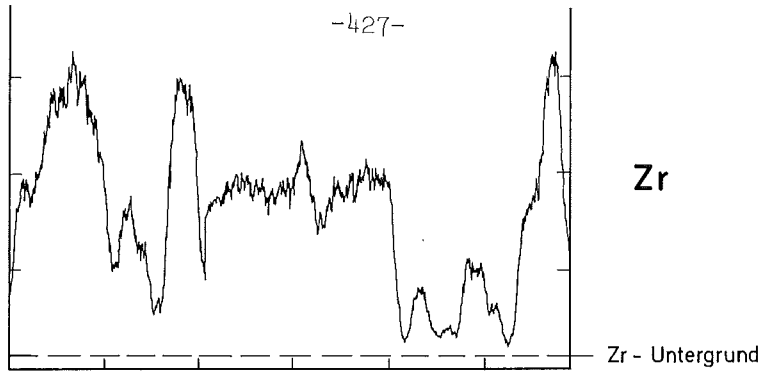
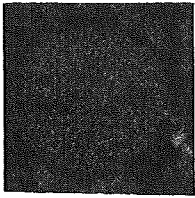


Mo

Mo - Untergrund

Abb. 4244-10 a+b: Konzentrationsprofile der Elemente in der Metallphase und einem Oxidpartikel von Corium A mit Spaltprodukten

b)



18 μm

Versuchsmaterial, Versuchsdurchführung, Auswertung:

Die chemische Zusammensetzung der Corieschmelze, die nach dem Durchschmelzen des Druckbehälters mit Beton reagiert, wurde von KWU (Peehs, Hassmann u. Petri, 27.10.75) übernommen. Hiernach errechnen sich die Corium-Mischungen aus den Zusammensetzungen "Corium-A" bzw. "Corium-E" zuzüglich des Anteils an Druckbehälter-Stahl, der beim Durchschmelzen aufgelöst wird. Die Bezeichnungen für diese Corium-Mischungen lauten "Corium-(A+R)" und "Corium-(E+R)". Beide Zusammensetzungen wurden in den Versuchen eingesetzt.

Der Mischungsaufbau des Betons (Bn 250) wurde in Übereinstimmung mit KWU zu 1 Teil Zement, 6,5 Teile Zuschlag und 0,45 Teile Wasser festgesetzt. Als Zement wurde Portlandzement verwendet. Über die Art des Zuschlags wurden einige Nachforschungen angestellt. Hierbei zeigte es sich, dass in Bezug auf den Karbonatgehalt des Zuschlags für den im Reaktorsumpf und im Fundament verwendeten Beton keine Vorschriften existieren. Nach Auskunft der Fa.Hochtief AG. ergeben sich z.B. für Biblis (B) keine nennenswerten, für Grundremmingen jedoch erhebliche Gehalte an Karbonat (1385 kg/m^3) in dem verwendeten Beton. Für die verwendeten Versuche wird daher neben karbonatfreiem auch karbonatreicher Zuschlag verwendet werden müssen.

Die Körnung des Zuschlags (bis 32 mm) kann in den Tiegelversuchen nicht berücksichtigt werden. Sie ist jedoch in dieser Versuchsreihe ohne Bedeutung, da hier allein die chemische Zusammensetzung des Betons von Bedeutung ist. Zur Herstellung des Betons für die Versuche wurden die Materialien Zement, Zuschlag (als Sand bzw. Pulver) und Wasser vermischt und nach dem Abbinden, das hier wegen der verfälschten Körnung nicht zu einem mechanisch festen Beton führt, gelagert und anschliessend zerkleinert.

Die Corium-Mischung und der Beton wurden zu einem homogenen Pulver vermischt und in Wolfram-Tiegeln bis zum vollständigen Schmelzen indirekt beheizt und mit ca. $50 - 100^\circ\text{C}/\text{sec}$ abgekühlt. Die Temperatur wurde pyrometrisch an der Schmelzenoberfläche gemessen. Als Schutzgas diente Argon unter einem Druck von 600 Torr. Bei den kurzen Haltezeiten der Schmelze (max. 5 min) hat sich Wolfram als Tiegelmateriale brauchbar erwiesen, obwohl es durch den Stahlanteil der Coriumschmelze angelöst wird. An oxi-

dischen Tiegelmaterialeien wurden ThO_2 und ZrO_2 erprobt. Von diesen beiden erwies sich nur ThO_2 als bedingt geeignet.

Die Proben wurden metallographisch, röntgenographisch und durch Mikrospondenaufnahmen auf ihren Phasenbestand untersucht. Daneben wurden an grösseren Probenbereichen chemische Teilanalysen durchgeführt. Die Bestimmung der Schmelztemperaturen einzelner Phasen erfolgte in der Schmelzbestimmungsapparatur /3/.

Bis jetzt wurden nur Proben mit karbonatarmem Beton, der Silikat-Zuschlag (Rheinsand) enthielt, ausgewertet. Das Mischungsverhältnis Corium-(A+R) bzw. -(E+R) zu Beton variierte von 3:1 bis 1:1. Bei einigen Proben wurde teil-oxidiertes Corium (Zr durch ZrO_2 ersetzt), bezeichnet mit Corium-(A+R)₂ bzw. -(E+R)₂, eingesetzt.

Ergebnisse:

Der Schmelzbeginn wurde bei allen Proben ab etwa 1350°C deutlich beobachtet. Im Temperaturbereich um 1500°C erfolgte bei den Proben, die nicht voroxidiertes Corium enthielten, ein starkes Aufwallen der Schmelze, die sich nach kurzer Zeit wieder beruhigte. Bei etwa 1700°C waren die Proben mit Corium-(E+R), bei etwa 1800°C diejenigen mit Corium-(A+R) vollständig geschmolzen.

Die Untersuchungen an den Proben sind noch nicht vollständig abgeschlossen. Bei allen Versuchen ergab sich eine deutliche Schichtung in eine untere Metall- und eine obere Oxidschicht. Die Metallschmelze hatte sich bevorzugt im Zwickel zwischen Tiegelboden und -wand versammelt (vgl. Abb. 4244-11) sicher aus Gründen der guten Benetzbarkeit. Sie enthält in allen Proben ausser den Komponenten des Stahles (Fe, Cr, Ni) stets auch Wolfram in Form von Fe-W-Verbindungen und W-Ausscheidungen (vgl. Abb. 4244-11 und 4244-12), jedoch kein Zirkonium. Dieses wurde beim Schmelzen in Schutzgas durch den Wasser- und CO_2 -Gehalt des Betons offenbar vollständig oxidiert und konnte zusammen mit UO_2 in der erstarrten Oxidschmelze nachgewiesen werden (vgl. Abb. 4244-12). In Abb. 4244-11 ist zu erkennen, dass UO_2 in Form grösserer Partikel und feinerer dendritenartiger Ausscheidungen innerhalb der erstarrten Oxidschmelze vorliegt, die darüber hinaus auch homogen gelöstes UO_2 enthält.

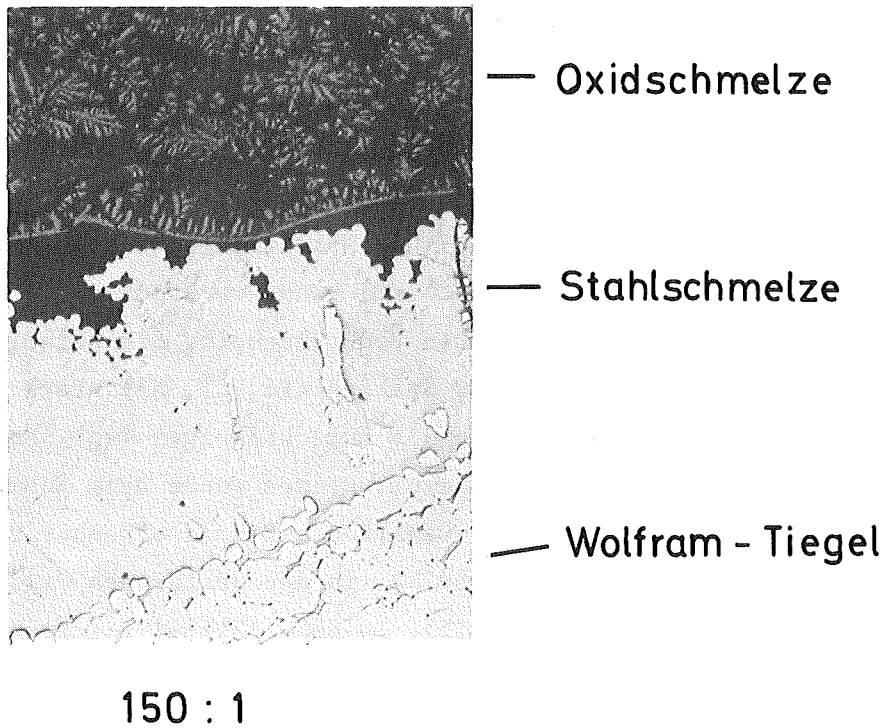
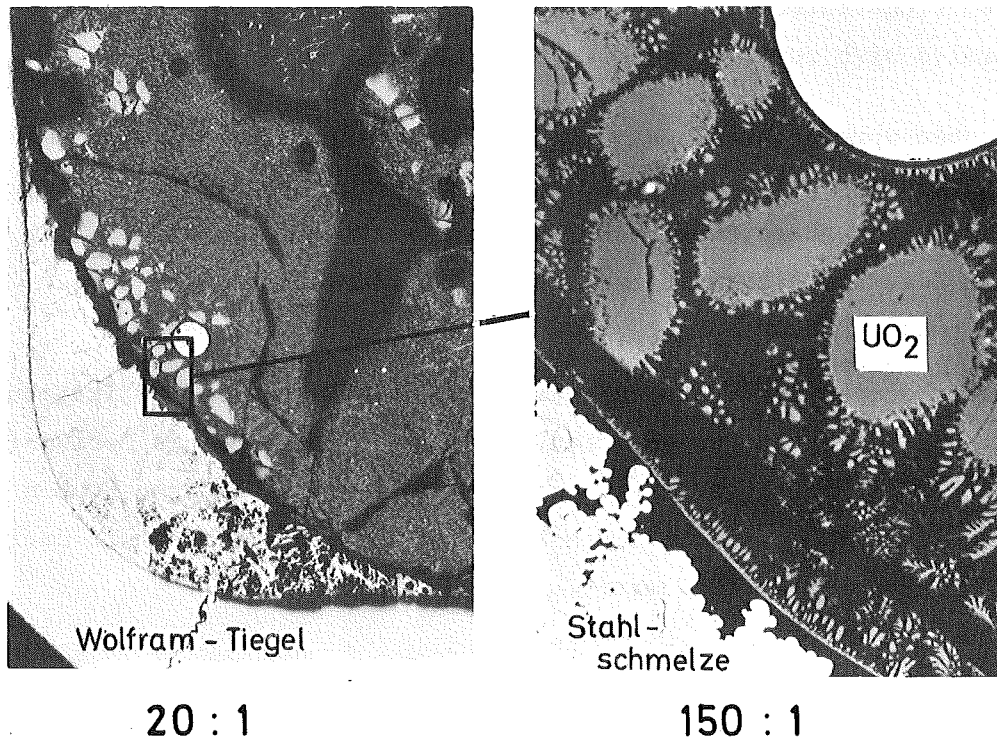
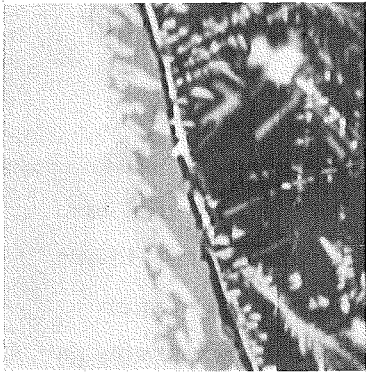
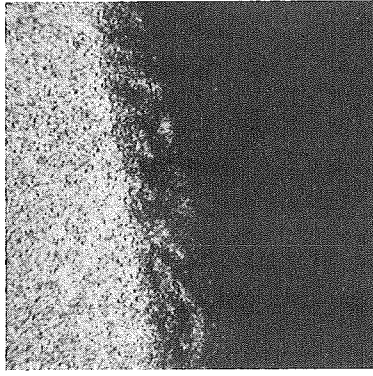


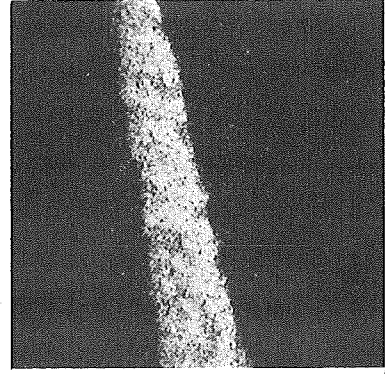
Abb.4244-11: Corium/Beton-Schmelzprobe Nr.6 (vgl.Tab.4244-2), Oxidschmelze (mit UO₂-Ausscheidungen) und Stahlschmelze (mit Wolfram-Ausscheidungen) im Wolfram-Tiegel



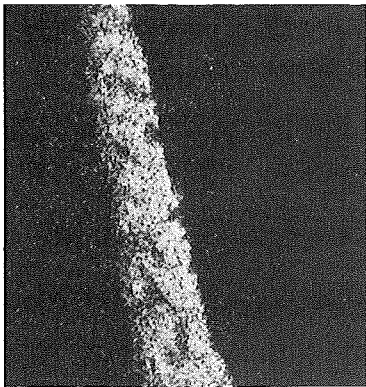
SE



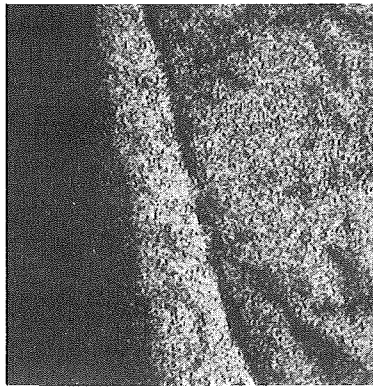
Wolfram



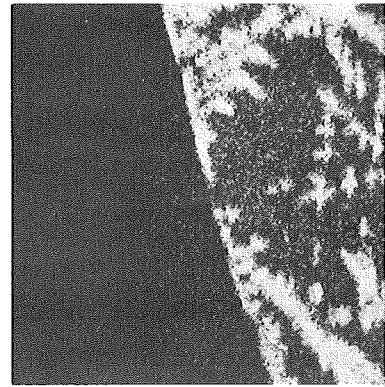
Eisen



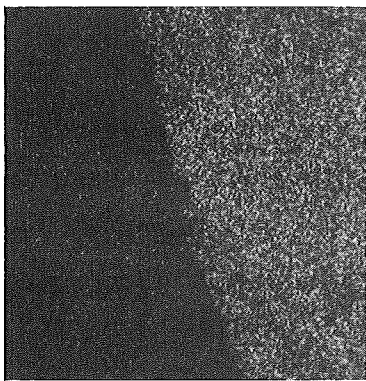
Nickel



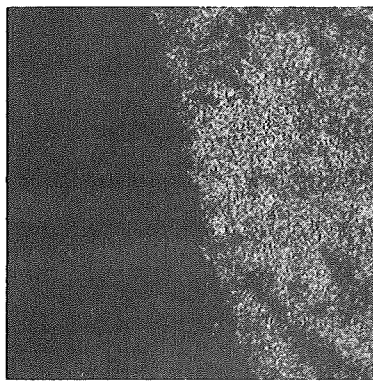
Chrom



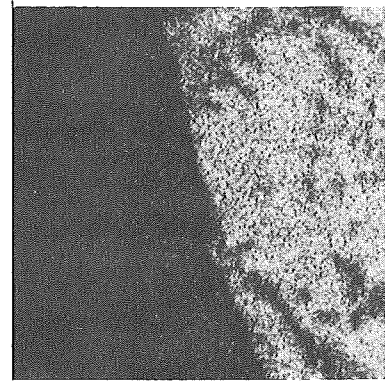
Uran



Zirkon



Calcium



Silizium

Abb. 4244-12: Mikrosondenuntersuchungen an einer Corium/Beton - Schmelzprobe (mit Wolfram-Tiegel, Stahlschmelze und Oxidschmelze, von links nach rechts)

Die chemischen Analysen zeigen, dass der UO_2 - und ZrO_2 -Gehalt der Oxidschmelze mit dem eingesetzten Corium-Anteil steigt (vgl. Tab. 4244-2). In der gleichen Richtung ist, wie erwartet, auch ein Ansteigen der Schmelztemperaturen der erstarrten Oxidschmelze zu beobachten. Obwohl diese Oxidproben sicherlich nicht kongruent schmelzen, kann man vorläufig davon ausgehen, dass die Erstarrungstemperaturen in etwa damit übereinstimmen. Näheres hierzu werden später geplante Messungen mit einer Hochtemperatur-DTA-apparatur ergeben. Die Erstarrungstemperaturen von geschmolzenem Beton, der UO_2 und ZrO_2 enthält, interessieren ganz besonders im Hinblick auf die Frage der Ausbreitung bzw. des Stillstands der Coreschmelze in den Betonstrukturen des LWR.

Aus Abb. 4244-13 wird ersichtlich, dass der Anteil an erstarrter Stahlschmelze bei den Proben mit teil-oxidiertem Corium im Vergleich zu den Proben mit nicht teil-oxidiertem Corium deutlich geringer ist. Dies ist auf verstärkte Oxidation des Stahles zurückzuführen, da der Wasser- und CO_2 -Gehalt des Betons hier nicht für die Oxidation des Zirkoniums in Anspruch genommen wurde. Zwangsläufig muss der Eisenoxidgehalt in der erstarrten Oxidschmelze bei diesen Proben mit teil-oxidiertem Corium höher sein als bei den Proben mit nicht teil-oxidiertem Corium. Solange die Ergebnisse der chemischen Analysen hierfür noch ausstehen, kann als vorläufiges Indiz die dunklere Braunfärbung der erstarrten Oxidschmelze der Proben mit teiloxidiertem Corium angesehen werden.

Metallkundliche Untersuchungen an simulierten LWR-Brennstäben

LWR-Simulationsbrennstäbe, welche bis zu $T = 2000^{\circ}C$ in Luft aufgeheizt wurden, zeigen im Schlibfbild das Vorhandensein von grossen Blasen. Dies wurde schon bei früheren Untersuchungen beobachtet /1/. Durch Wechselwirkung mit dem W-Heizstab kommt es zu den oft beobachteten niedrigschmelzenden Verbindungen. Diese Tatsache wird in Abb. 4244-14a und b gezeigt. Dazu kommt bei solchen Versuchen, die in Luft durchgeführt worden sind, auch noch der Einfluss des in der Luft vorhandenen Stickstoffs. In Anlehnung an frühere Ergebnisse /1/ wurden zwecks Vervollständigung metallographische Untersuchungen bei einem Stab, welcher unter Stickstoff bis $T = 2200^{\circ}C$ aufgeheizt wurde, durchgeführt.

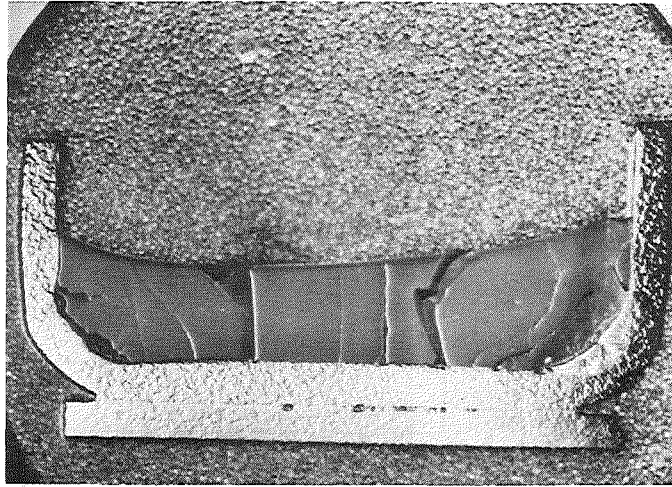
Tab. 4244-2: Chemische Analysendaten (in Gew.%) und Schmelztemperaturen T_{Schm} der erstarrten Oxidschmelzen aus einigen Corium/Beton-Schmelzproben

Probe	Mischung		CaO	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃ ^γ	UO ₂	ZrO ₂	Rest (v.a. SiO ₂)	T_{Schm}
	Cor.(A+R) ^α	Beton" S " ^β							
Beton" S " - schmelze	-	1	13.5	3.8	0.9	-	-	81.8	~ 1350°C
5	1	1	7.8	2.8	1.2	33.8	11.9	42.5	~ 1650°C
6	2	1	5.5	2.7	1.5	49.6	16.8	23.9	~ 1800°C
7	3	1	4.9	1.8	0.6	57.6	21.2	13.9	~ 2000°C
	Cor.(E+R) ^α : Beton" S "								
8	1	1	9.7	3.5	1.9	21.6	7.5	55.8	~ 1500°C
9	2	1	6.4	2.7	1.6	36.2	12.8	40.3	~ 1650°C
10	3	1	5.7	2.9	1.9	39.4	16.6	33.5	~ 1770°C

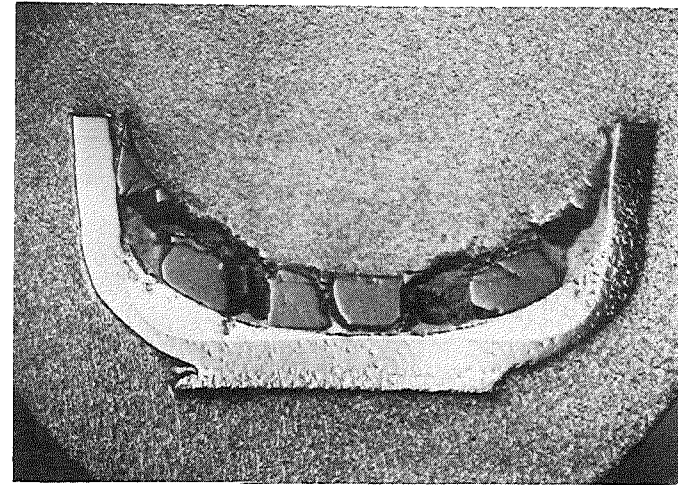
α) Die Corium-Mischungen (UO₂+Zr+Stahl) sind nicht teil-oxidiert

β) Beton und Silikat-Zuschlag (Rheinsand)

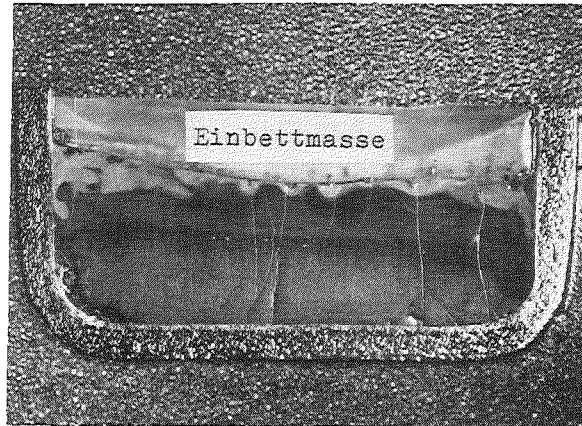
γ) Wertigkeitsstufe nur angenommen, nicht überprüft



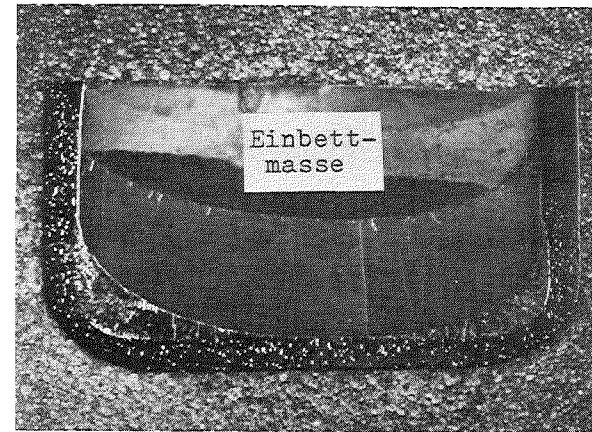
Cor.(A+R) / Beton 1 : 1



3 : 1

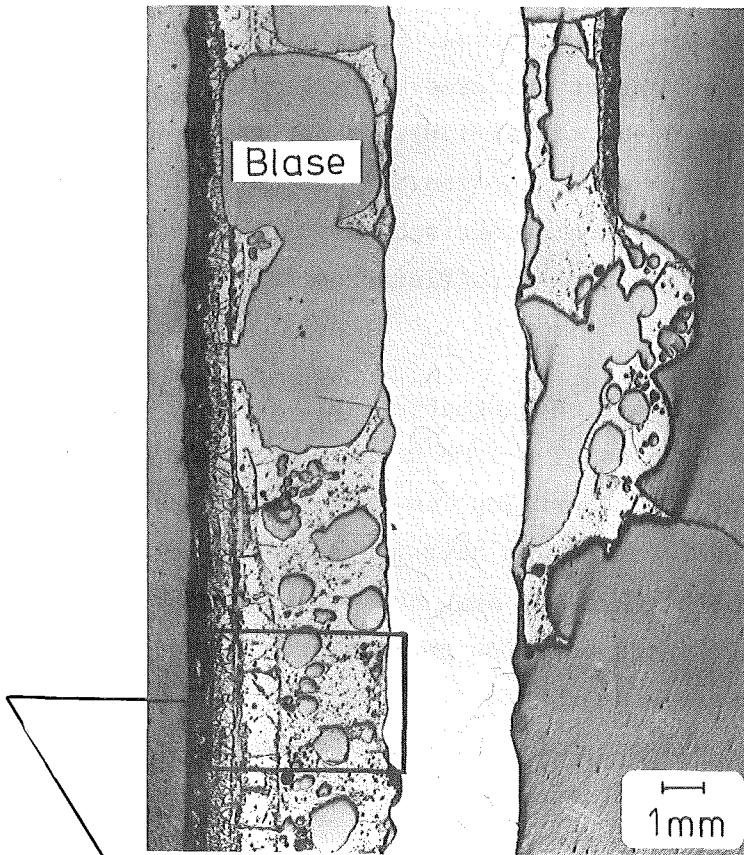


Cor.(A+R)teilox. / Beton 1 : 1

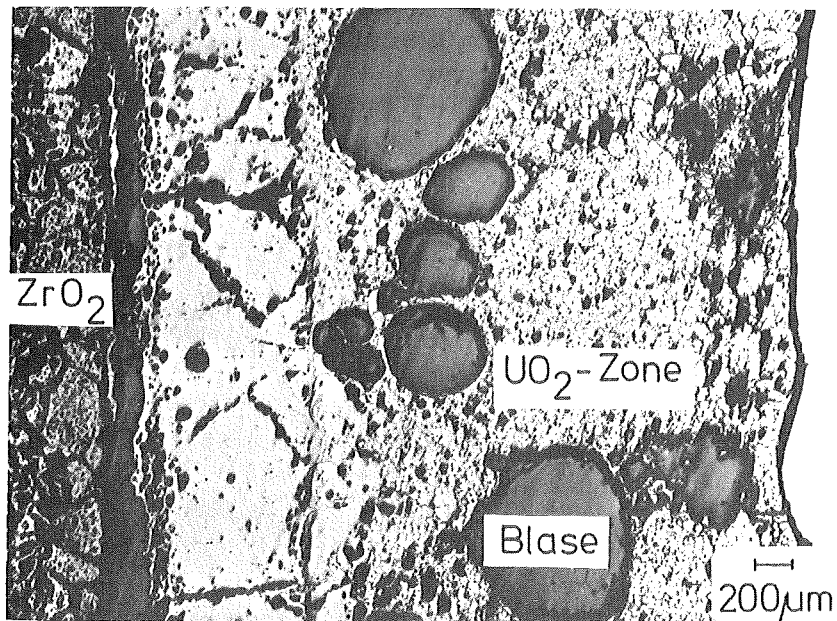


3 : 1

Abb.4244-13: Vier Schmelzproben mit verschiedenen Corium/Beton-Mischungen (die Proben mit teiloxidiertem Corium enthalten den geringeren Anteil an Stahlschmelze aufgrund der stärkeren Stahloxidation)



a)



b)

Abb. 4244-14: Simulationsstab nach Aufheizung bis $T = 2000^{\circ}\text{C}$ in Luft
a) Längsschnitt, b) Detailaufnahme

In Abb. 4244-15a ist eine Übersichtsaufnahme dieses LWR-Simulationsstabes zu sehen. Wir sehen hier eine aufnitrierte Oberfläche und verschiedene Eutektika im Innern des Stabes, innerhalb der ursprünglichen UO_2 -Zone. Die Oberfläche besteht aus einer schmalen $ZrN_{1-x}O_x$ -Schicht und einer Zone aus $ZrN_{1-x}O_x + UO_2$ (4244-15b). In der Mitte der Probe, d.h. in der UO_2 -Tablette, fand - ausgehend von der Kontaktstelle Zry-Hülle/ UO_2 -Brennstoff - eine quaternäre eutektische Kristallisation statt. Wir sehen in Abb.4244-15c primär auskristallisiertes $ZrN_{1-x}O_x$ in einer Matrix aus $\alpha-Zr(O) + ZrO_2 + ZO_2$.

In Abb. 4244-16a ist die Übersichtsaufnahme eines Stabes, welcher in einer Wasserdampfatmosfera bei $T = 1800^\circ C$ aufgeheizt wurde, dargestellt. Wir sehen hier eine stabile, oberflächlich sehr glatte, aufoxidierte Hülle. Der Einfluss von Wolfram auf den Heizstab scheint viel geringer zu sein, als bei Versuchen an Luft. Wie aus Abb. 4244-16 hervorgeht, existieren im wesentlichen drei Reaktionszonen: eine aufoxidierte Hülle, die UO_2 -Zone und eine innere Schmelzzone am Kontakt mit dem Wolfram-Heizstab. Es wird angenommen, dass unter Wasserdampf ein steiler Temperaturgradient existiert, so dass am Kontakt mit dem Wolfram-Heizstab örtlich wesentlich höhere Temperaturen auftreten bis über $2500^\circ C$.

In Abb. 4244-17a - d ist neben einer Übersichtsaufnahme eine Zuordnung der wesentlichen Stellen eines Stabes nach einer Aufheizung in Wasserdampf bis $T = 1900^\circ C$ zu sehen.

Literatur

- /1/ PNS-Hj.-Bericht 1975/II, im Druck
- /2/ PNS-Hj.-Bericht 1974/II, KFK 2130, S.267
- /3/ PNS-Hj.-Bericht 1974/I, KFK 2050, S.229.

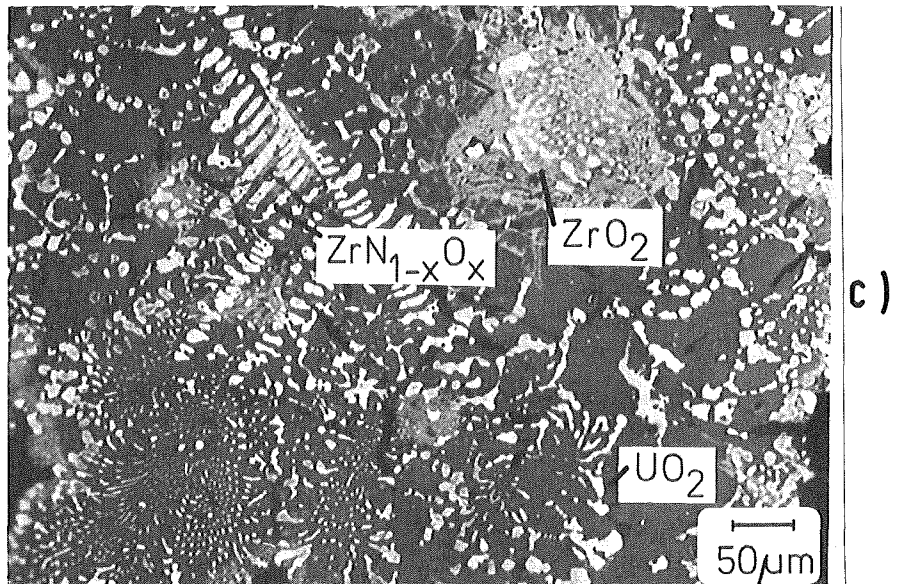
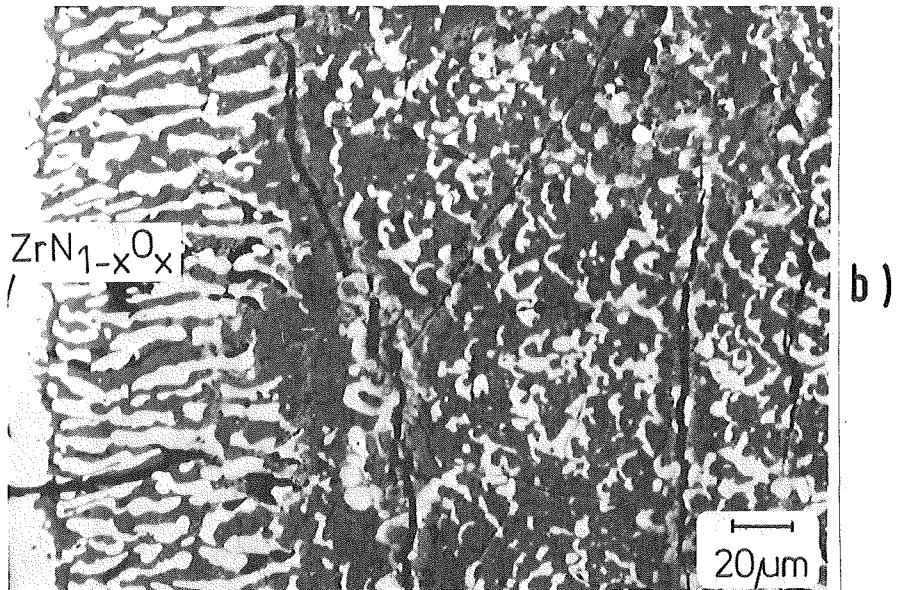
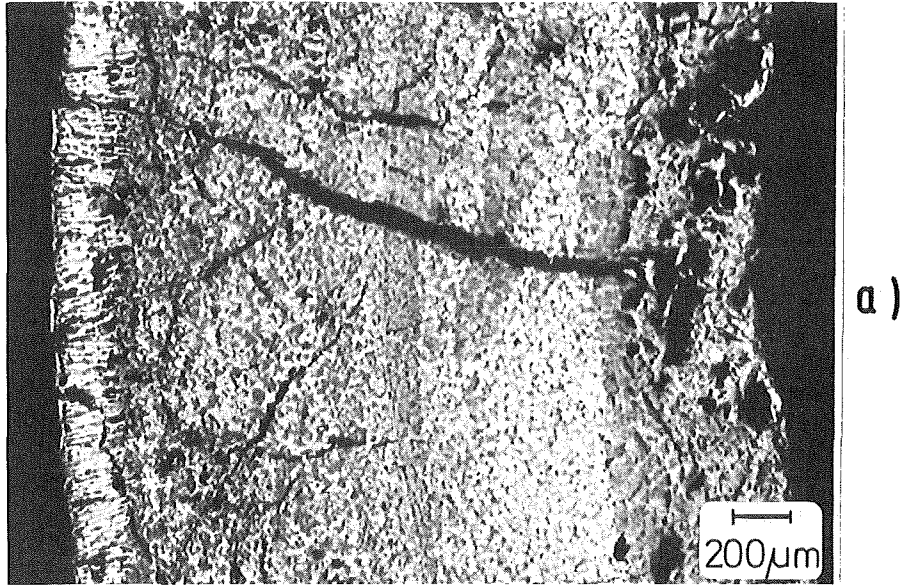
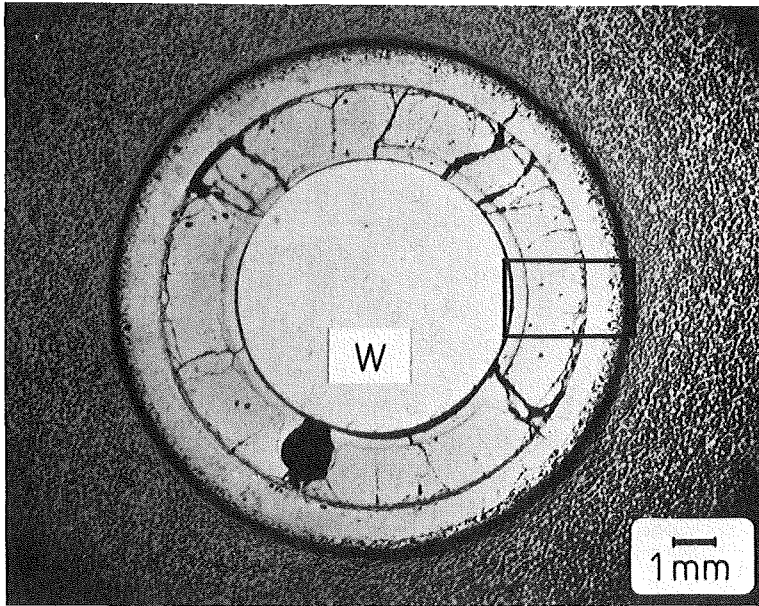
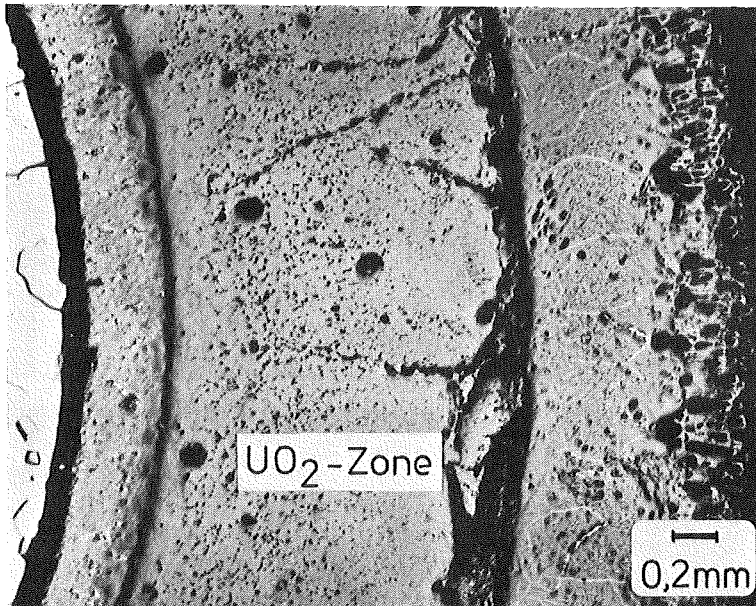


Abb. 4244-15: Simulationsstab, aufgeheizt unter Stickstoff bis $T = 2200^{\circ}C$
a) Teilansicht, b) Detail an der Kontaktstelle Zry-Hülle/
Brennstoff, c) Detail in der Brennstoffzone



a)



b)

Abb. 4244-16: Simulationsstab, aufgeheizt in Wasserdampf bis $T = 1800^{\circ}\text{C}$
a) Querschnitt, b) Detailaufnahme

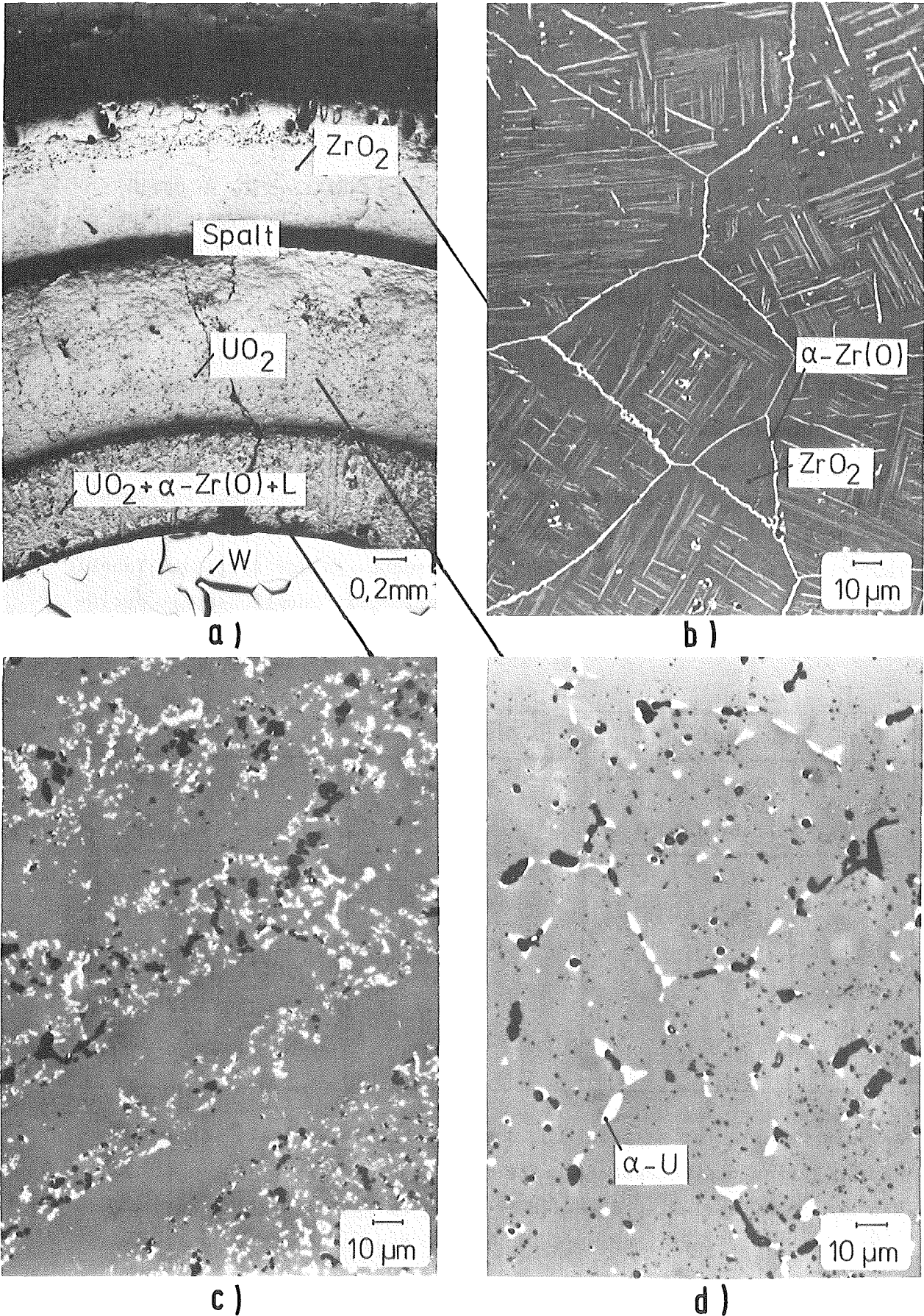


Abb. 4244-17: Simulationsstab, aufgeheizt in Wasserdampf bis $T = 1900^\circ C$
a) Teilansicht, b) Detail aus der oxidierten Zr-Hülle,
c) Detail aus der UO_2 -Zone, d) Detail aus der inneren
Zone am Kontakt mit dem W-Heizstab

4245. Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen
 und Herstellung von Corium-Proben (RS 200)
 (S. Nazaré, G. Ondracek, B. Schulz)

Herstellung von Corium EX1-Proben

Corium-EX1 entsteht, wenn Corium-E (55 Gew.% Stahl 1.4550, 10 Gew.% Zry-4 und 35 Gew.% UO₂) unter Inertgas erschmolzen wird. Dabei tritt im flüssigen Aggregatzustand eine homogene metallische Schmelze auf, deren Zusammensetzung durch Abdampfverluste erheblich von der Ausgangszusammensetzung abweicht.

Es wurden zunächst 15 Schmelzen von Corium-E unter Inertgas (600 Torr He) in ThO₂-Tiegeln durchgeführt. Die Chargengrösse betrug jeweils 30 g. Die Heizung erfolgte in einer Mittelfrequenzinduktionsanlage mit einem Graphitzylinder als Suzceptor. Das Schmelzgut wurde in einer Scheibenschwingmühle zerkleinert und anschliessend chemisch analysiert und zum Teil metallographisch (Abb. 4245-1) untersucht. In der folgenden Tabelle ist die schemische Zusammensetzung von Corium-EX1 verglichen mit derjenigen von Corium-E.

Stofflicher Aufbau		Corium-E	Corium-EX1
Komponenten (Gew.%)	UO ₂	35	-
	Zry-4	10	
	Stahl 1.4550	55	
Elemente (Gew.%)	U	30,8	19,9 ± 1,3
	Fe	38,9	50,5 ± 2,4
	Ni	5,	7,6 ± 0,4
	Cr	10,3	13,1 ± 1,0
	Zr	10,0	5,2 ± 1,2
	O	4,2	0,5 ± 0,2
	C	-	0,25 ± 0,08
	Th	-	0,66 ± 0,4

Aus der Tabelle ist ersichtlich, dass erhebliche Verluste bei den Elementen Zirkon und Sauerstoff auftreten. Insbesondere bedingen die starken Sauerstoffverluste, dass die Schmelze im festen Aggregatzustand metallisch ist. Metallographische Untersuchungen zeigen, dass sie aus

drei Phasen besteht:

- Eine Fe-Cr-Ni-Phase ($\sim 71,4$ Gew.% Fe, $24,5$ Gew.% Cr, $4,1$ Gew.% Ni)
- Eine U-Zr-Fe-Cr-Ni-Lavesphase ($\sim 35,5$ Gew.% U, 15 Gew.% Zr, 32 Gew.% Fe, $3,5$ Gew.% Cr, 14 Gew.% Ni)
- Eine Zr(O)-Phase (93 Gew.% Zr, 7 Gew.% O_2).

Das Schmelzgut wurde in einer Scheibenschwingmühle zerkleinert (Partikelgrösse $<90 \mu\text{m}$) und anschliessend in Graphitmatrizen mit Al_2O_3 als Diffusionsbarriere druckgesintert (1275 K , 400 Torr He , Sinterdauer 10 min. , Druck 35 MN/m^2). Aus dem Gefüge des Drucksinterlinges (Abb. 4245-2) erkennt man, dass unter diesen Bedingungen praktisch die theoretische Dichte ($8,3 \text{ g/cm}^3$) erreicht wird.

Ferner werden zur Zeit grössere Corium-EX1 Chargen (ca. 250 g) induktiv erschmolzen. Die Analyse ihrer chemischen Zusammensetzung und Phasenanteile wird zur Zeit durchgeführt.

Eigenschaften von Corium-EX1

Für die Beschreibung des thermohydraulischen Verhaltens der Coriumschmelze, ist u.a. die thermische Leitfähigkeit und die Viskosität von Bedeutung. Um die grossen experimentellen Schwierigkeiten der Wärmeleitfähigkeitsmessung im flüssigen Zustand bei hohen Temperaturen zu umgehen, wurde eine Extrapolationsmöglichkeit dieser Eigenschaft vom festen in den flüssigen Zustand für metallische Schmelzen aufgezeigt /1/. Es gilt:

$$\lambda_{fl} = 0,5 \cdot \lambda_{fest} \quad \text{für } T = T_S = \text{Schmelzpunkt.}$$

Die Wärmeleitfähigkeit des Corium EX1 wurde in einer Longitudinalapparatur zunächst bis 1200 K mit Stahlstandards /2/ gemessen (Abb. 4225-3). Der Verlauf der Leitfähigkeit mit der Temperatur für diesen mehrphasigen Werkstoff wird bestimmt durch einerseits die Temperaturfunktionen der Leitfähigkeiten der beteiligten Phasen und andererseits durch ihren Gefügebau. Demnach bestimmen die räumliche Anordnung der Phasenbestandteile, ihre Volumenkonzentration, Form und Orientierung, die Wärmeleitfähigkeit des Coriums mit. Dieser Einfluss wird deutlich, wenn man die beiden Extremfälle:

$$\lambda_c = \sum_{ci} \lambda_i \quad \text{Parallelschaltung} \quad (1)$$

und

$$\frac{1}{\lambda_c} = \sum \frac{c_i}{\lambda_i} \quad \text{Reihenschaltung} \quad (2)$$

mit $\lambda_{c,i}$ = Leitfähigkeit des Coriums bzw. der Phase i

c_i = Volumenkonzentration der Phase i

betrachtet. Berücksichtigt man ferner, dass die Phasenleitfähigkeiten λ_i ihrerseits Funktionen der Temperatur sind, so wird deutlich, dass der Zusammenhang zwischen der Leitfähigkeit des Coriums als Funktion der Temperatur (Abb. 4245-3) bei gegebenem Gefügebau sehr komplex sein kann, insbesondere dann, wenn die Phasenleitfähigkeiten vergleichbar sind. Um die gemessene Temperaturfunktion zu überprüfen, ist die Kenntnis der Leitfähigkeiten der Phasen notwendig. Es wurden daher die im Corium-EXI auftretenden Fe-Cr-Ni und U-Zr-Fe-Cr-Ni-Lavesphasen schmelzmetallurgisch hergestellt (Abb. 4245-4 und 4245-5). Während die Fe-Cr-Ni-Phase in reiner Form dargestellt werden konnte, enthält die Lavesphase noch etwa 9 Vol.% einer zweiten Phase, die ebenfalls aus Fe-Cr-Ni besteht. Bei der Lavesphase war es notwendig, das Schmelzgut durch Zerkleinerung und anschließendes Drucksintern in geeignete Formkörper überzuführen.

Erste Messungen der Wärmeleitfähigkeit dieser Phase wurden bei 366 K durchgeführt. Die erhaltenen Werte sind ebenfalls in Abb. 4245-3 eingetragen. Daraus erkennt man, dass die gemessene Leitfähigkeit von Corium-EXI erwartungsgemäß innerhalb dieser beiden Grenzwerte liegt. - Da Corium-EXI erst bei $2125 \text{ K} \pm 10 \text{ K}$ schmilzt /3/, wurden die gemessenen Werte, wie aus der Abb. 4245-3 hervorgeht, bis zu dieser Temperatur extrapoliert. Unter Berücksichtigung der Veränderung der Wärmeleitfähigkeit am Schmelzpunkt ergibt sich für den flüssigen Zustand der Wert von $0,15 \text{ W/cm K} (\approx 0,036 \text{ cal/cm sec K})$.

Für die Abschätzung der Viskosität der Schmelze wurde bereits gezeigt /1/, dass die folgende von Andrade aufgestellte Beziehung

$$\eta_{TS} = 6.12 \cdot 10^{-4} \sqrt{T_S \cdot M} (V_M)^{-2/3} \text{ Poise} \quad (3) \quad /4/$$

η_{TS} = Viskosität am Schmelzpunkt; T_S = Schmelzpunkt /K/; M = Molgewicht; V_M = Molekularvolumen der Schmelze

die experimentell bestimmten gut wiedergibt. Für die Anwendung dieser Gleichung muss das Molekularvolumen der Schmelze bekannt sein. Für seine Ermittlung wurde die lineare thermische Ausdehnung von Corium-EX1 in einem Dilatometer mit induktiven Wegaufnehmer bis 1175 K gemessen (Abb. 4245-6). Mit dem daraus berechneten mittleren linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von $15,8 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ und der gemessenen Dichte von Corium-EX1 bei Raumtemperatur von $8,3 \text{ g/cm}^3$ lässt sich das Molekularvolumen im festen Aggregatzustand am Schmelzpunkt (2125 ± 10) berechnen. Berücksichtigt man ferner, dass die meisten Metalle beim Übergang vom festen in den flüssigen Zustand eine mittlere Volumenausdehnung von etwa 3 Vol.% aufweisen, so erhält man das Molekularvolumen im flüssigen Zustand am Schmelzpunkt ($V_M = 8,31 \text{ cm}^3/\text{mol}$). Unter Anwendung der Gl. 3 erhält man für die Viskosität von Corium-EX1 am Schmelzpunkt den Wert von 5,4 cP.

Literatur:

- /1/ S.Nazaré, G.Ondracek, B.Schulz, KFK 2217 (1975)
- /2/ J.G.Hurst, P.J.Giarratano, NBS-Spec. Publ. 260/46 (1975)
- /3/ C.Politis, IMF GfK (pers.Mitteilung vom 10.11.75)
- /4/ J.R.Wilson, Metallurgical Reviews Vol.10 (1965) S. 381

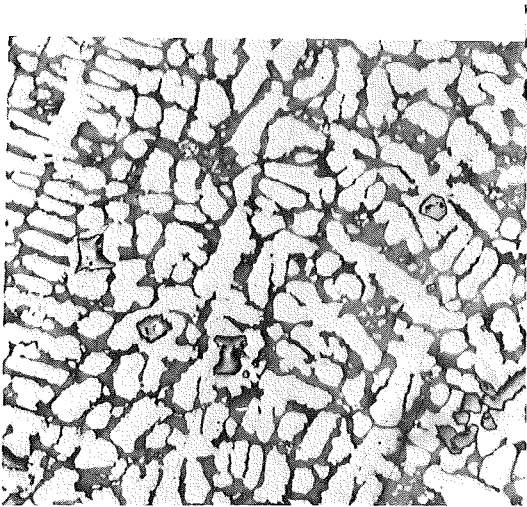


Abb. 4245-1: Gefüge von erschmolzenem Corium-EX1

200x

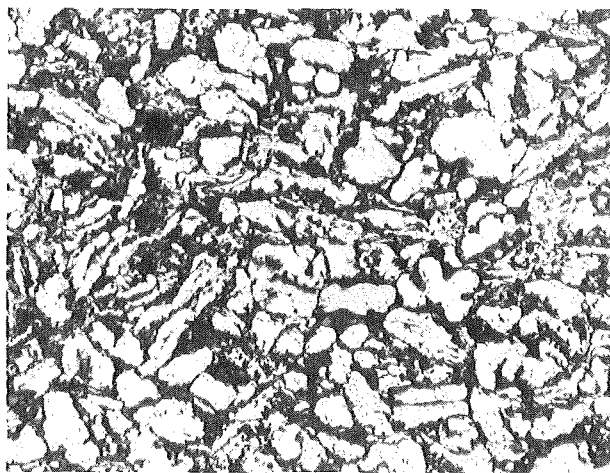


Abb. 4245-2: Gefüge von druckgesintertem Corium-EX1

200x

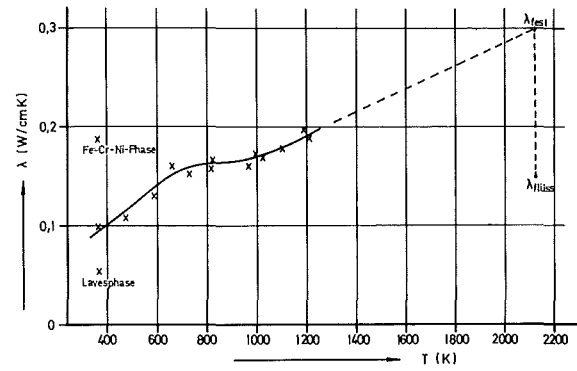


Abb. 4245-3: Wärmeleitfähigkeit von Corium-EX1 als Funktion der Temperatur

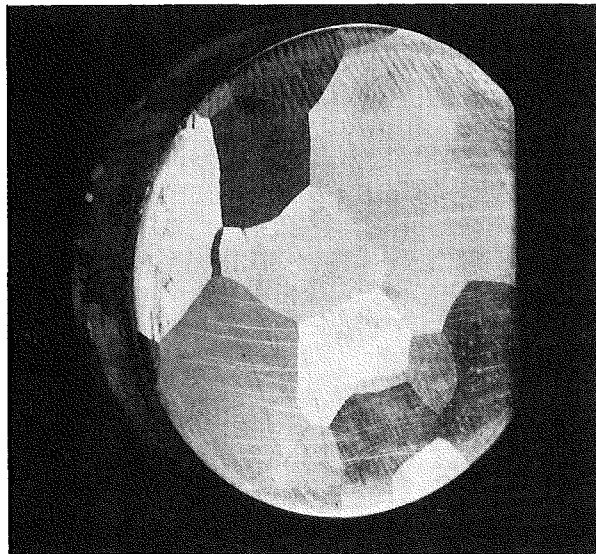


Abb. 4245-4: Gefüge der Fe-Cr-Ni-Phase

10x

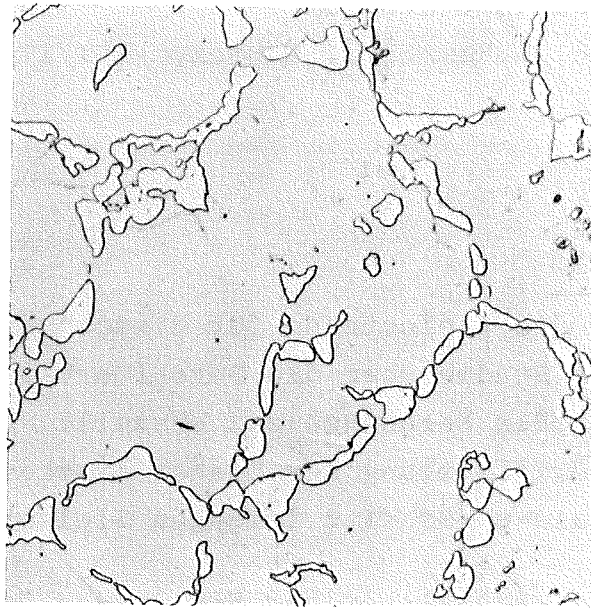


Abb. 4245-5: Gefüge der Lavesphase
(vgl. Text) 500x

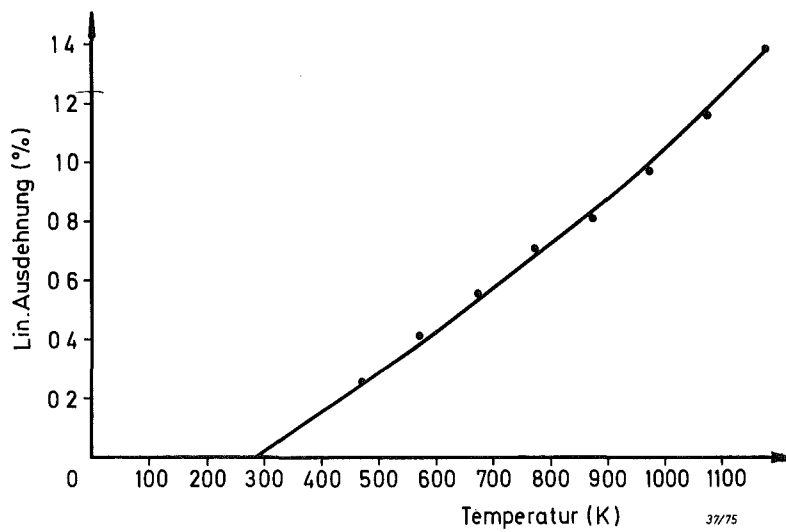


Abb. 4245-6: Thermische Ausdehnung von EX1

4246 Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen
(Durchführbarkeitsstudie)
(D. Perinić, B.Kammerer, A.Mack, RBT/IT)

1. Arbeitsprogramm

Anfang 1976 wurde die Zielsetzung für dieses Vorhaben festgelegt. Zunächst wird eine Studie über die Durchführbarkeit von Experimenten mit simulierten großen Kernschmelzen erstellt. Die Experimente selbst haben neben der Verifizierung der bisher erarbeiteten Modelle und Codes in einem scale-up-Schritt folgende Zielsetzung:

- Untersuchung des wechselseitigen Einflusses der Thermohydraulik und des Reaktionsverhaltens der Kernschmelze mit Beton sowie deren Einfluß auf die Spaltproduktverteilung im Schmelzbad und auf die Aktivitätsfreisetzung.
- Untersuchung des Einflusses der Schmelzbadtiefen und der Schmelzbadbewegung auf die Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten.
- Untersuchung über das Fortschreiten der Schmelzfront.
- Untersuchung über die Schichten- und Krustenbildung sowie das Siede- und Abdampfverhalten der Schmelze.
- Untersuchung über Phasen und Phasenverteilung der Schmelze sowie Verteilung der Spalt- und Aktivierungsprodukte in der Schmelze.
- Untersuchung über das Oxidationsverhalten der Schmelze durch die Atmosphäre an der Oberfläche und durch die aus dem Boden freigesetzten Gase im Innern der Schmelze.
- Untersuchung zum Langzeitverhalten und zur Kühlbarkeit von Kernschmelzen in Beton oder in Kernauffangbehältern.

- Untersuchung über Entstehen, Ausbreitungs- und Ablagerungsverhalten von aus einer Kernschmelze freigesetzten Aerosolen.
- Untersuchung über Entstehung von Wasserstoff und Eindämmung der Explosionsgefahr.
- Untersuchung zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit verschiedenen Wandmaterialien.

Zur Erreichung der Versuchsziele wird die Schmelzanlage benötigt, mit deren Hilfe volumenbeheizte CORIUM-Schmelzen bei Siedetemperaturen des Stahls (~ 2800 °C) in Tiegeln aus Beton bzw. aus hochtemperaturbeständigen Materialien (ThO_2) unter LWR-spezifischen Unfallbedingungen gehalten werden können. Es soll auch untersucht werden, ob die Durchführung von Schmelzexperimenten bei den speziellen Unfallbedingungen schneller Brutreaktoren mit der selben Anlage möglich ist.

Ein ausführliches Arbeitsprogramm wurde aufgestellt. Es spezifiziert die erforderlichen Arbeiten, schlägt die als geeignet erscheinenden Institute für die Bearbeitung der einzelnen Programmpunkte vor und gibt die notwendigen Termine vor.

Das Programm beschreibt folgende Teilaufgaben:

- Spezifikation der Experimentierprogramme
- Entwicklung der Schmelzanlage
- Definition des Schmelzgutes
- Entwicklung der Tiegel
- Entwicklung der Meßtechnik
- Entwicklung der Anlagen für Nachuntersuchungen
- Spezifikation und Entwicklung von Experimentiereinrichtungen
- Entwicklung von Rechenmodellen
- Spezifikation und Bau der Versuchshalle
- Durchführbarkeit von Versuchen unter spezifischen Bedingungen der schnellen Brutreaktoren
- Durchführung des Genehmigungsverfahrens
- Informationsaustausch

Bis Ende 1976 sollen die Experimentierprogramme spezifiziert sein und die Entscheidung über das Heizverfahren getroffen werden. Die Durchführbarkeitsstudie soll in der endgültigen Fassung Mitte 1977 vorliegen.

2. Schmelzanlage

Das zentrale Problem stellt die Simulierung der Beheizung einer Kernschmelze dar. Es wurden die bekannten Heizverfahren (Lichtbogen, Widerstandsheizung, Induktion, direkter Stromdurchgang, Plasmastrahl, Elektronenstrahl, Laser) auf Anwendbarkeit untersucht. Es zeigte sich, daß für die Experimente zur Aktivitätsfreisetzung, zur Oxidation der Schmelzbadoberfläche, zur Krustenbildung, zu Siede- und Verdampfungsvorgängen nur diejenigen Verfahren in Frage kommen, die natürliche Temperaturgradienten im Bereich der Oberfläche nicht stören. Diese sind die Induktionsheizung und die Heizung durch direkten Stromdurchgang.

Bis zur endgültigen Entscheidung über die Chargengröße werden die Untersuchungen für drei verschiedene Ofengrößen (0,1 - 1 - 10 t) durchgeführt.

Über die technische Realisierbarkeit der Simulationsexperimente wurden Informationsgespräche mit einigen Herstellern von Schmelzanlagen und von elektrischen Ausrüstungen geführt. Es erscheint technisch durchführbar, CORIUM-Chargen in der Größenordnung von 1000 kg bis zur Siedetemperatur des Stahls (~ 2800 °C) durch direkte induktive Ankopplung im Bereich der Mittelfrequenzen zu bringen.

Es müssen allerdings vor dem Bau der Anlage in Vorversuchen verschiedene Probleme näher untersucht werden. Die Firma L&H hat einen Stufenplan zur Entwicklung der Schmelzanlage vorgelegt. Dementsprechend sollen vorerst die Werte der el. Leitfähigkeit der zu erwartenden Schmelzphasen (Oxid + Metall) ermittelt werden, anschließend soll an kleinen Schmelzversuchen (~ 1 kg) die Ankopplung studiert werden. Aufgrund der Ergebnisse dieser Versuche kann dann auf die größeren Geometrien extrapoliert werden.

Parallel zu diesen Arbeiten muß die Tiegelentwicklung vorangetrieben werden. Hier sind mit Beton- und ThO_2 -Tiegeln Vorversuche erforderlich. Zu sicherheitstechnischen Untersuchungen werden Schmelzversuche mit Metallschmelzen von ca. 100 kg in Betontiegeln vorbereitet. Die Versuche sollen an einer externen Schmelzanlage mit uranfreien Schmelzen durchgeführt werden.

Aus Überschlagsberechnungen des Leistungsbedarfes für die elektrische Einspeisung ist es ersichtlich, daß für die Untersuchungen der Schmelzfrontausbreitung die maximalen Leistungen bis 1,45 MW für eine Versuchsschmelze von 1 t erforderlich sind. Spezifische Leistungen dieser Größenordnung sind technisch beherrschbar.

Eine wichtige Begrenzung der Versuchsgröße stellt die radiologische Belastung der Umgebung dar. Es wurden Berechnungen der Freisetzung von radioaktiven Stoffen für drei Anlagengrößen und verschiedene Schmelzgutzusammensetzungen mit und ohne aktivem FISSIUM durchgeführt. Eine Abschätzung zeigte, daß bei Markierung mit aktiven Isotopen mit einer spezifischen Aktivität von 2,1 Ci/t die Schmelzmasse auf ca. 1 t begrenzt sein muß.

Zur zunächst nur phänomenologischen Untersuchung der Schmelze/Beton-Reaktion wurden kleine CORIUM-Massen (bis 500 g) in Betontiegeln an Luft erschmolzen. Eine rasche Separation der Metall- und Oxidphase der Schmelze wurde dabei beobachtet. Die metallische Phase befand sich in der Regel am Boden des Schmelzbades.(Vergl. PNS 4244)

Es ist geplant, weitere Versuche mit CORIUM-Massen bis 500 g in Wasserdampf-, Argon- und Luftatmosphäre mit verschiedenen Anfangszusammensetzungen des Schmelzgutes durchzuführen zur Abstützung der Konzeption für die größeren Versuche. Auch diese Vorversuche sollen dazu dienen, die Phänomenologie der Schmelze/Beton-Reaktion zu untersuchen, das Verhalten von Tiegeln in kleinem Maßstab zu testen, eine Meßmethode für die Beobachtung der Schmelzfrontausbreitung zu entwickeln und ggf. die Wasserstofffreisetzung zu untersuchen.

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

Parameterrechnungen mit dem NAUA-Modell
(Sensitivity-Studie)

(G. Haury, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

1. Einleitung

Die Erstellung der ersten Version des NAUA-Modells und -Codes zur Berechnung des Abbaus partikelförmiger luftgetragener Aktivität im LWR-Containment nach einem schweren Störfall wurde Ende 1975 abgeschlossen. Diese Arbeiten sind so weit fortgeschritten, daß sich die Notwendigkeit experimenteller Untersuchungen klar begründen läßt, um Eingabedaten für das Modell zu beschaffen und um Modellannahmen zu verifizieren.

Um die relevanten Einflußgrößen zu identifizieren, deren experimentelle Absicherung vordringlich notwendig wird, wurde zunächst eine Sensitivity-Studie durchgeführt [1], die Parameterrechnungen mit NAUA-Mod1 für ausgewählte Fälle mit realistischen Containmentbedingungen beinhaltet. Die Arbeiten erstreckten sich fast über den ganzen Berichtszeitraum; dieser Bericht ist mit der Sensitivity-Studie inhaltlich weitgehend gleich.

2. Stand der Codeentwicklung

Über die Struktur des Modells NAUA-Mod1 wurde in [2] berichtet. Die Durchführung der Sensitivity-Studie war ein Testfall, der die Funktionsfähigkeit des Mod1 in sehr unterschiedlichen Fällen prüfte. Es sollen hier kurz die Zuverlässigkeit und weitere Verbesserungen diskutiert werden.

Die technischen Möglichkeiten vorausgesetzt, ist es selbstverständlich, daß der Entwicklungsgrad eines Modells dem jeweilig besten Kenntnisstand angepaßt ist, d.h. das Modell sollte zu jedem Zeitpunkt das bestmögliche sein. Es ist soweit durchentwickelt, daß die Rechenergebnisse zumindest vernünftig und plausibel sind. Letztere Minimalforderung beschreibt den Stand der Entwicklung des NAUA-Modells. Mangels experimenteller Absicherung und Verifikation kann die Güte des Modells nur an der Plausibilität der Ergebnisse und an allgemeinen physikalischen und aerosolphysikalischen Erfahrungen gemessen werden.

Aufgrund dieses Konzepts wird ein Fehler im Modell, sei er nun numerischer oder physikalischer Art, immer nur dann erkennbar, wenn das bislang störungsfrei arbeitende Modell bei einer neuen Art der Fragestellung Ergebnisse produziert, die offensichtlich falsch sind. Als Gegenmaßnahme wird dann der Fehler identifiziert und beseitigt, bis die Rechnung wieder ohne erkennbaren Fehler abläuft.

Die allgemeine Folgerung daraus ist, daß ohne experimentelle Verifikation eine Modelltheorie allenfalls eine vernünftige Annäherung an die Realität sein kann, eine darüberhinausgehende Übereinstimmung jedoch noch nachzuweisen bleibt.

Bei der Entwicklung des NAUA-Modells traten solche durch Fehler ausgelöste Entwicklungssprünge wiederholt auf. Das bislang gravierendste Problem entstand im Zusammenhang mit der Wasserdampfkondensation an den Partikeln. Die Änderungen im Unterprogramm NAUCON, die das Problem behoben, sind in [2] beschrieben.

Die daraus entstandene Version des Mod1 war stabil für alle Rechnungen der Studie, mit Ausnahme der Untersuchung des Sprayeinflusses. Wie vorgesehen wurde der Einfluß von Spraysystemen vorwiegend in der resultierenden raschen Temperaturerniedrigung gesehen, die eine sehr starke Wasserdampfkondensation an den Partikeln auslöst. Dieser Fall der gleichzeitigen Aktion von Partikelquelle und starker Wasserdampfkondensation konnte zunächst nicht behandelt werden. Es ergaben sich unverträglich lange Rechenzeiten oder Ergebnisse, die offensichtlich falsch waren. Da alle Versuche, den Fehler durch Verbesserungen zu beheben, fehlschlugen, wurde ein neues numerisches Konzept notwendig.

Davon ausgehend, daß Diffusion, Sedimentation und Thermophorese numerisch keine Schwierigkeiten aufwerfen, und daß ferner die Berechnung der Wasserdampfkondensation in NAUCON bereits nach der Umkonstruktion nachweislich numerisch stabil ist, konnte der Fehler nur bei der Berechnung der Koagulation entstehen.

Die unabhängige Variable in Mod1 ist der Partikelradius. Bei der Berechnung der Koagulation sind zwei Integrale und eine Interpolation der Partikelgrößenverteilung zu lösen [3]. Die Interpolationen sind bei den unstetigen Größenverteilungen, die als Folge der Wasserdampfkondensation auftreten, sehr schwer zu beherrschen.

Die neue Version Mod1-A dagegen benutzt als numerisches Prinzip die einzige Eigenschaft der Koagulation, die unter allen Bedingungen a priori gültig ist, nämlich die Massenerhaltung bei der Koagulation zweier Partikeln zu einer dritten. Alle anderen Größen, auch der neue Partikelradius werden daraus abgeleitet. Wir halten diese Methode für genauer, da der Partikelradius bei inhomogenen und nichtkugelförmigen Partikeln ohnehin eine korrekturbedürftige Größe ist. Ein weiterer Vorteil von Mod1-A ist der Zeitgewinn durch den Wegfall der Integrale und der Interpolation. Eine genauere Beschreibung des Verfahrens wird in [4] gegeben. Das in [2] angegebene Flußdiagramm und die dazu gemachten Aussagen bleiben unberührt, da nur Unterprogramme ausgetauscht wurden. Das neue Verfahren ist inhärent stabil und war sofort erfolgreich. Gleichzeitige Partikelquelle und Wasserdampfkondensation konnten problemlos berechnet werden. Die Rechenzeiteinsparung kommt der Genauigkeit zugute.

3. Gliederung der Parameterstudie

3.1 Relevante Vorgänge und Einflußgrößen

Ziel der Sensitivity-Studie war es, unter den Einflußgrößen und Modellannahmen jene herauszufinden, deren Relevanz eine vorrangige experimentelle Untersuchung erfordert.

Es können drei Gruppen von Modellannahmen unterschieden werden:

Die erste Gruppe umfaßt Unklarheiten über die physikalische Beschreibung von Vorgängen. Hier ist insbesondere die Wasserdampfkondensation zu nennen. Im NAUA-Modell wird die Mason-Gleichung [5] verwendet, obwohl nicht sicher

ist, daß sie bei den herrschenden thermodynamischen Bedingungen noch gültig ist. Da eine allgemeinere Lösung des Kondensationsproblems numerisch jedoch zu aufwendig würde, ist es besser, die Mason-Gleichung experimentell zu überprüfen und danach ggf. zu modifizieren.

Die zweite Gruppe umfaßt alle die Annahmen, die gemacht werden müssen, um die besonderen Eigenschaften des Aerosols zu berücksichtigen. Die Gleichungen, mit denen die aerosolphysikalischen Prozesse beschrieben werden, gelten nur für homogene kugelförmige Partikeln. Abweichungen von diesem Konzept werden im allgemeinen durch empirische "Formfaktoren" berücksichtigt. Die im NAUA-Modell auftretenden Korrekturfaktoren sind sinngemäß Formfaktoren, da ihre Definition jedoch von der allgemein üblichen abweichen kann, wollen wir den Ausdruck "Formfaktor" hier nicht verwenden.

Im NAUA-Modell werden die Tröpfchen zu den homogenen kugelförmigen Partikeln gezählt, so daß die folgenden Korrekturen nur für die trockenen Partikeln erforderlich sind:

- f_m - Korrektur für die Mason'sche Kondensationsrate
- f_b - Korrektur für die Brown'sche Beweglichkeit
- f_s - Korrektur für die Smoluchowski'sche Koagulationsrate

Die dritte Gruppe von Modellannahmen enthält unbekannt Parameter des Systems der Nachunfallatmosphäre. An erster Stelle ist hier der Partikelquellterm zu nennen. Ebenso wichtig sind die Einflüsse des Temperaturverlaufs und der Spraysysteme, die beide auf die Modellgröße Wasserdampf-sättigung wirken. Ferner zählen dazu Grenzschichtdicken und Temperaturgradienten, die in die Diffusion und Thermophorese eingehen.

3.2 Variationsbereiche

Aus Gründen der Rechenzeit, vor allem aber der Rechenkosten war es unmöglich, die mehrdimensionale Matrix der variierten Parameter vollständig durchzurechnen, d.h. jeden Wert eines Parameters mit jedem Wert aller anderen zu kombinieren. Es wurde daher ein "Zentralfall" definiert, von dem ausgehend jeweils ein Parameter geändert wurde, während die anderen den Zentralwert hatten. Nur in einigen wichtigen Fällen wurden mehrere Parameter gleichzeitig geändert, z.B. Spraywirkung und Partikelquelldauer.

3.2.1 Definition des Zentralfalls

Eine Reihe von Daten für das Modell sind anlagenspezifische Parameter, die durch den zu untersuchenden Fall bestimmt werden und die reine Eingabedaten für das Modell sind. Um die Rechnungen zu konkretisieren, wurde hierfür der in der Rasmussenstudie [6] angeführte DWR-Fall zugrunde gelegt. Dabei handelt es sich um die folgenden Größen:

3.2.1.1 Geometrische Daten des Containments

Volumen

$$V = 26\,600 \text{ m}^3$$

Wandfläche für Diffusionsabscheidung

$$FD = 3\,700 \text{ m}^2$$

Bodenfläche für Sedimentationsabscheidung

$$FS = 820 \text{ m}^2$$

3.2.1.2 Temperatur und Wasserdampfgehalt

In den Fällen ohne Spray wurde angenommen, daß sich keine länger anhaltende Wasserdampfübersättigung im Gasvolumen ausbildet. Für den Fall mit Spray wurde die in [2, 6] angegebene Temperaturfunktion zugrunde gelegt. Der Wasserdampfgehalt folgt dann der Sättigungskurve.

3.2.1.3 Partikelquelle

Über den Partikelquellterm sind in der Literatur nur unvollständige Angaben zu finden. Unter Berücksichtigung aller bekannten Daten wurde folgende Aerosolquelle definiert:

Die insgesamt freigesetzte Masse beträgt 1% vom Core, das sind 1000 kg. Das ergibt umgerechnet auf das Containmentvolumen eine Massenkonzentration von

$$\int m(t) dt = 40 \text{ g/m}^3$$

Die Partikelgrößenverteilung kann für Kondensationsaerosole in ausreichender Näherung als log-normal angenommen werden. Als Mittelwert aus experimentellen Untersuchungen [7] ergibt sich für den mittleren geometrischen

Radius

$$r_g = 0.1 \mu\text{m}$$

und für die Standardabweichung

$$\ln \sigma = 0.4$$

Die Dauer der Partikelquelle ist variabel, die Quellstärke konstant.

3.2.1.4 Korrekturfaktoren

Die Zentralwerte der Korrekturfaktoren sind

$$f_m = 1.0$$

$$f_b = 3.5$$

$$f_s = 8.2$$

Die Werte für f_b und f_s sind aus früheren Experimenten [7] mit UO_2 -Aerosolen entnommen.

3.2.2 Parameterübersicht

Die Tab. 4311-1 gibt eine Übersicht über die Werte aller variierten Parameter. Die in der Spalte Z.W. angegebenen Werte sind die für den Zentralfall, der in Abschnitt 4.2 mit D1 bezeichnet wird.

Parameter	Z.W.
Temperatur [°C]	130 F(t) 120 100 80
C_o [P/cm ³]	$5 \cdot 10^6$ F(t)
r_g [μm]	0,02 0,1 0,3
$\ln \sigma$	0,2 0,4 0,7
f_m	0,5 1,0 2,0
Dampfquelle [g/m ³]	10 F(t)
P.-Quelldauer [min]	30 120
f_b	1.0 3,5
f_s	2.0 8,2
Spraysystem	ein aus

Tab. 4311-1: Übersicht über die Variation der Parameter

4. Ergebnisse der Modellrechnungen

4.1 Kurzzeitrechnungen zur Wasserdampfkondensation

Die Kondensation von Wasserdampf an Partikeln ist das zentrale Problem im NAUA-Modell. Sie wurde besonders intensiv untersucht, da ihre modellmäßige Beschreibung die meisten Unsicherheiten aufweist. Die Parameterrechnungen wurden nur für die Kondensationsphase selbst durchgeführt, da die Langzeitauswirkungen nach vollständiger Kondensation des Wasserdampfs fast ausschließlich durch die aerosolphysikalischen Abbauprozesse bestimmt werden. Eine Umbildung der Partikelgrößenverteilungen infolge Kondensation und/oder Verdampfung allein geht so langsam, daß sie hier vernachlässigt werden kann.

4.1.1 Variation der Temperatur

Die Temperatur als thermodynamische Zustandsvariable geht in sehr viele Parameter des Modells ein. Unter allen temperaturabhängigen Größen reagiert der Wasserdampfgehalt jedoch am empfindlichsten auf Temperaturänderungen.

Untersucht wurde die Wasserdampfkondensation an vorgegebenen Partikelgrößenverteilungen bei verschiedener Temperatur. Die Abb. 4311-1 zeigt die entstehenden bimodalen Verteilungen. Man sieht, daß die Temperatur allein keinen wesentlichen Einfluß hat.

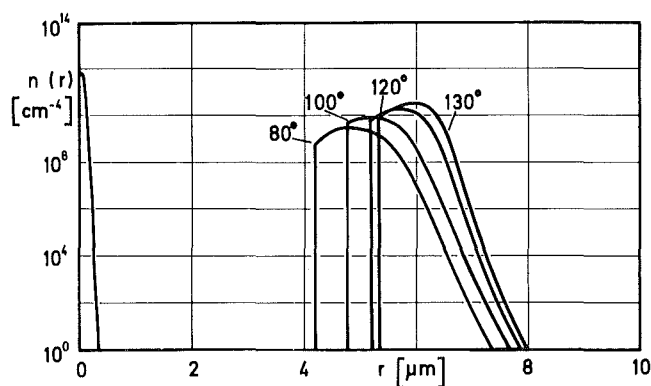


Abb. 4311-1: Dichtefunktion $n(r)$ der bimodalen Partikelgrößenverteilung bei verschiedener Temperatur. Gleiche Ausgangsverteilung.

Aus diesem Grunde wird der Temperatureinfluß auf das Gesamtsystem nicht weitergehend untersucht. Die relevanten Temperaturabhängigkeiten, insbesondere die des Wasserdampfgehaltes sind im Rechencode einprogrammiert, so daß der Temperatureinfluß automatisch berücksichtigt ist, vgl. insbesondere Abschnitt 4.2.

4.1.2 Variation der Partikelgrößenverteilung

Durch die Parameter der Partikelgrößenverteilung, nämlich mittleren geometrischen Radius r_g und Standardabweichung σ , wird bestimmt, wieviel Partikeln bei vorgegebenem Wasserdampfgehalt am Kondensationsprozeß teilnehmen, bzw. wie groß die entsprechenden Tröpfchen werden. Tröpfchenzahl und -größe sind aber wesentliche Einflußgrößen für die Abbauprozesse.

Untersucht wurde die Ausbildung der bimodalen Verteilung in Abhängigkeit von r_g und σ der Anfangsverteilung bei jeweils gleicher Standard-Wasserdampfquelle von $5 \text{ g/m}^3 \cdot \text{sec}$ für die Dauer von 2 sec bei einer Temperatur von 100°C . Die Anfangskonzentration der Partikeln war $5 \cdot 10^6$. In der Tabelle 2 sind die Konzentrationen C_T und der mittlere Radius \bar{r} der entstandenen Tröpfchen angegeben.

r_g μm	$\ln \sigma$	C_T T/cm^3	\bar{r} μm
0,02	0,4	$2,4 \cdot 10^4$	3,6
0,1	0,2	$8,6 \cdot 10^5$	1,5
0,1	0,2	$7,6 \cdot 10^5$	1,5
0,1	0,7	$8,8 \cdot 10^5$	1,4
0,3	0,4	$2,4 \cdot 10^6$	1,2

Tab. 4311-2: Tröpfchenkonzentration C_T und mittlerer Radius bei Kondensation mit verschiedenen Ausgangsgrößenverteilungen

Sehr deutlich ist die starke Abhängigkeit von r_g . Die Ergebnisse sind qualitativ insofern einleuchtend, als um so mehr Tröpfchen entstehen, je mehr Partikeln oberhalb des kritischen Radius liegen, wobei allerdings zu beachten ist, daß der kritische Radius zunächst abnimmt, bis die Kondensationsrate die Quellstärke übertrifft. Wegen dieser Konkurrenzsituation war es auch nicht möglich, die Ergebnisse mit irgendeinem Parameter

der Partikelgrößenverteilung in einfacher Weise zu korrelieren. Jede Änderung der Partikelgrößenverteilung ruft daher eine zwar qualitativ, nicht aber quantitativ vorhersehbare Änderung bei der Wasserdampfkondensation hervor.

4.1.3 Variation der Kondensationsgeschwindigkeit

Im NAUA-Modell wird die Mason-Gleichung verwendet, und zwar in der Form, wie sie für die Kondensation von Wasserdampf an Wassertröpfchen gilt. Dieser Fall kommt unter den Vorgängen in der Nachunfallatmosphäre auch vor, so daß die Verwendung der Mason-Gleichung wenigstens teilweise gerechtfertigt ist. Wichtiger ist jedoch die Anfangsphase der Kondensation, solange die Partikeln noch nicht vollständig benetzt sind. Es ist einleuchtend, daß für diese Phase eine Modifikation der Kondensationsgeschwindigkeit erfolgen muß. Die Korrektur kann sowohl negativ wie positiv sein, denn einerseits sind die trockenen Partikeln mit Sicherheit weniger hydrophil als das Wasser selbst, andererseits können auf der unregelmäßigen Oberfläche der Partikeln Stellen mit negativer Krümmung auftreten, die die Kondensation beschleunigen. Der Wert der integralen Korrektur bleibt der experimentellen Aufklärung vorbehalten. Im Rahmen der Sensitivity-Studie wurden nur die Auswirkungen solcher Korrekturen untersucht.

Der Korrekturfaktor f_m ist abhängig von der Benetzung und muß mit fortschreitendem Wachstum den Wert eins annehmen. Um einen stetigen Übergang zu erreichen, wurde für die Zunahme des Radius (dr/dt) folgende Funktion verwendet

$$(dr/dt) = (dr/dt)_0 \cdot (1 + (f_m - 1) \cdot \exp(2-2r/r_0)) ,$$

wo $(dr/dt)_0$ die nach Mason berechnete Radiusänderung und $r_0 < r$ der Radius der trockenen Partikel ist. Die Rechnungen wurden ebenfalls mit der Standard-Wasserdampfquelle durchgeführt.

Für die Partikelgrößenverteilung des Zentralfalls ($r_g = 0.1 \mu\text{m}$) ergaben sich Unterschiede in der Zahl der entstehenden Tröpfchen im Bereich von 84% bis 74% der Ausgangspartikelzahl und im mittleren Tröpfchenradius im Bereich von 1.2 bis 2.2 μm . Große Unterschiede traten für eine Partikelgrößenverteilung mit einem $r_g = 0.02 \mu\text{m}$ auf. In Abb. 2 ist die Tröpfchenmasse als Zeitfunktion gezeigt. Hier liegt für $f_m = 0.5$ der kritische Radius so hoch, daß nur 0.01% aller Partikeln am Kondensationsprozeß teil-

nehmen, praktisch also gar keine Kondensation an Partikeln stattfindet. Im Vergleich dazu reagiert das System schon bei $f_m = 1$ sehr rasch auf den zugeführten Wasserdampf, obwohl die Variationsbreite des Parameters f_m von 0.5 bis 1 nicht sehr groß ist. Die Wasserdampfkondensation an realen Partikeln als zentraler Bestandteil des NAUA-Modells bedarf daher dringend einer genauen experimentellen Untersuchung.

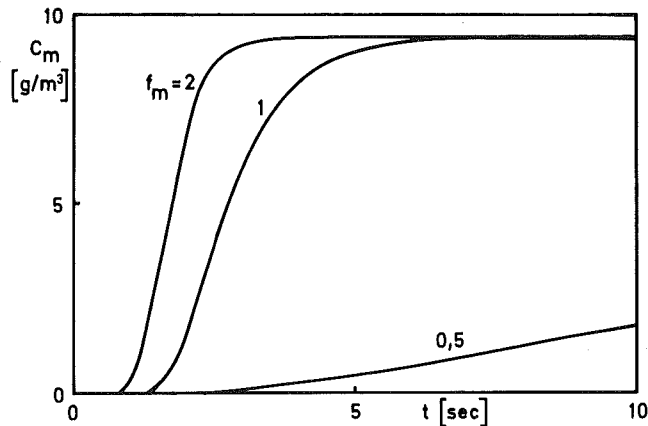


Abb. 4311-2: Massenkonzentration C_m bei der Wasserdampfkondensation am Aerosol. Parameter ist der Kondensationsfaktor f_m .

4.2 Langzeitrechnungen zum Aerosolabbau

Um den Langzeitabbau des Aerosols zu untersuchen, wurden einige Rechnungen durchgeführt. Diese Läufe sind sehr rechenzeit- und kostenintensiv, so daß hier eine sorgfältige Auswahl der Fälle notwendig war. Insbesondere sind die Berechnungen sehr langwierig, wenn Temperaturabsenkung infolge Spraywirkung hinzukommt. Die Variationen der Partikelparameter wurden daher ohne Spray untersucht; die Variation der Partikelquelldauer wurde mit und ohne Spray gerechnet.

Als Wirkung des Spraysystems kann von Mod1-A nur die Temperaturerniedrigung der Containmentatmosphäre berücksichtigt werden, der (wahrscheinlich) geringe Effekt der Gravitationskoagulation bleibt einer späteren Version des NAUA-Modells vorbehalten. Mit der Temperaturerniedrigung verbunden ist eine sehr starke Freisetzung von kondensierbarem Wasserdampf, in der Abb.4311-3 ist der Wasserdampfgehalt als Temperaturfunktion gezeigt. Legt man die in [2, 6] angegebene Temperaturfunktion der Containmentatmosphäre zugrunde, so ergibt sich die in Abb.4311-4 dargestellte situation. Die stark Abnahme

der Temperatur T wird durch die Spraywirkung erzielt. C_w ist die dazugehörige Konzentration an freiwerdendem kondensierbarem Wasserdampf. Man sieht, daß innerhalb der ersten 20 Minuten mehr als 1,2 kg Wasserdampf pro m^3 frei werden, die kondensiert werden müssen.

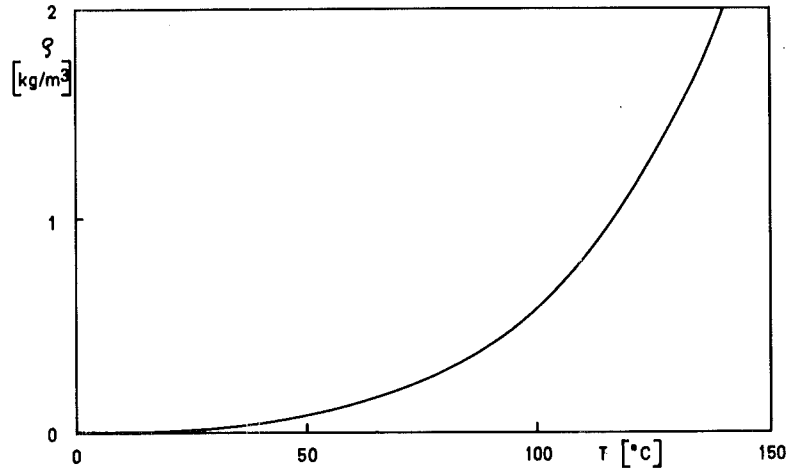


Abb. 4311-3; Wasserdampfgehalt ρ als Funktion der Temperatur

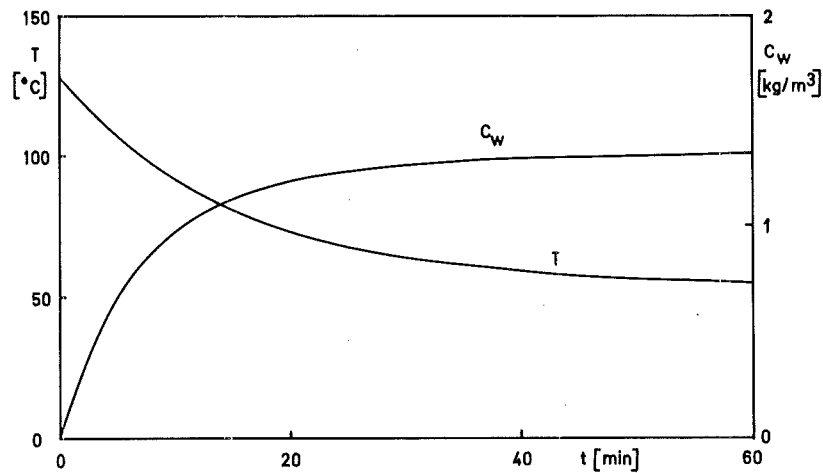


Abb. 4311-4: Zeitverlauf der Temperatur T und des kondensierbaren Wasserdampfgehalts C_w

Es stellt sich die Frage, wie sich diese Wasserdampfmenge auf Aerosol, Wände und Spraytropfen verteilt. Im Rahmen dieser Untersuchungen werden dazu folgende Abschätzungen und Annahmen zugrunde gelegt:

Fall mit Spray:

Die Temperaturerniedrigung ist ein Volumeneffekt, d.h. sie findet homogen im Containmentvolumen statt, die Wände sind nicht die Hauptwärmesenke. Legt man willkürlich ein Spraysystem von $100 \text{ m}^3/\text{h}$ mit Tropfendurchmessern von 1 mm zugrunde, so berechnet sich die Gesamtoberfläche der jeweils luftgetragenen Spraytropfen zu $3 \cdot 10^7 \text{ cm}^2$. Dieser Wert ist vergleichbar mit der Wandfläche des Containments von $3,7 \cdot 10^7 \text{ cm}^2$. Dem gegenüber stehen die Gesamtoberflächen des Aerosols im Containment, die bei den Berechnungen zwischen 10^9 und 10^{11} cm^2 liegen. D.h., daß im Fall einer Abkühlung der Containmentatmosphäre durch Spraywirkung der überwiegende Teil des kondensierbaren Wasserdampfs am Aerosol kondensiert. In den Modellrechnungen haben wir deshalb angenommen, daß die Kondensation nur am Aerosol stattfindet.

Fall ohne Spray:

Die Temperaturerniedrigung ist langsamer als im Fall mit Spray und geht vor allem von den Wänden aus. Wegen der Größe des Containments wird sich ein starker Temperaturgradient in einer dünnen Wandschicht einstellen, der dazu führt, daß der überwiegende Teil des Wasserdampfs an der Wand kondensiert. Da es müßig wäre, ohne genauere Daten über den Aufteilungsfaktor zu spekulieren, haben wir in den Fällen ohne Spray keine Wasserdampfkondensation an Partikeln berücksichtigt. Die Bestimmung des Aufteilungsfaktors als Funktion der thermodynamischen Variablen erfolgt experimentell in Modellversuchen.

In der Tab. 4311-3 sind die gerechneten Läufe der Langzeitrechnungen zusammengestellt. Die Partikelquelle war in allen Fällen die in 3.2.1.3 definierte Standardquelle. Im folgenden werden die Fälle D1 bis W2 diskutiert.

Fall Nr.	P. Quelldauer	f_b	f_s	Spray
D1	30 min	3.5	8.2	ohne
D2	120 min	3.5	8.2	ohne
D3	30 min	1.0	8.2	ohne
D4	30 min	3.5	2.0	ohne
W1	30 min	3.5	8.2	mit
W2	120 min	3.5	8.2	mit

Tab. 4311-3: Übersicht über die Parameter der Langzeitrechnungen

4.2.1 Zentralfall (D1)

In Abb. 4311-5 sind Partikelkonzentrationen C_m und Massenkonzentration D_n in den ersten 100 h nach Einsetzen der Partikelquelle gezeigt. Für die Dauer der Quelle (30 min) folgt die Massenkonzentration genau der freigesetzten Quellmasse, d.h. nach Ende der Partikelquelle liegt die freigesetzte Masse von 40 g/m^3 , insgesamt 1000 kg, vollständig luftgetragen vor. Die Partikelkonzentration stabilisiert sich sehr rasch bei $4 \cdot 10^7 \text{ P/cm}^3$, um nach dem Aussetzen der Partikelquelle innerhalb 30 min um zwei Größenordnungen abzunehmen. Die Massenkonzentration ändert sich in dieser Zeit fast nicht.

Dieses Verhalten ist aerosolphysikalisch vernünftig und auch experimentell beobachtet worden. Die sehr starke Koagulation infolge hoher Partikelkonzentration verringert am Anfang nur die Partikelkonzentration, aber noch nicht die Massenkonzentration. Erst wenn die Partikeln groß genug geworden

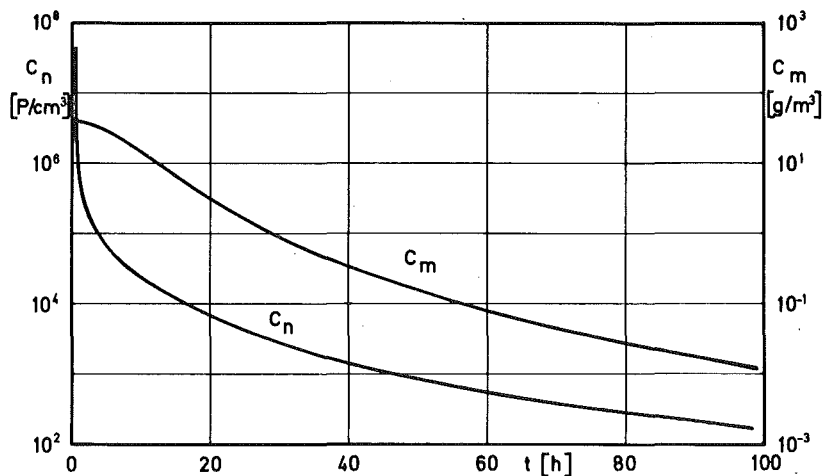


Abb. 4311-5: Langzeitverhalten der Partikelkonzentration C_n und der Massenkonzentration C_m für Fall D1

sind, setzt die Abscheidung durch Sedimentation merklich ein. Die Partikelgrößenverteilungen in Abb. 4311-6 veranschaulichen dieses Verhalten. Diese zeitliche Trennung des Überwiegens von Koagulation und Sedimentation wird mit zunehmender Containmentgröße ausgeprägter und ist hier deutlicher als in früheren Modellversuchen [7].

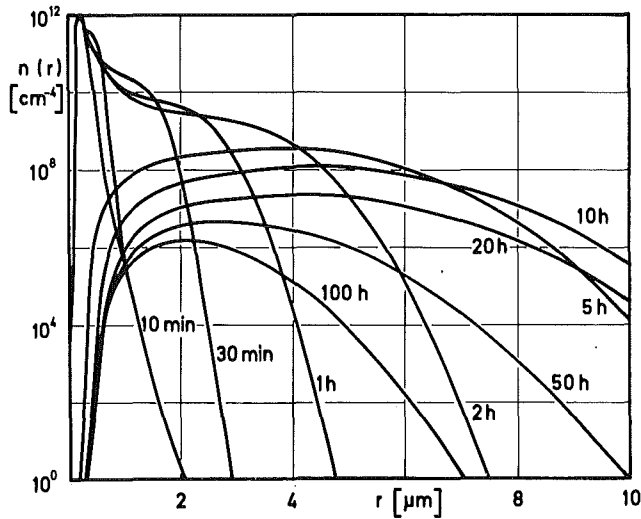


Abb. 4311-6: Dichtefunktionen $n(r)$ der Partikelgrößenverteilung zu verschiedenen Zeiten im Fall D1

Daß die Abscheidung hauptsächlich durch Sedimentation erfolgt, wird in Abb. 4311-7 gezeigt, wo die luftgetragene Masse M_a zusammen mit der durch Diffusion und Sedimentation abgeschiedenen M_d bzw. M_s dargestellt sind. Die an die Wände diffundierte Masse ist mehr als vier Größenordnungen kleiner als die sedimentierte.

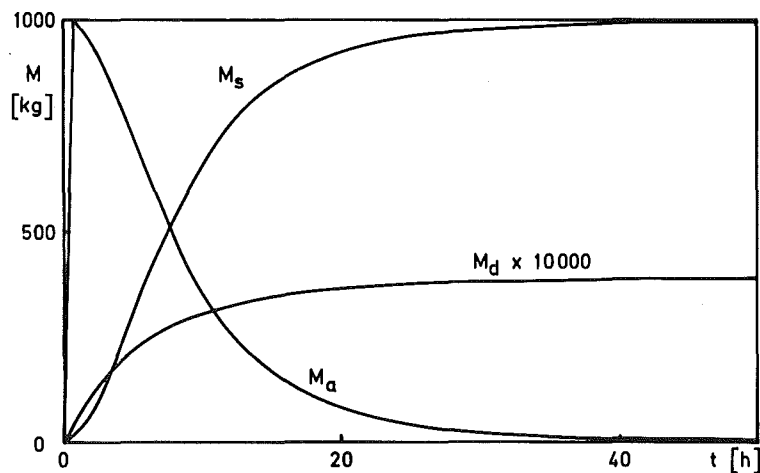


Abb. 4311-7: Luftgetragene Gesamtpartikelmasse M_a , sedimentierte Masse M_s und durch Diffusion abgeschiedene Masse M_d für Fall D1

4.2.2 Variation der Partikelquelldauer (D1, D2)

Die Abb. 4311-8 zeigt den Zeitverlauf der Massenkonzentration C_m für die Fälle D1 und D2. Außer einer geringen zeitlichen Verschiebung ergeben sich keine Unterschiede. Auch die berechneten Zeitfunktionen der Partikelkonzentration sind fast identisch.

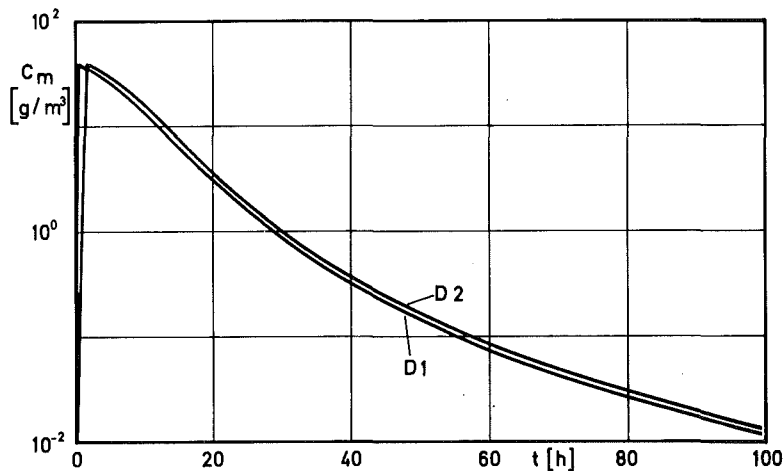


Abb.4311-8: Langzeitverhalten der Massenkonzentration C_m für die Fälle D1 und D2

Daraus folgt, daß die Dauer der Partikelquelle allein keinen Einfluß auf den Langzeitabbau hat, wenn die anderen Parameter des Zentralfalls beibehalten werden. Unterschiede ergeben sich jedoch, wenn die Quelltermparparameter oder das Wasserdampfangebot sich ändern, wie in den folgenden Abschnitten deutlich wird.

4.2.3 Variation der Partikelquellparameter (D1, D3, D4)

Es wurden die Partikelparameter Beweglichkeit und Koagulationsrate mit Hilfe der Korrekturfaktoren f_b und f_s variiert. In der Abb. 4311-9 sind die Zeitverläufe für die Fälle D1, D3 und D4 dargestellt.

Bei der Interpretation ist folgendes zu beachten: f_s geht nur in die Koagulationsrate ein, größeres f_s bedeutet höhere Rate. f_b geht in Diffusion, Sedimentation und Koagulation ein, kleineres f_b bedeutet höhere Abscheideraten. Wir behalten diese Definition trotz ihrer Gegensätzlichkeit aus "historischen" Gründen bei, um Vergleichbarkeit mit früheren Arbeiten zu ermöglichen.

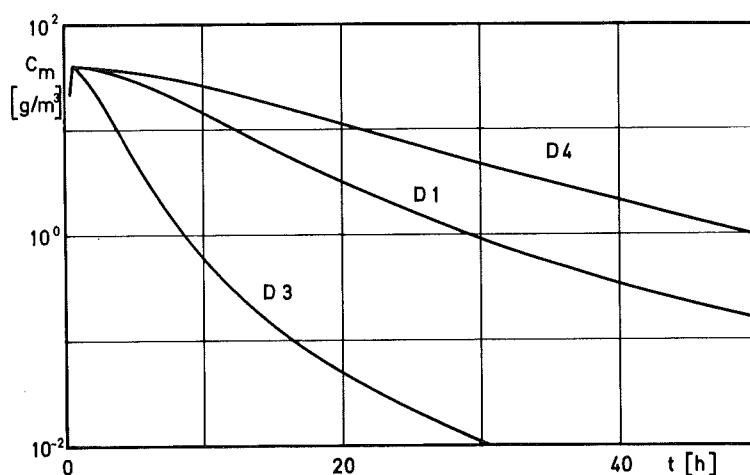


Abb. 4311-9: Langzeitverhalten der Massenkonzentration C_m für die Fälle D1, D3 und D4

Bei geringerer Koagulationsrate (D4, $f_s = 2$) geht der Langzeitabbau etwa gleich schnell wie im Fall D1, jedoch mit einer zeitlichen Verzögerung von mehreren Stunden, da die Ausbildung von genügend großen Partikeln verlangsamt erfolgt.

Bei größerer Partikelbeweglichkeit (D3, $f_b = 1$) werden alle Abbauprozesse beschleunigt, der Abbau der luftgetragenen Masse setzt sofort ein und ist sehr viel schneller als im Fall D1. Die Partikelkonzentrationen verhalten sich entsprechend.

Wenn man beachtet, daß die Faktoren $f_s = 8.2$ und $f_b = 3.5$ nur aus Anpassungsrechnungen früherer SNR-Experimente gewonnen sind, zeigt sich hier sehr deutlich die Notwendigkeit der Beschaffung verlässlicher Quelldaten und der experimentellen Bestimmung der Aerosolparameter. Es bestehen experimentelle Hinweise, daß zumindest der Faktor f_b partikelgrößenabhängig ist, und daß die Partikelgrößenverteilungen beim LWR gegenüber dem SNR zu größeren Radien verschoben sind.

4.2.4 Fälle mit Spray (D1, W1, W2)

Der Zeitverlauf der Massenkonzentration bei den Rechnungen mit Spraywirkung zeigt ein grundsätzlich anderes Bild. In der Abb. 4311-10 ist die dominierende Rolle des Wasserdampfs zu erkennen. Die Massenkonzentration C_m folgt zunächst dem Angebot C_w an kondensierbarem Wasserdampf, um bereits

nach einer halben Stunde abzunehmen, da die Tröpfchen groß genug geworden sind und sedimentieren. Der Partikelquellterm hat nur noch einen geringen Einfluß auf die Massenkonzentration. Bei länger anhaltender Partikelquelle (W2) werden anfänglich weniger und größere Tröpfchen gebildet, die rascher sedimentieren als im Fall W1. Nach kurzer Zeit wird jedoch durch die anhaltende Zufuhr von kondensierbarem Wasserdampf der gleiche Zustand erreicht. Für das Langzeitverhalten ist es ferner nur von geringem Einfluß, ob die Spraywirkung nach 30 min aussetzt, wie durch die gestrichelten Kurven in der Abbildung gezeigt wird. Wichtig ist, daß das sehr große Angebot an kondensierbarem Wasserdampf oberhalb 100°C voll für die Kondensation an den Partikeln zur Verfügung steht. D.h. das Spraysystem ist am wirksamsten, wenn zwei Bedingungen erfüllt sind:

- Die Abkühlung durch Spray muß möglichst früh bei hoher Temperatur einsetzen.
- Die Partikelquelle sollte nach Beendigung des Sprayeinsatzes nicht mehr wirken.

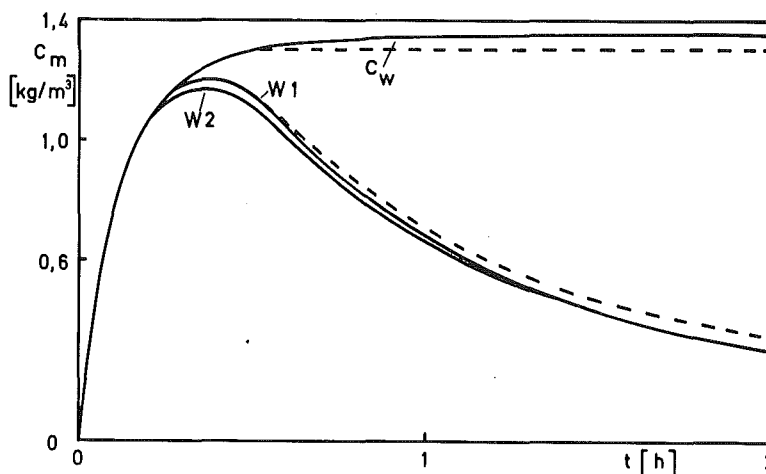


Abb. 4311-10: Massenkonzentration C_m für die Fälle W1 und W2 und Angebot an kondensierbarem Wasserdampf C_w .

Nach Ende des Sprayeinsatzes ist nämlich die Abscheidung der Tröpfchen durch Sedimentation so stark, daß die Tröpfchen rasch verschwinden und nicht mehr als Koagulationspartner für neue Quellpartikeln dienen können.

Die Abb. 4311-10 sagt zunächst nur etwas über den Tröpfchenabbau aus, während allein der Abbau des partikelförmigen Inhalts der Tröpfchen von Bedeutung

ist. Die Bestimmung des (radioaktiven) Inventars der Tröpfchen ist ein wichtiger Bestandteil des experimentellen Programms und der zukünftigen modelltheoretischen Arbeiten. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt ist nur gesichert, daß die Partikeln in sehr kurzer Zeit in die Tröpfchen hinein koagulieren. Es existiert vorerst kein Anhaltspunkt darüber, wie sie sich langfristig auf die verschiedenen Tröpfchengrößen verteilen, was wegen der größenabhängigen Abscheidemechanismen von Bedeutung ist.

Um hier überhaupt einen Vergleich mit dem Fall D1 durchführen zu können, wurde (willkürlich) angenommen, daß die Masse der in die Tröpfchen hinein-koagulierenden Partikeln der Tröpfchenmasse proportional ist. Damit kann man gemittelte Abschätzungen über den jeweils luftgetragenen Partikelinhalt der Tröpfchen gewinnen. In der Abb. 4311-11 ist das Ergebnis dargestellt. Die Unterschiede treten deswegen auf, weil die Partikelquelle in W2 noch rund 100 min nach Einsetzen der Tröpfchensedimentation in Aktion ist. In W1 werden kurzfristig höhere luftgetragene Massen erreicht. Der Langzeitabbau ist ähnlich schnell, und der Unterschied zum Fall ohne Spray (D1) ist jeweils gleichermaßen groß.

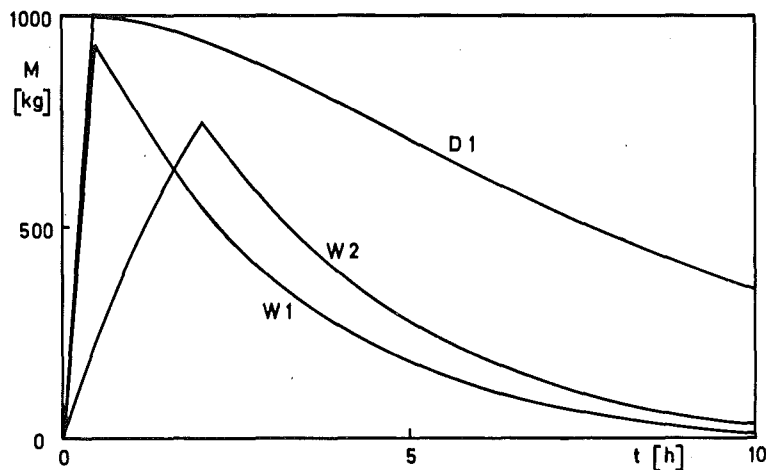


Abb. 4311-11: Luftgetragene Gesamtmasse M (ohne Wasseranteil). Vergleich der Fälle W1 und W2 mit Spray mit dem Fall D1 ohne Spray.

5. Experimentelle Planung

5.1 Auslegung der Experimente

Über die Planung des Versuchsstands und der Meßtechnik sind folgende Einzelheiten zu berichten:

Verhandlungen mit einer in Frage kommenden Lieferfirma für den Versuchstand sind abgeschlossen. Alle technischen Details sind besprochen, eine Vorkalkulation wurde erstellt.

Die Hauptkomponenten für die Meßtechnik, soweit sie kommerziell erhältlich sind, sind bestellt und zum Teil schon geliefert.

Die Konstruktionen für die in den Werkstätten zu erstellenden Komponenten sind in Arbeit.

Ein Labormuster des Tröpfchengrößenspektrometers ist im Testbetrieb, erste Messungen verliefen zufriedenstellend.

5.2 Versuchsprogramm

Das Versuchsprogramm gliedert sich der momentanen Planung zufolge in drei Phasen:

- Phase 1: Aufklärung von physikalischen Vorgängen und Absicherung von Modellannahmen.
- Phase 2: Untersuchung von Einflüssen des Containments.
- Phase 3: Verifikation des Modells.

Diese Unterteilung ist sinnvoll, weil einerseits Ergebnisse einer Phase als Eingabegrößen für die nächste benötigt werden, und andererseits die Experimentiertechnik und der Aufbau des Versuchstands in der ersten Phase ganz anders sind als in den beiden folgenden.

Einzelheiten sind in [1] gegeben; das Versuchsprogramm wird hier nicht weiter diskutiert, weil aufgrund der Ergebnisse der Versuche oder durch Verschiebung der Prioritäten Änderungen der gegenwärtigen Planung jederzeit denkbar sind.

6. Zusammenfassung

Mit einer weiterentwickelten Version Mod1-A des NAUA-Modells wurde eine Sensitivity-Studie durchgeführt. Es ergaben sich an erster Stelle große Empfindlichkeiten bezüglich der Partikelparameter Größe, Beweglichkeit, Koagulationsquerschnitt und Kondensationsrate. Alle diese Größen sind überdies für Brennstoffaerosole unbekannt. Ferner bestätigten die

Rechnungen den positiven Einfluß von Spraysystemen auf den Partikelabbau.

Die experimentelle Bestimmung der Partikelparameter von Brennstoffaerosolen und der Wirkung von Spraysystemen wird unerlässlich zur Absicherung der vielfältigen Modellannahmen. Das experimentelle Programm wird außerdem Einflüsse des Containments aufklären, die im Modell bisher nicht berücksichtigt werden können.

Literatur:

- [1] G. Haury, W. Schöck, 1976 (unveröffentlicht)
- [2] G. Haury, C. Sack, W. Schöck, 1976 (unveröffentlicht)
- [3] G. Haury, H. Jordan, C. Sack, W. Schöck, PNS-Halbjahresbericht 1/1975, KFK 2195, 1975
- [4] G. Haury, W. Schöck, 1976 (unveröffentlicht)
- [5] B.I.Mason, The Physics of Clouds, Oxford 1971
- [6] USNRC, The Reactor Safety Study, WASH 1400, 1975
- [7] H. Jordan, W. Schikarski, H. Wild, Nukleare Aerosole im geschlossenen Containment, KFK 1989, 1974

4312 Theoretische und experimentelle Untersuchung der 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)

Im Rahmen des übergeordneten Zieles der Entwicklung von Modellen und Anlagen zur Berechnung von Strahlendosen nach einem angenommenen Störfall wurden folgende Einzeluntersuchungen durchgeführt: Feldmessungen (Abschnitt 1), Vorbereitung von Tetroonflügen (Abschnitt 2), statistische Analyse gemessener meteorologischer Daten (Abschnitt 3), Verbesserung der Risiko-Analyse kerntechnischer Anlagen (Abschnitt 4 und 5).

1. Ausbreitungsversuche

(J. Hiller, H. Schüttelkopf, P. Thomas)

1.1 Durchführung eigener Ausbreitungsversuche

Im 1. Halbjahr 1976 fanden sechs Ausbreitungsversuche statt. Die wichtigsten Daten sind in Tabelle 4312-1 zusammengestellt. Mit Ausnahme von Versuch Nr. 35 wurden stets zwei verschiedene Tracer simultan in den beiden Höhen 60 m und 100 m freigesetzt. Bei jedem Versuch wurden an mehr als 50 Stellen Proben genommen. Die Probenahmedauer betrug zweimal 30 min.

Die automatischen Sammelstationen kamen bei allen Versuchen erfolgreich zum Einsatz. Der Personalaufwand konnte damit erheblich reduziert werden: Zum Aufstellen der Probenahmegeräte sind bei labilen und neutralen Ausbreitungsbedingungen nur zwei Fahrzeuge und vier Mitarbeiter, bei stabilen Bedingungen drei Fahrzeuge und sechs Mitarbeiter erforderlich. Bei stabilen Bedingungen betrug der maximale Abstand der Probenahmegeräte zur Quelle über 8 km.

Tabelle 4312-1

Zusammenstellung der durchgeführten Ausbreitungsversuche

Laufende Nr.	Diffusions-Kategorie	Zeit	Emissionshöhe in m		Tracer
35	A	14.30 - 15.30	60		CBr_2F_2
36	C	14.30 - 15.30	60	100	CFCl_3 CBr_2F_2
37	F	22.00 - 23.00	60	100	" "
38	E	22.00 - 23.00	60	100	" "
39	F	22.00 - 23.00	60	100	" "
40	E	22.00 - 23.00	60	100	" "

1.2 Auswertung

(P. Thomas)

Die Ergebnisse der bisher mit einer Emissionshöhe von 100 m durchgeführten Versuche wurden in zwei KFK-Berichten /1/, /2/ in englischer Sprache veröffentlicht.

In /1/ werden die Versuche beschrieben und die Meßergebnisse ausführlich dargestellt. Die Datensammlung enthält die Koordinaten der Sammelstationen, die dort gemessenen Konzentrationen und die wichtigsten, meteorologischen Daten. Die Ausbreitungskategorien sind aus den Daten abgeleitet und ebenfalls angegeben.

In /2/ sind die aus den Versuchen ermittelten horizontalen und vertikalen Ausbreitungsparameter und der normierte Ausbreitungsfaktor in Diagrammen und Tabellen angegeben. Die zugehörigen Fehlerbreiten sind ebenfalls aufgeführt. Die gewonnenen Parameter werden mit denjenigen nach Pasquill/Gifford verglichen.

1.3 Zusammenfassung der bisher experimentell bestimmten Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z für 100 m Quellhöhe

(K. Nester, P. Thomas)

Aus den bisher durchgeführten Ausbreitungsexperimenten mit einer Quellhöhe von 100 m /2/ lassen sich die in den Abbildungen 4312-1 und -2 in Abhängigkeit von den Pasquill'schen Diffusionskategorien A-F dargestellten Sigma-Kurven ableiten.

In Abb. 4312-1 wurde für die Kategorien A und B nur eine σ_y -Kurve angegeben, da experimentell kein signifikanter Unterschied festgestellt werden konnte. Die σ_y -Kurven für die Kategorien E und F lassen sich aufgrund der Experimente noch nicht festlegen, da die Unsicherheiten noch zu groß sind. Die bisherigen Ergebnisse in Karlsruhe und andernorts deuten darauf hin, daß die σ_y -Werte der Kategorien E und F höher sind als diejenigen der Kategorie D. Allein aufgrund der Streuungen der Windrichtung läßt sich feststellen, daß im statistischen Mittel die σ_y -Kurven für E und F etwa derjenigen von D entsprechen /3/. Für konservative Berechnungen der Umgebungsbelastung wird deshalb vorgeschlagen, die σ_y -Kurven für die Kategorien E und F der σ_y -Kurve für die Kategorie D gleichzusetzen.

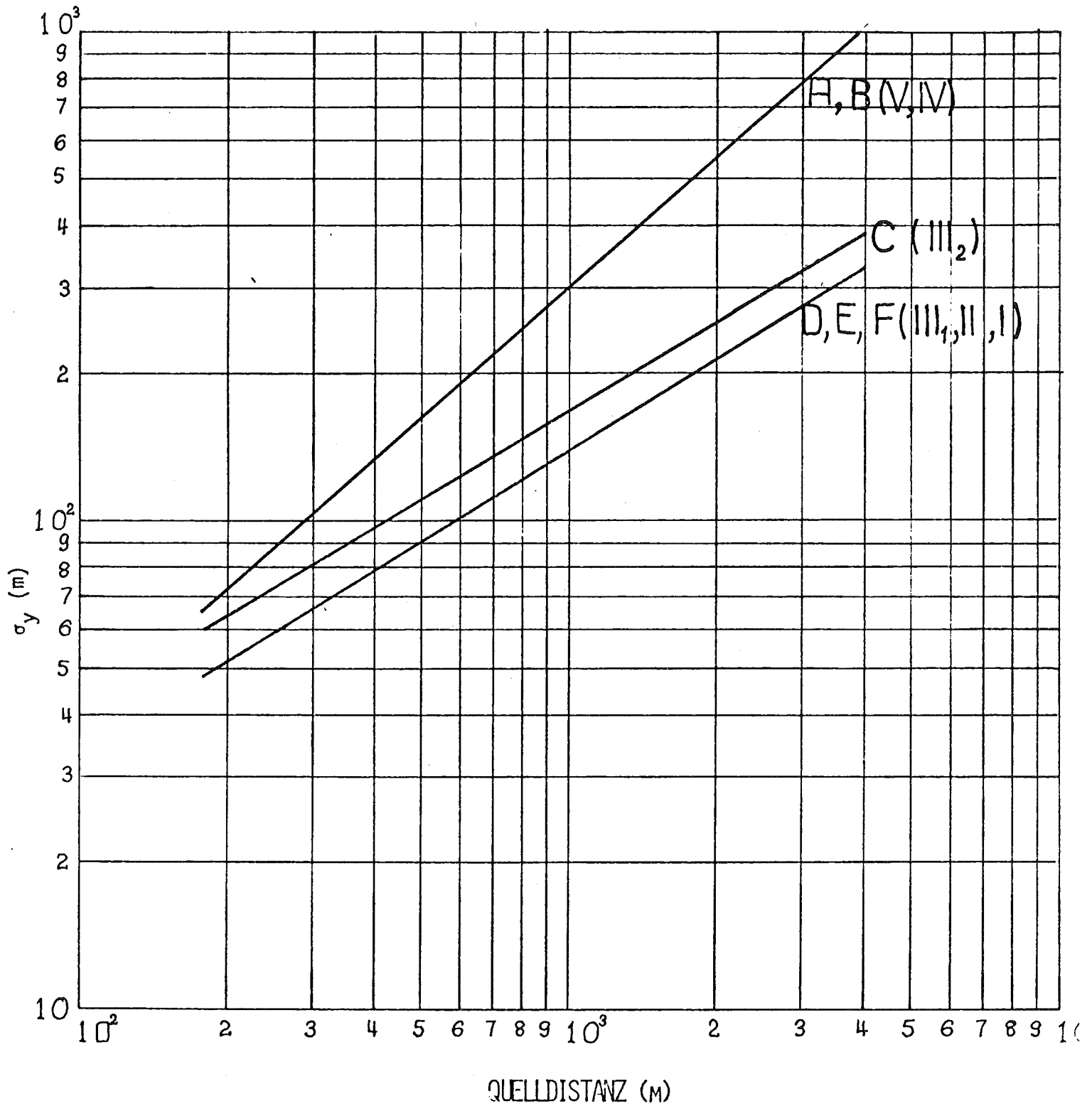


ABB. 4312-1: HORIZONTALER AUSBREITUNGSPARAMETER σ_y

Ergebnis der ersten 25 Ausbreitungsexperimente mit einer Emissionshöhe von 100 m.

A - F charakterisieren die Pasquill'schen Diffusionskategorien "labil" bis "stabil".

I - V charakterisieren die Kategorien nach Manier.

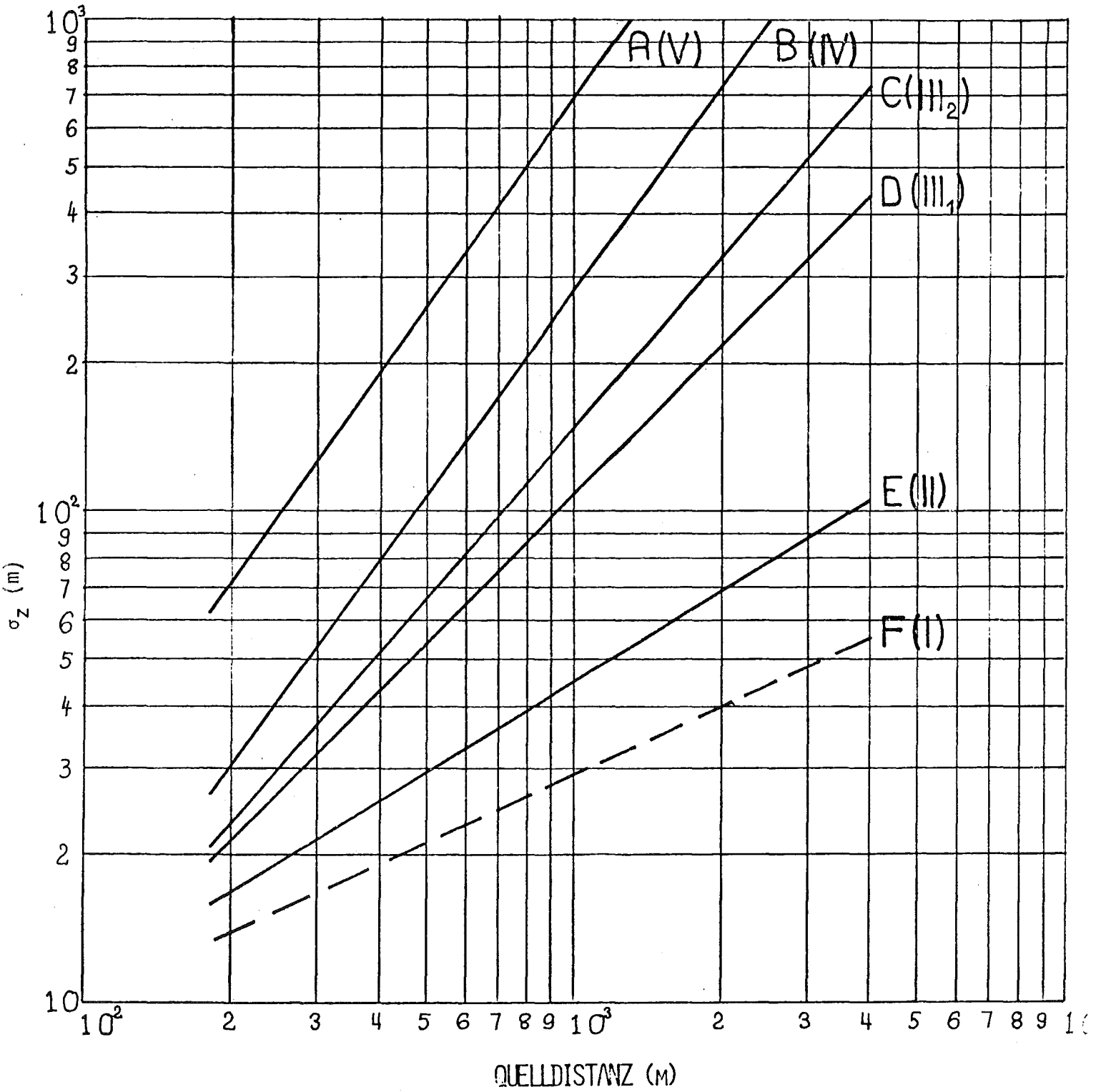


ABB. 1312-2: VERTIKALER AUSBREITUNGSPARAMETER σ_z

Ergebnis der ersten Ausbreitungsexperimente mit einer Emissionshöhe von 100 m.

A - F charakterisieren die Pasquill'schen Diffusionskategorien "labil" und "stabil".

I - V charakterisieren die Kategorien nach Manier.

In Abb. 4312-2 ist die gestrichelte σ_z -Kurve der Kategorie F extrapoliert.

Die Kurven der Ausbreitungsparameter wurden den Pasquill'schen Kategorien zugeordnet, weil die experimentellen σ_z -Kurven sich in die entsprechende Kurvenschar von Pasquill-Gifford /4/ einfügen. Allerdings sind sie gegenüber diesen zum labilen Bereich verschoben. Ein Vergleich mit anderen Systemen der Kategorienbestimmung zeigt, daß am ehesten die Kategorien I - V nach Manier /5/ den Kurven zugeordnet werden können. Diese sind in den Abbn. 4312-1 und -2 in Klammern angegeben.

Die Kurven sind Potenzfunktionen der Form

$$\sigma_y = \sigma_{y0} \times p_y,$$
$$\sigma_z = \sigma_{z0} \times p_z.$$

Die Zahlenwerte der Koeffizienten σ_{y0} , p_y , σ_{z0} , p_z sind in der Tabelle 4312-2 aufgelistet.

2. Ausbreitung von Schadstoffen im Mesoscale-Bereich.

(S. Vogt)

Mit der Methodik der bisher durchgeführten Ausbreitungsexperimente kann die Ausbreitung von Schadstoffen nur im Nahbereich (0-10 km) einer Quelle untersucht werden. Im Mesoscale-Bereich (10-100 km) werden künftig freifliegende Ballone, sogenannte Tetroons, verwendet. Näheres zum Konzept solcher Tetroonflüge siehe /6/.

Im Berichtszeitraum wurden die Vorbereitungen radarverfolgter Tetroonflüge nahezu abgeschlossen. Es wurden 10 Tetroons bestellt und ausgeliefert. Eine Füllstation mit den notwendigen Schlauchverbindungen, Ventilen und Tariergewichten wurde eingerichtet. Erste Steigversuche mit einem gefesselten Tetroon ergaben, daß es u. U. zweckmäßig ist, den Tetroon mittels eines Hilfsballons auf die gewünschte Flughöhe hochzuschleppen. Dadurch wird die Radarverfolgung in der ersten Flugphase erleichtert.

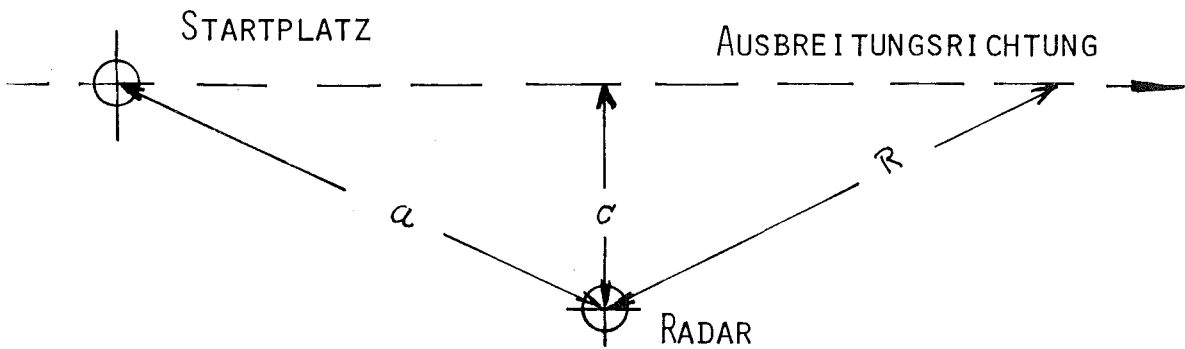
TAB. 4312-2:

Koeffizienten σ_{y0} , p_y , σ_{z0} , p_z in Abhängigkeit der Ausbreitungskategorien

Kat	σ_{y0}	p_y	σ_{z0}	p_z
A	0,65	0,89	0,039	1,42
B	"	"	0,020	1,38
C	2,48	0,61	0,052	1,15
D	2,06	0,61	0,10	1,01
E	"	"	0,66	0,61
F	"	"	1,30	0,45

/

Bei einer gemeinsamen Meßkampagne wurden Erkenntnisse bezüglich der Leistungsfähigkeit des Radar und der Anzahl des Bedienungspersonals gewonnen. Abb. 4312-3 zeigt, wie der Startplatz des Tetroon und der Platz des Radar in Relation zur Windrichtung gewählt werden sollten, um den Tetroon optimal verfolgen zu können. Die Durchführung des ersten eigenen radarverfolgten Tetroonfluges ist im Monat Oktober vorgesehen.



$c \geq 800$ m Minimalabstand

$a <$ Sichtweite des Fernrohres am Sichtgerät

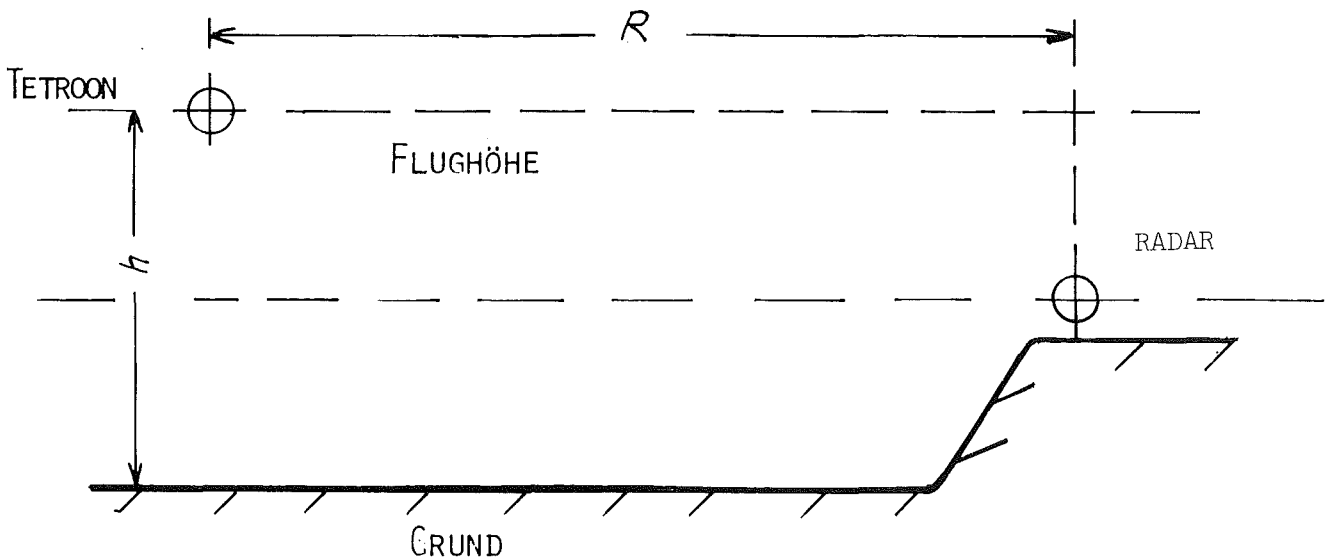


ABB. 4312-3: GRUND- UND AUFRISS EINES RADARVERFOLGTEN TETROONFLUGES

3. Statistik besonderer Ausbreitungssituationen.

(H. Dilger)

Das GAUSS-Modell setzt voraus, daß sich durch die turbulente Durchmischung der Atmosphäre ein homogener, stationärer Zustand eingestellt hat und eine vorherrschende Windrichtung vorhanden ist. Weitere physikalische bzw. chemische Prozesse, die von der Wettersituation abhängen, werden nicht berücksichtigt.

Die turbulente Durchmischung der Atmosphäre führt jedoch nicht immer zu einem homogenen Zustand. Ausgehend von einer 3-jährigen Statistik meteorologischer Daten, wurde die Häufigkeit und jahreszeitliche Verteilung solcher Ausbreitungssituationen berechnet, bei denen die Voraussetzungen für die Anwendung des GAUSS-Modells nicht gegeben sind.

Solche Situationen sind einmal größere Windscherungen (Richtungsänderungen mit der Höhe), die überwiegend bei stabiler Schichtung auftreten können, zum anderen Höheninversionen. Als Windscherung werden die Situationen angesehen, in denen die Windrichtungsdifferenz zwischen der Emissionshöhe in 100 m und der Meßstelle in 40 m (10 m oberhalb der wirksamen Oberfläche) $\geq 2\sigma_{\theta 100}$ ist. Für die Streuung σ_{θ} der horizontalen Windrichtungsfuktuation in 100 m Höhe ($\sigma_{\theta 100}$) wurden die in Tab. 4312-3 aufgeführten Werte verwendet, siehe /6/.

Diffusions-Kategorie	$\sigma_{\theta 100}$ (Grad)
A	44,0
B	32,1
C	22,2
D	12,9
E	6,3
F	4,6

Tab. 4312-3: Streuung der horizontalen Windrichtungsfuktuationen σ_{θ} in 100 m Höhe.

Als Höheninversion wird eine Situation dann bezeichnet, wenn

- a) unterhalb der Inversion $(dT/dz)_u \leq -0,5 \text{ K}/100 \text{ m}$
- b) in der Inversionsschicht $(dT/dz)_o \geq 0 \text{ K}/100 \text{ m}$
- und c) $(dT/dz)_u - (dT/dz)_o \geq 1,0 \text{ K}/100 \text{ m}$ ist.

Besondere Ausbreitungssituationen sind solche Fälle, bei denen außerdem die Untergrenze der Inversion oberhalb 100 m liegt. Das Rechenverfahren kann bei der vorgegebenen Höhe der Meßstellen Inversionen bis zu einer Untergrenze von ca. 180 m erfassen.

In einem instationären Zustand befindet sich die Atmosphäre bei Schwachwindlagen. Dabei gibt es meist keine vorherrschende Windrichtung. Als Schwachwindlagen werden solche Situationen angesehen, bei denen in 40 m Höhe die mittlere Windgeschwindigkeit $\bar{u} \leq 1,0 \text{ m/s}$ ist.

Außer den turbulenten Vorgängen in der Atmosphäre treten physikalische Prozesse, wie Niederschlag oder Tröpfchenbildung, sowie chemische Prozesse, wie die Umwandlung von Schadstoffen, auf. Bei der Berechnung der Niederschlagsdauer werden alle Situationen erfaßt, bei denen die Niederschlagsmenge innerhalb von 10 min $\geq 0,1 \text{ mm}$ ist.

Bei Nebellagen kann es durch Anlagerung von Wasser zu einem Wachstum der Schadstoffaerosole kommen. Als Nebellagen werden diejenigen Situationen angesehen, bei denen die relative Feuchte in 30 oder 100 m Höhe $\geq 99 \%$ ist.

In Abb. 4312-4 sind die über den betrachteten Zeitraum gemittelten Tagesgänge für die besonderen Wettersituationen aufgezeichnet; den größten Anteil der besonderen Wettersituationen nehmen die Lagen mit Windscherung ein. Diese Situationen weisen einen ausgeprägten Tagesgang auf.

Eine ausgeprägte Abhängigkeit vom Sonnenstand weisen auch die Höheninversionen auf. Sie treten vor allem zwei bis drei Stunden nach Sonnenaufgang als Übergangssituation auf. Das Maximum der Schwachwindlagen liegt etwa drei bis vier Stunden nach Sonnenaufgang.

Die Zeiten mit Regen verteilen sich gleichmäßiger über den Tag.

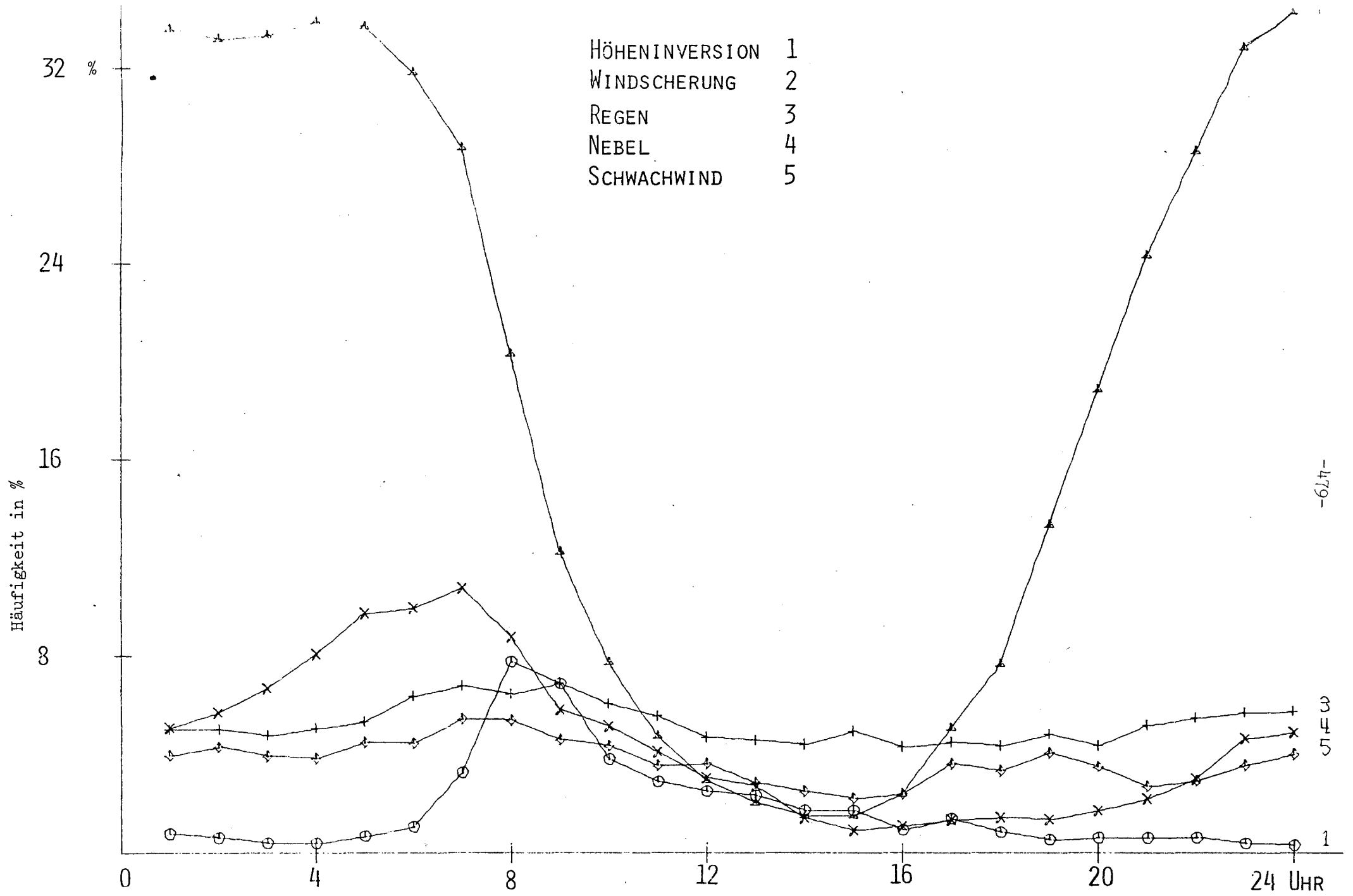


ABB. 4312-4 TAGESGANG DER BESONDEREN AUSBREITUNGSSITUATIONEN

-479-

345

1

Nebellagen treten vor allem in den Morgenstunden auf.

In Tab. 4312-4 sind weitere Informationen für das Auftreten der fünf besonderen Wettersituationen aufgeführt.

Wettersituation	Jahres- mittel	Häufigkeit in %		maximales monatliches Stundenmittel, Monat und Uhrzeit	
		maximales Monats- mittel und Monat			
Windscherung	18	22	Sep	48	Sep 3-4
Höheninversion	2	3	Dez, Jan, Aug	24	Aug 8-9
Schwachwind	4	6	Jan	9	Jan 11-12; Jun 6-7, Okt 7-8, Nov 11-12
Regen	5	7	Jun, Okt, Nov	12	Nov 5-6, 7-8
Nebel	5	17	Okt	37	Okt 4-5

Tab. 4312-4 Häufigkeit des Auftretens besonderer Wettersituationen

Die Windscherungen übertreffen alle übrigen besonderen Wettersituationen sowohl im Jahresmittel als auch im maximalen monatlichen Stundenmittel. Zu beachten ist, daß Nebel und Höheninversionen im Jahresmittel wenig auftreten, aber zu bestimmten Monaten und Stunden einen größeren Anteil der Wettersituationen ausmachen. Situation mit Schwachwind oder Regen treten weder im Jahresmittel noch zu bestimmten Monaten oder Stunden besonders hervor.

4. Analyse der Reactor Safety Study-WASH 1400.

(S. Vogt)

Die beiden erwähnten Analysen des Modells der atmosphärischen Ausbreitung und der Gesundheitsschäden in der Reactor Safety Study /8/ fanden Eingang in einer vom IRS und LRA erarbeiteten Stellungnahme /9/ zu dieser Reaktorsicherheitsstudie.

Ende 1975 erschien eine überarbeitete Fassung "final version" von WASH 1400 /10/. In einigen weitgehend auch schon in /9/ kritisierten Punkten wurden neue Modellannahmen getroffen. Um einen direkten Vergleich zwischen "draft version" und "final version" zu führen, wurden die meisten der neuen Modellvorstellungen übernommen und programmiert. Diese betrafen folgende Punkte:

- Emissionsdaten
- thermischer Aufstieg der Abluftfahne
- Strahlung der am Boden abgelagerten Aktivität
- Strahlung aus der vorbeiziehenden Wolke
- Modell zur Ermittlung der überlebenden Strahlenkranken
- Modell der Spätschäden durch Krebserkrankung
- Änderung der Grenzdosen bei allen Organen für Krankheit und Tod.

Die Berechnungen unter Berücksichtigung dieser Änderungen sind in /11/ veröffentlicht. Da amerikanische Bevölkerungsstatistiken, ein sicherlich nicht für deutsche Verhältnisse gültiges Evakuierungsmodell und die Emissionsdaten amerikanischer Reaktoren verwendet wurden, wird hier auf die Darstellung der Ergebnisse verzichtet.

Detaillierte Ergebnisse bleiben einer deutschen Risikostudie vorbehalten. Die Gruppe ASS/TM wird in dieser Studie, gestützt auf amerikanische Modellvorstellungen und eigene bei den oben erwähnten Untersuchungen erzielte Erkenntnisse, die Bearbeitung des atmosphärischen Ausbreitungsmodells übernehmen.

Literatur

- /1/ Thomas, P., Hübschmann, W., König, L.A., Schüttelkopf, H., Vogt, S., Winter, M.; Experimental Determination of the Atmospheric Dispersion Parameters over Rough Terrain, Part 1: Measurements at the Karlsruhe Nuclear Research Center, KFK 2285, 1976
- /2/ Thomas, P., Nester, K.; Experimental Determination of the Atmospheric Dispersion Parameters over Rough Terrain, Part 2: Evaluation of Measurements, KFK 2286, 1976
- /3/ Dilger, H., Nester, K., Vogt, S.; Auswertungen meteorologischer Messungen in Jahresbericht 1975 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, KFK 2266, 1976
- /4/ Hilsmeier, F., Gifford, L.A., Jr.; Graphs for Estimating Atmospheric Dispersion, ORO-545, 1962

- /5/ Manier, G.; Vergleich zwischen Ausbreitungsklassen und Temperaturgradienten, Met. Rundschau, 28, 1975
- /6/ Dilger, H., Nester, K. und S. Vogt; Lateraler Ausbreitungsparameter σ_y , in Jahresbericht 1975 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, KFK 2266, S. 91
- /7/ 1. Halbjahresbericht 1975. Projekt Nukleare Sicherheit. KFK 2195 (1975)
- /8/ Reactor Safety Study, An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants, U.S.A.E.C., WASH-1400. (1974) "draft version"
- /9/ Kritischer Bericht des IRS zur Reaktorsicherheitsstudie (WASH-1400) (1976) unveröffentlicht
- /10/ Reactor Safety Study, An Assessment of Accident Risks in U. S. Commercial Nuclear Power Plants, U.S.A.E.C., WASH-1400 (NUREG 75/014), (1975) - "final version"
- /11/ Hübschmann, W., Vogt, S.; Strahlenrisiken in der Umgebung von Kernreaktoren nach störfallbedingten Aktivitätsemissionen
Vortrag KTG-Tagung Juni 1976 Karlsruhe

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, Arbeitsgr. f. techn. Strahlenschutz der TU Hannover)

Vorbemerkung

In dieser Phase der Erstellung des numerischen particle-in-cell Rechenprogramms XPIC und der dabei benötigten Windfelddaten wurde besonderes Gewicht auf die Einbeziehung von Randbedingungen, Untersuchungen der richtigen Anpassung der Zellendimensionen und Zeitschritte an das Ausbreitungsproblem und die Erfassung realistischer vertikaler Windgeschwindigkeits- und Diffusionskoeffizientenprofile gelegt. Hierzu wurden entsprechende Rechnungen mit XPIC auf der Rechenanlage des Regionalen Rechenzentrums Niedersachsens in Hannover und Untersuchungen zur Bestimmung der turbulenten Diffusionskoeffizienten durchgeführt.

Das Prinzip und die Vorteile des Rechenprogramms XPIC, das den Transport und die turbulente Verdünnung von konventionellen und radioaktiven Schadstoffen in der Atmosphäre mit Hilfe der particle-in-cell-Methode berechnet, wurden bereits ausführlich im ersten Halbjahresbericht 1975 [1] dieses Erstellungsauftrages erläutert. Auf die Möglichkeit der Bestimmung der turbulenten Diffusionskoeffizienten wurde im 2. Halbjahresbericht für 1975, Teil B, [2] näher eingegangen.

A) Erstellung des Programms XPIC

1. Ermittlung der optimalen Zellendimensionen und Zeitschritte

Wie aus der Programmbeschreibung im ersten Halbjahresbericht 1975 [1] hervorgeht, wird die turbulente Diffusionsgeschwindigkeit \vec{w} mit Hilfe eines Differenzenverfahrens nach folgender Formel (in Komponentenschreibweise) berechnet:

$$w_i = - \frac{K_i}{\bar{C}} \cdot \frac{\Delta C}{\Delta x_i}; \quad i = x, y, z$$

mit K_i = Diffusionskoeffizient
 C = Mittlere Konzentration in der Zelle
 \bar{C} = Mittelwert der Konzentration von mehreren Zellen
 Δx_i = Zellendimension

Um Verfälschungen der Diffusionsgeschwindigkeiten infolge von Nichtlinearitäten bei der Berechnung mit den Differenzenverfahren zu vermeiden, müssen die Zellendimensionen dem vorliegenden Ausbreitungsprogramm angepaßt werden.

Verlangt man, daß eine gewisse relative Abweichung β der die Diffusionsgeschwindigkeit bestimmenden Größe $\frac{1}{c} \frac{\Delta c}{\Delta x_i}$ vom exakten Differentialquotienten $\frac{1}{c} \frac{dc}{dx_i}$ nicht überschritten wird, so kann man folgenden Ansatz machen:

$$\beta = 1 - \frac{\frac{1}{c} \frac{\Delta c}{\Delta x_i}}{\frac{1}{c} \frac{dc}{dx_i}}$$

Mit der Annahme einer Gaußverteilung der Konzentration

$$c = c_0 \exp\left(\frac{-x_i^2}{2\sigma_i^2}\right), \quad \text{mit } c_0 = \text{Konzentration bei } x_i = 0$$

$\sigma_i = \text{Standardabweichung der Ausgangs-Gaußverteilung,}$

wurde für Δx_i nach einigen Umformungen folgende Bestimmungsgleichung aufgestellt:

$$\frac{x_i}{2} \frac{\Delta x_i}{\sigma_i^2} = \frac{\eta}{2} \frac{\Delta x_i}{\sigma_i} = \frac{1}{(1-\beta)} \operatorname{th} \frac{\eta \Delta x_i}{2 \sigma_i}$$

Dabei gibt $\eta = \frac{x_i}{\sigma_i}$ an, bis zu welchen relativen Mindestentfernungen vom Wolkenmittelpunkt keine größere Abweichung als β auftritt.

Zur Anpassung der Zeitschnitte Δt an das Ausbreitungsproblem geben Lange [3] und Sklarew [4] folgende Ungleichung an:

$$\Delta t \leq 0.4 \frac{\Delta x_i}{v_{i \max}}$$

Dabei sind $v_{i \max}$ die Komponenten der maximalen Pseudogeswindigkeit, die sich aus den Advektions- und Diffusionsgeschwindigkeiten zusammensetzt. Ohne Advektion ist die Pseudogeswindigkeit \vec{v} gleich der Diffusionsgeschwindigkeit \vec{w} . Bei den in XPIC

verwendeten Differenzenverfahren zur Bestimmung der Diffusionsgeschwindigkeit ergibt sich dann folgender Grenzwert

$$w_i \max = \frac{2 K_i}{\Delta x_i} ,$$

wenn die Konzentration in sämtlichen zum Differenzenverfahren herangezogenen Zellen (im dreidimensionalen Fall 4) in Richtung des Gradienten gleich Null ist.

Damit ergibt sich für $\Delta t \leq 0.4 \frac{\Delta x_i^2}{2 K_i}$

Inwieweit sich Abweichungen von dieser Bedingung störend auf die Ausbreitung auswirken wird noch geprüft.

2. Randzone am Erdboden

Zur realistischen Erfassung des Teilchentransports in der Zellenrandzone am Erdboden wurde folgende Vorschrift im Programm eingebaut: Die Teilchen dürfen nach dem Eintritt in diese Zellenrandschicht keine Bewegung mehr in Richtung auf den Erdboden hin durchführen, während Bewegungen parallel zum Erdboden oder vom Erdboden weg zugelassen sind, gemäß dem Windfeld und sobald sich entsprechende Konzentrationsgradienten aufgebaut haben. Ablagerungsverluste werden dabei nachgebildet, indem proportional zur vorgegebenen Ablagerungsrate pro Zeiteinheit durch russisches Roulett entsprechend viele Teilchen abgetötet werden. Später sollen die Ablagerungsverluste durch Änderung des von den Teilchen mitgeführten Gewichts berücksichtigt werden.

Bei einem Vergleich zweier xz-Schnitte einer Schadstoffwolke in Isoplethendarstellung (Abbildung A1) nach XPIC-Rechnungen erkennt man deutlich, daß sich die Isoplethe gleicher Konzentration bei stärkerer Ablagerung weiter vom Erdboden entfernt.

3. Freier Rand des Zellsystems

Um die Randstörung durch Abtötung der Teilchen nach dem Verlassen der Zellen am freien Rande und dadurch verursachte Überschätzung bei der Berechnung der Rand-Diffusionsgeschwindigkeit zu vermeiden, wird eine bessere Randbedingung benötigt, die der gleichbleibenden Abströmung der Teilchen über den Rand hinaus entspricht. Als Lösung ist eine lineare Extrapolation der Diffusionsgeschwindigkeiten über den Rand hinaus vorgesehen, bevor die Teilchen in einem Abstand abgetötet werden, indem sie ohnehin nicht mehr zur Konzentration in den Randzellen beitragen.

Gemäß Abb. A2 werden deshalb in einer zusätzlichen Randzone die Zellen in zwei Hälften geteilt, wobei die Teilchen nur in der äußeren für die Berechnung von w unwirksamen Hälfte abgetötet werden, während sie in der inneren Hälfte in normaler Weise Konzentrationsanteile für die ursprüngliche Randzone liefern. Mit der aus der linearen Extrapolation der Diffusionsgeschwindigkeit resultierenden Formel

$$w_{i+1,j} = 2 w_{i,j} - w_{i-1,j}$$

erreicht man dann automatisch eine Krümmung des Konzentrationsfeldes im Randbereich, wie sie sich bei Anpassung mittels einer Gaußverteilung an die Konzentrationsverteilung in den innen angrenzenden zwei Zellschichten ergibt.

4. Vertikale Windgeschwindigkeitsscherung

Zur Berücksichtigung eines vertikalen Windgeschwindigkeitsprofils wurde ein Programmteil erstellt, der automatisch die zu den Diffusionsklassen nach Pasquill gehörenden Windprofile liefert.

Um den Einfluß eines vertikalen Windprofils auf die Konzentrationsverteilung einer Schadstoffwolke zu untersuchen, wurden XPIC-Rechnungen mit verschiedenen für die Diffusionsklassen typischen vertikalen Windprofilen bei verschiedenen Emissionshöhen mit Totalabsorption oder Teilchenstau am Erdboden im Schwerpunktsystem durchgeführt. Für die Diffusionskoeffizienten wurden dabei die über die gesamte Schadstoffwolke gemittelten, räumlich konstanten Werte der statistischen

Methode verwendet, so daß lediglich die Windscherung zur Verzerrung der Wolken beiträgt.

In den Abbildungen A3 a bis c sind die Isoplethen in der xz-Ebene durch den Schwerpunkt für verschiedene Ausbreitungszeiten über einer Erdoberfläche ohne Absorption nach einer Emissionshöhe von 60 m und bei neutraler Diffusionsklasse aufgetragen. Abbildung A3 a zeigt die angenommene Ausgangsverteilung, die einer Gaußverteilung von 300 s Ausbreitungsdauer ohne Bodenrückwirkungen entspricht. Die beiden anderen Abbildungen zeigen die veränderten Isoplethen nach einer zusätzlichen Ausbreitungszeit von 300 s (entsprechend 12 Zeitschritten) bzw. 700 s (entsprechend 28 Zeitschritten). Der zunehmende Scherungseffekt ist gut erkennbar, obwohl er am Boden durch den Rückstauereffekt umso mehr verzerrt wird, je mehr sich die Standardabweichung der Gaußwolke σ_z an die Emissionshöhe $H_E = 60$ m annähert.

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.
- [2] Schultz, H., E. Voelz, C.-D. Wüneke: 2. Halbjahresbericht 1975 zum Thema 4312-TUH, KFK 2262 (zum selben Thema wie [1])
- [3] Lange, R.: ADPIC - A Three-Dimensional Computer Code for the Study of Pollutant Dispersal and Deposition under Complex Conditions
Lawrence Livermore Laboratory
UCRL-51462 1973
- [4] Sklarew, R.C., Fabrick, A.J., Prager, J.E.: A Particle-in-Cell-Method for Numerical Solution of the Atmospheric Diffusion Equation, and Applications to Air Pollution Problems
3 SR-844 1971, Systems, Science and Software, La Jolla, California

B) Bestimmung der turbulenten Diffusionskoeffizienten für ein "particle-in-cell"- Programm

Um mit der "particle-in-cell"- Methode die Ausbreitung von Fremdstoffen in Luft berechnen zu können, müssen für jede Zelle die meteorologischen Größen bekannt sein, die die Diffusion und den Transport bestimmen. Für den Fall einer erhöhten Punktquelle ist untersucht worden, wie der turbulente Diffusionskoeffizient K für naturgetreue Diffusionsrechnungen ermittelt werden kann. Dabei erweisen sich folgende Methoden als besonders vielversprechend:

1. Mittels der statistischen Theorie läßt sich jeweils ein räumlich über die Fremdstoffwolke gemittelter Diffusionskoeffizient für jede Richtung i durch $K_i = 0.5 \cdot \bar{u} \cdot d\sigma_i^2/dx$ errechnen, wobei die Standardabweichungen $\sigma_i(x)$ dem System von Pasquill [1962] entnommen werden können. Diese K_i -Werte sind daher für alle Diffusionsklassen anwendbar.
2. Wippermann [1973] gibt lokale $K_z(z)$ -Werte als Lösung aus der Navier-Stokes'schen Gleichung mit einem vollständigen Satz der meteorologischen Bestimmungsgrößen an. Die Rechnungen sind sehr umfangreich, so daß hier nur die Ergebnisse aus der o.a. Arbeit übernommen werden können. Hierbei ist unseres Wissens vorerst nur der neutrale Fall veröffentlicht. Ein Übertragen auf andere Diffusionsfälle sollte aber aufgrund des Rechenansatzes möglich sein.
3. Blackadar [1962] gibt aufgrund der Hypothese über die Mischungslänge $l(z)$ an, daß $K_z(z) = l^2(z) \cdot |du/dz|$ ist, wobei $l(z)$ aus zusätzlichen Größen ermittelt werden kann. Diese Methode ist zunächst für den neutralen Fall abgeleitet. Man kann sie auch auf andere Diffusionsfälle übertragen, wenn man die K_z -Werte nach Gutman et al. [1973] korrigiert oder wenn man $l(z)$ stabilitätsabhängig z.B. nach Wippermann [1973] darstellt.
4. Vergleichsweise dazu werden K_z -Werte mit einem vereinfachten Ansatz der Navier-Stokes'schen Gleichung mit einfachen Annahmen über die Windgeschwindigkeit, z.B. Exponentialansatz für die Höhenabhängigkeit und über die Höhe konstanter Drehwinkel bestimmt. Hierbei gehen nur diffusionsklassenabhängige Größen ein,

so daß die Methode für alle Diffusionsklassen angewendet werden kann.

Die erste Methode liefert quellenentfernungs- bzw. transportzeitabhängige, turbulente Diffusionskoeffizienten $K_1(x)$ für alle drei Raumrichtungen, die jeweils im Bereich der Wolke konstant sind. Dagegen ergeben die anderen drei Methoden höhenabhängige $K_z(z)$ -Werte, die für alle Quellentfernungen gleich sind. Über die turbulente Diffusion in der Horizontalen wird unmittelbar nichts ausgesagt. Für neutrale Diffusion sind in Abbildung B1 die entfernungsabhängigen, räumlich in der Wolke konstanten Werte von $K_{x,y,z}(x)$ und in Abbildung B2 die höhenabhängigen, für alle Quellentfernungen gleichen Werte $K_z(z)$ aufgetragen. Zum besseren Vergleich der beiden Abbildungen untereinander ist jeweils der wirksame Mittelwert \bar{K} für den Entfernungsbereich $600 \text{ m} \leq x \leq 2000 \text{ m}$ entsprechend der statistischen Theorie miteingetragen.

Während sich die $K_1(x)$ -Werte aus der statistischen Theorie direkt und geschlossen sofort für Diffusionsrechnungen nach der particle-in-cell Methode zwecks Vergleichs mit dem Gauß'schen Rauchfahnenmodell anwenden lassen, benötigen alle weiteren Methoden zusätzliche Bestimmungsgrößen, nämlich hauptsächlich die Höhe H_D der Durchmischungsschicht und die dort herrschende Geschwindigkeit u_g des geostrophischen Windes. Beide Größen sind nach dem momentanen Wissensstand nicht direkt bestimmbar. Eine Übersicht über die indirekten Möglichkeiten, die Durchmischungsschicht zu definieren und zu bestimmen, geben Etling, Wippermann [1975]. Der geostrophische Wind u_g wird für die hier geforderten Zwecke vorerst durch Extrapolieren des Exponentialgesetzes für die Windgeschwindigkeit bis H_D berechnet. Das führt vielfach zu einer Unterschätzung von u_g und damit auch von $l(z)$. Das wiederum erklärt, warum die Werte von $K_z(z)$ nach Blackadar [1962] zu niedrig liegen. Deswegen sollten in jedem Falle hierfür die unter 3. erwähnten Korrekturmöglichkeiten berücksichtigt werden.

An einem Beispiel soll der Einfluß der unterschiedlich bestimmten K_z -Werte auf die Diffusionsrechnung mit der particle-in-cell Methode gezeigt und mit den Ergebnissen des Gauß'schen Rauchfahnenmodells

verglichen werden. Dazu werden eine punktförmige Einheitsemission in $H_s = 180$ m Höhe, eine Transportgeschwindigkeit von 5 m/s in dieser Höhe und ein Exponentialgesetz für die Höhenabhängigkeit der Windgeschwindigkeit bei der neutralen Diffusionsklasse angenommen. Die Mischungsschichthöhe wurde mit $H_D = 700$ m angesetzt, das entspricht einem mittleren Wert nach den Angaben von Etling, Wippermann [1975]. In Abbildung B3 sind die sich daraus ergebenden Konzentrationen auf einem vertikalen Profil durch den Wolkenschwerpunkt in 2000 m Quellentfernung gezeigt.

Naturgemäß sollen sich die Ergebnisse der statistischen Theorie mit dem Rauchfahnenmodell direkt decken. Die Lösung nach Wippermann [1973] und der Mischungslängenansatz nach Blackadar [1973] scheinen demgegenüber eine geringere Durchmischung auf dem vertikalen Profil durch den Wolkenschwerpunkt, der vereinfachte Ansatz der Navier-Stokes'schen Gleichung dagegen eine erhöhte Durchmischung zu zeigen. Andererseits ist es nicht unmittelbar möglich, die vertikalen Konzentrationsprofile durch den Wolkenschwerpunkt aufgrund der o.a. erwähnten Ansätze mit denjenigen zu vergleichen, die mittels der K-Werte aus der statistischen Theorie gemäß dem Gauß'schen Rauchfahnenmodell gewonnen werden, weil andere Annahmen über das Windfeld, z.B. höhenabhängige Windgeschwindigkeit und Diffusionskoeffizienten zugrunde gelegt worden sind.

Literatur

- A.K. Blackadar, The vertical distribution of wind and turbulent exchange in a neutral atmosphere, J. geophys. Research 67, 8, (1962) p. 3095
- D. Etling, F. Wippermann, Die Höhe der Planetarischen Grenzschicht und der Prandtl-Schicht, Beitr. Physik Atmosph. 48, 1975, S. 250
- D. P. Gutman, K.E. Torrance, M.A. Estoque, Use of the numerical method of Estoque and Bhumralkar for the Planetary Boundary Layer, Boundary-Layer Meteorol., 5 (1973) p. 341
- F. Pasquill, Atmospheric Diffusion, van Nostrand, London 1962
- F. Wippermann, The Planetary Boundary Layer of the Atmosphere, Annalen der Meteorologie Nr. 7, Deutscher Wetterdienst, Offenbach a.M. 1973

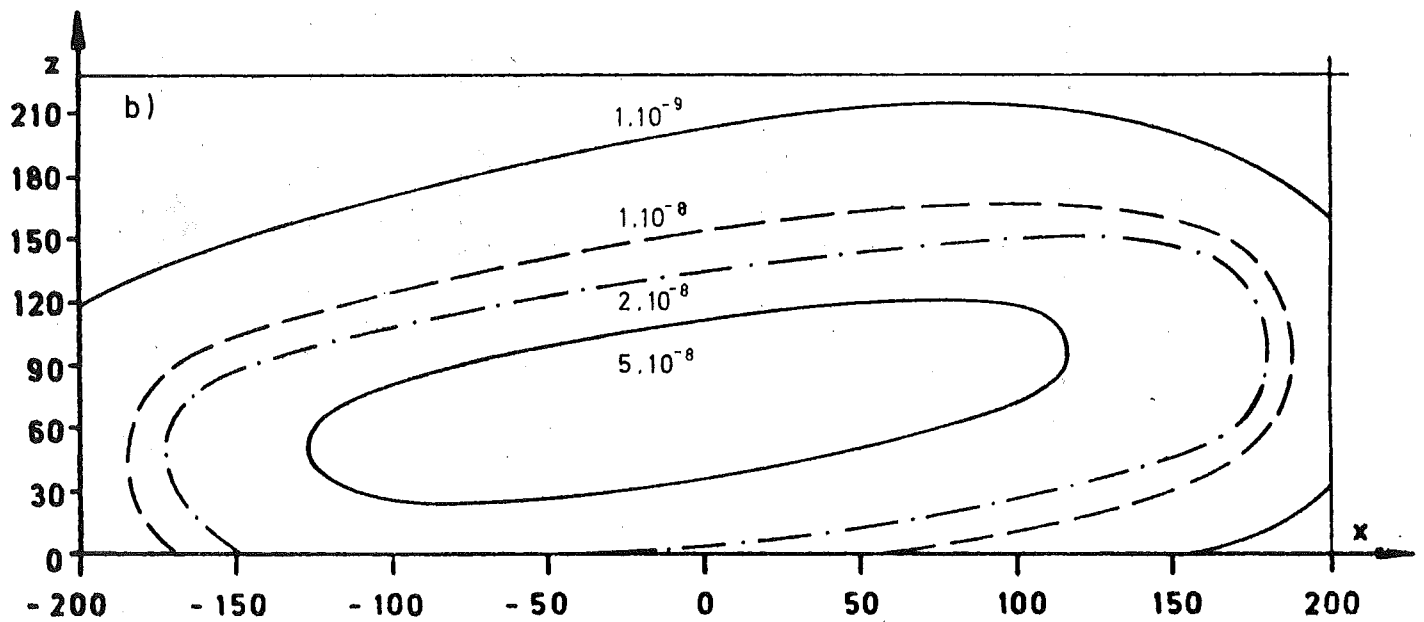
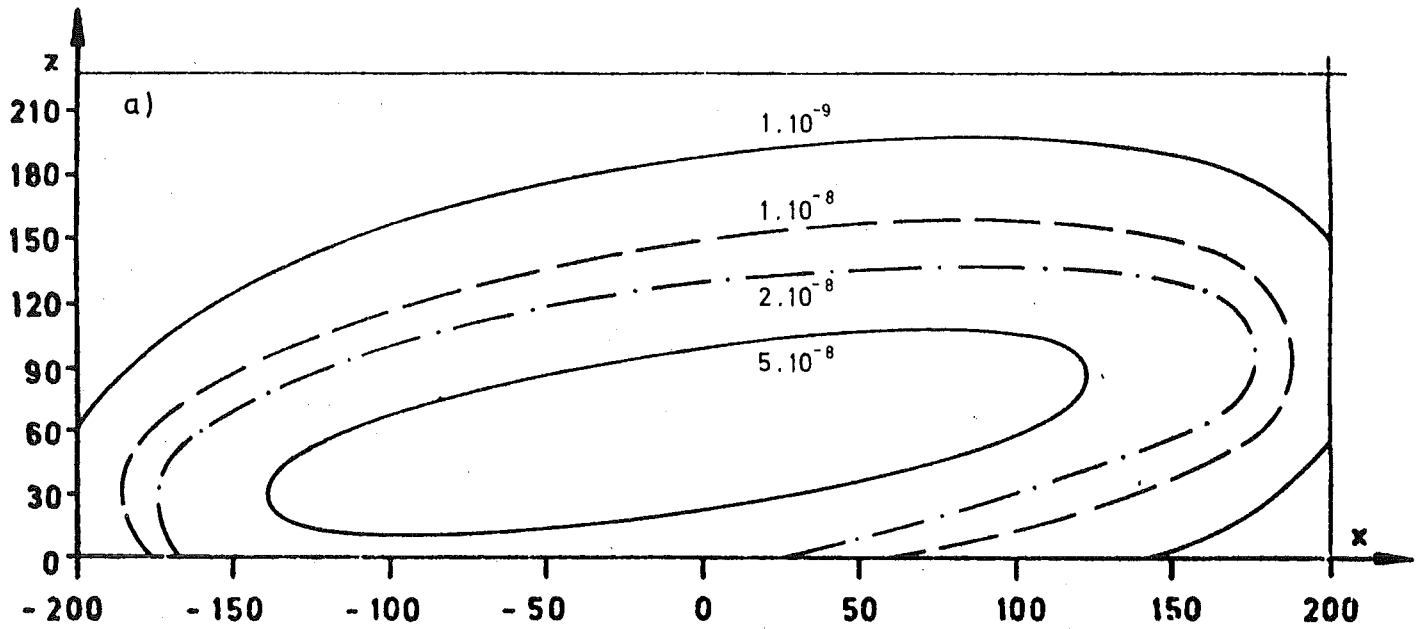


Abb. A1:

Isoplethen in der xz-Ebene durch den Schwerpunkt einer Schadstoffwolke zur Zeit $t = 900$ s ausgehend von einer Gaußverteilung zur Zeit $t = 300$ s. Diffusionsklasse D und zugehöriges vertikales Windprofil, Emissionshöhe $H = 60$ m.

a) Ohne Ablagerung am Erdboden

b) Mit Ablagerungsrate am Erdboden 50. % pro 100 s

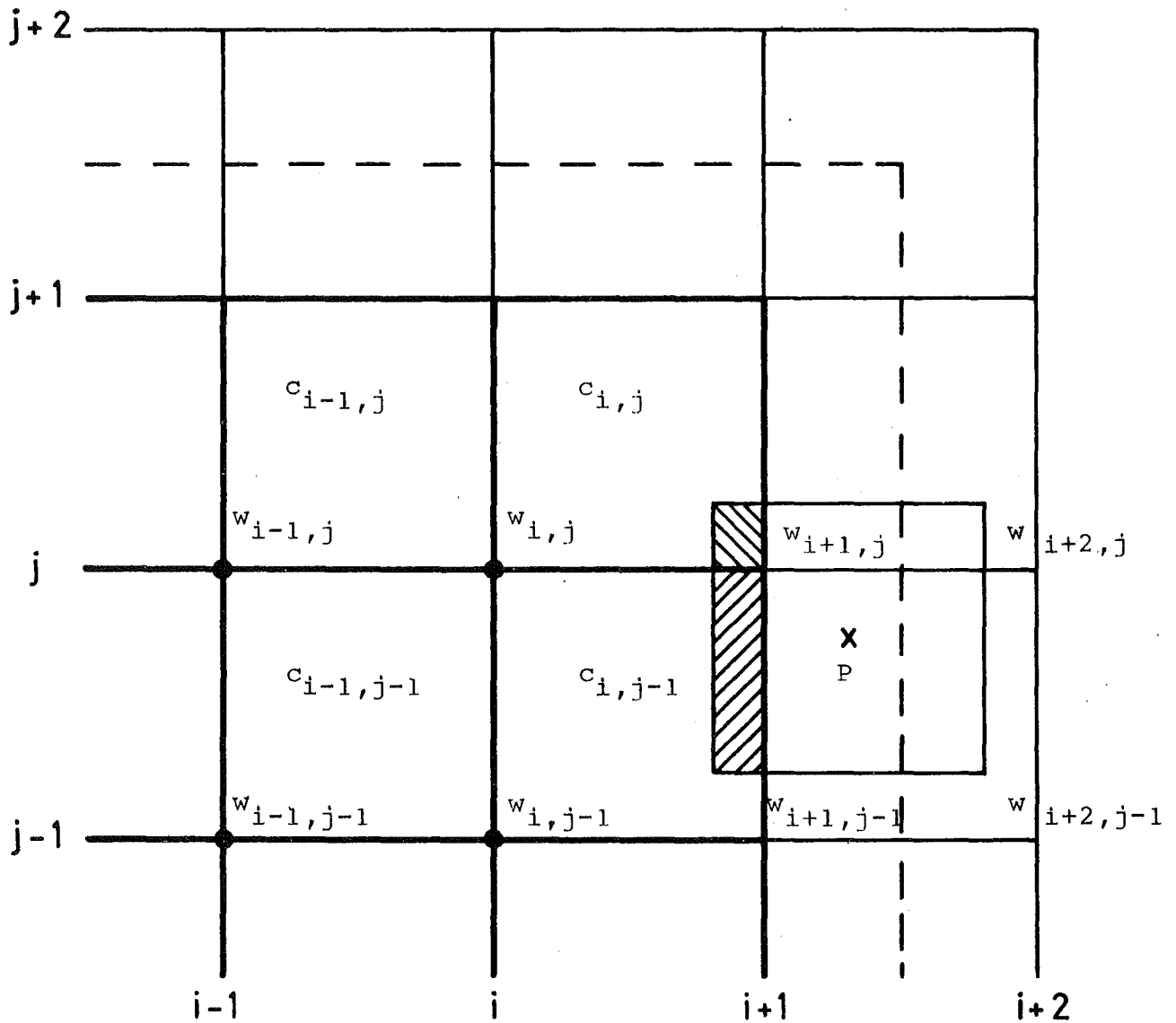


Abb. A2:

Schema der Extrapolation am freien Rand des Zzellensystems.
 Konzentrationsverteilung $c_{i,j}$, Diffusionsgeschwindigkeit $w_{i,j}$
 (2-dimensional)

Geschwindigkeitsextrapolation: $w_{i+1,j} = 2w_{i,j} - w_{i-1,j}$

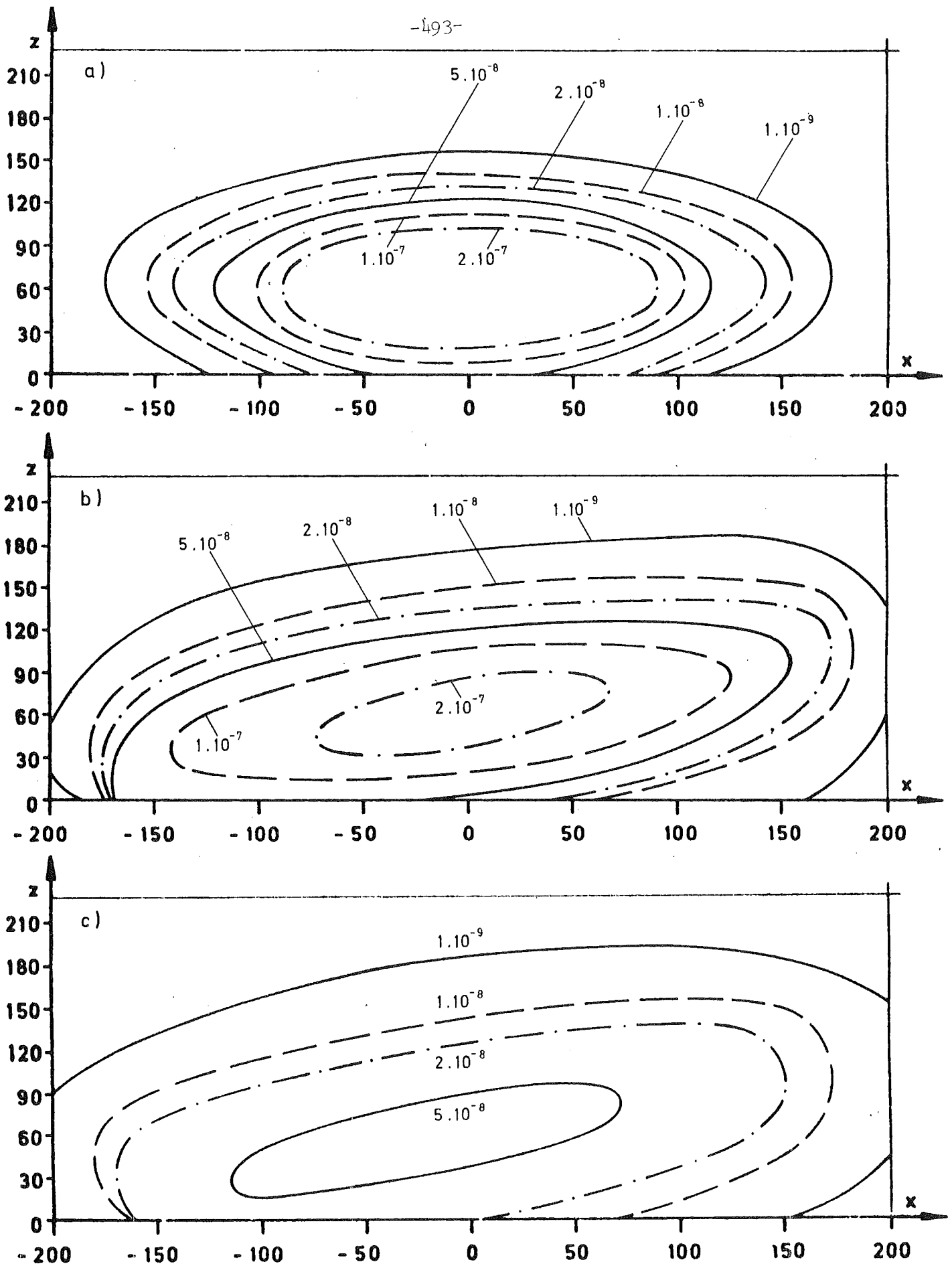


Abb. A3:

Isoplethen in der xz-Ebene wie bei Abb. A1 a

a) Gaußwolke bei $t = 300$ s

b) bei $t = 600$ s

c) bei $t = 1000$ s

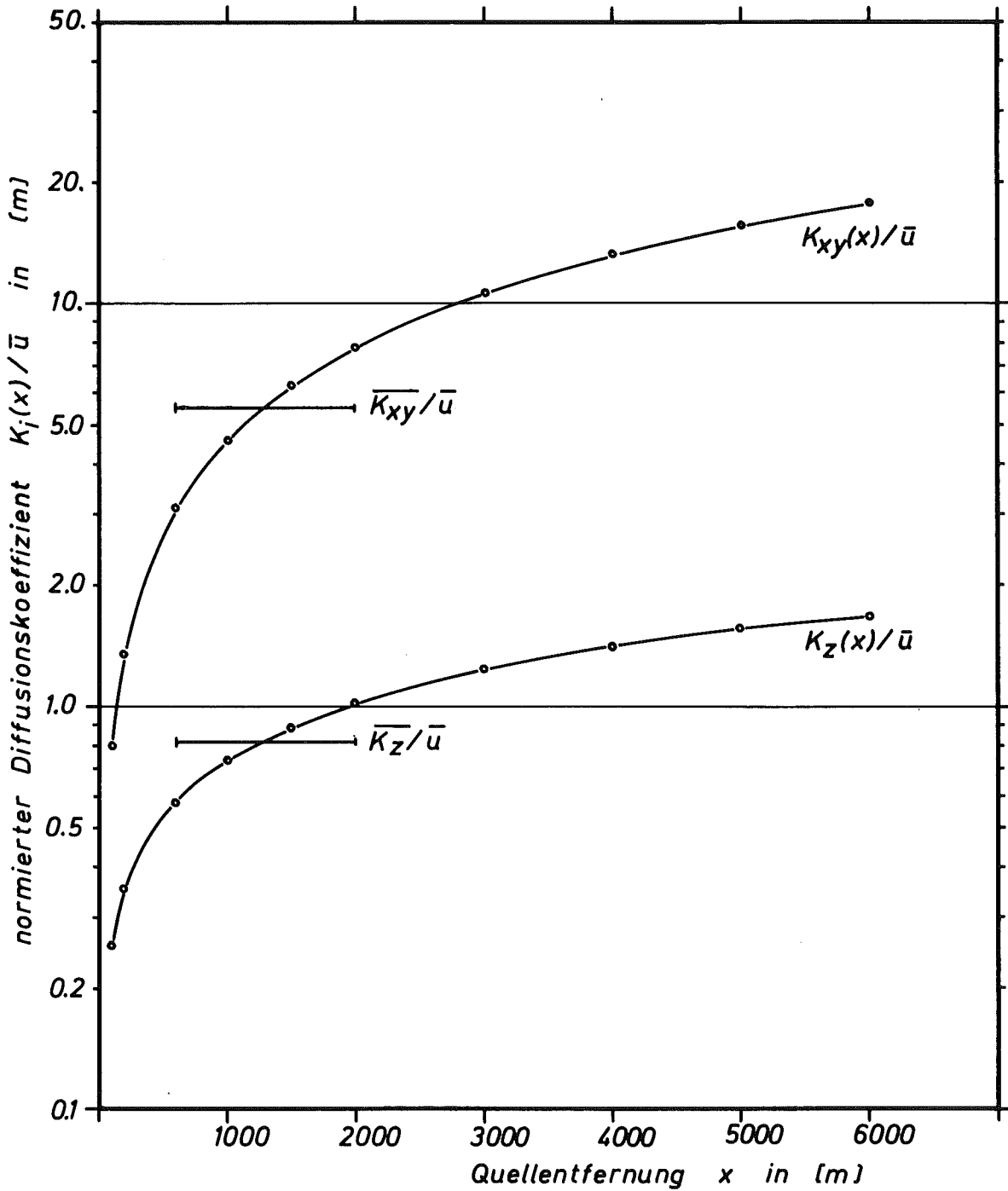


Abb. B1

Auf die Transportgeschwindigkeit \bar{u} normierte Koeffizienten $K_{x,y}(x)$ und $K_z(x)$ der turbulenten Diffusion abhängig von der Quellentfernung $x=\bar{u}t$ entsprechend der statistischen Theorie und deren Mittelwert \bar{K} für den Entfernungsbereich $600 \text{ m} \leq x \leq 2000 \text{ m}$ für neutrale Diffusionsfälle.

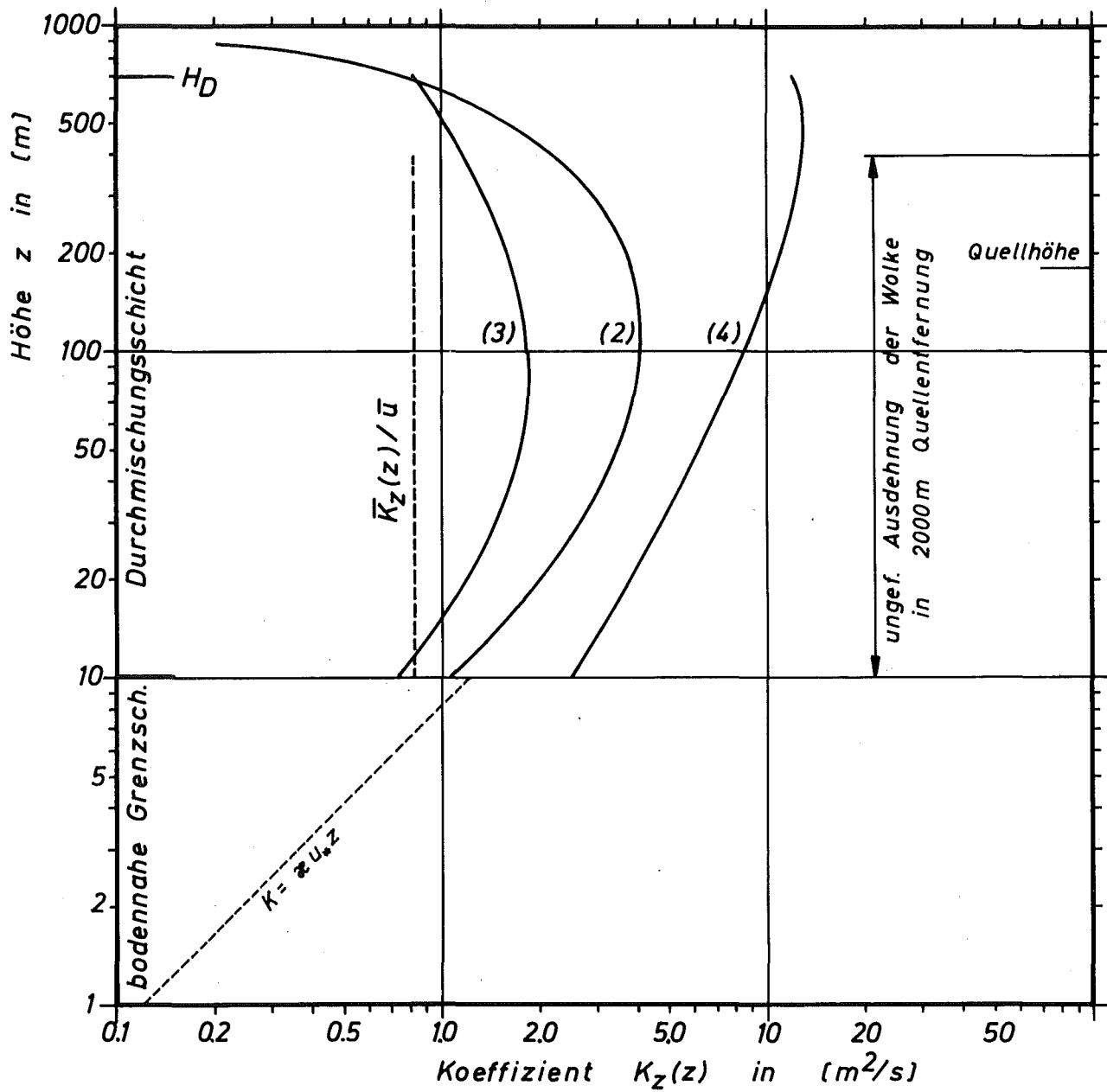


Abb. B 2

Höhenabhängige turbulente Diffusionskoeffizienten $K_z(z)$ nach Wippermann [1973] (2), nach Blackadar [1962] (3) und nach der vereinfachten Lösung der Navier-Stokes'-Gleichung (4) und der Mittelwert \bar{K}_z für den Entfernungsbereich $600 \text{ m} \leq x \leq 2000 \text{ m}$ nach der statistischen Theorie für neutrale Diffusionsfälle.

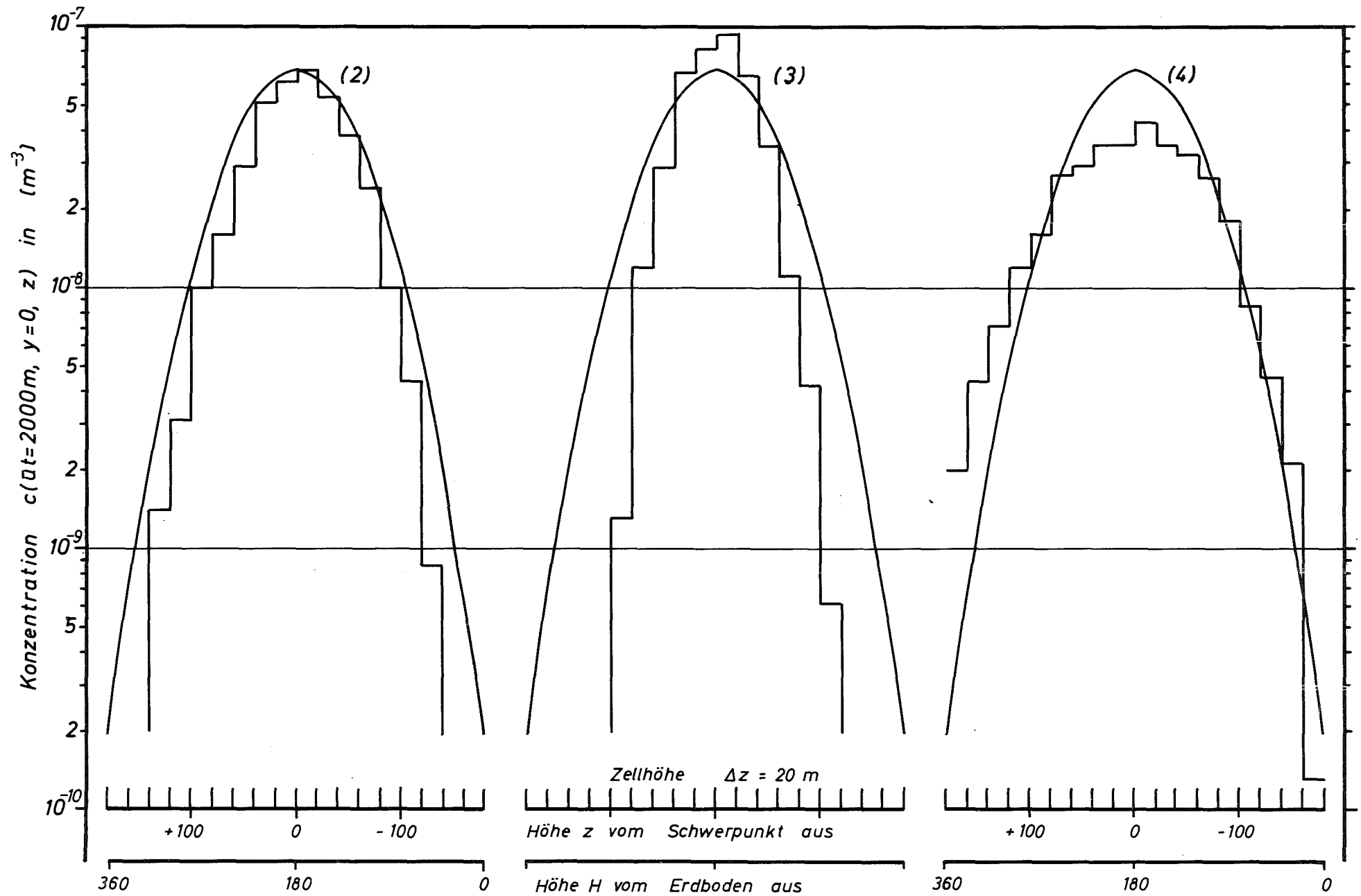


Abb. B 3

Mit unterschiedlichen $K_z(z)$ -Werten berechnete Konzentrationen auf einem vertikalen Profil durch den Wolkenschwerpunkt in 2000 m Quellentfernung im Vergleich mit dem Gauß'schen Rauchfahnenmodell für neutrale Diffusionsfälle, (2) nach Wippermann [1973], (3) nach Blackadar [1962], (4) nach der vereinfachten Lösung der Navier-Stokes'-Gleichung.

4330 Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen
unter probabilistischen Gesichtspunkten
(A. Bayer, M. Schückler, INR)

Als Vorarbeit für das Vorhaben "Untersuchungen der radiologischen Folgen nach Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten" wurden einige Modelle, die in der Entwurfsfassung und der Endfassung der "Reactor Safety Study" (Rasmussen-Studie) zur Berechnung der nach schweren Reaktorunfällen auftretenden Schäden verwendet werden, analysiert und einander vergleichend gegenübergestellt /1/. Die Analyse zeigt, daß die Endfassung in vielen Punkten stärker differenziert und daß viele der Anregungen, die nach dem Erscheinen der Entwurfsfassung abgegeben wurden, bereits eingearbeitet sind. In der Analyse wurde versucht, die unterschiedlichen Ergebnisse der beiden Versionen - in Abb. 4330-1 und Tab. 4330-1 sind einige Ergebnisse gegenübergestellt - mit Hilfe der veränderten Modelle zu interpretieren.

Da der Begriff "Risiko" von den verschiedenen Autoren für die unterschiedlichsten Ergebnisse von Schadensüberlegungen verwendet wird, wurde in einer weiteren Untersuchung /2/ der Versuch unternommen, die verschiedenen Darstellungsmöglichkeiten von Schadensgrößen, Wahrscheinlichkeiten und Risiken aufzuzeigen und sie mit eindeutigen Bezeichnungen zu belegen. Es wird u.a. (siehe Tab. 4330-2) gezeigt, welche Darstellungen in der "Reactor Safety Study" gewählt wurden, welche sich aus den Angaben herleiten lassen und welche sich aus der Studie nicht entnehmen lassen.

Schließlich wurden in einer Untersuchung die verschiedenen Möglichkeiten der Darstellung von Schaden und Risiko zur Standortbewertung gezeigt und ein Vorschlag für eine Bewertung von Reaktorstandorten unterbreitet /3/.

Literatur:

/1/ M. Schückler

Analyse und Gegenüberstellung der Modelle zur Berechnung der Schäden von Reaktorunfällen in der Entwurfsfassung und der endgültigen Fassung der "Reactor Safety Study" (Rasmussen-Studie)

(1976) unveröffentlicht

/2/ A. Bayer, M. Schückler

Möglichkeiten der Darstellung von Schaden und Risiko unter
Berücksichtigung der Methode der "Reactor Safety Study"
(Rasmussen-Studie) (1976) unveröffentlicht

/3/ A. Bayer

Möglichkeiten der Schadens- und Risikospezifischen Standort-
bewertung für Kernkraftwerke (1976) unveröffentlicht

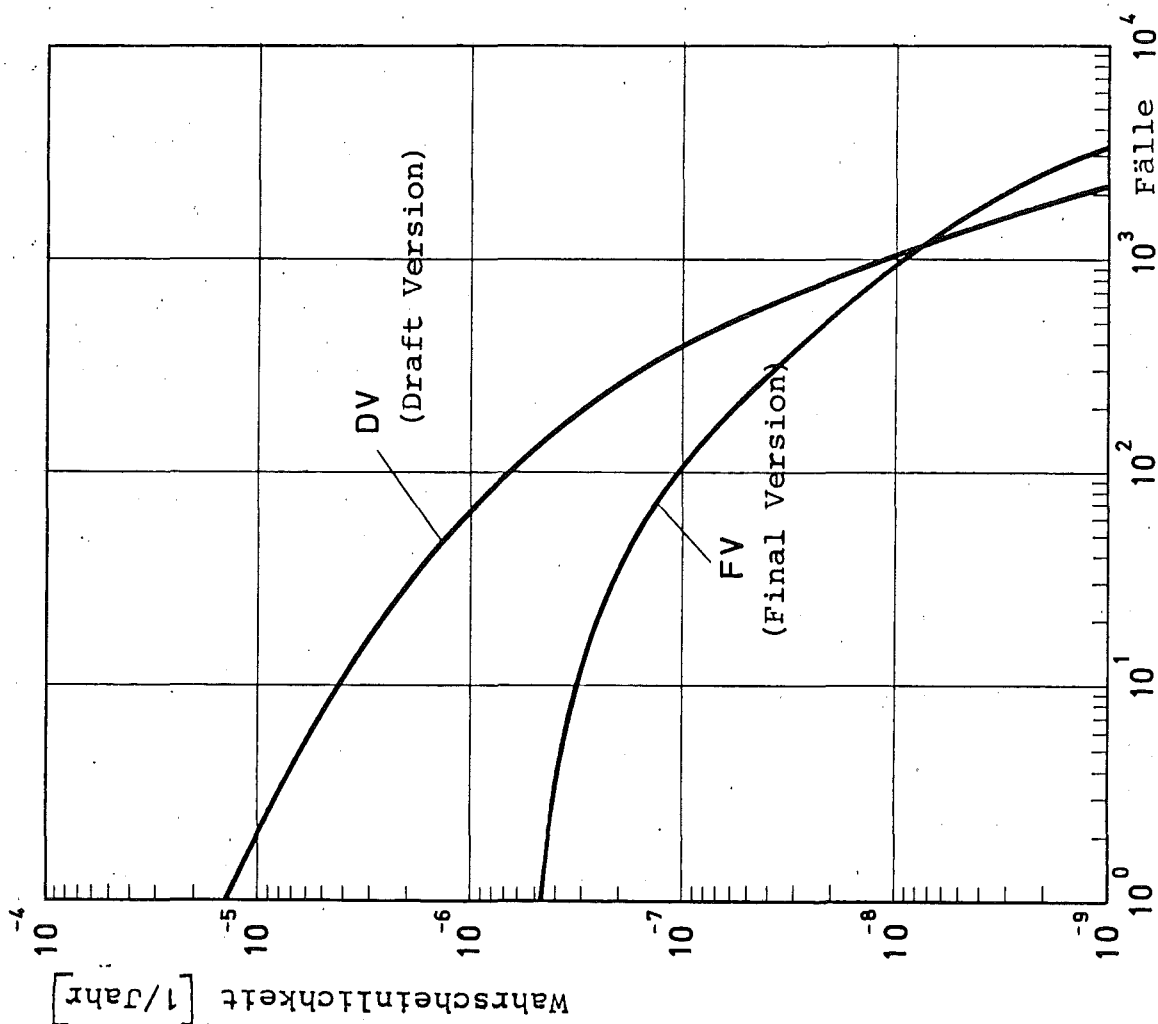


Abb. 4330-1: Populationschaden-Wahrscheinlichkeitsverteilung für akute Todesfälle

Tab. 4330-1: Vergleich der Erwartungswerte und der Maximalwerte der Schäden von Entwurfs- (DV) und Endfassung (FV) der Reactor Safety Study

Schadensart	Erwartungswerte [Fälle/Reaktorjahr]		Maximalwerte [Fälle]	
	DV	FV	DV	FV
Akute Todesfälle	$5 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-5}$	2300	3300
Akute Krankheiten	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-3}$	5600	45000
Verzögerte Krankheiten	$7 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-1}$	2800/a	8000/a
Todesfälle durch Krebs	$3 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-2}$	110/a	1500/a
Genetische Schäden	$3 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-3}$	106/a	170/a

Tab. 4330-2: Analyse der Darstellung der Reactor Safety Study

In dieser Arbeit zusammengestellte Größen	In der RSS verwendet	
	Draft Version	Final Version
Individualschaden (ortsabhängig)	-	XX
- Wahrscheinlichkeit	XX	XX
- Wahrscheinlichkeitsdichte	-	-
- Wahrscheinlichkeits- verteilung	-	-
- Erwartungswert (= Risiko)	-	-
Populationsschaden	-	-
- Wahrscheinlichkeit	XX	XX
- Wahrscheinlichkeitsdichte	X	X
- Wahrscheinlichkeits- verteilung	XX	XX
- Erwartungswert (= Risiko)	XX	XX

- = läßt sich der RSS nicht entnehmen

X = läßt sich aus den Angaben herleiten

XX = in der RSS angegeben

4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren

1. Entwicklung einer Dekontaminationspaste

(S. Kunze, ABRA)

Einleitung

Die entscheidende Verbesserung salzsäurefreier und salzsäurehaltiger Dekontaminationspasten konnte durch Versuche mit thermisch- und flußsäurestabilen, hochdispersen Barytmaterialien erreicht werden. Außerdem zeigte sich Ende 1975 nach Einsatz mehrerer selbsthergestellter 100-kg-Chargen in der Gerätedekontamination der ADB, daß die bereits lizenzierte Paste auf Titandioxid-Polyäthylenbasis Nachteile zeigte, und zwar waren einmal die dekontaminierten Teile nach der Behandlung besonders mit salzsäurehaltigen Pasten stärker als erwartet angegriffen, zum anderen bereitete das auf dem radioaktiven Abwasser schwimmende Polyäthylenpulver bei der Weiterbeförderung der Abwässer Schwierigkeiten.

Durchgeführte Arbeiten

Aufgrund dieser Gegebenheiten wurden im Berichtszeitraum Pasten auf Basis von Barytmaterialien mit geringer Tendenz zur Trennung der festen und flüssigen Phase entwickelt. Schwerpunkt der Arbeiten war es natürlich die Säurekonzentration, insbesondere den Anteil Salzsäure weiter herabzusetzen.

Die Reihenuntersuchungen wurden, wie in früheren Halbjahresberichten beschrieben, zuerst an autoklaven-kontaminierten Stahlproben, durchgeführt. Parallel dazu wurden die mit Pasten behandelten Stahlproben auf ihre Oberflächenveränderungen, untersucht. Abschließend wurde dann die Dekontaminationswirkung der geeignetsten Pasten an Materialien aus den Kernkraftwerken Lingen (KWL) und Obrigheim (KWO) getestet.

Erzielte Ergebnisse

1. Dekontamination

Ein Vergleich der Werte in Tab. 4411-1 zeigt, daß die Paste I mit dem höchsten Salzsäuregehalt die besten Dekontaminationsergebnisse liefert. Da die Dekontamination mit dieser Paste in der Praxis aber neben zu starkem Metalloberflächenangriff auch Probleme bei der Weiterbeförderung des radioaktiven Abwassers durch das spezifisch leichte Polyäthylenspulver bereitete, wurden günstigere Pastenzusammensetzungen gesucht.

Barytmaterialien enthaltende Pasten (III) ergaben an autoklavenkontaminierten Edelstahlproben bei Verwendung gleicher Säuremischungen im Vergleich zu Polyäthylen-Titandioxid-Pasten (II) regelmäßig erheblich bessere Dekontaminationswerte. Durch Änderung der Zusammensetzung der Grundsäuremischung wurde eine salzsäurefreie Paste hergestellt deren Dekontaminationswirkung erheblich gesteigert werden konnte (z.B. ^{60}Co = 5,7% Restaktivität nach 2 Stunden). Die Dekontamination von zerkleinerten Anlageteilen aus dem KWO und dem KWL verlief ähnlich Abb. 4411-1. (Ausführliche Beschreibung der Proben siehe nachfolgenden Bericht: Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzsäuremelzen).

Bei Pasten, die nur aus der Grundsäuremischung aufgebaut waren, war die Wirkung ungenügend, bei denen, die zusätzlich Salzsäure enthielten, wurden nach 2 Stunden Restaktivitäten $< 0,02\%$ erreicht; bei Verdoppelung der Salzsäuremenge sind die Proben bereits nach 90 Minuten vollständig dekontaminiert gewesen.

Bei Verwendung der Paste auf Basis "salzsäurefreie Säuremischung" (Abb. 4411-2) unterschied sich der Dekontaminationsverlauf von den Proben aus dem KWL und dem KWO, erreichte aber bei beiden Proben nach ca. 4,5 Stunden Behandlungsdauer Restaktivitäten $\leq 1\%$.

2. Oberflächenuntersuchungen

2.1 Oberflächenabtrag

Die Gewichtsverluste von austenitischen Stahlproben (1.4541) wurden nach Einwirkung von Pasten durch Wägung ermittelt. Die Ergebnisse (Tab. 4411-1) sind:

- A, Pasten auf Basis Barytmaterialien ergaben immer höhere Materialabtragungen als Pasten aus Polyäthylen- Titandioxid - Mischungen.
- B, Je höher der Salzsäuregehalt, desto größer ist der Abtrag.

2.2 Metallographische Untersuchungen

Zur Kontrolle der Oberflächenveränderungen durch den Dekontaminationsvorgang wurden die pastenbehandelten Proben nach metallographischer Präparation in 280 - und 1000-facher Vergrößerung aufgenommen. Auf den Aufnahmen ist zu erkennen, daß bei allen Pastenvarianten ein gleichmäßiger Abtrag erfolgt. Obwohl mit steigendem Salzsäuregehalt der Angriff an bestimmten Punkten zunimmt, ist bei den hier angewandten Salzsäurekonzentrationen noch kein Lochfraß zu erkennen.

Ausblick auf den geplanten Fortgang

Die Entwicklung von Dekontaminationspasten ist abgeschlossen. Nach Lieferung der ersten salzsäurefreien und salzsäurehaltigen Pasten der Lizenzfirma Collardin werden neben der Dekontaminationswirkung auch der Oberflächenangriff auf Edelmehle überprüft.

Mit der Entwicklung und Beschaffung einer Apparatur zum gleichmäßigen Auftragen der Paste auf Oberflächen wurde die Fa. Kraftanlagen Heidelberg beauftragt.

2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschnelzen

(D. Hentschel, ABRA)

Einleitung

In den vorangegangenen Berichten wurde beschrieben, daß Salzschnelzen, insbesondere die des Kaliumdihydrogenphosphats, zur Dekontamination von Edelmehlproben, die in einem Autoklaven mit einer Nuklidgemischlösung behandelt worden waren, geeignet sind. Weiterhin konnte mit einer Laborapparatur demonstriert werden, daß man ebenfalls gute Dekontaminations-

ergebnisse erhält, wenn das geschmolzene Salz in einer dünnen Schicht auf das Werkstück aufgebracht wird, was eine Reduzierung des radioaktiven Abfalls bedeutet. Vor der technischen Realisierung einer entsprechenden Anlage mußte nun noch der Nachweis erbracht werden, daß das Verfahren geeignet ist, Reaktorkomponenten zu dekontaminieren.

Experimentelles

Für die entsprechenden Versuche wurden uns Materialien aus Reaktorkomponenten der Kernkraftwerke Obrigheim (KWO) und Lingen (KWL) zur Verfügung gestellt. Die Herkunft und der Werkstoff sowie die Vorbehandlung der KWO-Proben war unbekannt. KWL übersandte uns Teile der Kondensatablaufrohre (Werkstoff 1.4550) aus dem Dampfumformer. Die Proben aus KWO hatten die Größe 22 x 12 x 5 mm; die kontaminierte Seite (22 x 12) sah schwarz aus und war rau. Aus den KWL-Rohren wurden aus meßtechnischen Gründen Segmente der Größe ca. 35 x 45 mm (Stärke 20 mm) herausgeschnitten. Die kontaminierte Rohrrinnenfläche war dunkelgrau und glatt. Vor den Versuchen wurden die Proben von locker anhaftendem Material mit Alkohol befreit. Da es auch ein Ziel war, Aussagen über den absoluten Aktivitätsabtrag bei der Dekontamination zu treffen, wurde in Parallelversuchen die anhaftende Aktivität bestimmt, indem die Impulsrate in einer definierten Geometrie gemessen wurde. Nach Ablösen der Aktivität mit Salzsäure konnte diese dann in der Lösung ermittelt werden. Durch Vergleich der Impulsraten der Dekontaminationsproben mit der der Eichproben ließ sich für jeden Versuch die Oberflächenaktivität errechnen.

Die Dekontaminationsversuche wurden wie früher beschrieben durchgeführt und zwar wurde nach Bestimmung der Anfangsaktivität die Salzsäure 15 Minuten lang auf die erwärmte, kontaminierte Oberfläche einwirken gelassen, danach das Salz mit Wasser abgelöst und die Probe wiederum gemessen. Dieser Arbeitsgang wurde solange wiederholt bis die Restaktivität < 10% der Anfangskapazität war. Als Schmelzen kamen Kaliumdihydrogenphosphat und Natriumperoxid zur Anwendung. Die eingesetzten Wärmequellen waren Heißluft (KWO-Proben) und eine Acetylen-/Sauerstoffflamme bzw. Bunsenbrenner bei den KWL Proben. Dies war notwendig, da bei diesen Proben aufgrund der durch die Probengröße bedingten hohen Wärmekapazität Heißluft zur Erwärmung der Proben nicht ausreichend war.

Ergebnisse

Die Versuche zur Aktivitätsbestimmung ergaben, daß sich im wesentlichen nur ^{60}Co als γ -Strahler auf der Oberfläche befand. Die Aktivität betrug ca. $1,3\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ auf den KWO-Proben; bei den KWL Proben lag sie ebenfalls in der Größenordnung aber schwankte um diesen Wert. Die Ergebnisse der Dekontaminationsversuche mit der KH_2PO_4 -Schmelze sind der Abbildung 4411-3, Restaktivität gegen Einwirkzeit, zu entnehmen. Im Vergleich zu den Reaktorproben ist der Dekontaminationsablauf bei Proben, die im Autoklaven kontaminiert wurden, eingezeichnet. Aus dem Diagramm ist ersichtlich, daß man bei den Reaktorproben längere Einwirkzeiten benötigt als bei im Autoklaven kontaminierten, um Restaktivitäten in der gleichen Größenordnung zu erzielen. Bei den KWO-Proben konnten Werte von ca. 5% nach 2 Stunden, bei den KWL-Proben ca. 1% nach einer Stunde erhalten werden. Dies entspricht einer Endaktivität von etwa 100 bzw. 10 nCi/cm^2 . Das Aussehen war nach der Behandlung mattgrau. Die Versuche mit geschmolzenem Natriumperoxid als Dekontaminationsmittel ergaben, daß sich auch damit nach 1 Stunde Einwirkzeit (s. Abb. 4411-3) Restaktivitäten $< 1\%$ an KWL Proben erzielen lassen. Um jedoch hierbei blanke Oberflächen zu erhalten, ist eine Nachbehandlung mit Salpetersäure erforderlich.

Mit diesen Versuchsergebnissen wurde der Nachweis erbracht, daß das Salzschmelzverfahren in der vorliegenden Form zur Dekontamination geeignet ist.

Ausblick auf den weiteren Fortgang

Die Laborversuche sind nunmehr abgeschlossen. Für die technische Realisierung einer Anlage zum Auftragen der Schmelze in dünnen Schichten wurden zunächst die Erfahrungen mit der Laborapparatur schriftlich niedergelegt. Mit der Planung und Beschaffung wurde die Fa. Kraftanlagen Heidelberg betraut. Die ersten Kontakte mit Zulieferfirmen hinsichtlich der Heizung und der Dosierung sind aufgenommen. Eventuell notwendige Versuche werden bei ABRA durchgeführt.

Dekontaminationsergebnisse mit Pasten an im Autoklaven radioaktiv kontaminierten austenitischen Stahlproben(1.4541)

Pastenaufbau	Restaktivität in % nach						Abtrag mg/dm ² h
	1 Stunde			2 Stunden			
	Ce-144	Ru-106	Co-60	Ce-144	Ru-106	Co-60	
<u>I. Polyäthylen-Titandioxid mit optimaler Säuremischung</u>							
15 Gew.% HNO ₃ + 3 Gew.% HF+ 4,5 Gew.% HCl	0,1	1,2	0,7	0,01	0,01	0,1	1604
<u>II. Polyäthylen-Titandioxid und Grundsäuremischung *</u>	75,0	89,5	90,3	70,0	80,3	81,4	92
" " + 1,125 Gew.% HCl	72,1	82,9	76,3	66,1	64,8	70,3	811
" " + 2,25 Gew.% HCl	55,0	82,1	66,4	40,3	20,8	19,9	1249
<u>III. hochdisperses Barylmaterial und Grundsäuremischung *</u>	39,4	85,2	49,1	37,9	80,1	44,1	162
" " + 1,125 Gew.% HCl	5,5	4,3	6,8	0,6	0,9	0,8	1186
+ 2,25 Gew.% HCl	2,2	2,1	2,3	0,3	0,8	0,5	1435
salzsäurefreie Säuremischung	25,6	48,7	20,6	7,9	14,8	5,7	534

* Grundsäuremischung: 12,5 Gew.% HNO₃ + 2,5 Gew.% HF + Rest Wasser.

Abb.
4411-1

Abnahme der ^{60}Co -Aktivität von in Reaktoren kontaminiertem austenitischem Stahl

— Pastenzusammensetzung siehe Tabelle —

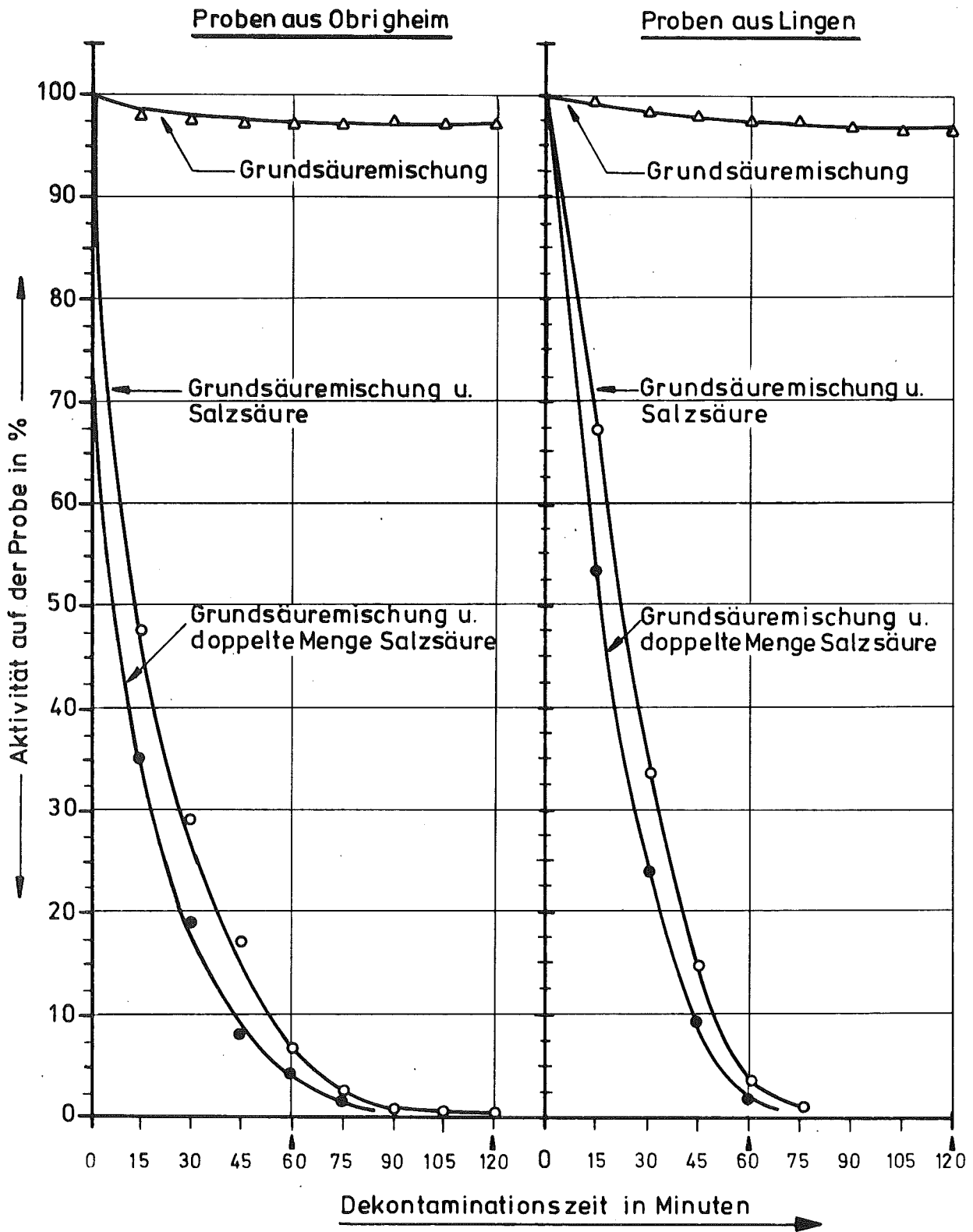


Abb.
4411-2

Abnahme der ^{60}Co -Aktivität von in Reaktoren
kontaminiertem austenitischem Stahl

— Salzsäurefreie Pasten —

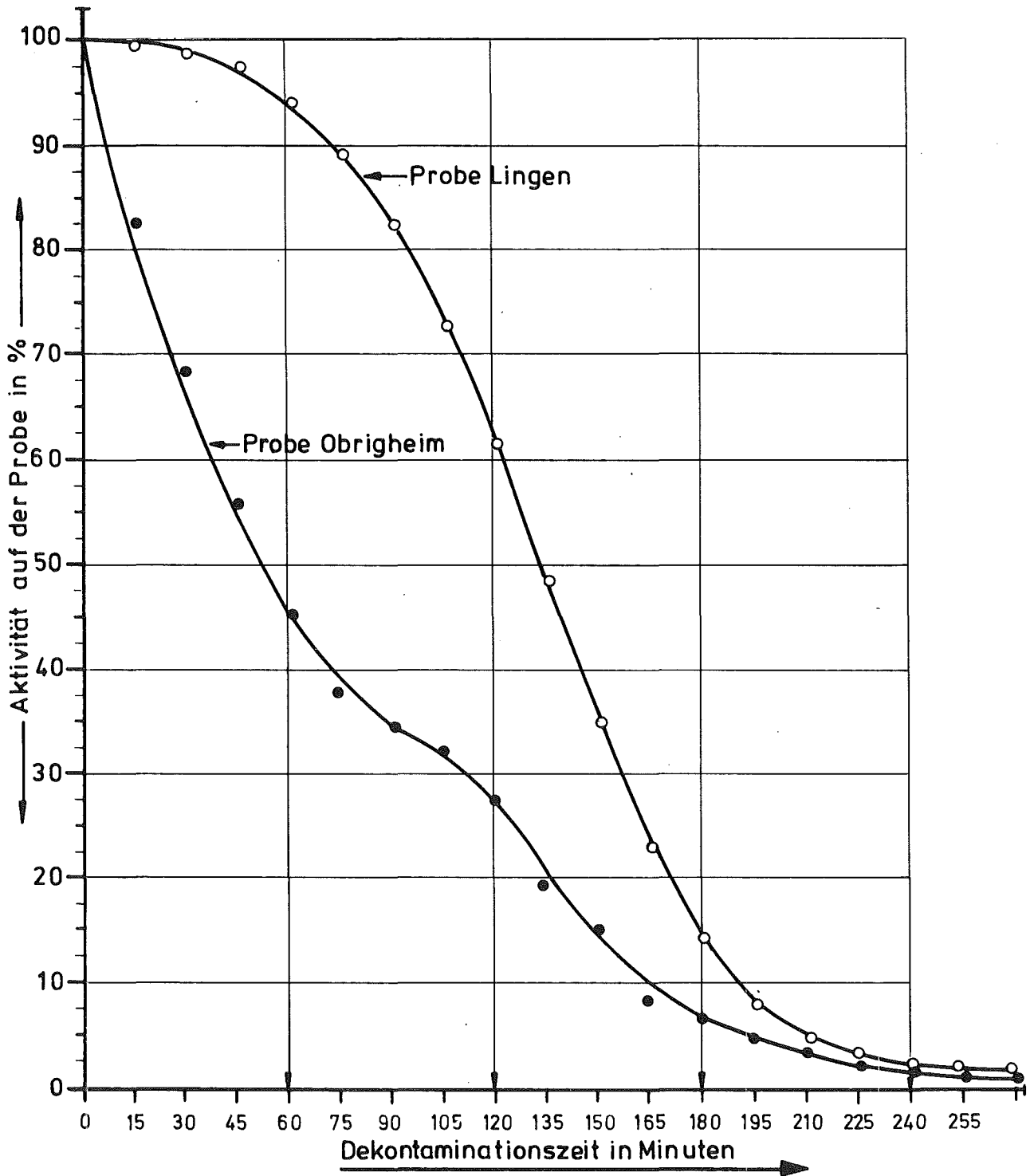
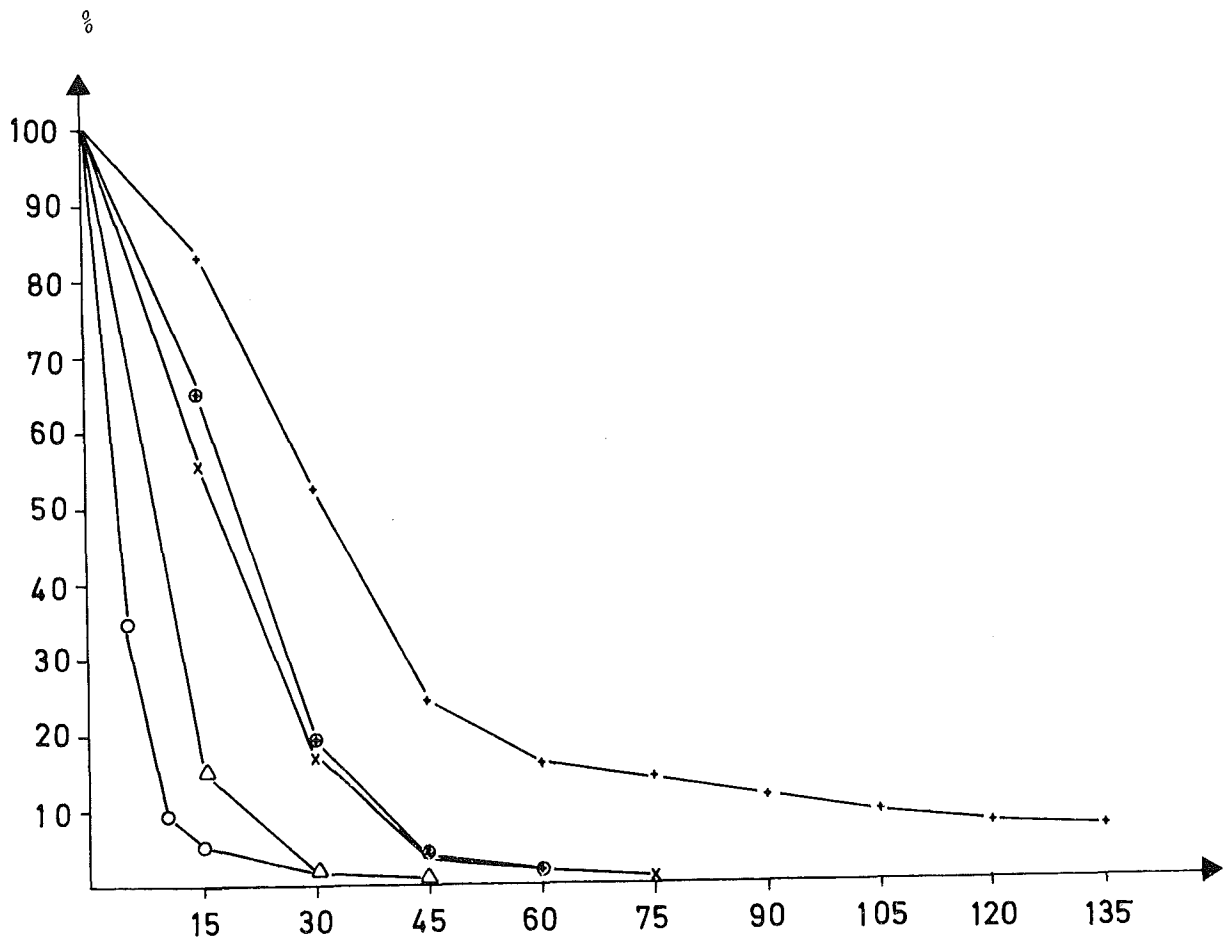


Abb. 4411-3:

Abnahme der ^{60}Co -Aktivität in Abhängigkeit von der Einwirkzeit bei der Dekontamination von Proben aus Reaktorkomponenten mit Salzschmelzen

- ◆ Probe aus KWO, Dekontam. mit KH_2PO_4 , Anfangs-A = $1,3 \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$
- ▲ Proben aus KWL, " " " " A = $1,7 \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$
- × Proben aus KWL, " " " " A = $1,2 \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$
- ⊙ Probe aus KWL, " " Na_2O_2 , " A " $1,2 \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$
- Probe im Autoklaven kontaminiert, Dekontam. mit KH_2PO_4

Restaktivität



4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241)
im Boden und in geologischen Formationen

Wanderung langlebiger Transurane

(A. Jakubick, ABRA)

Zu den Nachteilen der quantitativen Daten über Nuklidwanderung, die an Labormodellen gewonnen werden, zählt die Tatsache, daß sie nur bedingt auf die Verhältnisse im Gelände übertragbar sind. Da unter natürlichen Verhältnissen selbstverständlich keine Experimente mit Transuranen möglich sind, gewinnt in diesem Zusammenhang die Untersuchung der Verteilung des Fallout-Plutoniums an Bedeutung. Es wird versucht werden, die Gesetzmäßigkeit dieser Verteilung mit Laborergebnissen, die ähnliche Verhältnisse simulieren, in eine konstante Beziehung zu setzen. Dadurch erhält man ein Übertragungsverhältnis auch für Experimente, die nur unter anderen Randbedingungen im Labor durchgeführt werden können.

Durchgeführte Arbeiten

Für den späteren Vergleich mit Labordaten wurde mit der Bestimmung der Verteilung des Fallout-Plutoniums im Boden begonnen.

Als erstes mußte dazu der Plutonium-Input aus der Luft ermittelt werden. Da über die Ablagerung von Plutonium nur sehr lückenhafte Messungen existieren, kann man versuchen, diese Daten aus der Konzentration die in der Luft gemessen wurden, abzuleiten. Zur Verfügung standen Messungen des II. Physikalischen Instituts in Heidelberg aus den Jahren 1967 und 1968. Eine weitere Station, an der systematische Messungen seit 1958 erfolgten, ist Ispra in Italien. Zwischen beiden Stationen konnte eine lineare Korrelation gefunden werden. Mit Hilfe dieser Beziehung wurde der Verlauf der Plutonium-Konzentration in der Luft für den Raum Heidelberg rekonstruiert. Zur Bestimmung der Ablagerungen waren jedoch die

Ablagerungsraten sowohl des Naß- wie auch des Trocken-Fallouts erforderlich. Durch eine empirische Beziehung zur Niederschlagshöhe und Luftkonzentration konnten die Ablagerungsraten des Naß-Fallouts berechnet werden. Für die Ablagerungsrate des Trocken-Fallouts wurde eine lineare Abhängigkeit von der Plutonium-Konzentration in der Luft und von der Ablagerungsgeschwindigkeit von 0,5 cm/a angenommen. Die Summe der Integrale des Naß- bzw- Trocken-Fallouts ergab die Gesamtablagerung über den gewünschten Zeitraum.

Anschließend mußten geeignete Stellen zur Entnahme von Bodenproben gefunden werden. Diese Aufgabe war durch spezifische Anforderungen an den Standort erschwert. Sie mußten:

- in der Umgebung von Heidelberg liegen,
- seit mindestens 20 Jahren brach liegen,
- ohne Bäume oder Gebüsch sein, möglichst nur mit Grasbewuchs
- eben sein und kein grösseres Gefälle aufweisen.

Zur ersten Probeentnahme wurde ein Standort in der Rheinebene südlich von Heidelberg ausgewählt. Er befindet sich zwischen den Ortschaften Schwetzingen (4 km SO) und Sandhausen (3 km NW) auf dem Golfplatz von Heidelberg mit gut gepflegtem Grasbewuchs und Gebüsch. Die Höhe über NN ist 102 m. Die Entnahmefläche liegt in der Landschaft eben. Die Bodenoberfläche wies im Mikrorelief Höhenunterschiede von ca. 5 cm auf. Die Landschafts-Hydrologie wird von der Lage der Entnahmefläche zwischen einer fossilen Düne in NO und einem flachen Waldgebiet im S bestimmt. Die Entfernung von der Flanke der Düne ist ca. 100 m, von der Kante ca. 500 m. Der Kiefernwald ist 20 bis 35 m weit entfernt. Der Grundwasserspiegel schwankt unterhalb der Entnahmefläche zwischen 305 bis 380 cm. Das Bodenprofil ist auf lockeren Sedimenten entstanden. Es handelt sich um einen sandigen Rohboden.

Auf der Probenentnahmestelle wurde die Vegetation auf 2 bis 3 cm abgeschnitten und ein länglicher Schacht (L: 90 cm; B: 60 cm; T: 60 cm) ausgegraben. Eine Wand wurde vertikal zur Oberfläche geglättet. Von dieser Wand aus wurden dann 2 cm dicke Schichten abgetragen.

Im Labor wurden die Bodenproben 3 Tage an der Luft getrocknet und danach die Bodenaggregate zerlegt. Die Vegetationsreste wurden kleingeschnitten und homogen im übrigen Material verteilt. Die trockenen Proben wurden gewogen und von größeren Steinen befreit. Anschließend mußte jede Bodenprobe gemahlen, gemischt, quartiert, pulverisiert und wieder gemischt werden. Bei den einzelnen Prozeduren war äußerste Sorgfalt notwendig, damit es durch Memory-Effekte zu keiner Kontaminationsverschleppung und durch Aerosolbildung zu keiner zusätzlichen Querkontamination der low-level-Proben kommt.

Erzielte Ergebnisse

Die Berechnung des Pu-Inputs in den Boden ergab für die Umgebung von Heidelberg die folgende kumulative Ablagerung:

Jahr	1954	1955	1956	1957	1958	1959
kum. Pu-Ablagerung {mCi/km ² }	0,066	0,14	0,25	0,37	0,53	0,79

Jahr	1960	1961	1962	1963	1964	1965
kum. Pu-Ablagerung {mCi/km ² }	0,82	0,85	0,91	1,61	2,09	2,32

Jahr	1966	1967	1968	1969	1970	1971
kum. Pu-Ablagerung {mCi/km ² }	2,39	2,41	2,48	2,51	2,54	2,57

Die Auswertung der Unterlagen und die Besichtigung der Standorte erbrachte insgesamt zehn geeignete Entnahmestellen. Für die Probenentnahme zur Pu-Bestimmung wurde ein Standort mit Bodenverhältnissen ausgewählt, in denen man hinsichtlich der Aktivitätsverschleppung relativ gefahrlos arbeiten konnte.

Bodenprofil: 0 bis 10 cm Oberboden. Mit organischer Substanz
vermischter feiner Sand;
10 bis 40 cm Homogener, lockerer hellfarbiger
Feinsand;
40 bis 200 cm Dunkelbrauner Mittel- bis Grobsand;

Die oberen 10 cm waren dicht durchwurzelt.

Bei der Probenahme wurde so verfahren, daß das Gewicht und die Tiefe des Bodenmaterials direkt in Beziehung zur Fläche gesetzt werden konnten. Vorläufige Messungen der ersten Proben zeigen eine Pu-239, 240-Konzentration von:

Tiefe im Profil in cm	Pu-239, 240 - Konzentration in zpm/g
0 - 2 cm	0,029 \pm 0,002
2 - 4 cm	0,024 \pm 0,001
4 - 6 cm	0,011 \pm 0,001
6 - 8 cm	0,007 \pm 0,001

Ausblick auf den geplanten, weiteren Fortgang

Die Feldarbeiten werden fortgesetzt, bis reproduzierbare Angaben zur Verteilung des Fallout-Plutoniums zur Verfügung stehen. Dabei ist geplant verschiedene Bodensorten zu entnehmen, um einen Vergleich der unterschiedlichen Verteilungsprofile vornehmen zu können. Mit diesen Daten wird dann die mittlere Verweilzeit von PuO₂ in den definierten Bodenschichten berechnet.

Für die Laborarbeiten ist eine Handschuhboxenlinie im Aufbau. Die Inbetriebnahme ist für den Herbst 1976 vorgesehen.

4420 Technik der Störfallfolgenbeseitigung und
Stillegung

4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stillegung
und Entbeseitigung nuklearer Anlagen

(G.W. Köhler, J. Weppner, RBT)

In Fortführung der in den PNS-Arbeitsberichten (unveröffentlicht) niedergelegten Untersuchungen zur Konditionierung von Reaktorgroßkomponenten wurden eine Reihe von Teilgebieten vertieft behandelt und einige bisher noch nicht diskutierte Punkte erstmals bearbeitet.

1. Vervollständigung der Anlagenpläne;
mögliche Standorte auf dem KKW-Gelände

Nach dem derzeitigen Stand der Kenntnisse über Transportmöglichkeiten von Großkomponenten ist eine Konditionierung vor Ort, d.h. am Standort der KKW, der Konditionierung in einer zentralen Anlage vorzuziehen, wobei die Anlage entweder unmittelbar neben dem Reaktorgebäude stehen kann (nur bei der Stillegung sinnvoll) oder aber in einiger Entfernung von diesem. Um den Vorteil eines bereits zur Verfügung stehenden und abgegrenzten Geländes zu nutzen und zur Erzielung kurzer Transportwege, sollte die Konditionierungsanlage noch auf dem KKW-Gelände stationiert werden, zu dem sollten vorhandene Schienenstränge weitgehend beim Komponententransport mit benutzbar sein.

Wie eine Untersuchung ergab, ist eine Unterbringung einer solchen Anlage auf dem KKW-Gelände bei allen neueren LWR möglich.

Durch Ergänzung der Anlagenpläne um die Behandlungsstraße für SA-Komponenten sowie ein Hilfsgebäude mit den Sozialräumen, den Abwassertanks, Strahlenschutz und Betriebslabors usw. wurde die Anlage vervollständigt (Abb. 4421-1).

Es zeigte sich, daß auch mit solch einer mobilen bzw. teilmobilen Bauweise allen Anforderungen, die an eine Konditionierungsanlage zu stellen sind wie z.B. gute Durchführbarkeit der Zerlegearbeiten, Beherrschung der Kontamination bei Ein- und Ausschleusung, Schutz des Personals usw. nachzukommen ist.

2. Ausbau von Großkomponenten, Dekontamination und Transport im Reaktorgebäude

Einige Varianten von Ausbau, Dekontamination, Zerlegung, Abschirmung, Verpackung und Transport wurden in Abhängigkeit von verschiedenen Randbedingungen wie z.B. Komponentengröße, Höhe der Kontamination und Aktivierung der Komponenten, Dekontaminationsmöglichkeiten, räumliche Gegebenheiten usw. untersucht, wobei von einer geplanten Stilllegung bzw. einem geplanten Komponententausch ausgegangen wurde.

Es zeigte sich, daß der Komponenten-Ausbau aus dem Reaktor-Gebäude besonders bei Komponenten mit langer Betriebsdauer und damit möglicher hoher Dosisleistung (RDB bis ca. 10 000 R/h) besondere Probleme bereiten kann, wenn entweder eine Teilzerlegung im Reaktorgebäude erforderlich ist, oder aber ein nicht weniger aufwendiger fernbedienter und fernbeobachteter Transport im Reaktorgebäude.

Insbesondere erfordert die Teilzerlegung einer Komponente im Reaktorgebäude wegen des hohen Kontaminationsrisikos einen großen Aufwand an Hilfsvorrichtungen wie z.B. Schutzzelte, Absaugung und Filtration, Abschirmungen, fernbediente Schneidvorrichtungen usw.

Vier der möglichen Varianten von Ausbau, Zerlegung, Abschirmung und Transport seien hier kurz angeführt:

- a) Teilzerlegung der Komponente (im RDB oder im BE-Lagerbecken), Transport der Teilstücke im Abschirmbehälter
- b) Transport der unzerlegten Komponente im Abschirmbehälter
- c) Teilzerlegung der Komponente, fernbedienter Transport ohne Abschirmung
- d) Fernbedienter Transport der unzerlegten, unabgeschirmten Komponente.

Um die Dosisleistung der auszubauenden Komponenten zu verringern, bieten sich im wesentlichen zwei Möglichkeiten an.

Sollte der überwiegende Strahlungsanteil von Radionukliden mit Halbwertszeiten im Bereich von wenigen Stunden oder Tagen kommen, wird man mit dem Beginn der Demontagearbeiten einige Wochen warten.

Zum anderen besteht bei nahezu ausschließlich kontaminierten Komponenten die Möglichkeit einer Innendekontamination, bei der jedoch - im Falle eines Komponentenaustausches - im Gegensatz zur Stilllegung - einige Punkte zu beachten sind.

3. Zerlegemethoden und -verfahren

Komponentengröße und -gewichte, sowie die Wanddicken und die Werkstoffauswahl begrenzen die Anzahl sinnvoll anzuwendender Zerlegeverfahren auf wenige, von denen bei der Erstzerlegung die thermischen Trennverfahren wie Plasmaschmelzschnitten und autogenes Brennschneiden als am besten geeignet erscheinen.

Mechanische Trennwerkzeuge wie Kreissägen und Schrottscheren sind bei der weiteren Zerlegung der Komponenten einsetzbar.

Zu einer kompletten Schneidanlage für die in der Regel zylindrischen Reaktorgroßkomponenten gehören neben den Brennern mit Versorgungsteil und Schlauchleitungen auch eine Führungsvorrichtung bzw. Halterung für den Brenner und eine Vorrichtung zur Lagerung bzw. Führung der Großkomponente am Brenner entlang. Unter der Voraussetzung, daß ein Überkopfschneiden mit dem eingesetzten Brenner möglich ist, kann bei der Zerlegung mit starren Böcken zur Auflagerung der Komponente und mit Schneidmotoren (für den Brennevorschub) und Führungshilfen für den Brenner gearbeitet werden.

Die abgetrennten zylindrischen Ringe können dann durch Schnitte entlang der Mantellinien weiter zerlegt werden.

Dabei kann ebenfalls mit Führungsvorrichtungen oder aber mit einem Manipulator und Brennerwagen gearbeitet werden.

Wenn ein Schneidverfahren gewählt wird, bei dem Überkopfschneiden nicht möglich ist, so wäre grundsätzlich die vertikale Lagerung der Komponente denkbar, was allerdings erhöhten Aufwand durch die notwendige größere Bauhöhe der Zerlegezelle und durch das Wenden der Komponente in die horizontale Lage bedeutet, oder aber die Komponente wird auf Rollenböcken gelagert und damit beim Trennen an den fest montierten Brenner entlang geführt.

4. Verladen der Komponente, Transport auf dem KKW-Gelände, Abladen und Einschleusen

Beim Verladen der Komponente gelten die gleichen Randbedingungen wie beim Transport innerhalb des KKW, d.h. es ist entweder ein fernbedientes und ferngesteuertes Arbeiten nötig, oder aber die Komponente befindet sich bereits in einem Abschirmbehälter, was das Arbeiten vor Ort ohne zusätzlichen Schutz ermöglichen würde.

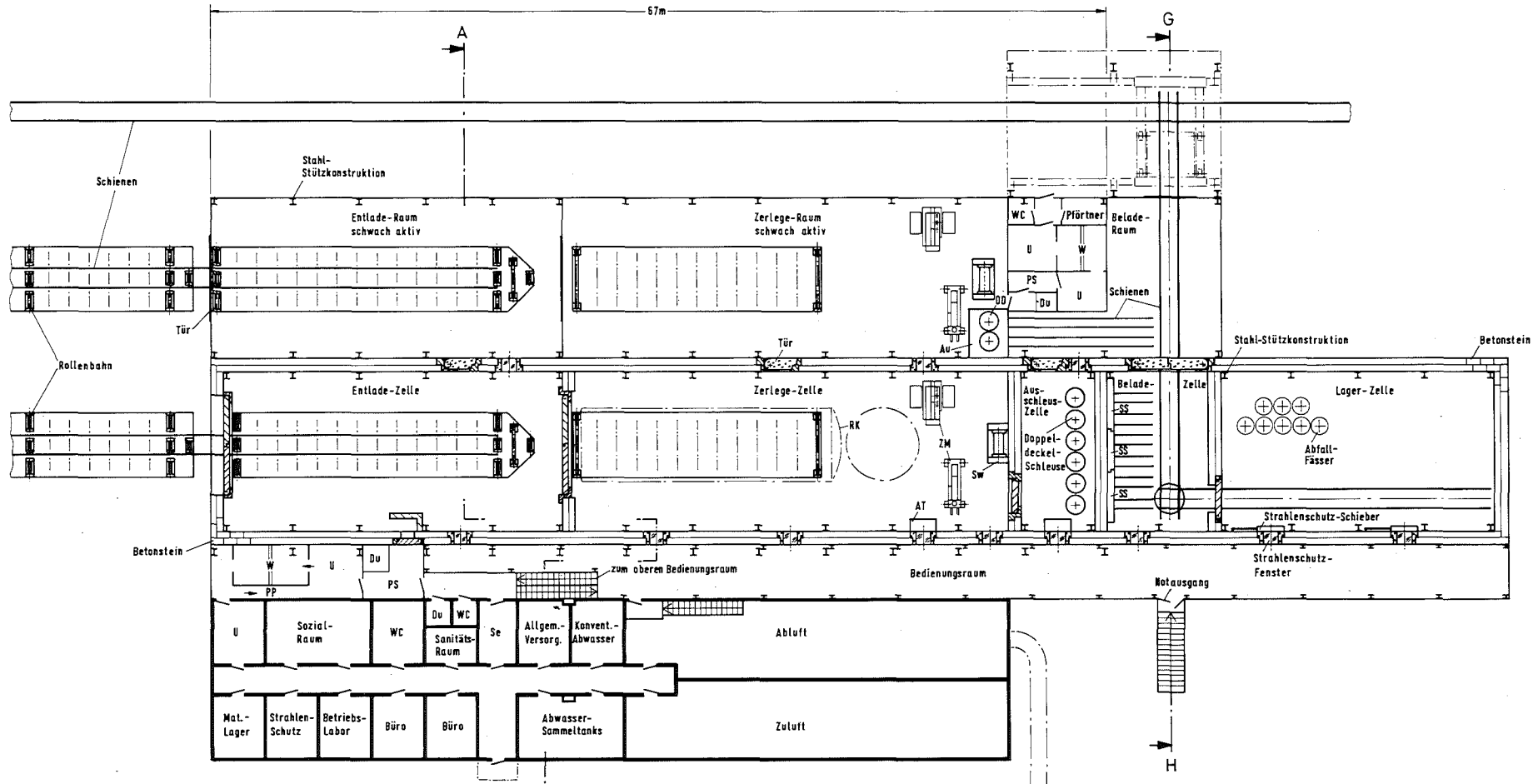
Der Transport der Komponente vom Reaktorgebäude zur Konditionierungsanlage erfolgt zweckmäßigerweise auf der Schiene (z.B. Plattformwagen), wobei sich in der Regel bereits vorhandene Schienenstrecken mit benutzen lassen.

Das Verladen in der Entladezelle und das Einschleusen in die Zerlegezelle richtet sich in erster Linie nach der angewandten Zerlegemethode.

Ist ein Überkopfschneiden möglich, würde man die Komponente bereits beim Verladen am Reaktorgebäude auf eine Palette absetzen. Komponente und Palette könnten dann auf einer Rollenbahn von der Entladezelle in die Zerlegezelle transportiert werden, wo die Palette des geforderten Einwegtransportes wegen mitverschrottet werden müßte.

Bei der Verwendung von Rollenböcken müßte die Komponente ohne Palette in die Zerlegezelle eingeschleust werden, z.B. auf einer Rollenbahn mit verstellbaren äußeren Rollen, würde dort von den hydraulisch oder mechanisch verstellbaren Rollenböcken übernommen und einige cm angehoben, um ein freies Drehen der Komponente zu ermöglichen.

Ebenso ist zum Entladen und Einschleusen in die Zerlegezelle die Benutzung von zwei Hallenkranen möglich, jedoch ist hierbei der zu fordernde Einwegtransport nicht einzuhalten, so daß eine Verschleppung von Kontamination von der in der Regel stark kontaminierten Zerlegezelle in die Verladezelle nicht auszuschließen ist.



-518-

Abb. 4421-1 Konditionierungsanlage für Großkomponenten (vor Ort).

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1976

8. Halbjahresbericht/ 2. Halbjahr 1975

KFK 2262, Juni 1975

W. Hübschmann, S. Vogt,

Strahlenrisiken in der Umgebung von Kernkraftwerken nach störfallbe-
dingten Aktivitätsemissionen,

KTG-Fachtagung "Spaltproduktfreisetzung bei Reaktorstörfällen,

1./2. Juni 1976 in Karlsruhe

H. Albrecht,

Aktivitätsfreisetzung beim Coreschmelzen - Aussagen des Rasmussen-
Reports und kritische Stellungnahme dazu

KTG-Fachtagung dto.

H. Albrecht, W. Krause, H. Wild,

Versuche zur Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim
Coreschmelzen,

KTG-Fachtagung dto.

S. Kunze, T. Dippel, D. Hentschel,

Dekontaminierbarkeitsprüfungen an Schutzschichten,

Kerntechnik, 18, 11 (1976), S. 495-497

S. Kunze,

Dekontaminierbare Fußbodenmaterialien für Kernkraftwerke

Atom + Strom, 22, Juli/Aug. 1976, Heft 4, S. 105-108

D. Barschdorff, G. Class, R. Löffel, J. Reimann,

Mass Flow Measuring Techniques in Transient Two Phase flow

Specialists' Meeting on Transient Two Phase Flow,

OECD/NEA, Toronto (Canada), Aug. 3/4, 1976

P. Thomas, W. Hübschmann, L.A. König, H. Schüttelkopf, S. Vogt, M. Winter,

Experimental Determination of the Atmospheric Dispersion Parameters
over Rough Terrain, Part 1

Measurements at the Karlsruhe Nuclear Research Center

KFK 2285, Juli 1976

P. Thomas, K. Nester,
Experimental Determination of the Atmospheric Dispersion Parameters
over Rough Terrain, Part 2
Evaluation of Measurements,
Juni 1976, KFK 2286

Z.R. Martinson, G.W. Cawood, S. Dagbjartsson,
Power Cooling Mismatch Test Series Test PCM-3
TFBP-TR 129, July 1976

P. Hofmann,
Reaktions- und Schmelzverhalten der LWR-Corekomponenten UO_2 ,
Zircaloy und Stahl während der Abschmelzperiode,
KFK 2220, Juli 1976

M. Reimann,
Analytische Untersuchungen von Gasströmungen in Ringspalten beim
Aufblähvorgang von Zircaloy-Hüllrohren, KFK 2280, Mai 1976

A. Bayer, R. Kalckbrenner, M. Schückler,
Zukünftige radiologische Belastung durch kerntechnische Anlagen im
Einzugsgebiet des Oberrheins
Teil I: Belastung über den Luftweg
Reaktortagung Düsseldorf 1976, ZAED Leopoldshafen 1976, S. 727

M. Schückler, R. Kalckbrenner, A. Bayer,
Zukünftige radiologische Belastung durch kerntechnische Anlagen im
Einzugsgebiet des Oberrheins
Teil II: Belastung über den Wasserweg
Reaktortagung Düsseldorf 1976, ZAED Leopoldshafen 1976, S. 723

D. Barschdorff, E. Wolf,
Infrarot-Meßtechnik für Zweiphasen-Mehrkomponenten-Massenströme,
Vortrag auf der KTG-Fachtagung "Experimentiertechnik auf dem Gebiet
der Reaktorfluiddynamik" vom 10. - 12.3.1976 in Berlin

Interne Projektberichte (beschränkter Verteiler)

G. Haury, C. Sack, W. Schöck,

Modelltheoretische und experimentelle Arbeiten zum Partikelabbau
in der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments,

1. Zwischenbericht

Jan. 1976

H. Dilger, W. Hübschmann, S. Vogt,

Teilanalyse der "Reactor Safety Study": das Modell der atmosphärischen
Ausbreitung und die Berechnung gesundheitlicher Schäden

Jan. 1976

A. Bayer, M. Schückler,

Möglichkeiten der Darstellung von Schaden und Risiko unter Berück-
sichtigung der Methode der "Reactor Safety Study" (Rasmussen-Studie)

März 1976

M. Reimann,

Analytische Untersuchungen von Spaltströmungen beim Aufblähvorgang

Febr. 1976

F. Erbacher,

Out-of-pile-Versuche zum Aufblähvorgang von Zircaloy-Brennstabhüllen
in der Niederdruckphase eines KVV

Febr. 1976

M. Schückler,

Analyse und Gegenüberstellung der Modelle zur Berechnung der Schäden
von Reaktorunfällen in der Entwurfsfassung und der endgültigen Fassung
der "Reactor Safety Study" (Rasmussen-Studie)

März 1976

H. Albrecht,

Aktivitätsfreisetzung aus dem Primärsystem bei einem LWR-Coreschmelzen-
unfall. Eine kritische Stellungnahme zu den Aussagen der Rasmussen-
Studie (WASH 1400)

Juli 1976

T. Vollmer, K. Hain,

Entwicklung eines elektrisch beheizten Simulationsbrennstabes,

Teil 2: Untersuchungen über die Einsatzmöglichkeiten von UO_2 -
und Al_2O_3 -Ringpellets

März 1976

W. Sengpiel,

Nachrechnung des Semiscale Blowdown-Experiments 1011 (auf Standard
Problem 2) mit RELAP 4

Jan. 1976

H. John, J. Reimann,

Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener
Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren,

Aufbau des Versuchsstandes, Vorarbeiten zur Phasenidentifikation,

Febr. 1976

S. Malang u.a.,

Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden
auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststör-
falles, Statusbericht 2. Halbjahr 1975

Febr. 1976

P. Ihle, U. Harten,

Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die
Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles,

Pflichtenliste PNS 4239 zur Meßdatenübertragung und -verarbeitung durch
CALAS,

Januar 1976

U. Schumann,

Ergänzende Untersuchungen zur Enthalpie-Schichtung im HDR-Druckbehälter,

Febr. 1976

H. Mösinger, E.G. Schlechtendahl, U. Schumann,

Über die Regelung der Strömungsführung am HDR,

Febr. 1976

U. Schumann,
Stabilität der Enthalpie-Schichtung im HDR-Ringraum,
Jan. 1976

H. Mösinger,
Abschätzungen der Stützwirkung von Wasser auf die Aufweitung des
HDR-Kernmantels,
Jan. 1976

R. Krieg, B. Laursen,
Auslegung des Kernmantels und der Kernmanteleinspannung für die
DWR-Blowdown-Versuche am HDR-Reaktor, Transiente Analyse,
Jan. 1976

R. Krieg,
Methoden zur numerischen Behandlung gekoppelter Fluid-Struktur-
dynamischer Probleme,
März 1976

R. Krieg, A. Ludwig,
Ein analytisches Näherungsverfahren zur Bestimmung der Radialver-
schiebungen für eine linear elastische, einseitig eingespannte Kreis-
zylinderschale unter nichtrotationssymmetrischer dynamischer Belastung,
März 1976

U. Marek, U. Schumann,
LAPL1/2 - Zwei PL/1-Unterprogramme zur Lösung der Laplace-Gleichung auf
einem zweidimensionalen einfach zusammenhängenden Bereich mit beliebiger
Randkurve,
Febr. 1976

Dr. Schlechtendahl,
Gleichungen für 2 1/1-dimensionale gekoppelte Fluid-Strukturrechnungen
mit YAQUI,
Jan. 1976

R. Krieg, F. Hailfinger,
Entwicklung eines auf dem Singularitätenverfahren basierenden Computer-
Code SING 1, zur Berechnung transienter 3-dimensionaler, weitgehend be-
liebig berandeter Strömungen unter Vernachlässigung der Fluidviskosität
und Kompressibilität, Mai 1976

A. Bayer,
Möglichkeiten der Schadens- und Risikospezifischen Standortbewertung
für Kernkraftwerke,
Juni 1976

W. Köhler,
"Studien-Entwürfe für eine Anlage zur Konditionierung schwerer aktiver
Reaktorkomponenten, Trennungs- und Verlegungsmethoden sowie fernge-
steuerter Arbeitsgeräte,
Juni 1976

M. Kühle,
Eindringen von UO_2 in Beton beim Kernschmelzen eines LWR
Juni 1976

J. Reimann,
Massenstrommeßverfahren für Zweiphasenströmungen (Dampf-Flüssigkeit)
März 1976

W. Schöck,
Parameterrechnungen mit dem NAUA-Modell (Sensitivity-Studie)

S. Dagbartsson, O. Götzmann,
Bericht über das Zircaloy-Cladding Review Group Meeting,
11. - 12. Mai 1976 in Germantown,
Juni 1976

O. Götzmann,
Bericht über die Revision des Irradiation Effects and Simulation
Requirement Document,
Jan. 1976

O. Götzmann,
Bericht über Nachuntersuchungen zum Irradiation Effects Scoping Test 1
(TFBP-TR-110),
April 1976

H. Unger, et al.,

Bericht über die im Auftrag des PNS geleisteten Arbeiten des IKE Stuttgart für den Zeitraum Januar 1976 - März 1976 (1976)

H. Unger et al.,

Bericht über die im Auftrag des PNS geleisteten Arbeiten des IKE Stuttgart für den Zeitraum April 1976 bis Juni 1976 (1976)

G. Hofmann,

Status beim Multirod Burst Test (MRBT) Vorhaben,

4. Reisebericht,

Febr. 1976

G. Hofmann,

Ergebnisse der Einzelstabversuche im MRBT-Programm,

Mai 1976