

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

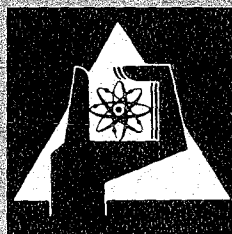
**KARLSRUHE**

April 1977

KFK 2435

Projekt Nukleare Sicherheit

**Halbjahresbericht 1976/2**



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

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KFK 2435

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

10. Halbjahresbericht/2. Halbjahr 1976

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe



K O R R I G E N D U M

Seite 169, 3. Zeile soll heißen: "KFK tr 457"

Seite 436, Literaturstellen /2/, /3/ und /6/ sollen lauten:

/2/ K. Hassmann et al., Abschätzung der thermischen Belastung an RDB  
und Containment eines Druckwasserreaktors unter der Annahme hypotheti-  
schen Kernschmelzens,

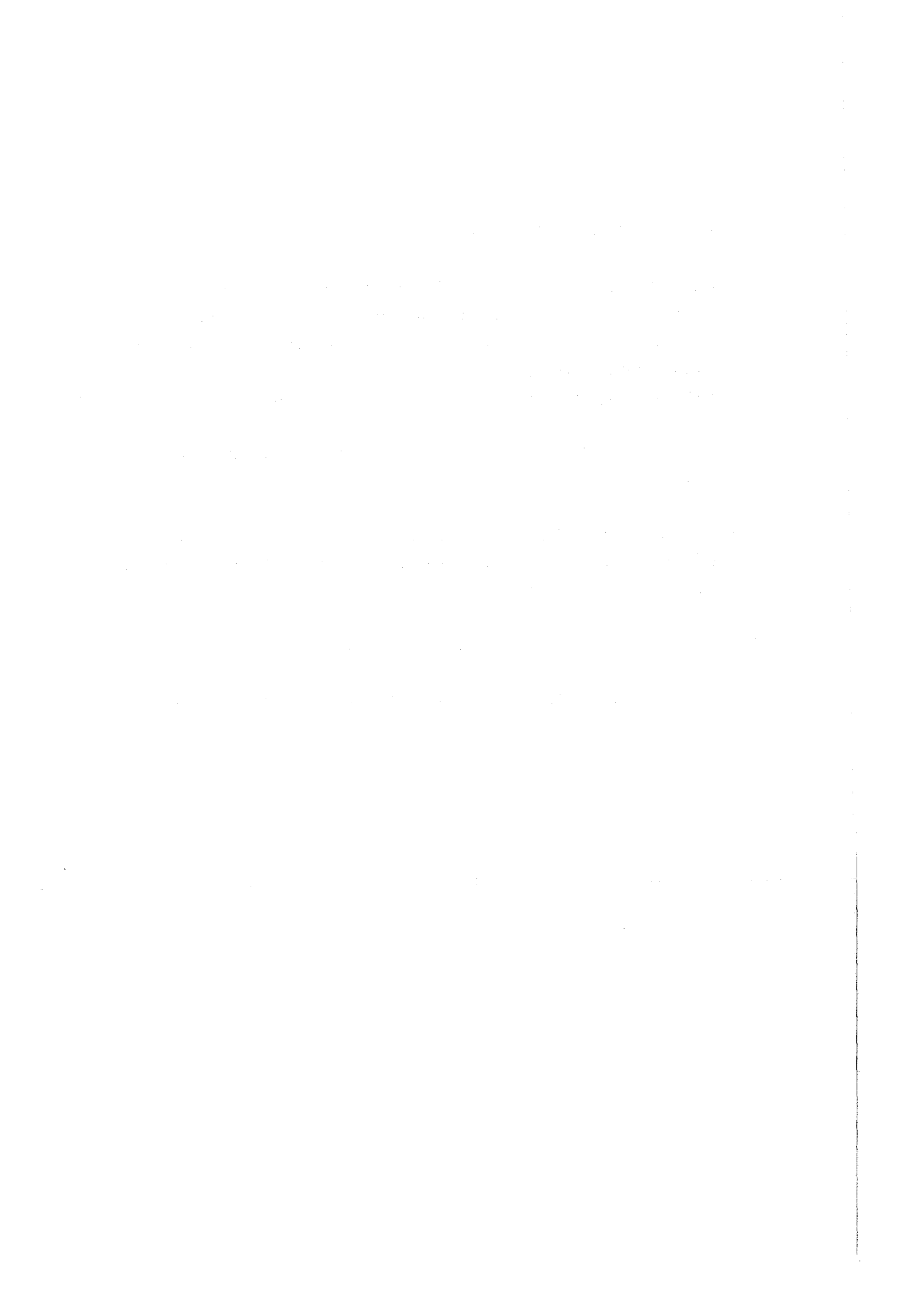
Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Düsseldorf (1976) S. 276 - 279

/3/ S. Nazaré, G. Ondracek, B. Schulz, Nucl. Technology 32 (1976), Heft 3,  
S. 239

/6/ P. Hofmann, H. Holleck, C. Politis, A. Skokan, Projekt Nukleare  
Sicherheit des Kernforschungszentrums Karlsruhe, Halbjahresbericht  
KFK 2375 (1976) S. 415

Seite 461, letzte Zeile soll heißen: "KFK 2433"

Seite 467, letzte Zeile soll lauten: "4312-TUH, KFK 2195, S. 386"



## 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 der Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS), Herstellern und Betreibern, Gutachtern, Genehmigungsbehörden sowie anderen Forschungsinstitutionen durchgeführt.

Der vorliegende 10. Halbjahresbericht 2/76 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 - 55) und englisch (S. 56 - 107), in denen über

- Durchgeführte Arbeiten
  - Erzielte Ergebnisse
  - Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang
- jedes einzelnen Forschungsvorhabens kurz informiert wird.

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

# NUCLEAR SAFETY PROJECT

## SECOND SEMIANNUAL REPORT 1976

---

The 10th Project Report 2/1976 is a description of work within the Nuclear Safety Project performed in the last 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. 56 - 107) 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	56
DETAILLIERTE BERICHTE	108
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS- ANLAGEN	108
4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbei- tungsanlagen	108
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	108
4112-1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungs- anlagen	113
4112-2 Entwicklung und Bau einer Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen	120
4114 Abluftfilterung an Reaktoren	125
4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen	140
4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktor-Kühlmitteln	140
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	144
4132 Untersuchungen zur <sup>129</sup> J-Radioökologie	144
4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine An- häufung kerntechnischer Anlagen	147
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen	152
4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen	177
4152 Auswirkungen von Kühltürmen großer Kernkraftwerke auf ihre Umgebung	177
4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	183
4210 Untersuchungen von LWR-Druckabbausystemen, Entwicklung und Anwendung von Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	183
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen	183
4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massen- strommessung in instationären Mehrphasenströmungen	188
4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren ver- schiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	202

	<u>Seite</u>
4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen	209
4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown-Experimenten zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten	209
4222 Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche	215
4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluidstruktur-dynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen in LWR	218
4230 Notkühlung von LWR	224
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen	224
4234 Bestimmung der Nachzerfallswärme von $^{235}\text{U}$ im Zeitbereich 10 - 1000 sec.	247
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten	250
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial	250
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren	261
4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffes und von Spaltprodukten auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren bei LWR-Störfalltransienten	306
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles Out-of-pile Experimente mit elektrisch beheizten Einzelstäben	332
4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles. Inpile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2	337
4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase von Kühlmittelverluststörfällen und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung	361
4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles	377

	<u>Seite</u>
4240 Coreschmelzen von LWR	392
4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO <sub>2</sub> -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung	392
4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	400
4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen	412
4245 Technologie und Stoffdaten zum Coreschmelzen	432
4246 Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen (Vorprojekt)	437
4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	444
4310 Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reak- tionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen	444
4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments	444
4312 Theoretische und experimentelle Untersuchung der Aus- breitung radioaktiver Gase und Aerosole sowie der wahrscheinlichkeitsbewerteten Strahlendosen in der Umgebung nuklearer Anlagen nach Störfällen	456
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	464
4330 Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten	469
4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN	477
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	477
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	477
4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241) im Boden und in geologischen Formationen	487
4420 Technik der Räum- und Demontgearbeiten	491
4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen	491
Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1976	495



KURZFASSUNGEN



KURZFASSUNGEN

- 4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS-  
ANLAGEN
- 4110 Luftfilteranlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs-  
anlagen
- 4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltprodukten aus  
der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre  
(H.G. Dillmann, A. Weinert, LAF II)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Prüfung des Jod-Sorptionsfilters wurde abgeschlossen. Bis auf die Ergebnisse der noch durchzuführenden Bestrahlungsversuche des jodbela-  
denen Sorptionsmaterials zeigten die Messungen, daß beim Einsatz von  
Molsieben in der Silberform die in Umluftfiltern nach schweren Störfäl-  
len zu erwartenden Bedingungen ( $T \leq 300 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $p \leq 5 \text{ bar}$ ) beherrscht  
werden können, wenn durch Tropfenvorabscheidung und zeitweise Nacher-  
hitzung eine relative Gasfeuchte von 85 % nicht überschritten wird. Z.Z.  
werden Tropfenabscheidungsversuche mit einem verbesserten Fangrillen-  
abscheider durchgeführt. Bei kleinen Tropfendurchmessern zwischen 5 und  
10  $\mu\text{m}$  ergaben sich Abscheidegrade zwischen 93 und 99 % bei einer Massen-  
konzentration bis zu  $50 \text{ g/m}^3$ . Bei größeren Tropfen steigt der Abscheide-  
grad an. Die Durchführung von Funktionsprüfungen an dem für den Filter-  
prüfstand vorgesehenen Aerosolgenerator steht kurz vor dem Abschluß.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Untersuchungen am Tropfenabscheider werden fortgesetzt. Der Aerosol-  
generator wird in der ersten Hälfte 1977 geliefert. Vorbereitungen für  
Messungen an Schwebstofffiltern werden getroffen.

4112 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen  
(J. Furrer, J.G. Wilhelm, LAF II; K. Jannakos, RBT-IT)

#### Durchgeführte Arbeiten

1. Ein Jod- und Aerosolmeßschrank wurde in Zusammenarbeit mit der GWK in einem Caisson in der WAK erstellt und vom TÜV abgenommen. Eine "in-line"-Jodmeßsonde wurde im Auflöserabgasstrang installiert.
2. Probenahmeeinrichtungen für Auflöser- und Behälterabgas zur Untersuchung der gasförmigen Komponenten wurden ausgelegt und gebaut.
3. Grenzbeladungs- und Desorptionsversuche wurden mit dem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H<sub>1</sub> im Labor durchgeführt.
4. Das Fließbild für PASSAT sowie sämtliche TLA und Spezifikationen für die Komponenten der Anlage wurden fertiggestellt. Mit der Beschaffung der Anlageteile und der Prüfung der Angebot wurde begonnen.
5. Die Fertigung und Teilerprobung eines Prototyp-Jodfilters (Boxenausführung) wurde abgeschlossen.

#### Erzielte Ergebnisse

Zu 1.: Grundsätzlich kann die Jod-Messung mit der vorhandenen Jodmeßeinrichtung durchgeführt werden. Verbesserungen zur Erhöhung der Standzeit wurden durchgeführt und erprobt. Eine Parallelentwicklung scheint ebenfalls erfolgreich zu sein.

Zu 2.: Erste Probenahmen zur Ermittlung der Konzentration der organischen Bestandteile im Behälterabgas der WAK wurden vorgenommen.

Zu 3.: Bei Jod-Konzentrationsspitzen von  $> 10 \text{ g J}_2/\text{m}^3$  Abgas tritt am Jod-Sorptionsmaterial neben der Chemisorption physikalische Adsorption auf.

Die Optimierung einer Spülphase zum Weitertransport des adsorbierten Jodes bis zur Bindung durch Chemisorption in tieferen Filterschichten ist Gegenstand weiterer Untersuchungen.

Zu 4.: Das Montagerüst zur Aufnahme der Gesamtanlage wurde erstellt. Ingenieurgespräche zur Vergabe der Anlage wurden teilweise abgeschlossen.

Zu 5.: Die Teilerprobung des Prototyp-Jodfilters (Boxenausführung) brachte gute Ergebnisse bei Standzeit- und Bedienungsversuchen.



### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Weiterführung der Hoch- und Überbelastungsversuche sowie der Desorptionsversuche zur Ermittlung der Spülzeiten. Messung der Abgaszusammensetzungen in der WAK. Errichtung der PASSAT und Durchführung weiterer Untersuchungen an der HAUCH zur Optimierung der Aerosol- Probenentnahme (Tropfen und Partikel).

4114 Abluftfilterung an Reaktoren

Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien  
(J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, LAF II)

### Durchgeführte Arbeiten

Die Untersuchungen zum Absinken der  $^{131}\text{J}$ -Abscheideleistung von Jodfilter-Aktivkohlen infolge von Schadstoffbelastung und zur Regeneration vergifteter Aktivkohlen wurden fortgesetzt und auf die Bestimmung der Flüchtigkeit von Radiojod während der Desorptionsphase ausgedehnt.

### Erzielte Ergebnisse

Auch nach hoher Schadstoffbelastung der Aktivkohle infolge längerer Beaufschlagungszeit im Kernkraftwerk konnte mit einem Schadstoff-Desorptionszyklus der ursprüngliche Abscheidegrad annähernd erreicht werden. Ein erster Versuch zeigte, daß während der Desorptionsphase kein wesentlicher Austrag an bereits abgeschiedener Jodaktivität erfolgt.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Versuche zur Desorption von Schadstoffen in Gegenwart von abgeschiedenem Radiojod werden fortgesetzt. Nach den bisherigen Ergebnissen läßt sich die Standzeit der Jod-Sorptionsfilter durch zwischenzeitliche Schadstoff-Desorptionszyklen wesentlich erhöhen.

Der Prototyp eines Jod-Sorptionsfilters, der eine erhöhte Standzeit gewährleisten soll, befindet sich in der Konstruktion.

Bestimmung der Jodkomponenten in der Abluft kerntechnischer Anlagen  
(H. Deuber, LAF II)

#### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Unter Verwendung der selektiven  $J_2$ -Sorptionsmaterialien DSM 10 und DSM 11 wurden Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern in der Abluft eines Forschungsreaktors und mehrerer Kernkraftwerke (SWR, DWR) durchgeführt. Die diskriminierenden Jodsammler wurden in der Zu- und Abluft von Jodfiltern (Spülluftfilter, Anlagenraumluftfilter) sowie in der Kaminabluft eingesetzt.

Die unter Verwendung von DSM 10 und DSM 11 erzielten Ergebnisse stimmten im allgemeinen überein. Der Anteil des Aerosoljods war bei Leistungsbetrieb in allen Fällen gering ( $\leq 3\%$ ), während derjenige des organischen Jods teilweise hohe Werte erreichte ( $\leq 77\%$ ). Bei vollständiger Jodfilterung der Luft war der Anteil des anorganischen Jods sehr gering ( $\leq 2\%$ ).

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

In einem Kernkraftwerk mit Druckwasserreaktor werden Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern über einen längeren Zeitraum (ca. 1 Jahr) in verschiedenen Abluftarten (Zu- und Abluft des Anlagenraumluftfilters, Abluft von Turbinenhaus, Hilfsanlagegebäude, Kamin) durchgeführt. Die Entwicklung eines diskriminierenden Jodsammlers für die Bestimmung der Jodkomponenten in der Abluft von Wiederaufarbeitungsanlagen wird aufgenommen.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten  
in Reaktorkreisläufen

4123 Reduktion der Aktivierung und Kontaminierung von Reaktor-  
kreisläufen  
(I. Michael, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten

Es wurden Untersuchungen der Metallabgabe des Dampferzeugerwerkstoffes Incoloy alloy 800 bei 342 °C und 150 bar bei Sauerstoffgehalten im Druckwasser von < 50 µg/kg über die doppelte Laufzeit von 1000 Stunden und andererseits bei zusätzlicher Alkalisierung mit Lithiumhydroxid (pH-Wert 9,7) durchgeführt.

Das für die Metallgehaltbestimmung im Wasser eingesetzte Atomabsorptionsspektrometer älteren Entwicklungstyps wurde laborautomatisiert.

#### Erzielte Ergebnisse

Bei den beiden Metallabgabeläufen zeigte sich nach etwa 400 Stunden eine plötzliche diskontinuierliche, erhöhte Metallkonzentration im Druckwasser. Sie läßt auf das Anwachsen der Deckschicht auf den Incoloy Proben bis zu einer instabilen Dicke schließen, bei der Metalloxidablösung einsetzt.

Die Laborautomatisierung der Atomabsorptionsspektroskopie führte zur wesentlichen Verkürzung der Handhabungs- und der Auswertzeit, wie auch zur Erhöhung der Genauigkeit der Analytik.

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

Die beobachtete diskontinuierliche Metallabgabe bedarf der weiteren Untersuchung. Es wird der Transport des abgegebenen Metall- und Metalloxidgehalts im Druckwasser in seinen chemisch-physikalischen Teilprozessen und die Bestimmung des Feststoffgehaltes nach Größenklassen verfolgt werden.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

#### Durchgeführte Arbeiten

In der zweiten Hälfte 1976 wurde  $^{129}\text{J}$  in Prozeßlösungen, in verschiedenen Abwässern, in Kuhmilch, in Schilddrüsen- und Bodenproben bestimmt. Eine Analysenmethode für  $^{127}\text{J}$  in Luft wurde erarbeitet. Erste Analysen der Luft aus der Umgebung des KFZ Karlsruhe wurden durchgeführt.

#### Erzielte Ergebnisse

Die  $^{129}\text{J}$ -Konzentrationen in Abwässern und Milch nahmen weiterhin ab und erreichten bei Kuhmilch die Nachweisgrenze von einigen  $10^{-3}$  pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$  Milch. Die bisher erhaltenen  $^{129}\text{J}$ -Konzentrationen in Bodenproben sind über eine Größenordnung im Bereich von fCi  $^{129}\text{J}/\text{g}$  Boden gestreut. Die Ergebnisse der Messung von stabilem Jod in Umgebungsluft zeigen, daß elementares Jod und Aerosoljod im Bereich von 1 - 10 ng  $^{127}\text{J}/\text{m}^3$  Luft liegen.

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

Die Bestimmung von  $^{129}\text{J}$  in Kuhmilch und in Abwässern wurde vorerst abgeschlossen. Die  $^{127}\text{J}$ -Bestimmung in Luft wird an verschiedenen Stellen der Bundesrepublik 1977 in Angriff genommen werden. Die Bestimmung von  $^{129}\text{J}$  in Bodenproben wird 1977 abgeschlossen werden.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Das Programm zur Berechnung der radiologischen Belastung der Be-

völkerung über die verschiedenen Expositionspfade wurde fertiggestellt. Bei der Anwendung des Programms auf das Gebiet des Oberrheins wurden Ergebnisse erzielt. Durch eingeschobene Vorarbeiten für die deutsche Risikostudie hat sich eine Verschiebung des Arbeitsplanes ergeben, so daß die Dokumentation im ersten Halbjahr 1977 erfolgen wird.

In einer Arbeit wurde die Bildung schwerer Isotope in den Cores verschiedener Reaktortypen untersucht und die damit anfallenden Durchsätze einer großen Wiederaufarbeitungsanlage hergeleitet. Unter Annahme von erzielbaren Dekontaminationsfaktoren können die Freisetzungsraten abgeschätzt werden.

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

Dieses Vorhaben ist beendet.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Die TTR-Versuchsanlage KRETA wurde in Betrieb genommen und erste Versuche wurden durchgeführt.

Die statische Versuchsapparatur zur Bestimmung der Kinetik der Reduktion von NO mit H<sub>2</sub> wurde in Betrieb genommen; die H<sub>2</sub>-Analytik an der Kreislaufanlage wurde entwickelt und getestet. Die Reduktion von O<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> wurde in zwei Versuchsreihen ohne Katalysator (thermische Reduktion) einmal in einer Flamme und einmal mit elektrischer Beheizung des Reaktionsrohrs in Zusammenarbeit mit der Fa. Decatox untersucht. Der dynamische Adsorptionskoeffizient von NH<sub>3</sub> und NH<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>O sowie von NO<sub>2</sub> wurde an verschiedenen Molekularsieben bestimmt.

Ein Versuchsprogramm zur Trennung Kr-Xe durch Adsorption an Aktivkohle wurde in unserem Auftrag von der Bergbauforschung Essen abgeschlossen.

### Erzielte Ergebnisse

Beim Betrieb der 1. Kolonne der KRETA-Anlage mit den Zweikomponenten-Systemen  $N_2$ -Ar und  $N_e$ -Kr wurden Dekontaminationsfaktoren (DF) erhalten, die den berechneten Werten etwa entsprachen (DF (Ar) = 10, DF (Kr)  $> 10^3$ ).

Die Trennung Kr-Xe in der 2. Kolonne ergab 99,99 %-iges Kr als Kopf- und Xe mit  $< 1100$  °C ppm Kr als Sumpfprodukt.

Eine  $H_2$ -Meßzelle, die keine Querempfindlichkeit gegen  $NO_x$  zeigt, wurde entwickelt. Die Versuche zur thermischen Reduktion von  $O_2$  und  $NO_x$  ergaben, daß erst bei Temperaturen  $> 1100$  °C die Reaktionen schnell genug sind, um hohe Umsätze zu erzielen.

Die Adsorptionskoeffizienten von  $NH_3$  an zwei säurefesten Molsieben sind nur etwa halbso groß wie am Typ 5 A.  $H_2O$  erhöht die  $NH_3$ -Adsorption stark. Die Desorption von  $NO_2$  von säurefestem Molsieb geht in mehreren Temperaturstufen vor sich.

Eine Trennung Kr-Xe durch selektive Desorption von Aktivkohle (Vakuum und Spülen mit  $N_2$  bzw.  $H_2O$ -Dampf) ist möglich, erfordert bei großen Gasströmen aber sehr große Adsorberbetten.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Das Versuchsprogramm an der TTR-Anlage wird mit dem Dreikomponentensystem  $N_2$ -Kr-Xe fortgesetzt. Die bestellte Molekularsiebanlage ADAMO wird Anfang 1977 angeschlossen und zunächst getrennt, dann im Verbund mit KRETA betrieben.

Die Versuche an der Labor-Kreislaufanlage werden fortgesetzt.

Die große Versuchsanlage zur  $O_2$ -,  $NO_x$ -Reduktion wird bestellt.

Die Adsorptionsversuche werden mit Edelgasen und anderen Spurengasen fortgesetzt.

4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

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

### Durchgeführte Arbeiten

Mit dem Programm WALKÜRE zur Berechnung des Aufstiegs und der Ausbrei-

tung von Kühlturmfahnen wurde eine Reihe von Rechnungen mit komplexen meteorologischen Umgebungsbedingungen durchgeführt. Das Modell zur Bestimmung der Diffusionskoeffizienten bei induzierter Turbulenz wurde nochmals verbessert. Es wird jetzt von der turbulenten kinetischen Energie und der Dissipationsrate ausgegangen. Dies erforderte die Lösung zweier weiterer partieller Differentialgleichungen, so daß sich die Zahl auf 7 erhöht.

#### Erzielte Ergebnisse

Die Ergebnisse der Rechnungen mit komplexen meteorologischen Umgebungsbedingungen zeigten, daß die horizontale Verteilung der relevanten Parameter senkrecht zur Ausbreitungsrichtung sich in den einzelnen Schichten deutlich unterscheidet. Besonders der Einfluß von Inversionen macht sich deutlich bemerkbar. Derartige Strukturen lassen sich mit eindimensionalen Modellen nicht erfassen. In einigen extremen Fällen ist die Form der sichtbaren Fahne völlig verschieden von derjenigen, die man bei eindimensionalen Modellen erhalten würde. Durch die Verwendung des neuen Modells für die Diffusionskoeffizienten läßt sich auch deren Verteilung realistischer als bisher berechnen. Bei der Überlagerung mehrerer Quellen können die Einschränkungen des bisherigen Ansatzes entfallen.

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

Das Vorhaben endet zum 31.12.1976 mit der Fertigstellung des Computer-Programms WALKÜRE. Da die Ergebnisse von den Meßkampagnen in den Kühlturmfahnen der Kraftwerke Neurath und Meppen erst Mitte Dezember 1976 zur Verfügung standen, war eine detaillierte "Kalibrierung" nicht mehr möglich. Sowohl die Verifizierung als auch die Anwendung des Programms WALKÜRE für Überlagerungsrechnungen wird im Rahmen des vom Umweltbundesamt initiierten Projekts Oberrhein im Jahre 1977 erfolgen.

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN

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

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Messungen mit der für die Marviken II-Experimente gelieferten Infrarot-Meßeinrichtung wurden abgeschlossen. Die Apparatur wurde bei allen neun Blowdown-Versuchen mit gutem Erfolg eingesetzt. Die Meßdaten sind weitgehend ausgewertet und in den Marviken-Reports dokumentiert.

Bei den analytischen Untersuchungen zum dynamischen Verhalten der Containment-Struktur konzentrierten sich die Arbeiten auf die äußere Kugelschale. Es ergab sich, daß die Eigenfrequenzen dieser Schale im Bereich von 60 Hz sehr dicht beieinander liegen und daß die radialen Auslenkungen in erster Näherung der Druckbelastung proportional sind. Erste Bemühungen wurden unternommen, den Trägheitseinfluß des mitbewegten Wassers zu berücksichtigen.

Die im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden durchgeführten Parameterrechnungen mit dem hierfür entwickelten Rechenprogramm KONDAS wurden fortgesetzt. Es war möglich, sowohl die niederfrequenten Vorgänge der pulsierenden Kondensation, d.h. die Dampfblasenbildung und den Blasen-kollaps zuverlässig nachzurechnen als auch Vorhersagen über die bei einem Vielrohrverband auftretenden Wandbelastungen zu machen. Der Vergleich mit experimentellen Daten ergab insgesamt eine zufriedenstellende Übereinstimmung.

Die bei den im Großkraftwerk Mannheim durchgeführten Blowdown-Versuchen gemessenen Daten wurden aufbereitet und die Ergebnisse dem TÜV Baden zugestellt.

Während der nichtnuklearen Heißtests im Kernkraftwerk Philippsburg



wurden im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden erneut begleitende Kontrollmessungen vorgenommen. Die gemessenen und aufbereiteten Daten wurden dem TÜV Baden direkt zugestellt.

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

Im Rahmen einer generellen Beurteilung der Einsatzmöglichkeiten der Infrarot-Meßtechnik wird ein quantitativer Vergleich der mit diesem Meßverfahren in Marviken gemessenen Daten mit den durch andere Meßverfahren ermittelten, zum Teil integralen Werten durchgeführt.

Das Verhalten der Kugelschale bei transients Druckbelastung, sowie die Beanspruchungen in der Schale werden im Detail berechnet. Ferner wird versucht, das mitbewegte Wasser anzukoppeln.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Marviken II-Experimente wurden fortgesetzt mit den letzten 5 Blowdowns (BD 21 bis BD 25), die von Juli bis Oktober stattfanden. Zusätzlich zu den mit dem MXII-CRT-Projekt vertraglich vereinbarten Gasgeschwindigkeitsmessungen in einem Blowdown-Channel wurden als Vorbereitung für die HDR-Experimente Geschwindigkeits- und Dichtemessungen im Bruchstutzen durchgeführt.

Die für die Durchführung der Experimente an dem gemeinsamen Versuchstand (RS 145) vorgesehene Radiotracermeßeinrichtung wurde fertiggestellt.

#### Erzielte Ergebnisse

In den Blowdown-Channels wurde eine Gasgeschwindigkeit von 0 bis 100 m/s gemessen. Ein Vergleich der Geschwindigkeit der Gasphase (gemessen mit

dem Radiotracerverfahren des LIT) und der Flüssigphase (gemessen mit dem Infrarotverfahren des Instituts für Thermische Strömungsmaschinen der Universität Karlsruhe) zeigt gute Übereinstimmung der Ergebnisse. Daraus folgt, daß in den Blowdown-Channels praktisch kein Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase vorlag.

Von den Geschwindigkeits- und Dichtemessungen im Bruchstutzen liegen erste Teilergebnisse vor:

1. Die im Bruchstutzen gemessene Geschwindigkeit liegt zwischen 0 und 40 m/s.
2. Für den Voidfaktor wurden Werte von 0 bis 0,5 ermittelt.

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

Die Auswertung der Marviken II-Experimente muß im 1. Halbjahr 1977 abgeschlossen werden.

Die Vorbereitungen auf die Versuche an dem "Gemeinsamen Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren von Zweiphasenmassenstrommeßverfahren" (RS 145 / PNS 4215) des IRB und die Mitte 1977 beginnenden HDR-Blowdown-Experimente werden fortgesetzt.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Inbetriebnahmephase wurde abgeschlossen.

Innerhalb des Berichtszeitraumes wurden die Kreislauf-Komponenten bestellt, der Kreislauf errichtet und erste Funktionsläufe durchgeführt.

Aufgrund der Aktivitäten zur stationären Luft-Wasser-Strömung ergaben sich hier Verzögerungen. Mit Sicherheitsberechnungen des Druckbehälters wurde begonnen. Es wurden bis zu den maximalen Betriebsdrücken ( $\approx 150$  at) mehrere Sondentypen verschiedener Bauarten erfolgreich eingesetzt, u.a. eine über den Querschnitt verfahrbare Sonde.

Der Kollimatorblock sowie die Halterung für die  $\gamma$ -Strahlquelle wurden gefertigt, mit der Herstellung der Abschirmung und Kühlung der Szintillators wurde begonnen.

Für die Investitionen zur stationären Luft-Wasser-Strömung, instationären Dampf-Wasser-Strömung und Gemischdichte wurden zusätzlich Sondermittel bewilligt.

### Erzielte Ergebnisse

Die der Auslegung des Kreislaufs zugrunde gelegten maximalen Werte für Massenstrom als Funktion des Dampfgehaltes und Druckes werden im wesentlichen erreicht. Bei den späteren Tests wird bei geeigneter Wahl des Versuchsprogramms mit mindestens 5 Versuchspunkten pro Tag gerechnet.

Es wurden Impedanz-Sonden für den Einsatz in Dampf-Wasser-Strömung bei hohen Drücken ( $\sim 150$  at) entwickelt. Die Sondersignale können gut Strömungszuständen zugeordnet werden, auch dann, wenn Hochgeschwindigkeitsfilme nicht mehr eindeutig interpretierbar sind.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Beginn der Tests der div. Meßverfahren. Ausschreibung des Druckbehälters und der Meßtechnik. Sammlung von Daten für den Aufbau einer Strömungskarte. Fertigstellung des Dichtemeßgerätes und Beginn von Eichversuchen.

- 4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen
- 4221/ Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR Blowdown-
- 4223 Experimente, sowie Weiterentwicklung und Verifizierung fluidstrukturdynamischer Codes zur Beanspruchung von RDB-Einbauten beim Blowdown  
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Eine detaillierte Festigkeitsberechnung für den Kernmantel-Einspannflansch wurde durchgeführt und ein Verspannungsdiagramm wurde erstellt.

Es ergab sich, daß im ungünstigsten Falle an einer Stelle die Fließgrenze des Einspannflansches gerade erreicht wird. Die beim Blowdown in den HDR-Deckelschrauben zusätzlich ausgelöste Spannungsspitze beträgt im ungünstigsten Falle  $100 \text{ kp/cm}^2$ .

Um die Frage der sich im HDR vor Blowdown-Beginn einstellenden Naturkonvektion zu klären, wurde eine Testapparatur konstruiert (Abmessungen ca.  $3 \text{ m} \times 1 \text{ m} \times 5 \text{ m}$ ), die eine genaue Erfassung der Strömungsvorgänge erlaubt. Es wird derzeit geprüft, ob mit dieser Apparatur Vorversuche zur HDR-Naturkonvektion durchgeführt werden sollen. Diese Vorgänge sind wichtig, da sie die gewünschte Enthalpie-Schichtung vor Versuchsbeginn bestimmen.

Mit dem Code YAQUIR wurden Vorausberechnungen für die Fluidodynamik des Referenz-Blowdown-Versuches ausgeführt. Die Resultate wurden dokumentiert.

Der Fluiddynamikcode YAQUIR wurde um ein Subsystem zur speziellen Auswertung im Hinblick auf die HDR-Versuche ergänzt. Es wurden vergleichende Rechnungen mit verschiedenen Maschennetzen (Rechteckmaschen, Potentialmaschen) durchgeführt. Die Differenzgleichungen für den Zweiphasen-code auf Basis der drift-flux-Theorie wurde entwickelt. Für das Code FLUST wurden alle Systemroutinen erstellt und getestet.

Der Strukturdynamikcode CYLDY2 wurde entwickelt und getestet. CYLDY2 liefert die dynamische Antwort einer einseitig eingespannten, am anderen Ende ausgesteiften Zylinderschale unter nichtrotationssymmetrischer Belastung. Die Lösung wird auf halbanalytischem Wege unter Verwendung von Eigenfunktionen erzielt. Gegenüber den bekannten Finite-Elemente-Code ergeben sich erhebliche Vorteile bezüglich der örtlichen Auflösung der Ergebnisse und bezüglich der Rechenzeit.

Hinsichtlich der Koppelung wurde eine modifizierte (2 1/2-dimensionale) Version von YAQUIR ("STRUYA") entwickelt und mit einfachen Strukturmodellen (Kesselformel, Biegebalken) erfolgreich gekoppelt. Für die Koppelung mit CYLDY2 wurden Unterprogramme zur Berechnung der modalen Lasten und Einflußfaktoren codiert. Mit dem Code FLUX wurden die Eigenfrequenzen und Schwingungsformen des voll gekoppelten Systems (Ringraum, Kernmantel, Innenraum und beide Plena) berechnet unter der Einschränkung, daß das

Fluid als inkompressibel angesehen wird. Der strukturdynamische Teil des Codes FLUX wurde von CYLDY2 übernommen.

Eine Einrichtung zur schnellen Druckentlastung eines Autoklaven wurde entwickelt und bestellreife Konstruktionsunterlagen angefertigt. Eine erste Serie von Versuchen zum Stadium der Fluid-Struktur-Wechselwirkung (elastische Platte/Fluidschicht, konzentrischer Zylinder/Fluidschicht) wurde konzipiert. Die Technik von Analogieexperimenten im Flachwasserbett wurde erprobt. Die Versuche bestätigten den außerordentlich flachen Charakter der Druckentlastungswelle.

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

Über den Naturkonvektionsversuch ist zu entscheiden. Die fluiddynamischen Vorgänge von zwei weiteren Blowdown-Versuchen werden vorausberechnet, sobald die Randbedingungen (Druck im Stutzen und unteren Plenum) aus DAPSY oder WHAMMOD-Rechnungen vorliegen. Mit den strukturdynamischen Vorausberechnungen wird begonnen. Vorversuche an der HDR-Anlage zum dynamischen Verhalten des Kernmantels werden konzipiert.

Die Codeentwicklungen (FLUST, SOLA-DF, FLUX) werden weitergeführt. Der Einfluß der Maschenform und Maschengröße auf die Ergebnisse von YAQUIR wird geklärt. Vergleiche zwischen dem hier entwickelten Strukturdynamik-Code CYLDY2 und dem Finite-Elemente-Code STRUDL/DYNAL werden durchgeführt. Möglichkeiten zur Erweiterung des Codes CYLDY2 zur Berücksichtigung nichtlinearelastischen Werkstoffverhaltens werden untersucht. Ergebnisse aus der Koppelung von STRUYA mit CYLDY2 werden vorliegen.

Der Autoklav mit der Einrichtung zur schnellen Druckentlastung wird bereitgestellt, und geeignete Versuchseinbauten werden entworfen und beschafft. Mit der Durchführung der vorgesehenen Laborversuche wird begonnen. Weitere Laborversuche zur Untersuchung stark beschleunigter 2-Phasen-Strömungen werden konzipiert. Flachwasserexperimente in HDR-ähnlicher Geometrie werden zur Verifizierung des Codes YAQUIR herangezogen.

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

#### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Der Autoklav wurde fertiggestellt und vom TÜV abgenommen; der dazugehörige elektromagnetische Schwingungserreger ist angeliefert. Die Montage auf einem neu gebauten, schwingungs isolierten Betonfundament hat begonnen. Das Versuchsprogramm zur Untersuchung der Prototyp-Meßaufnehmer wurde im Detail spezifiziert und die hierfür noch zusätzlich notwendigen Versuchseinrichtungen konstruiert und in die Fertigung gegeben. Die bisher durchgeführten Labor-Basisprüfungen mit drei Prototyp-Wegaufnehmern erbrachten recht zufriedenstellende Ergebnisse. U.a. wurden hierfür die Abhängigkeit von Nullpunkt, Empfindlichkeit und Linearität von der Temperatur in einem Ofen unter Atmosphärendruck ermittelt. Im HDR wurden unter Verwendung verschiedener Meßkabeltypen die Störstrahlungsverhältnisse untersucht. Die Ergebnisse waren recht positiv, so daß diesbezügliche Bedenken weitestgehend ausgeräumt werden konnten. Für die zusätzlich vorgesehenen Messungen zur Temperaturschichtung im HDR-Druckbehälter wurden ein Instrumentierungskonzept erarbeitet und die für die Ausschreibung und Vergabe dieser Meßeinrichtungen benötigten Spezifikationen fertiggestellt. Die Arbeiten zur Korrektur der bei den Blowdown-Versuchen auftretenden dynamischen Meßfehler wurden weitergeführt.

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

Nach Inbetriebnahme der Autoklaventesteinrichtung werden gemäß dem Versuchsprogramm die weiterführenden Tests mit den Prototypaufnehmern durchgeführt. Hierzu gehören Tests unter transienten Temperatur- und Druckbedingungen ohne mechanische Beaufschlagung und dynamische Tests sowohl in Luft als auch in Wasser unter erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur. Soweit verfügbar wird bei diesen Tests jeweils die gesamte Originalmeßkette verwendet werden, um zuverlässige Informationen über das reale dynamische Verhalten zu gewinnen. Am Ende der Versuchsserie werden die Prototypaufnehmer hohen Beschleunigungsbelastungen ausgesetzt

werden um die mechanische Grenzbelastbarkeit experimentell zu ermitteln. Die Versuchsergebnisse werden die wichtigste Entscheidungshilfe bei der Auswahl der endgültigen HDR-Kernmantelinstrumentierung darstellen.

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

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

Durchgeführte Arbeiten

SSYST-Mod 1 wurde im Berichtszeitraum verstärkt angewendet. Nachdem bisher vorwiegend Vorausrechnungen für das Verhalten von Brennstabsimulatoren unter LOCA-spezifischen Bedingungen im Zusammenhang mit geplanten Blowdown-Experimenten (PNS 4236) durchgeführt worden sind, wurden neuerdings umfangreiche Analysen des Brennstabverhaltens in einem DWR unter den Bedingungen eines 2F-Bruches im kalten Strang begonnen. Ergebnisse von Anwendungsrechnungen mit SSYST-Mod 1 sind veröffentlicht worden.

Die Dokumentation von SSYST wurde vervollständigt und in gestraffter Form in die SSYST-Datei "BASIS" integriert.

Die Arbeiten für SSYST-Mod 2 wurden fortgeführt. Der Modul ZETHYD zur Beschreibung der Thermo- und Fluidodynamik im Unterkanal während der Blowdown-Phase eines LOCA wurde getestet, der entsprechende Modul ZETHYF für die Wiederauffüll- und Flutphasen wurde weiterentwickelt. Mit dem Ziel einer verbesserter Beschreibung der Brennstoff- und Hüllrohrmechanik, insbesondere in axialer Richtung, wurde der Modul STADEF überarbeitet.

Im Rahmen der notwendigen Erweiterung von SSYST für die detaillierte Beschreibung des Langzeitverhaltens eines Einzelstabes (zur Bestimmung des abbrandabhängigen Anfangszustands bei Störfallbeginn) wurden Vergleichsrechnungen zwischen SATURN-L und FRAP-S durchgeführt.

Die Arbeiten zur Ermittlung verbesserter Diffusionskonstanten für Sauerstoff in oxidierten Hüllrohren wurden vorläufig abgeschlossen. Zur Berechnung von Kriechparametern für Zircaloy wurden Daten des IMF im Temperaturbereich zwischen 870 K und 1020 K ausgewertet.

Zur probabilistischen Beschreibung des Brennstab(hüllrohr)-verhaltens bei einem hypothetischen LOCA wurden verschiedene alternative Methoden untersucht und das analytische Vorgehen anhand der definierten Problemstellungen in groben Zügen festgelegt.

#### Erzielte Ergebnisse

Die bisher vorliegenden Ergebnisse der Anwendungsrechnungen mit SSYST-Mod 1 lassen den Schluß zu, daß die in SSYST integrierten Modelle der Thermo- und Fluidodynamik und der Mechanik das Brennstabverhalten unter Störfallbedingungen qualitativ richtig beschreiben können; die stark vereinfachten Modelle zur Beschreibung der thermo- und fluidodynamischen Vorgänge während der Flutphase gestatten für diesen Zeitbereich des Störfalls allerdings nur eine konservative Abschätzung.

Die Vergleichsrechnungen zwischen SATURN-L und FRAP-S zeigten eine befriedigende Übereinstimmung.

Auf der Grundlage von Schichtstärkemessungen (Daten des IMF/GfK und des ORNL) der Oxid- und  $\alpha$ -Phasen für die Hochtemperatur-Wasserdampf-Zry-Reaktion an drucklosen Zry-4-Hüllrohrproben wurden mit dem Rechenprogramm OPAL Diffusionskonstanten für Oxid- und  $\alpha$ -Phasen im Temperaturbereich  $1170 \leq T \leq 1570$  K bestimmt. Die Temperaturabhängigkeit der Diffusionskonstanten für das Oxid läßt sich nicht im gesamten Temperaturbereich durch eine Arrhenius-Abhängigkeit darstellen. Zur Festlegung der Temperaturabhängigkeit für Temperaturen  $< 1270$  K sind weitere Messungen erforderlich.



Aus Zugversuchen an Zircaloyproben im Temperaturbereich  $870 \leq T \leq 1020$  K wurden Koeffizienten für das Norton'sche Kriehgesetz bestimmt. Die Überprüfung dieser Daten an den Rohrberstversuchen des IRB ergab in Anbetracht der Vereinfachungen durch das Norton'sche Kriehgesetz eine befriedigende Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment.

Im Rahmen der probabilistischen Untersuchung des Brennstabverhaltens bei einem hypothetischen LOCA sind folgende Aufgaben definiert worden:

1. Berechnung der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Peak-Cladding-Temperatur einer Klasse von heißen Stäben.
2. Berechnung der Wahrscheinlichkeit, mit der
  - N-Stäbe aus einer charakteristischen Stabklasse am Ende eines hypothetischen LOCA durch Bersten der Hüllrohre beschädigt sind,
  - in einem Stabverband (z.B. einem Brennelement) Kühlkanalblockaden entstehen können.

Für die Lösung dieser Aufgaben haben sich varianzreduzierende Monte-Carlo-Simulationen ("Stratified Sampling") und "Moment Matching" sowie das "Response Surface"-Verfahren als geeignet herausgestellt. Obwohl beide Verfahren rechenzeitintensive Simulationen mit SSYST erfordern, bieten sie die Vorteile, daß

- a) zusätzliche Programmentwicklung nur in sehr beschränktem Umfang nötig ist,
- b) insbesondere die "Response Surface"-Methode das Potential hoher Genauigkeit besitzt.

Das ursprünglich verfolgte Ziel, analytische Methoden der nichtlinearen Fehlerfortpflanzung u. "Moment Matching" anzuwenden, wurde fallengelassen, da umfangreiche programmtechnische Änderungen an den einzusetzenden physikalischen Modulen von SSYST und darüberhinaus starke Vereinfachungen in der Vorgehensweise zur Lösung der Aufgaben nötig gewesen wären.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Arbeiten zu SSYST-Mod2 werden fortgeführt, wobei die Ankopplung eines Langzeitstabverhaltenscodes im Vordergrund steht.

SSYST-Mod 1 wird zur Analyse des Brennstabverhaltens im Core eines DWR bei LOCA-spezifischen Bedingungen angewendet werden. Ferner ist die Nachrechnung von Rohrberstversuchen des IRB vorgesehen.

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

### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Im Berichtszeitraum wurde der Aufbau der Versuchseinrichtung nahezu abgeschlossen. Die Steuerung der Rohrpost und Transportmechanik wurde erfolgreich getestet. Das Programm zur Steuerung und Datenerfassung sowie die zugehörige Hardware wurden bereitgestellt. Schließlich wurde der Sicherheitsbericht für den Betrieb der Anlage am FR2 verfaßt, in dem insbesondere auf die Abschirmung gegen  $\gamma$ -Strahlung und verzögerte Neutronen sowie die Maßnahmen gegen eine Freisetzung von Spaltprodukten, speziell von J-131, eingegangen wird.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Der nächste Schritt wird die Durchführung des Untersuchungsprogramms am FR2 sein.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial  
(M. Bocek, IMF II)

### Durchgeführte Arbeiten

1. Analyse des Einflusses von  $ZrO_2$ -Schichten auf den Geschwindigkeits-

exponenten m.

2. Untersuchung des Einflusses der Verformungsatmosphäre auf die Formänderung von Zry-4 im einfachen Zugversuch.
3. Untersuchung des Einflusses von Temperaturexkursionen in den  $\beta$ -Bereich auf das plastische Verhalten von Zry-4-Zugproben im  $\alpha$ -Bereich.

### Erzielte Ergebnisse

zu 1.: Der zylindrische Prüfling besteht modellmäßig aus einem dünnen, absolut spröden  $ZrO_2$ -Mantel, der fest mit dem duktilen metallischen Kern verbunden ist. Die plastische Verformung des Prüflings erfolgt unter Rißbildung der  $ZrO_2$ -Schicht. Überlegungen zeigen, daß, falls die aktuelle Rißdichte abhängig ist von der Verformungsgeschwindigkeit (bzw. Spannung), der Geschwindigkeitsexponent nicht mehr das plastische Verhalten des metallischen Kerns widerspiegelt, sondern auch von der Beschaffenheit des Oxidmantels abhängt.

Zu 2.: Ein Vergleich von Zugproben, die in Luftatmosphäre und im Vakuum verformt wurden, zeigt, daß  $ZrO_2$ -Oberflächenschichten die Ausbildung von makroskopischen Einschnürungen unterdrücken und somit im Zugversuch stabilisierend wirken.

Zu 3.: Im Vakuum durchgeführte Temperaturexkursionen (bis zu  $1200^\circ C$ ) bewirken eine Verminderung der Duktilität von im  $\alpha$ -Bereich ( $800^\circ C$ ) verformten Zugproben. Die Ergebnisse sind auch abhängig vom zeitlichen Verlauf der Exkursion.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

1. Experimentelle Untersuchungen zum Einfluß von Oxidschichten auf das plastische Verhalten der "Verbund-Prüflinge" Zry-4/ $ZrO_2$ .
2. Untersuchungen des Einflusses von  $ZrO_2$ -Schichten auf die Duktilität von Zugproben im  $\alpha$ -Bereich und einer Temperaturexkursion in den  $\beta$ -Bereich. (Vakuum-Versuche).

3. Untersuchung des Kriechverhaltens von Zry-4 Zugproben bei sehr kleinen Lasten und sehr kleinen Sauerstoffpartialdrücken.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

Die oxidationskinetischen Untersuchungen der Zircaloy 4/Wasserdampf-Hochtemperatur-Reaktion wurden in angenähert isothermer sowie in programmgesteuert temperaturtransienter Versuchsführung fortgesetzt. Die erstgenannte Versuchsart hatte Kurzzeituntersuchungen im Temperaturbereich 700 - 1000 °C und Langzeitversuche bei 1000 °C zum Inhalt. Unter temperaturtransienten Bedingungen kamen auf 33,5 µm ZrO<sub>2</sub> (rechnerisch) voroxidierte Rohrabschnitte zur Exposition, während an kurzzeitig bei 1300 °C oxidierten Proben der Einfluß definierter Abkühlgeschwindigkeit auf die Sauerstoffaufnahme und Gefügestruktur studiert wurde.

Nach Abschluß der Rohrrinnendruck-Kurzzeitstandversuche in Argon im Temperaturbereich 800 - 1300 °C wurden solche in Dampf für 800 - 950 °C begonnen und sollen auf den erstgenannten Temperaturbereich ausgedehnt werden. Der Einfluß der mechanischen Beanspruchung überlagerten Oxidation auf die mechanischen Kenngrößen wurde gemessen. Für 900 °C wurden Kriechkurven bei drei verschiedenen Innendrücker durch Reihen abgebrochener Einzelversuche gemessen. Der Mechanismus der Ribbildung als Funktion der Kriechgeschwindigkeit wurde durch rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen dem Verständnis nähergebracht.

#### Erzielte Ergebnisse

Durch isotherme Untersuchungen der Oxidationskinetik (1 - 15 min; 700 - 1000 °C) wurde festgestellt, daß erste Abweichungen vom parabolischen Verlauf der Sauerstoffaufnahme bereits bei 1000 °C erkennbar sind und

sich verstärkt zu niedrigeren Temperaturen hin fortsetzen. So kann im Prinzip die Gesamtheit der Verläufe durch ein kubisches Zeitgesetz wiedergegeben werden. Läßt man ein breiteres versuchszeitabhängiges Streuband zu, ist auch eine rechnerische Näherung durch das gewohnte parabolische Zeitgesetz mit der Geschwindigkeitskonstante  $k = 2,62 \cdot 10^{-1} (\text{g/cm}^2)^2/\text{sec}$  und der Aktivierungsenergie  $Q = 41653 \text{ cal/Mol}$  möglich. Die isothermen Langzeitversuche bei  $1000^\circ\text{C}$  zeigten bereits nach einer Versuchszeit von 30 Minuten den schichtspannungsbedingten, mechanischen Zusammenbruch der  $\text{ZrO}_2$ -Deckschicht und Übergang zu linearem Zeitverlauf hoher Oxidationsgeschwindigkeit.

Durch temperaturtransiente Untersuchungen (3 min, max.  $1000 - 1200^\circ\text{C}$ ) an voroxidierten Proben (26 Std.  $600^\circ\text{C}$ ; 7 Std.  $800^\circ\text{C} \rightarrow 33,5 \mu\text{m}$   $\text{ZrO}_2$  rechn.) wurde - gegenüber unoxidierten Rohrabschnitten - für  $1000 - 1100^\circ\text{C}$  eine beträchtliche Verminderung des LOCA-Umsatzes festgestellt, für  $1200^\circ\text{C}$  übersteigt der Umsatz des voroxidierten Materials den des metallischen. Für die Messungen bei  $1000$  und  $1100^\circ\text{C}$  gilt auch, daß - unabhängig von der Erzeugungstemperatur - der schützende Charakter der zuerst gebildeten Oxidschicht in etwa dem des Hochtemperaturoxides entspricht, d.h. daß es zu keinem gegenüber dem Hochtemperaturumsatz verminderten Sauerstoffverbrauch kommt. Die Umsatzreduktion liegt damit im Rahmen der umgekehrt proportional zur existierenden Schichtdicke rückläufigen Reaktionsgeschwindigkeit, keinesfalls deutlich darunter. Durch Variation der Abkühlgeschwindigkeit ( $2,2 - 57,5^\circ\text{C/s}$ ) von auf maximal  $1300^\circ\text{C}$  im LOCA-Verlauf exponierten Proben konnte der Einfluß verlängerten Haltens auf Temperatur sowie der der verzögerten Abkühlung demonstriert werden.

Die bei Wahl der geringsten Abkühlgeschwindigkeit maximal auf 6 min verlängerte Expositionszeit führte zu einer 30 %igen Steigerung der Gewichtszunahme. Anstelle der bei schneller Abkühlung auftretenden feinnadeligen martensitischen  $\alpha'$ -Umwandlungsstruktur kam es zu einer Kristallisation von relativ groben, stab- und plattenförmigen Gefügeanteilen, deren Sauerstoffverteilung und mechanische Kenngrößen noch nicht gemessen wurden.

Durch Innendruck-Zeitstandversuche an Rohrkapseln in Wasserdampf wurden die den Argon-Versuchen entsprechenden Zeitstandkurven gemessen. Dabei wurde ab 900 °C eine oxidationsbedingte Verfestigung des Hüllmaterials festgestellt. Anders hingegen verhalten sich die gemessenen Bruchdehnungen, die bereits ab 800 °C den dehnungsvermindernden Einfluß der Dampfoxidation zu messen erlaubten. Das gilt auch für die Werte im  $\alpha/\beta$ -Umwandlungsbereich, in dem die Dehnung trotz Oxidation eine mit abnehmender Kriechgeschwindigkeit zunehmende Tendenz zeigt. In diesem Bereich wurden Kriechkurven aufgenommen, die Festigkeitssteigerung und Dehnungsverminderung wiedergeben. Die rasterelektronenmikroskopische Auswertung der oxidischen Kapseloberflächen erlaubten folgende Zuordnung der Rißstrukturen: bei hohem Innendruck treten an der geborstenen Kapsel Risse in geringerer Anzahl, aber große Risse auf, bei niedrigeren Innendrücken sind es viele Risse geringerer Breite. Die Auswirkungen der mechanisch geschädigten Oxidschichten auf die Sauerstoffaufnahme unterliegt der metallographisch-planimetrischen Prüfung.

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

Umfassende Dokumentation der kinetischen Ergebnisse. Temperaturtransiente Oxidation von bei niedrigeren Temperaturen (350 - 450 °C) voroxidierten Proben. Rohrinndruck-Zeitstandversuche in Dampf 1000 - 1300 °C. Temperaturtransiente Rohrinndruck-Zeitstandversuche.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

- Der Einfluß des Sauerstoffpotentials (O/U-Verhältnis) des  $UO_2$  auf das Verformungs- und Bruchverhalten von kurzen Zry-4-Hüllrohren wurde weiter untersucht. Der Vorinnendruck bei Raumtemperatur variierte zwischen 1 und 60 bar. Die Berstversuche erfolgten unter Schutzgas bei gleichzeitiger Druck- und Temperaturmessung.

- Erprobung von Druckmeßverfahren bei Temperaturen oberhalb 200 °C (Druckmessungen bei hohen Temperaturen sind zur Durchführung von Experimenten zur Spannungsrißkorrosion von Zry durch Jod erforderlich).
- Durchführung von ersten UO<sub>2</sub>/Zry-Reaktionsexperimenten unter PCM-Bedingungen im Temperaturbereich zwischen 1200 und 1400 °C in einem Hochdruckautoklaven.
- Studium der chemischen Wechselwirkungen zwischen Spaltprodukten und Zircaloy bei Temperaturen bis zu 1200 °C.

#### Erzielte Ergebnisse

- Bei niederen Differenzdrücken hat überstöchiometrischer Brennstoff (UO<sub>2.05</sub>) eine Verfestigung der Zry-Hülle infolge Sauerstoffaufnahme zur Folge. Bei hohen Differenz- bzw. Berstdrücken (> 15 bar) geht dagegen der Einfluß des Sauerstoffpotentials des UO<sub>2</sub> auf die Berstdaten (Temperatur, Druck) deutlich zurück, unabhängig von der Aufheizgeschwindigkeit. Der Druckverlauf hat praktisch keinen Einfluß auf die Bersttemperatur der Zry-Rohrproben. Die Berstdehnungen der Hüllrohre unter Schutzgas variieren zwischen 20 und 130 %. In Übereinstimmung mit Angaben aus der Literatur existiert im Zweiphasengebiet des Zry-4 bei etwa 930 °C ein Minimum in den Umfangsdehnungen der geborstenen Rohrproben mit Werten < 60 %. Die Berstdrücke betragen unter diesen Bedingungen etwa 30 bar; die Zeit bis zum Bersten variiert zwischen 100 und 200 s (Ausgangstemperatur: 20 °C).
- Ein geeignetes Druckmeßverfahren, bei dem die Meßmembrane Temperaturen bis zu 400 °C ausgesetzt werden kann, wurde ermittelt und erfolgreich getestet. Damit wird die Kondensation des leicht flüchtigen Spaltproduktelementes Jod, auch bei hohen Gasdrücken, an der Meßmembrane verhindert.

- Die ersten  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Reaktionsexperimente unter PCM-Bedingungen ergeben, daß die chemischen Wechselwirkungen vom Kontaktdruck an der  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Phasengrenze abhängen. Bei guten Kontaktverhältnissen wird das  $\text{UO}_2$  oberhalb  $1000^\circ\text{C}$  durch das Zry unter Bildung von  $\alpha\text{-Zr(O)}$ , Uran und einer (U, Zr)-Legierung reduziert.
- Verträglichkeitsuntersuchungen mit Spaltprodukten und Zry-Hüllmaterial bis  $1200^\circ\text{C}$  zeigten, daß lediglich Tellur, Jod und Cäsiumkarbonat mit dem Zry reagieren.

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

- Weiterführung der Experimente mit kurzen  $\text{UO}_2$ -gefüllten Zry-4-Hüllrohren unter LOCA-typischen Temperatur- und Druckverläufen. Kontinuierliche Bestimmung der Verformungsgeschwindigkeit der Hüllrohre. Inbetriebnahme einer neuen Rohrberstanlage (Strahlungsheizung).
- Isotherme und transiente Untersuchungen zur Spannungsrißkorrosion von Zry-Hüllrohren durch Jod und andere flüchtige Spaltprodukte.
- Einfluß von Spaltprodukten und dünnen Oxidschichten auf die  $\text{UO}_2$ -/Zry-Wechselwirkungen unter PCM-Bedingungen.
- Röntgenographische Identifizierung der bei den chemischen Wechselwirkungen zwischen den Spaltprodukten und Zry auftretenden Reaktionsprodukten.

4236 Experimentelle Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles (G. Class, IRE; K. Hain, RBT)

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Endmontage des Versuchskreislaufes wurde durchgeführt und die endgültige Betriebserlaubnis erteilt. Das betriebliche Verhalten einzelner Komponentengruppen wurde getestet und Versuche mit dem Simula-



tionsbrennstab mit Belastungen bis ca. 30 % der Höchstlast durchgeführt.

Die Arbeiten an der Meßwerterfassung und Komponentensteuerung sowie an Meßeinrichtungen (True Mass Flow Meter) wurden weiter fortgeführt.

Das Schwergewicht der theoretischen Arbeiten lag auf der Erstellung des Auswerterechenprogrammes. Bearbeitet wurden die Datenbereitstellung, die Datenkonversion einschließlich Überprüfung auf innere Konsistenz und schließlich die thermohydraulische Interpolation von Zuständen innerhalb der Teststrecke aus gemessenen Randbedingungen.

### Erzielte Ergebnisse

Der Versuchskreislauf erreichte am 18.10. erstmals die Sollbetriebswerte. Die Tests einzelner Komponentengruppen einschließlich Simulationsbrennstab ergaben befriedigende Resultate. Es ergaben sich jedoch Verzögerungen beim Aufbau der Meßwerterfassung und Komponentensteuerung sowie bei der Bereitstellung des True Mass Flow Meter.

Eine RELAP 4-Version zur thermohydraulischen Interpolation in der Teststrecke wurde fertiggestellt und arbeitete bei den durchgeführten Tests einwandfrei. Auch die Programmteile des Auswertungsrechenprogrammes zur Berechnung von Wärmeübergangszahlen und zur Datenkonversion und Konsistenzkontrolle wurden im wesentlichen fertiggestellt und getestet.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die True Mass Flow Meter sowie eine Sicherheits-Schnellabschaltung für die Stabheizung werden in den Versuchskreislauf eingebaut, ebenso die Meßwertübertragungs- und Komponentensteuereinheit. Danach kann der Experimentierbetrieb mit dem Simulationsbrennstab aufgenommen werden. Das Auswertungsrechenprogramm soll terminlich so fertiggestellt werden, daß eine sofortige Auswertung der ersten mit CALAS aufgezeichneten Versuche erfolgen kann. Auf der Basis der ersten Versuchsergebnisse kann sodann die genauere Spezifizierung der Versuchsparameter erfolgen.

- 4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles -  
Inpile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2  
(E. Karb, RBT)

#### Durchgeführte Arbeiten

1. Die Nuklearstabversuche hatten im 2. Halbjahr 1976 Vorrang vor den BSS-Versuchen. Es wurden insgesamt fünf Nuklearstabversuche durchgeführt. Drei Versuche bildeten den Abschluß der scoping-Testreihe. In dieser Testreihe wurden der Innendruck und das axiale Leistungsprofil variiert. Als Innendruckbereich wurden die Auslegungsdaten moderner DWR (45 bis 100 bar) zugrundegelegt. Bei einem Versuch wurde der Innendruck auf 25 bar eingestellt.

Die Nachuntersuchungen der ersten beiden Versuchsstäbe vom Oktober 1975 in den Heißen Zellen wurden inzwischen abgeschlossen, weitere Stäbe aus 1976 werden z.Z. untersucht.

2. In 12 Versuchsreihen mit den elektrischen Brennstabsimulatoren BSS 05 und BSS 06 (Kalorimeter) wurden folgende Probleme untersucht:

a) BSS 05:

- "wahre" Hüllrohrtemperatur
- Leistungsvergleich thermisch/elektrisch
- Einfluß der Reaktorleistung ( $\gamma$ -Wärme)

b) BSS 06:

- Leistungsvergleich thermisch/elektrisch

- 2.1 Wegen der bisher auftretenden Abweichungen zwischen der thermisch bestimmten und der gemessenen elektrischen Leistung wurden mit BSS 05 und BSS 06 weitere gezielte Untersuchungen vorgenommen. Dazu wurde durchgeführt:

- Einbau von Tellerfedern im Kopfteil zur Erhöhung der Dichtkraft
- Überprüfung der Genauigkeit der elektrischen Leistung
- Inbetriebnahme der elektrischen Leistungskonstanthaltung

- Überprüfung der Mengenstrommessung (Meßblende, Bartonzellen für  $\Delta p$ -Messung, Druck- und Temperaturmeßstellen zur Bestimmung des Dampfzustandes an der Blende)
- Überprüfung der Meßstellen für Druck und Temperatur (einschl.  $\Delta T$ ) im Versuchseinsatz

2.2 Da die Anbringungsart der Thermoelemente auf der Hülle zwangsläufig zu Meßwerten führt, die von der tatsächlichen Hüllwandtemperatur abweichen, wurde zur Ermittlung eines Korrekturwertes BSS 05 wie folgt bestückt:

Im heißesten Bereich der Heizzone wurden im Abstand von 5 cm drei TE-Paare angebracht. Jedes Paar bestand aus einem außen aufgebrachten, Pt-gehülsten und einem in die Hüllwand eingelassenen TE von 0,5 mm  $\emptyset$ . Mit dieser Bestückung wurden stationäre und transiente Daten bei Leistungen von 20 bis 50W/cm aufgenommen.

2.3 Zur Prüfung des Einflusses der Reaktorleistung auf die thermischen Randbedingungen in der Versuchsstrecke wurden mit BSS 05 erneut Versuchsreihen mit und ohne Reaktorbetrieb bei gleicher elektrischer Leistung gefahren.

3. Zur Erhöhung des Sauerstoffangebotes während der Transiente in der Teststrecke wurden Rechnungen darüber angestellt, welcher kleinste Dampfmengestrom

- sich technisch verwirklichen läßt
- ein noch ausreichendes  $O_2$ -Angebot gewährleistet.

Die Überlegungen bezogen sich auf eine Kapillare zur Einstellung dieses Massenstromes.

4. Vom IKE Stuttgart wurden Vergleichsrechnungen zu den Versuchen mit Brennstabsimulatoren durchgeführt. Dabei wurden erstmals neuere Werte für die spezifische Wärme  $c_p$  für Zry-4 (nach MATPRO) verwendet, die sich oberhalb 800 °C sprunghaft verändern.

5. Für die Montage und Instrumentierung von vorbestrahlten Prüflingen ist eine Koppel- und Schweißvorrichtung beschafft worden, die in der Abschirmzelle des FR2 eingesetzt werden soll. Mit der kalten Erprobung wurde begonnen.

### Erzielte Ergebnisse

1. Da die Nachuntersuchungen an den Versuchsstäben in den Heißen Zellen durchgeführt werden müssen, stehen die Ergebnisse erst relativ spät zur Verfügung. Unmittelbar nach dem Versuch können nur die während des Versuchs aufgenommenen Daten ausgewertet werden. Wichtigste Größen sind Berstdruck und Bersttemperatur. Nach Definition dieser Größen wurden diejenigen aus den bisherigen Nukleartabversuchen mit den veröffentlichten Out-of-pile-Daten verglichen. Es zeigt sich, daß die In-pile-Daten im Bereich der Out-of-pile-Daten liegen.
- 2.1 Nach Überprüfung der erwähnten Meßeinrichtungen für die Leistungsbestimmung verbleibt als mögliche Fehlerquelle der Einfluß der TE-Anordnung im Versuchseinsatz. Es wird angenommen, daß sich als Folge mangelhafter Durchmischung Stromfäden unterschiedlicher Temperaturen ausbilden und damit die  $\Delta T$ -Messung fehlerhaft wird. Auch ein Leckstrom im Kopfteil des Versuchseinsatzes, der die Mengenstromangabe verfälscht, ist weiterhin nicht ganz auszuschließen. Wie mit dem Kalorimeter bei BSS 06 nachgewiesen wurde, scheiden Fehlerquellen außerhalb des Reaktoreinsatzes aus. Die Abweichung thermisch/elektrisch betrug hier lediglich bis zu 2,5 W/cm.
- 2.2 Die Versuche zur "wahren" Hüllrohrtemperatur ergaben eine geringe Abhängigkeit des Temperaturunterschiedes zwischen dem Wand- und Oberflächen-TE vom Temperaturniveau, dagegen eine deutliche Abhängigkeit von der Prüflingsleistung. Zur elektrischen Leistung von 50 W/cm läßt sich hieraus ein Korrekturwert von  $75 \pm 35$  K angeben. Der Streubereich von  $\pm 35$  K geht zu Lasten der außen angebrachten TE, die am Hüllrohr unterschiedlich stark anliegen.

2.3 Der Einfluß der Reaktorleistung auf die transiente Aufheizung erwies sich als sehr gering. Dies bestätigt die Ergebnisse der früheren BSS-Versuche und der angestellten Berechnungen: Eine Abschätzung auf der Grundlage gemessener Temperaturwerte ergab einen Leistungsanteil durch den Reaktorbetrieb von ca. 0,5 W/cm.

Es ist offensichtlich, daß die Referenzversuche nicht mit Reaktorleistung gefahren werden müssen.

3. Zur Sicherstellung des gewünschten  $O_2$ -Angebots am Prüfling ist eine 12,5 m lange Kapillare mit 0,5 mm lichter Weite in Bypass-schaltung geplant. Damit soll ein Mengenstrom von 0,2 kg/h erreicht werden, dessen Kühlwirkung während der Aufheizung akzeptabel ist. Hinsichtlich der Dampfgeschwindigkeit sind mit diesem Wert ähnliche Verhältnisse wie beim LOCA des DWR gegeben.
4. Bei Berücksichtigung der  $c_p$ -Werte nach MATPRO ergeben die Rechenkurven eine bessere Annäherung an die Versuchskurve im oberen Temperaturbereich ab 800 °C.

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

Die Versuchsreihe B mit frischen Nuklearstäben wird fortgesetzt. In dieser Reihe stehen noch sechs Versuche aus. Die Nuklearstabversuche werden weiterhin vorrangig vor den BSS-Versuchen bearbeitet.

Zur Vorbereitung der Versuche mit vorbestrahlten Stäben wird mit der Erprobung der HZ-Komponenten (Koppel-, Schweiß-, Prüf- und Handlings-einrichtungen) begonnen.

Die Vorbestrahlung mit z.Z. drei Vorbestrahlungseinsätzen zu je 6 Stäben im FR2 wird weitergeführt.

Die Bypass-Anordnung für das  $O_2$ -Angebot soll eingebaut, kalibriert und erprobt werden.

Die Ersatzbeschaffung der Loopeinbauten Druckrohr und Tauchrohr wird in Angriff genommen, da diese in absehbarer Zeit ihre zulässige Einsatzzeit erreichen.

Die Abweichungen in der Leistungsbestimmung werden mit einem speziellen BSS-Versuch weiter untersucht.

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

#### Durchgeführte Arbeiten

- Charakterisierung der Brennstabsimulatoren mittels Photo-Scanning hinsichtlich Temperaturverteilung
- Aufbau von Prüfeinrichtungen für das Quotientenpyrometer und das Kapillar-Druckmeßsystem
- Theoretische Betrachtungen zum Übertragungsverhalten des Kapillar-Druckmeßsystems
- Theoretische Untersuchungen zur Verbiegung von Zircaloy-Hüllrohren beim Aufblähvorgang
- Versuche an verkürzten Brennstabsimulatoren zur Klärung von Einzeleffekten beim Aufblähvorgang von Zircaloy-Hüllen.
- Erster Berstversuch an einem Brennstabsimulator voller beheizter Länge von 3,90 m und axialem Leistungsprofil.

#### Erzielte Ergebnisse

Die Entwicklung der Brennstabsimulatoren wurde weitgehend abgeschlossen. Zur Charakterisierung der Heizstäbe und Brennstabsimulatoren hinsichtlich Leistungsdichte- bzw. Temperaturverteilung hat sich ein photographisches Verfahren mit Auswertung der Filme durch ein Densitometer hinsichtlich unterschiedlicher Schwärzungsgrade bewährt. Hierdurch konnten weitere Verbesserungsmöglichkeiten der Brennstabsimulatoren aufgezeigt und die entsprechenden Weiterentwicklungen eingeleitet werden.

Die untersuchten Heizstäbe zeigten z.T. eine gute axiale Temperaturverteilung mit geringen lokalen Temperaturabweichungen.

Außerdem zeigte sich, daß derartige Temperaturunterschiede auf dem Heizstab bis hin zur Brennstabsimulatorhülle weiter gedämpft werden.

Zur Klärung der bei den bisherigen Berstversuchen beobachteten Deformationsformen wurden einige Versuche mit direkter Beheizung durchgeführt. Hierbei ergaben sich Berst-Umfangsdehnungen bis über 100 % und deutliche Verkürzungen der Zircaloy-Hülle.

Bei weiteren Versuchen mit indirekt beheizten Brennstabsimulatoren von 325 mm beheizter Länge wurden ebenfalls Verkürzungen der geborstenen Zircaloy-Hüllen festgestellt, nachdem der innere Aufbau so modifiziert wurde, daß keine Verspannungen mehr möglich sind. Bei diesen Versuchen wurden Umfangsdehnungen von etwa 30 % und Verkürzungen von etwa 1,5 mm gemessen. Diese Umfangsdehnungen liegen im unteren Streuband der bei den bisherigen Versuchen gemessenen Umfangsdehnungen.

Der Prüfstand für Bündeltests voller Länge wurde in Betrieb genommen. Der erste Brennstabsimulator voller Länger mit stufenförmigem axialem Leistungsprofil wurde einem Bersttest mit anschließendem Fluten im geborstenen Zustand unterzogen. Die Berst-Umfangsdehnung betrug nur 27 %. Die über die gesamte beheizte Stablänge von 3900 mm vermessenen Umfangsdehnungen zeigten eine sehr stark ausgeprägte Empfindlichkeit gegenüber der in den einzelnen Leistungsstufen unterschiedlichen Temperatur sowie gegen lokale thermische und mechanische Einflüsse durch Abstandshalter und Thermoelemente. Das Rohrstück mit der Berststelle zeigte genau die von Versuchen mit verkürzten Brennstabsimulatoren bekannte Deformationsform - gerade Berstmantellinie, gewölbte von den Pellets abgehobene gegenüberliegende Seite.

Zur Messung des Gasdruckes der Brennstabsimulatoren voller Länge an der Stelle der erwarteten lokalen Aufblähung wurde ein spezielles Meßsystem mit extremen Abmessungen entwickelt, bestehend aus einer Meßkapillare, einer Meßkammer und einem DMS-Druckaufnehmer. Zur rechnerischen Korrektur der Druckanzeige im Hinblick auf den zu messenden Druck wurden theo-

retische Grundlagen zum Übertragungsverhalten dieses Meßsystems erarbeitet.

Bei Aufheizversuchen mit Brennstabsimulatoren unter innerem Überdruck wurden azimutale Temperaturverteilungen gemessen sowie ein Aufblähen der Zircaloy-Hülle auf der azimutal kälteren Seite und ein sich daran anschließendes Bersten auf der nicht abhebenden wärmeren Seite beobachtet. Für diese spezielle Deformationsform der Zircaloy-Hüllrohre können Effekte der anisotropen Struktur des Zircaloy-Materials und/oder mechanische Verspannungen verantwortlich sein. - Zur Klärung möglicher mechanischer Ursachen wurden die durch die Wärmeverspannung im elastischen Bereich auf das Zircaloy-Hüllrohr übertragenen Kräfte und Momente sowie die Spannungsbelastung der Zircaloy-Hülle berechnet. Es konnte gezeigt werden, daß die Hülle bei plastischer Verformung dem im elastischen Bereich aufgebauten Momentenpaar nachgibt und dieses so gerichtet ist, daß es die Tendenz hat, die Hülle mit der azimutal wärmeren Seite zum inneren Heizstab hin und mit der azimutal kälteren Seite vom Heizstab weg zu bewegen. Die Frage, ob das vorhandene Momentenpaar allein verantwortlich ist für die beobachteten starken Unsymmetrien beim Aufblähvorgang oder ob z.B. die anisotrope Struktur des Zircaloy-Materials ebenfalls eine wesentliche oder sogar eine weit größere Bedeutung hat, bedarf noch weiterer Untersuchungen.

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

- Funktionsprüfung und Eichung des Quotientenpyrometers sowie des Kapillar-Druckmeßsystems.
- Überprüfung des theoretischen Modells zum Kapillar-Druckmeßsystem.
- Verifizierung des SSYST-Moduls DRUSPA.
- Versuche zu Einzeleffekten beim Aufblähvorgang an verkürzten Brennstabsimulatoren.
- Einzelstabversuche an Brennstabsimulatoren voller Länge.
- Vorbereitende Messungen für Bündelversuche im Hinblick auf Bündelgröße und radiale Temperaturverteilung.



4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles

(S. Malang, IRB)

#### Durchgeführte Arbeiten

Abgeschlossen wurden die Referenzversuche an einer Stabreihe bestehend aus 5 Heizstäben ohne Kühlkanalblockaden. Bei der Versuchsdurchführung wurden folgende Einflußgrößen variiert:

- die Stabtemperatur bei Flutbeginn,
- die Flutrate (konstant während der einzelnen Versuche),
- die Temperatur des Flutwassers,
- der Systemdruck (konstant während der einzelnen Versuche) und
- das Niveau der Nachwärmeleistung (nach ANS-Standard).

Bei der Durchführung der ersten Versuchsreihe mit einer 5-Stabreihe und einer Lochplatte, durch welche 62 % der Kühlkanäle versperrt sind, wurden dieselben Einflußgrößen variiert.

#### Erzielte Ergebnisse

Für die digitale Erfassung der Meßdaten stehen 128 Kanäle zur Verfügung, von denen augenblicklich 42 verwendet werden. Die Datenerfassung erfolgt mit einer Frequenz von 10 Hz.

Die Berechnung der Wärmeübergangszahlen erfolgt numerisch mit Hilfe eines Rechenprogrammes, das auf der Basis des HETRAP-Codes entwickelt wurde.

Mit der Auswertung der Versuche wurde begonnen. Ein Vergleich der Versuche mit unblockierten Kanälen mit denjenigen mit einer Lochplatten-Blockade zeigt, daß bei sonst gleichen Parametern der Wärmeübergang hinter der Lochplatte immer besser war, während der Wäremübergang vor der Lochplatte kaum beeinflusst wurde.

In den weiteren Versuchen soll geklärt werden, ob dieses Er-

gebnis auch für andere Blockadetypen gültig ist. Die erhöhte Kühlwirkung hinter der Blockade ist aus der optischen Beobachtung erklärbar. Die verwendete Lochplatte führte zu einer intensiven Zerstäubung ankommender Wassertropfen. Außerdem sammelte sich hinter der Blockade Totwasser an, welches durch den aus der in Kanalmitte angebrachten Bohrung austretenden Dampfstrahl in intensiver Bewegung gehalten wurde. Hierdurch bildete sich sehr schnell eine zweite Benetzungsfront, welche von der Blockade aus nach oben wanderte.

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

Die Versuche an der Stabreihe mit Kühlkanalblockaden in Form von Lochplatten werden fortgesetzt. Anschließend werden die Versuche mit hülsenförmigen Blockadekörpern verschiedener Form und Größe durchgeführt. Die austauschbaren Blockadekörper werden in gleicher Höhe an den Heizstäben angebracht und die Kühlkanäle gleichmäßig versperrt.

Bündelversuche mit 5 x 5 -Stäben 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 2. Halbjahr 1976 wurde der neue Versuchskessel aufgebaut und in Betrieb genommen. Er erlaubt Experimente mit längeren Stäben, den Aufbau von Bündelanordnungen bis zu 7 x 7 Stäben und die Verwendung von strömendem Dampf. Der Kessel wurde mit den notwendigen Versorgungseinheiten (Heizstrom, Kühlung der Elektroden, Thermostatisierung der Wände, Dampfversorgung) und Meßeinrichtungen (Spannung, Strom, Kesseldruck, Temperatur) versehen. Mit den Versuchen zur Erprobung der Bündelanordnung wurde begonnen. Parallel hierzu haben wir eine Heizvorrichtung aufgebaut, die es erlaubt, den Brennstab ohne zentralen Wolframstab durch Einstrahlung zu erhitzen. Der Einsatz wurde in dem vorläufigen Versuchskessel montiert und mit der Erprobung

wurde begonnen.

### Erzielte Ergebnisse

Die Vorversuche im Kessel für Brennstabsimulatoren mit Zentralstabheizung haben gezeigt, daß die Aufheizung in Bündelgeometrie erwartungsgemäß verläuft, so daß mit den Abschmelzversuchen von Stabbündeln begonnen werden kann. Die ersten Versuche an Vollstäben in He ergaben, daß der Angriff des Zircalloys auf das  $UO_2$  auch bei Heizung durch Strahlung von außen praktisch das gleiche Verhalten wie bei der zentralen Heizung mit dem W-Stab aufweist.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Für 1977 sind im wesentlichen Abschmelzversuche in Bündelgeometrie vorgesehen. Der Einfluß der Abstandshalter und der Abschaltstabführungsrohre soll hierbei ebenfalls untersucht werden.

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

### Durchgeführte Arbeiten

1. Fortsetzung der im 1. Halbjahr 1976 begonnenen Versuche zur Ermittlung der Freisetzung der Hauptkomponenten einer inaktiven Coriumschmelze mit folgender Zielsetzung:

- a) Quantitative Angaben über die Freisetzung der Elemente Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Sb, Zr und U als Funktion der Atmosphäre, der Temperatur, des Drucks und der Schmelzgutzusammensetzung. Die 1. Serie von Versuchen unter Luft (17 Experimente) wurde abgeschlossen und weitgehend ausgewertet; in der 2. Versuchsserie (22 Experimente) bestand die Atmosphäre aus Ar bzw. Ar + 5 %  $H_2$ , womit chemisch neutrale bzw. schwach reduzierende Bedingungen über der Schmelze herrschten.
- b) Aussagen über das Verhalten des Schmelzgutes in Abhängigkeit von den o.g. Parametern unter den speziellen Versuchsbedingungen ( $ThO_2$ -Tiegel, induktive Heizung mit  $f = 350$  kHz) und insbesondere über die Wechsel-

wirkung zwischen Schmelze und Tiegelmaterial.

## 2. Weiterer Aufbau der Schmelzanlage SASCHA:

Wegen des geplanten Einsatzes von aktivem Schmelzgut (Fissium) wurden vom Amt für Umweltschutz einige zusätzliche Auflagen erteilt, die vor allem die Dichtheit der Anlage und die Aktivitätsüberwachung der Abluft betrafen. Diese Auflagen werden inzwischen durch entsprechende Vorrichtungen erfüllt.

Zur Vorbereitung für Versuche mit größeren Schmelzgutmassen (ca. 3 kg statt wie bisher max. 60 g) wurden nach umfangreichen Voruntersuchungen Beschaffungsaufträge für einen Hochfrequenz-Generator mit höherer Leistung und eine Heißwasser-Thermalisieranlage für den Induktor vergeben.

## 3. Aufbau der Fissium-Fabrikationsanlage (FIFA)

Um die vorgesehenen Freisetzungsvorversuche mit spaltproduktartigem Brennstoff aufnehmen zu können, wurde eine Boxenanlage zur Herstellung von schwach aktivem Fissium eingerichtet. Sie enthält fernbedienbare Vorrichtungen zum Einwiegen der Fissium-Bestandteile ( $UO_2$ -Pulver und vorbestrahlte Spaltprodukt-Elemente bzw. Oxide), zum Mahlen und Mischen der Komponenten, zur Herstellung kaltgepreßter Pellets, sowie zum Sintern bei Temperaturen bis zu  $1800^\circ C$ . Nach der technischen Abnahme wurde mit dem Probetrieb der Anlage begonnen.

### Erzielte Ergebnisse

1. Bei den Schmelzversuchen unter Luft wurden aus den Corium-Proben von 30 g bis zu einer Temperatur von  $2850 \pm 100^\circ C$  maximal 1,2 Gew.% freigesetzt. Als flüchtigste Komponenten erwiesen sich Mn und Sb mit einer relativen (d.h. auf die Ausgangskonzentration bezogenen) Freisetzung von 11 - 17 % bei  $2850^\circ C$ . Die übrigen Stahlkomponenten sowie Zr zeigten eine mittlere Flüchtigkeit mit Freisetzungswerten zwischen 1 und 3 %, während U zu maximal 0,4 % freigesetzt wurde.

Bei allen Elementen zeigte sich im Temperaturbereich zwischen  $2100^\circ C$  und  $2900^\circ C$  eine Zunahme der Freisetzung um etwa 2 Größenordnungen. Eine Änderung

des Atmosphärendrucks von 1,0 auf 1,5 und 2,0 bar führte zu keinen meßbaren Unterschieden in der Freisetzung.

2. Die Schmelzversuche unter Ar bzw. Ar + 5 % H<sub>2</sub> ließen dagegen im Temperaturbereich zwischen 2600 ° und 2800 °C eine ausgeprägte Druckabhängigkeit erkennen: hier kam es während der Aufheizphase zu einem Hochsteigen des Schmelzgutes im Tiegel und zu einem plötzlich einsetzenden stoßweisen Auswurf kleiner Partikel. Dabei war auch auf den Membranfiltern, die nicht von den Schmelzenspritzern erreicht werden, eine starke Zunahme der Freisetzung (um ca. 1 Größenordnung) zu registrieren. Als Ursache wurde eindeutig das Sieden der Stahlkomponenten ermittelt. Für die Freisetzung im Temperaturbereich unterhalb des Stahlsiedens wurden ähnliche Ergebnisse wie für Luft gefunden.
  
3. Zum Schmelzgutverhalten und zum Angriff des ThO<sub>2</sub>-Tiegels lassen sich folgende Angaben machen:
  - Ähnlich wie unter Ar kommt es auch unter Luft zum Hochsteigen des Schmelzgutes im Tiegel, zum Einsetzen von Siedevorgängen und zum Auswurf glühender Partikel. Eine Druckabhängigkeit der Einsatztemperatur war bisher nicht zu beobachten, ist jedoch nicht völlig auszuschließen.
  
  - Der Angriff des ThO<sub>2</sub>-Tiegels durch das Schmelzgut beginnt - wie die aufgeschnittenen Tiegel zeigen - bei etwa 1800 °C und nimmt mit steigender Temperatur bis zur weitgehenden Auflösung der Tiegelwand innerhalb weniger Minuten bei ca. 3000 °C zu. Ab ca. 2500 °C sintert der zwischen dem Schmelztiegel und dem äußeren Schütztiegel befindliche ThO<sub>2</sub>-Gries in zunehmendem Maße an dem ThO<sub>2</sub>-Tiegel fest, so daß dadurch ein Auslaufen der Schmelze in allen bisherigen Versuchen vermieden werden konnte.
  
4. Folgerung:

Bei den bisherigen Versuchen mit 30 g Schmelzgut ist anzunehmen, daß das relativ große Oberflächen/Volumen-Verhältnis und die beschriebene Wechselwirkung zwischen Tiegel und Schmelzgut auch das Abdampfverhalten der einzelnen Komponenten beeinflussen. Den geplanten Experimenten mit größeren Schmelzgutmassen (bis ca. 3 kg) kommt daher im Hinblick auf die Extrapolation der Freisetzungsergebnisse eine wesentliche Bedeutung zu.

## Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Als wichtigste Arbeiten in den nächsten Monaten sind vorgesehen:

- Durchführung einer Serie von Freisetzungsversuchen mit inaktivem Corium unter Wasserdampf
- Vorversuche mit Schmelzgut, das aktivierten Stahl und/oder aktiviertes Zircaloy enthält
- Freisetzungsversuche mit schwach aktivem Fissium
- Vorbereitungen für die Installation des größeren Hochfrequenzgenerators.

4244      Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen

(H. Holleck, A. Skokan, IMF I)

## Durchgeführte Arbeiten

1. Es wurden Schmelzversuche an Corium A-Proben, denen Spaltprodukte entsprechend 10 bis 20 % Abbrand (die hohe Konzentration der Spaltprodukte soll dem deutlichen Nachweis der Reaktionen dienen) zuge-mischt waren, in inerter Atmosphäre mittels Lichtbogenofen oder in indirekt beheizten Tiegeln durchgeführt. Die Spaltprodukte wurden teils in metallischer Form (z.B. Ru-stellvertretend auch für Rh und Pd und Mo-stellvertretend auch für Tc), teils in oxidierte Form (z.B.  $ZrO_2$ ,  $CeO_2$ ,  $Nd_2O_3$  - stellvertretend auch für die übrigen 3-wertigen Seltenen Erden- und SrO-stellvertretend auch für BaO) eingesetzt. Unberücksichtigt bleiben flüchtige Spaltprodukte (einschließlich Rb und Cs, Te und J), die wahrscheinlich schon beim Abschmelzen freigesetzt werden.
2. Es wurden Schmelzversuche zur Wechselwirkung von Corium (A+R) bzw. (E+R) mit Beton (Zuschlag vorerst vorwiegend silikatisch) in inerter Atmosphäre in Wolframtiegeln durchgeführt. Durch den Einsatz voroxidierte Komponenten ( $ZrO_2$  statt Zr,  $Fe_2O_3$  und NiO statt Stahl) wurden verschiedene Oxidationsstufen simuliert.

## Erzielte Ergebnisse

Zu 1.: Es wurden auffallende gemeinsame Anreicherungen nachgewiesen

- a) SrO und  $ZrO_2$  am Übergang Oxid-Metallschmelze, offenbar auf der hohen Stabilität von Sr-Zirkonaten beruhend.
- b) Mo und Cr in der Metallschmelze.

Obleich derartige Anreicherungen im flüssigen Zustand nicht in dieser Form existieren, deuten sie doch auf zusätzliche Bindungskräfte hin, die bei der Spaltproduktfreisetzung möglicherweise von Bedeutung sein können. Die Seltenen Erden sind homogen in der Oxidphase, die Platinmetalle homogen in der Metallphase verteilt.

Zu 2.: Der Mengenanteil der beim Schmelzen von Corium mit Beton (mit Silikat-Zuschlag) neben einer Oxidschmelze (Betonschmelze +  $UO_2$  +  $ZrO_2$  ± Stahloxide) auftretenden Stahlschmelze (ohne U und Zr) nimmt zu mit dem Stahlgehalt der Corium-Mischung sowie mit dem Mengenanteil an Corium in der Schmelze und nimmt ab mit steigendem Oxidationsgrad der Schmelze, der seinerseits von der Art des Betonzuschlags abhängt (Silikat oder Karbonat). Durch die vollständige Mischbarkeit der oxidischen Kernschmelze mit der (silikatischen) Betonschmelze ergibt sich eine Abhängigkeit der phänomenologischen Aufschmelztemperatur sowie auch der Erstarrungstemperatur von der Konzentration der hochschmelzenden Oxide  $UO_2$  und  $ZrO_2$  in der Oxidschmelze. In dem experimentell untersuchten Bereich von ~80 bis ~30 Gew.% ( $UO_2$  +  $ZrO_2$ ) fällt diese Aufschmelztemperatur von ~2000 bis auf ~1500 °C kontinuierlich ab. Dieser Zusammenhang erscheint wichtig im Hinblick auf die Möglichkeit einer modelltheoretischen Beschreibung der Aktivitätsfreisetzung aus der Schmelze sowie ihrer Ausbreitung und eventuellen Krustenbildung.

## Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Das Verhalten der Spaltprodukte in der Schmelze mit zunehmender Oxidation wird geprüft. In den weiteren Untersuchungen zur Wechselwirkung der Kernschmelze mit Beton soll das Hauptgewicht auf den Einfluß des Karbonatzuschlags und auf die Verteilung und Reaktion der Spaltprodukte in der Schmelze gelegt werden.

4245      Technologie und Stoffwerte von LWR-Coreschmelzen  
            (G. Ondracek, S. Nazare, IMF I)

### Durchgeführte Arbeiten

1. Herstellung von Corium-EX 1-Proben durch induktives Schmelzen von Corium E in Schutzgas
2. Erprobung der Herstellung von Corium-EX 3 durch induktives Schmelzen. Dabei werden sämtliche Komponenten als Oxide eingesetzt und die Schmelze in Inertgas durchgeführt.
3. Versuche zur Ermittlung des Ausgangszustandes der Kernschmelze nach Durchschmelzen des RDB in Berührung mit Beton.

### Erzielte Ergebnisse

1. Die reproduzierbare Herstellung von Corium-EX 1 ist soweit erprobt, daß größere Chargen (ca. 250 g) hergestellt werden können. Das hergestellte Material kann bei Bedarf kurzfristig den beteiligten Experimentatoren zur Verfügung gestellt werden.
2. Bei der Herstellung von Corium-EX 3 erwiesen sich die ThO<sub>2</sub>-Tiegel wegen starker Wechselwirkung mit der oxidischen Schmelze als nicht brauchbar.  
Bornitridtiegel aus eigener Herstellung waren günstig, jedoch trat eine Verunreinigung der Schmelze durch Aufnahme von Bor (bis 5 Gew.%) auf. Darüber hinaus wurden metallische Ausscheidungen festgestellt, die überwiegend aus Nickel bestanden. Es muß daher geklärt werden, ob dieses Phänomen auf die Versuchsdurchführung in Inertgas zurückzuführen ist oder ganz allgemein auch dann auftreten würde, wenn eine Kernschmelze unter oxidierenden Bedingungen entsteht.
3. Erste Versuche zur Reaktion von oxidiertem Corium-EX1 mit Beton (BN 250, 12 - 13,1 Gew.% Ca, 0,6 - 0,7 Gew.% Fe, 1,3 - 1,4 Gew.% Al, 41,1 - 46,1 Gew.% O<sub>2</sub>, 2,3 - 3,9 Gew.% C, Rest Si) unter folgenden Bedingungen: Beton: Corium - Volumenverhältnis variabel  $\geq 1$ ; 1 atm, Wasserdampf; Maximaltemperatur 1800 K; Aufheiz- und Abkühlzeit 7 min; Haltezeit auf Maximaltemperatur 5 min haben ergeben, daß bei allen Mischungsverhältnissen das Uran und Zirkon überwiegen als Oxid zusammen mit



den Oxiden des Betons in der oxidischen Phase vorliegen, während die Elemente Fe, Cr und Ni noch metallisch auftreten.

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

1. Abschätzung von Oberflächenspannungen der Corekomponenten zur Sicherung der Rechenergebnisse über die Unwahrscheinlichkeit einer Dampfexplosion.
2. Präzisierung der Aussagen zur Schmelzphasensegregation durch Dichte- und thermische Ausdehnungsdaten für Corium
3. Festlegung des Ausgangszustandes der Schmelze nach ihrem Eintritt in das Betonfundament.

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die ersten Untersuchungen wurden für drei Schmelzmassen (0,1 - 1 - 10 t) durchgeführt.

Die maximalen erforderlichen einzuspeisenden elektrischen Schmelzbadleistungen wurden bestimmt. Es wurde dabei für den max. Anteil der Wärmestromdichte vor der Schmelzfront durch in der Schmelze erzeugte Leistungen ein Wert von max.  $0,7 \text{ MW/m}^2$  angenommen. So errechnen sich folgende max. einzuspeisenden Schmelzbadleistungen:

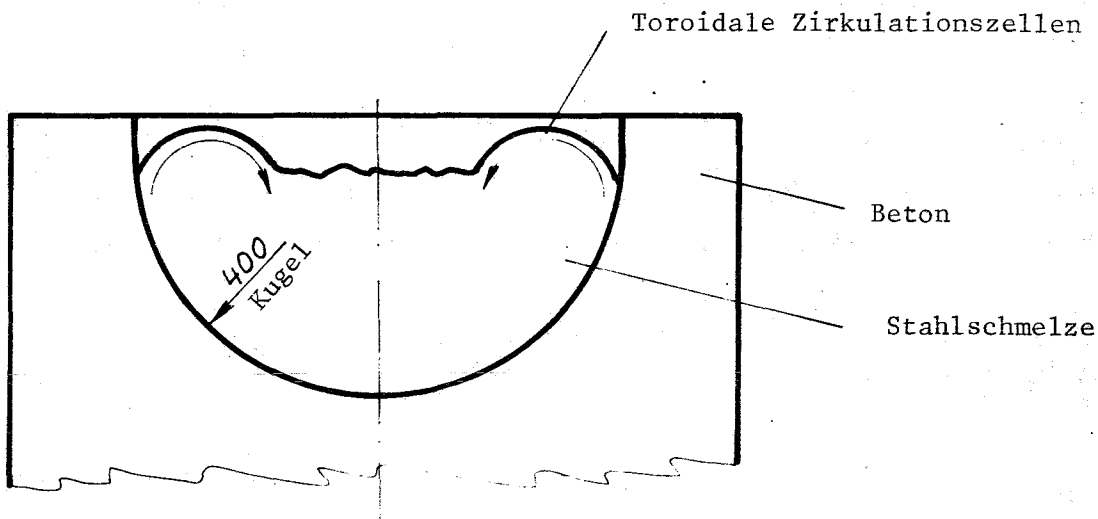
Schmelzmasse	kg	100	1000	10000
Schmelzleistung für $H = D$	MW	0,213	0,987	4,586
Schmelzleistung für $4H = D$	MW	0,268	1,243	5,771

Die max. örtliche Wärmestromdichte vor der Schmelzfront in Beton kann bei einem Reaktorunfall  $3 \text{ MW/m}^2$  erreichen. Sie wird zum größten Teil durch die Abgabe der latenten Wärme des Schmelzbades bestimmt.

Zur Simulation einer spezifischen Unfallatmosphäre oberhalb des Schmelzbades wurden technische Konzepte ausgearbeitet, die einen druckfesten (6 bar) Sicherheitsbehälter vorsehen. Durch Einsprühen von Wasserdampf auf die Schmelzbadoberfläche wird die Containment-Atmosphäre simuliert. Zur Haltung des Gasdruckes im Sicherheitsbehälter stehen zwei Alternativen zur Auswahl: Druckhaltung über ein nichtkondensierbares Gas bei gekühlter Wandung oder mit Wasserdampf bei temperierter Wandung. Hierzu sind Vorversuche zur Überschlagsfestigkeit bei der Arbeitsspannung ( $> 1000$  V) erforderlich.

Darüber hinaus wurden Untersuchungen folgender Teilaufgaben durchgeführt: Reaktionsverlauf an der Schmelzbadoberfläche, Abgasfilterung, Schmelzzusammensetzung, Fission, Temperaturmeßverfahren, Entsorgung Versuchshalle.

Zur Untersuchung der Schmelze/Beton-Reaktion und zur Entwicklung von betriebssicheren Betontiegeln wurden Schmelzversuche mit 0,5 kg CORIUM-Schmelzen und Eingießversuche mit Graugußschmelzen bis 300 kg durchgeführt. Durch Verwendung einer Glasfaser-Bewehrung konnte die Betonrißbreite wesentlich reduziert werden.



Bei den Grauguß-Eingießversuchen konnte ein typisches Verhalten der Schmelze reproduzierbar festgestellt werden. Bei einer Schmelzbadtemperatur von rd.  $1400^{\circ}\text{C}$  in kaltem Beton (rd.  $5^{\circ}\text{C}$ ) kam es zur Ausbildung einer toroidalen Zirkulationszelle, die wahrscheinlich durch das Abströmen des Wasserdampfes am Rande des Schmelzbades zu Stande kam. Die Zirkulationsgeschwindigkeit der Schmelze war dabei wesentlich höher als die freie Blasenauftiegeschwindigkeit.

- 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  
(H. Bunz, G. Haury, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Die Modellversion NAUA-Mod 1 a enthält außer der sehr starken Temperaturabhängigkeit des Wasserdampfgehaltes und des Wasserdampfdrucks keine weiteren Temperaturfunktionen. Im Berichtszeitraum wurde eine Version Mod2 erstellt, die alle Temperaturabhängigkeiten benutzt, die für die Berechnung relevant sind. Im wesentlichen handelt es sich dabei um die Viskosität, die in die Aerosolabbauprozesse eingeht, und um verschiedene Parameter, die für die Berechnung der Kondensationsprozesse notwendig sind. Im Rahmen der notwendigen Genauigkeit wurden alle diese Temperaturfunktionen durch Polynome der niedrigsten noch ausreichenden Ordnung approximiert, um die Rechenzeit nicht unnötig zu verlängern.

Auf der Basis der Sensitivity-Studie wurde die Konstruktion der Versuchsanlage überarbeitet und der Versuchsstand sowie die restlichen Instrumentierung bestellt. Die bedeutsamste Änderung gegenüber dem früheren Konzept besteht in einer Erhöhung der Auslegungsdaten auf 150 °C und 7 Bar. Damit können alle im Containment möglichen Wasserdampfsättigungszustände auch bei den Experimenten eingestellt werden. Rechnungen zur Durchführung der geplanten Messungen verliefen ausnahmslos positiv.

Das Tröpfchengrößenspektrometer wurde in einer Meßserie an heißen Wassernebeln getestet. Alle Aerosolmeßgeräte sind geliefert und werden erprobt. Das Erfassungssystem für die Meßdaten wurde entworfen und bestellt.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Bei einer Auslieferung des Versuchsstands im Juni 1977 wird die gesamte Meßinstrumentierung einsatzbereit zur Verfügung gestellt. Parallel dazu laufen notwendige numerische Verbesserungen am Rechencode und die Vorausrechnungen zur ersten Serie von Kondensationsexperimenten. Die Lieferung des Meßdatenerfassungssystems wird gleichzeitig mit dem Versuchsstand erfolgen, so daß die Inbetriebnahmephase im Sommer abgeschlossen werden kann. Die erste experimentelle Phase befaßt sich nur mit Versuchen zur Wasserdampfkondensation, eine möglichst frühe Messung der Einflüsse der Containmentwände wird dabei angestrebt.

- 4312      Theoretische und experimentelle Untersuchung zur Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole und der wahrscheinlichkeitsbewerteten Strahlendosen in der Umgebung nuklearer Anlagen nach Störfällen  
(W. Hübschmann, H. Schüttelkopf, ASS)

### Durchgeführte Arbeiten

Für den Nahbereich (bis ca. 15 km) wurden 6 Ausbreitungsversuche mit chemischen Tracern durchgeführt. Jeweils zwei Tracer wurden gleichzeitig in 60 m und 100 m Höhe am meteorologischen Turm emittiert. Alle Versuche wurden spät abends bzw. nachts durchgeführt, meist nachdem sich durch Wärmeabstrahlung vom Boden eine stabile Luftschichtung eingestellt hatte (Kategorie D/E, E und F). Bei allen Versuchen wurden ausschließlich automatische Probenahmestationen verwendet. Es wurde eine Meßstation für Feldmessungen mit Kurbelmast und Kleinrechner aufgebaut und getestet. Diese dient dazu, Wind- und Turbulenzmessungen über unterschiedlichen Geländestrukturen (vor allem Gelände geringerer Bodenrauigkeit als beim KFZK) aufzunehmen. Die Station ist gegenwärtig im Raum Stutensee aufgestellt. Die Vorbereitungen der Untersuchungen im Entfernungsbereich über 15 km zielten darauf ab, die Zusammenarbeit mit Besitzern geeigneter Radargeräte zu vereinbaren, um die Anschaffung eines eigenen Radars zu vermeiden. Die notwendigen Umbaumaßnahmen dieser Radargeräte wurden festgelegt. Die Verhandlungen dauern noch an.

### Erzielte Ergebnisse

Die Ausbreitungsversuche geben einen ersten Überblick über die Ausbreitungsverhältnisse bei stabiler Luftschichtung. Weitere Experimente sind notwendig, um die Ausbreitungsparameter  $\sigma_y$  und  $\sigma_z$  auf statistisch gesicherter Basis angeben zu können. Die meteorologischen Daten wurden statistisch ausgewertet hinsichtlich der Ausbreitung, der Niederschläge, der Strahlenbilanz und besonderer meteorologischer Situationen.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Ausbreitungsversuche werden fortgeführt mit dem Schwerpunkt auf abendlichen bzw. nächtlichen Wetterlagen im stabilen Bereich. Die Feldmessungen werden 1977 fortlaufend durchgeführt. Für die Tetronflüge ist zunächst die Zustimmung zur Umrüstung eines der dafür geeigneten Radars einzuholen und diese auszuführen. Erst dann können die radarverfolgten Tetronflüge mit Transponder durchgeführt werden.

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, Arbeitsgruppe f. Technischen Strahlenschutz der TU Hannover)

### Durchgeführte Arbeiten

Das Programm XPIC zur Berechnung der atmosphärischen Schadstoffausbreitung wurde in 2 Versionen erstellt. In der Version A wird eine Einzelwolke über weite Strecken mit einem expandierenden Zellsystem verfolgt. In Version B wird die Schadstoffausbreitung in einem großen aber begrenzten Gebiet erfaßt. Für verschiedene höhenabhängige meteorologische Bestimmungsgrößen wurden die Belastungen am Erdboden untersucht.

### Erzielte Ergebnisse

Die Rechnungen mit Version A ergeben vergleichbare Ergebnisse bei über den Wolkenbereich gemittelten Diffusionskoeffizienten, wenn einmal mit konstanter und einmal mit höhenabhängiger Windgeschwindigkeit gerechnet wird. Bei einer zusätzlichen höhenabhängigen Windrichtungsscherung sind die Belastungen unter der Wolkenzentrallinie niedriger und entsprechend der Wirklichkeit in Richtung des Bodewindes verschoben. In der Version B wird die Ausbreitung in einem sehr großen Zellsystem abschnittsweise und hinsichtlich der Teilchengruppenweise berechnet. Diese Version befindet sich noch in der Testphase.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Neben der Berücksichtigung der Geländeform und der dadurch verursachten Inhomogenitäten des Wind- und Turbulenzfeldes sollen die besonderen meteorologischen Bedingungen und die Mechanismen der Schadstoffablagung in der bodennahen Grenzschicht realistischer erfaßt werden. Die Ansätze für die Vertikalverteilung der Diffusionskoeffizienten sollen auf nicht neutrale Diffusionsbedingungen erweitert werden. Bei Version B ist die Behandlung mehrerer Schadstoffquellen vorgesehen. Schließlich sollen Kriterien für eine günstigere Abstimmung zwischen den rechentechnischen und den meteorologischen Größen ermittelt werden.

- 4330      Untersuchungen der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten  
(A. Bayer, K. Burkart, M. Schückler, INR; W. Hübschmann, S. Vogt, ASS)

### Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Die Arbeiten bestanden im wesentlichen aus Analysen und Entwürfen für die Konzeption des Unfallfolgenmodells der deutschen Reaktor-Risiko-Studie. Es wurde ein dynamisches Ausbreitungsmodell entwickelt, welches zunächst für alle Entfernungsbereiche, später für den Fernbereich eingesetzt werden soll. Darin werden Windrichtungsänderungen nicht berücksichtigt. Mit dem Programmsystem UFO-BAS kann u.a. das Zeitintegral der Luftkonzentration aller emittierten Nuklide für beliebige Aufpunkte

in Ausbreitungsrichtung berechnet werden. Ein weiteres Modell, welches Windrichtungsänderungen im Nahbereich berücksichtigt, ist in Arbeit. Auf der Basis der Vorschläge für die Schadensberechnung der deutschen Risikostudie wurden Überlegungen über die benötigte Speicherkapazität angestellt. Auf der Grundlage dieser Abschätzungen wurde ein überarbeitetes Parameternetz entwickelt. Weiterhin wurden erste Überlegungen zur Implementierung eines Evakuierungsmodells angestellt, das im Institut für Unfallforschung der TÜV entwickelt wird.

)  
Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Zur Erzielung von Ergebnissen für den Zwischenbericht der Phase A der deutschen Risikostudie ist die Nachprogrammierung der entsprechenden Teile der Rasmussen-Studie vorgesehen. Es folgen dann Arbeiten zum Abschluß der Phase A und Übergangsarbeiten zur Phase B, in der dann spezifisch deutsche Verhältnisse und Gegebenheiten berücksichtigt werden.

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. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Pasten und Salzschnmelzen

Durchgeführte Arbeiten

Zunächst wurde das Fließverhalten der Paste getestet, um eine geeignete Transportvorrichtung aufbauen zu können. Danach wurde eine Anlage zum Auftragen der Paste konstruiert und in Auftrag gegeben. Die Werkstoffe, die zum Bau der Anlage benutzt werden, sind ausgewählt und ihr Verhalten gegenüber der Paste ist getestet worden.

Für die Flamspritzeanlage wurde nach Gesprächen mit der Fa. AEG-Elotherm eine Induktionsheizung als Wärmequelle ausgewählt. Eine entsprechende Apparatur wird von der Fa. Apparate- und Rohrleitungsbau, Heidelberg für Versuche zur Verfügung gestellt. Eine Auftragseinheit für das Salzgemisch wurde nach Versuchen mit Salzpulvern bei Fa. Grafix, Stuttgart, bestellt.

Alle diese Arbeiten wurden gemeinsam mit der Fa. Kraftanlagen, Heidelberg durchgeführt.

### Erzielte Ergebnisse

Die Pläne für den Bau von Apparaturen, mit denen die Eignung dieser Verfahren in der Praxis demonstriert werden soll, sind fertiggestellt. Die notwendigen Geräte sind bestellt. Ihre Auslieferung steht bevor, so daß in Kürze mit entsprechenden Versuchen begonnen werden kann.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Mit den Modellversuchen zum Auftragen von Pasten auf Werkstücke kann in nächster Zukunft begonnen werden.

Die Salzsammelanlage wird im Dezember 1976 fertiggestellt. Mit den Versuchen an nicht kontaminierten Teilen kann vermutlich im Januar 1977 begonnen werden.

## 2. Optimierung eines flüssigen Reinigers für Dekontaminationszwecke

### Durchgeführte Arbeiten

Nach der Ermittlung der thermischen Eigenschaften von Reinigergrundsubstanzen mittels der Differentialthermoanalyse (DTA) wurden die thermisch stabilsten, waschaktiven Substanzen so gemischt, daß neben hoher Reinigungswirkung die Gemische auch schaumreguliert waren.

Diesen Grundreinigungsmischungen wurden thermisch stabile Komplexbildner zugesetzt. Die Dekontaminationswirkung der mit Wasser im Verhältnis 1 : 100 verdünnten Reinigungsmischungen wurden an kontaminierten Edelstahlproben ermittelt.

### Erzielte Ergebnisse

Durch Mischen von Alkylphenopoläthern mit Fettalkoholäthylenoxid - Additionsprodukten und Zusätzen an Aminoacetaten oder Methylphosphorsäureestern konnten schaumregulierte und bis zu 200 °C thermisch stabile Reiniger zusammengesetzt werden. Die Dekontaminationsergebnisse dieser



wässrigen Reiniger waren im Vergleich zu Papan-Dekopan-85 bezogen auf Ru-106 teilweise besser, bezogen auf Cs-137 etwa gleich und bezogen auf Co-60 immer mäßig.

### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Es werden noch weitere thermisch stabile Komplexbildner gesucht und zuerst einzeln, dann als Mischungen getestet.

Die besten Reinigermischungen müssen dann in Abhängigkeit vom pH-Wert optimal auf Dekontaminationswirkung eingestellt werden. Gegebenenfalls ist die Reinigerzusammensetzung zusätzlich noch auf universale Verwendbarkeit abzustimmen.

### 3. Optimierung der Dekontamination großer Kernschmelzen

#### Durchgeführte Arbeiten

Es wurde damit begonnen, die in der Praxis zur Dekontamination am meisten benutzten Chemikalien im Tauchbad in Abhängigkeit von der Temperatur und Konzentration auf ihre Wirksamkeit hin zu testen. Als Probenmaterial dienten hierbei im Autoklaven kontaminierte Edelstahlplättchen; die Dekontaminationszeit betrug zwei Stunden. Die Versuche sind noch nicht abgeschlossen. Bisher wurden untersucht: Salpetersäure, Salpetersäure/Flußsäure, Alkalische Permanganatlösung, Oxalsäure und Oxalsäure/Citronensäure.

#### Erzielte Ergebnisse

Als erste Versuchsergebnisse, die teilweise noch durch weitere Versuche abgesichert werden müssen, sind zu nennen:

- Alle untersuchten Dekontaminationschemikalien zeigten bei 80 °C eine weitaus höhere Wirksamkeit als bei Raumtemperatur.
- 4 molare Salpetersäure ist in Bezug auf Dekontaminationsvermögen und anfallenden Abfall die optimale Konzentration.

- Bei der Kombination 3%-ige Flußsäure/20 %ige Salpetersäure läßt sich die Konzentration halbieren, ohne daß die Wirksamkeit beeinträchtigt wird.
- Die Konzentration 90 g Natronlauge/30 g Kaliumpermanganat pro einen Liter Wasser erscheint für Dekontaminationszwecke optimal geeignet zu sein. Bemerkenswert ist die hervorragende Wirksamkeit dieser Lösung für das Nuklid Ru-106 (Restaktivitäten < 5 %).
- 1 %-ige Oxalsäure zeigte gegenüber höheren und niedrigeren Konzentrationen das beste Dekontaminationsvermögen.
- Mit der Kombination 0,2 - m Citronensäure 0,3 - m Oxalsäure konnten gegenüber anderen, geringeren Konzentrationen die besten Dekontaminationsergebnisse erzielt werden.

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

Die Versuche werden mit weiteren Dekontaminationslösungen fortgesetzt. Nach der Auswahl der Lösungen mit optimaler Dekontaminationswirkung werden mit diesen andere Auftragstechniken erprobt.

4412 Wanderung langlebiger Transurane im Boden und in geologischen Formationen

(T. Dippel, A. Jakubick, ABRA)

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Zeitgeschichte des Pu-Inputs in den Boden aus dem Bombenfallout der vergangenen Jahre wurde für den Heidelberger Raum ermittelt. Mit Hilfe einer Korrelation zwischen den Messungen in Ispra und Heidelberg konnte der Verlauf der Pu-Konzentration in der Luft rekonstruiert werden. Aus diesem Verlauf wurde dann weiter mit Hilfe von empirischen Beziehungen die Naß- und Trockenablagerung berechnet.

Zur Modellierung der Pu-Wanderung im Boden wurde eine Apparatur entwickelt. Sie besteht aus einer Hochdruckflüssigkeitspumpe mit der das Perkolat bei konstantem Druck durch eine Bodenkolonie gepreßt werden kann. Die Kolonie ist auf einer elektronischen Waage angebracht, so daß die Änderung im Wassergehalt der Bodenkolonie jederzeit verfolgt werden kann. Die Entnahme des kontaminierten Perkolats am anderen Ende der

Kolonne erfolgt durch einen Fraktionensammler, der in seiner Drehgeschwindigkeit dem schnellen Ausfluß des Perkolats angepaßt ist.

### Erzielte Ergebnisse

Die Zeitgeschichte des Plutonium-Inputs hat folgenden Verlauf

Jahr	1954	1955	1956	1957	1958	1959	1960	1961	1962
Kum. Ablagerung (mCi/km <sup>2</sup> )	0,066	0,14	0,25	0,37	0,53	0,79	0,82	0,85	0,91

Jahr	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970
Kum. Ablagerung (mCi/km <sup>2</sup> )	1,61	2,09	2,32	2,39	2,41	2,48	2,51	2,54

Es ist eine Apparatur für Perkulationsversuche mit Plutonium an Bodenproben betriebsbereit. Es lassen sich mit ihr verschiedene Grade der Sättigung des Probenmaterials mit Perkolat einstellen. Der Zeitraffer-effekt gegenüber natürlicher Perkolation beträgt 1 : 3000.

### Ausblick auf den geplanten Fortgang der Arbeiten

Zur Prüfung der Feldergebnisse und des Pu-Verhaltens unter veränderten Randbedingungen werden Laborversuche durchgeführt.

Es ist geplant, die Pu-Verteilung von verschiedenen Böden zu vergleichen, die mittlere Verweilzeit zu berechnen und nach Abhängigkeiten zwischen Konzentrationsverteilung und Lagerungsdichte, Porosität und spez. Oberfläche zu suchen.

- 4420 Technik der Räum- und Demontearbeiten
- 4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung und  
Endbeseitigung nuklearer Anlagen  
(G.W. Köhler, RBT)

#### Untersuchungsprogramm

1. Ausbau, Zerkleinerung - Stahl/Beton  
Konditionierung großer Komponenten  
Hilfssysteme
2. Transportmöglichkeiten von Reaktorkomponenten ab Kernkraftwerk
3. Konditionierung von Abfällen
4. Ablaufplanung einer Stilllegung
5. Räumliche Anordnung von Reaktorkomponenten

#### Durchgeführte Arbeiten

Die Untersuchungen zu den Punkten 1 und 2 wurden durchgeführt und abgeschlossen. Die Punkte 3 bis 5 wurden bearbeitet, jedoch im Berichtszeitraum noch nicht abgeschlossen.

#### Erzielte Ergebnisse:

Zu 1.: Der Ausbau von Reaktorgrößkomponenten ist technisch möglich, auch nach längerer Betriebsdauer. Bis auf den Druckbehälter neuer Siedewasserreaktoren sind die Komponenten unzerlegt ausbaubar. Der Ausbau von ungeschirmten Komponenten mit hoher Dosisleistung ist sehr aufwendig, da fernbedient und fernbeobachtet gearbeitet werden muß.

Die Zerlegung von Komponenten im Reaktorgebäude ist möglich, jedoch nur bei einer Stilllegung sinnvoll.

Bei Komponentenaustausch ist eine externe Zerlegung, z.B. in einer Konditionierungsanlage vorzuziehen um den Einbau der Tauschkomponente nicht zu verzögern.

Wegen der Komponenten-Abmessungen und der Materialdicken sind bei der Zerlegung bevorzugt thermische Trennverfahren einzusetzen, insbesondere Plasmaschmelzschnitten und autogenes Brennschneiden.

Beim Ausbau der Komponenten sowie der weiteren Zerlegung von Segmenten sind auch mechanische Werkzeuge bzw. Werkzeugmaschinen wie Sägen und Schlagscheren zweckmäßig zu verwenden.

Hilfssysteme wie Schutzzelt, Absaugung, Filter usw. sind bei Ausbau und Zerlegung notwendig, um eine Ausbreitung von Kontamination zu verhindern.

Zu 2.: Wegen der zu erwartenden hohen Dosisleistung nach längerem Betrieb (20 - 30 Jahre) ist eine Abschirmung der Primärkomponenten beim Transport notwendig. Dadurch erhöhen sich Gewicht und Abmessungen, so daß nur Komponenten mittlerer Größe (z.B. Primärpumpe) unzerlegt transportierbar sind.

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

Abschließende Bearbeitung der Punkte 3 bis 5 bis Ende 1977.

S U M M A R I E S

4112 Development of Exhaust Air Filters for Reprocessing Plants  
J. Furrer, J.G. Wilhelm, LAF II; K. Jannakos, RBT-IT)

#### Work Completed

1. An iodine and aerosol test rig was built jointly with GWK in a caisson in WAK and accepted by the TÜV (Technical Inspectorate). An in-line iodine measuring probe was installed in the dissolver off-gas line.
2. Sampling systems for the dissolver and vessel off-gas were designed and built for examination of the gaseous components.
3. High loading level and desorption tests were carried out in the laboratory with AC 6120/H<sub>1</sub> as the iodine sorption material.
4. The flowsheet for PASSAT and all the technical criteria for delivery and acceptance and specifications for the components of the system were completed. Purchases of the plant components and examination of the bids were begun.
5. Fabrication and partial testing of a prototype iodine filter (box design) were completed)

#### Essential Results

Ad 1. In principle, iodine measurements can be performed with the existing iodine measuring system. Improvements were achieved and tested in prolonging the service life of the system. Also a parallel development seems to be successful.

Ad 2. First samples were taken to determine the concentration of organic constituents in the vessel off-gas of the WAK facility.

Ad 3. In the case of iodine concentration peaks of  $> 10 \text{ g I}_2/\text{m}^3$  of off-gas there is physical adsorption on the iodine sorption material in addition to chemisorption. The optimization of a sweep phase for further transport of the adsorbed iodine up to the point of binding by chemisorption in deeper layers of the filter will be the object of further studies.

Ad 4. The assembly structure to accommodate the whole system has been set up. Technical discussions about the adjudication of the contract for the plant have in part been finished.

Ad 5. Partial testing of the prototype iodine filter (box design) produced good results in long time and handling tests.

#### Plans for the Near Future

Continuation of the high loading and overloading tests and of the desorption tests to determine sweeping times. Measurement of off-gas compositions in WAK.

Construction of PASSAT and execution of further studies on HAUCH in order to optimize aerosol sampling (droplets and particles).

4114 Exhaust Air Filtering in Reactors

#### Ageing and Poisoning of Iodine Sorption Materials

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

#### Work Completed

Studies relating to the reduction of the  $^{131}\text{I}$  removal efficiency of activated charcoals in iodine filters due to loading by poisons as well as studies of the regeneration of poisoned activated charcoals have been continued and extended to the determination of radioiodine volatility during the phase of desorption.

#### Essential Results

Even after high loading by poisons of the activated charcoal as a result of extended exposure in the nuclear power station the initial removal efficiency was nearly attained by a poison desorption cycle. A first test showed that not much of the iodine activity already removed was discharged during the desorption phase.



### Plans for the Near Future

The tests on poison desorption in the presence of absorbed radioiodine will be continued. According to results so far obtained the service life of the iodine sorption filters can be markedly increased by intermediate poison desorption cycles.

The prototype of an iodine sorption filter intended to guarantee a longer service life is under construction.

### Determination of the Radioiodine Species in the Exhaust Air of Nuclear Facilities

(H. Deuber, LAF II)

### Work Completed and Essential Results

Using the selective  $I_2$  sorption materials DSM 10 and DSM 11 measurements were performed with radioiodine species samplers in the exhaust air of a research reactor and of several nuclear power stations (BWR, PWR). The radioiodine species samplers were used upstream and downstream of iodine filters (containment exhaust air stand-by filter, shutoff room exhaust air filter) as well as in the exhaust air of the stack.

The results obtained by use of DSM 10 and DSM 11 generally agreed. The percentage of aerosol iodine was low in all cases ( $\leq 3\%$ ) whereas that of organic iodine partly reached high values ( $\leq 77\%$ ). In case of complete iodine filtering of the air the percentage of inorganic iodine was very low ( $\leq 2\%$ ).

### Plans for the Near Future

In a PWR nuke measurements will be performed with radioiodine species samplers over an extended period of time (about 1 year) in different types of exhaust air (upstream and downstream of the shutoff room exhaust air filter, exhaust air from the turbine house, auxiliary plant building, stack). The development of a radioiodine species sampler applicable in the exhaust air of reprocessing plants will be started.

In the two metal loss rate runs an abrupt, discontinuously enhanced metal concentration was found in the pressurized water after about 400 hours. It suggests the growth of the surface layer on the INCOLOY specimens until an instable thickness is reached at which the metal oxide begins to detach.

Automation on the laboratory scale of the atomic absorption spectroscopy essentially resulted in making shorter the handling and evaluation period and in a higher accuracy of analytics.

#### Plans for the Near Future

Three autoclave systems will be available to continue the investigations. The discontinuous metal loss rate observed calls for further investigations. They will relate to the chemico-physical partial processes of transport of the metal and metal oxide content released in the pressurized water and of the determination of the solid content, classified by size.

4130 Long-term Radiological Burden of the Environment

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

#### Work Completed

In the second half of 1976  $^{129}\text{I}$  was determined in process solutions, various waste waters, cow's milk, thyroid and soil samples. An analytical method was developed for the assay of  $^{127}\text{I}$  in air. First analyses were performed of the air in the environment of the Karlsruhe Nuclear Research Center.

#### Essential Results

The  $^{129}\text{I}$  concentration in waste waters and milk have further decreased and for cow's milk they attained the detection limit of several  $10^{-3}$  pCi of  $^{129}\text{I}$ /l of milk. The  $^{129}\text{I}$  concentrations in soil samples so far evaluated have scattered within one order of magnitude of fCi  $^{129}\text{I}$ /g of soil. The results of measurements on stable iodine of the environmental air show that the elemental iodine and aerosol

iodine amount to 1 - 10 ng  $^{127}\text{I}/\text{m}^3$  of air.

#### Plans for the Near Future

The determination of  $^{129}\text{I}$  in cow's and goat's milk as well as in waste waters has been terminated for the time being. However, in the next year the  $^{129}\text{I}$  determination in goat's milk is to be continued when the green forage season will start. Likewise,  $^{127}\text{I}$  will be determined in air at different places of the Federal Republic of Germany with the beginning of the green forage season. The determination of  $^{129}\text{I}$  in soil samples will be terminated in 1977.

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

The programme for the calculation of the radiological impact on the population via the various exposure pathways has been finished. Results have been obtained by making use of this programme for the Upper-Rhine-Region. By inserting some preparatory work for the German risk study a delay in the documentation occurred. The documentation will be issued during the first half of 1977.

In a further study the build-up of heavy isotopes in the cores of different reactor types were investigated and the resulting throughputs in a reprocessing plant have been derived. Using attainable decontamination factors, the resulting release rate can be estimated.

#### Plans for the Near Future

The investigation has been finished.

4140 Separation of Krypton and Xenon from the Offgas of  
Nuclear Facilities

Research Program

1. Column behavior and separation factors achievable during the low temperature distillation of the three component system  $N_2$ -Xe-Kr.
2. Purification of the offgas
  - 2.1 Testing of catalysts and development of a catalytic test bed including a controlled dilution loop for the reduction of  $O_2$  and  $NO_x$  with  $H_2$ .
  - 2.2 Measurement of the adsorption capacity of inorganic sorbent materials like molecular sieves for Kr, Xe and trace gases e.g.  $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $NO_x$  and  $NH_3$
3. Study of the adsorptive separation of Kr and Xe on activated charcoal as an auxiliary method to the distillation process.

Work Completed

Ad 1. The pilot plant KRETA has been put into operation and first runs have been conducted.

Ad 2.1. The static laboratory apparatus for kinetic studies of the reduction of NO with  $H_2$  has been put into operation. The analytic determination of  $H_2$  in the presence of  $NO_x$  has been developed at the recycling loop apparatus. The reduction of  $O_2$  and  $NO_x$  was investigated without catalyst (thermal reduction) in two series of experiments, using flame combustion and electrical heating of the reaction zone.

These experiments were carried out in collaboration with Fa. Decatox.

Ad 2.2. Dynamic adsorption coefficients of  $NH_3$  and  $NH_3/H_2O$  as well as of  $NO_2$  were determined using three different types of molecular sieves.

Ad 3. An experimental program initiated by us on the separation of Kr-Xe by adsorption on activated charcoal was concluded by Bergbau-forschung Essen.

## Essential Results

Ad 1. During the first period of operation of the KRETA plant decontamination factors were obtained using the two-component system  $N_2$ -Ar and  $N_2$ -Kr which corresponded fairly well with values previously calculated ( $DF(Ar) = 10$ ,  $DF(Kr) > 10^3$ ). The separation Kr-Xe in the second column resulted in a Kr head product of 99,99 % purity and a Xe bottom product containing <100 ppm Kr.

Ad 2.1. A detector for the determination of  $H_2$  was developed showing no poisoning by  $NO_x$ . The experiments on the thermal reduction of  $O_2$  and  $NO_x$  with  $H_2$  showed that only at temperatures  $> 1100^\circ C$  reaction rates are short enough to provide high yields.

Ad 2.2. Dynamic adsorption coefficients of  $NH_3$  on two acid resistant molecular sieves are only about half as high as on the conventional type 5A. The presence of  $H_2O$  in the gas stream increases the  $NH_3$  adsorption. The desorption of  $NO_2$  proceeds in several temperature steps.

Ad 3. The separation Kr-Xe by means of means of selective desorption from activated charcoal (vacuum of purging with  $N_2$  or  $H_2O$ -vapor) is feasible, but relatively large adsorption beds are required for large process gas streams.

## Plans for the Near Future

Ad 1. The operation of the KRETA plant will be continued using the three-component system  $N_2$ -Xe-Kr. The molecular sieve unit ADAMO which was ordered at the end of 1975 will be mounted in the beginning of 1977. It will be operated at first separately and then simultaneously with KRETA.

Ad 2.1. Catalyst test will be continued on laboratory scale. The semi-scale equipment for the catalytic  $O_2$ -,  $NO_x$ -reduction will be ordered.

Ad 2.2 and 3. The dynamic adsorption studies will be continued using the rare gases and other trace gases as well as various adsorbents.

4150 Waste Heat Problems Associated with Nuclear Facilities

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

Work Completed

With the help of the WALKÜRE program allowing to calculate the rise and diffusion of plumes from cooling towers a number of computations were performed for complex meteorological environmental conditions. The model used in the determination of the dispersion coefficient with induced turbulence was improved once more. It is now based on the turbulent kinetic energy and rate of dissipation. This required two further partial differential equations to be solved so that their number has been increased to seven.

Essential Results

The results of computations performed for complex meteorological conditions have shown that the horizontal distributions of the relevant parameters normal to the direction of transport clearly differ from each other in the individual layers. The influence exerted by inversions gets particularly noticeable. Such structures cannot be treated by one-dimensional models. In some extreme cases the geometry of the visible plume completely differs from that which would be obtained with one-dimensional models. By use of the new model for the dispersion coefficients the distribution of the latter can be calculated also in a more realistic way than before. In case of overlapping of the plumes of several sources the restrictions imposed by the previous approach can be eliminated.

Plans for the Near Future

The program will be terminated on December 31, 1976 with the completion of the WALKÜRE computer program. Since the results of measurement campaigns relating to the cooling tower plumes of the Neurath and Meppen power stations were not available before mid-December 1976, detailed "calibration" was not possible. The verification as well as the application of the WALKÜRE program used to calculate overlappings will be carried out in 1977 within the framework of the Upper Rhine Valley Project initiated by the Federal Office of Environmental Protection (Bundesumweltamt).

4200 SYSTEM BEHAVIOUR OF NUCLEAR FACILITIES DURING INCIDENTS

4210 Dynamic Load of Components and Systems

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

Work Completed and Essential Results

Measurements were terminated with the infrared measurement device supplied for the Marviken II tests. The instrument was successfully used in all nine blowdown tests. Most of the data measured were evaluated and documented in the Marviken reports.

In the analytical studies on the dynamic behavior of the containment structure work concentrated on the outer spherical shell. It was found that the eigenfrequencies of this shell are very close to each other in the 60 Hz range and that the radial deflections are proportional to the pressure load in a first approximation. First attempts were made to take into account the influence of inertia of the water moved along with the structure.

The parameter computations were continued which had been performed on behalf and for the account of TÜV Baden using the KONDAS computer program developed for this purpose. It was possible to compute in a reliable manner both the low-frequency events of pulsating condensation, i.e. the formation of vapor bubbles and bubble collapsing, and to make predictions about the wall loads occurring in a multiple tube assembly. Comparison with the experimental data, on the whole, yielded satisfactory agreement.

The data measured in the blowdown tests performed at the Mannheim power station were evaluated and the results transmitted to TÜV Baden.

In the course of non-nuclear hot tests performed in the Philippsburg Nuclear Power Station accompanying control measurements were carried out on behalf and for the account of TÜV Baden. The data measured and evaluated were directly transmitted to TÜV Baden.

### Plans for the Near Future

Within the framework of a general judgement relating to the applications of the infrared measurement technique a quantitative comparison will be made of the data measured at Marviken by this test method with the data determined by other measurement techniques.

The behavior of the spherical shell at transient pressure load and the stresses in the shell will be calculated in detail. Also attempts will be made to couple the water moved along with the structure.

4214      Development of a Radionuclide Method of Mass Flow Measurement  
            in Non-steady State Multiphase Flows  
            (R. Löffel, LIT)

### Work Completed

The Marviken II experiments were continued by the last five blowdowns (BD 21 through 25) taking place from July until October. In addition to the gas velocity measurements in agreement with the MX II-CRT-Project, velocity and density measurements were performed in the outlet pipe as a preparation of HDR experiments.

The radiotracer measurement equipment for experiments at the joint test rig (PNS 4215) has been completed.

### Essential Results

In the blowdown channels a gas velocity of 0 to 100 m/s was measured. A comparison between the velocity of the gas phase (measured with the radiotracer measurement technique) and the liquid phase (measured with the infrared measurement technique developed in the frame of the PNS) yielded good agreement of results. This demonstrates that there was practically no slip in the blowdown channels between the gaseous and the liquid phases.

First partial results are available of velocity and density measurements performed in the discharge pipe:



1. The velocity in the discharge pipe varies from 0 to 40 m/s.
2. For the void factor values from 0 to 0,5 were found.
3. The mass flow varies from 0, to 3,5 t/s.

#### Plans for the Near Future

The evaluation of the Marviken II experiments will have to be terminated within the first half of 1977.

Preparations will continue of the tests to be carried out in the "Joint Test Rig for Testing and Calibration of Two-phase Mass Flow Measurement Techniques" (PNS 4215) and for the HDR blowdown experiments starting in mid-1977.

4215      Joint Test Rig for Testing and Calibrating of Different  
            Methods of Two-Phase Mass Flow Measurement  
            (J. Reimann, TRB)

#### Work Completed and Essential Results

The start-up of the steady-state steam-water loop has been finished. The planned maximal values of the mass flow rate as function of quality and pressure are reached.

The components for the steady-state air-water loop have been ordered, the loop has been built up, first function tests have been carried out.

Because of the additional work of the extension for air-water flows, the blowdown test rig was delayed. Calculations for the security of the pressure vessel have begun.

During the experiments the knowledge of the flow regime and the apparent density is essential. To detect flow regime, impedance probes were developed and have been tested in steam-water flows at pressures up to 150 at, The

probe signals can be adjoined to flow patterns even in these cases when high speed movies could not be interpreted definitely. To measure the apparent density a multiple  $\gamma$ -beam densitometer is developed. The collimator block and the mounting support for the  $\gamma$ -source were manufactured, the shielding and cooling of the scintillator has begun.

#### Plans for the Near Future

First tests of measuring methods in steady-state steam-water and air-water flow will begin. The pressure vessel and the measuring techniques for the blowdown test rig will be ordered. The  $\gamma$ -densitometer will be completed.

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

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

#### Work Completed and Essential Results

The stresses in the upper core barrel flange have been analysed in detail with STRUDL/DYNAL. Nonlinearity effects of the material properties were included. It was found that the blowdown load does not lift the flange and surface pressure is acceptable. The 0,2 % strain value is exceeded only locally and insignificantly. The rigging diagram of the vessel has been established.

The blowdown load on the core barrel has been computed with the two-dimensional code YAQUIR for reference test No. 3. Results of DAPSY calculations (performed by LRA) were used as input for the pressure in the nozzle and lower plenum. The predicted pressure signals at the locations of the pressure sensors have been documented.

#### Plans for the Near Future

The thickness of the calibration plates for clamping the upper core

barrel flange will be determined. Vibration tests will be designed in detail for the HDR core barrel both in air and water. Predictive calculations will be performed for other blowdown tests.

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

#### Work Completed and Essential Results

The autoklave was completed and accepted by the Technical Inspectorate (TÜV). The associated electromagnetic shaker has been delivered. Mounting has started on a vibration insulated concrete block built for this purpose. The test program for the examination of the prototype measurement transducers has been specified in detail and the necessary auxiliary test equipments were designed and are being fabricated. The laboratory basic tests so far performed on three prototype displacement transducers yielded very satisfactory results. Determinations included the dependency of zero, sensitivity and linearity on the temperature in a furnace at atmospheric pressure. In HDR the interferences were investigated using different types of measurement cable. The results were quite positive so that doubts were largely eliminated. A concept of instrumentation was elaborated for the measurements planned in addition on the thermal stratification in the HDR pressure vessel and the specifications were defined which are required for the invitation of tenders and placing the order for this measurement equipment. Work has been carried on to correct the dynamic measurement errors occurring during blowdown tests.

#### Plans for the Near Future

After the operation of the autoclave test system has been started the continuing tests with the prototype transducers will be carried on under the test program. This includes tests under transient temperature and pressure conditions without mechanical loads as well as dynamic tests performed both in air and in water at elevated pressure and temperature. To the extent available, the whole original measurement chain will be used in these tests so as to obtain reliable information about the

real dynamic behavior. At the end of the test series, the prototype transducers will be subjected to high acceleration loads allowing experimental determination of the mechanical ultimate loadability. The test results will be the most important aspect to be taken into account in the selection of the definite HDR core shell instrumentation.

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

#### Work Completed and Essential Results

The fluid dynamics code YAQUIR has been enhanced by a special evaluation subsystem for plotting pressure fields and predicted pressure signals versus time. YAQUIR has been modified (modified version: STRUYA) such that coupling with various structural models in 2 1/2 dimensions is now possible. Results have been obtained with two one-degree-of-freedom models for the structure. Coupling of STRUYA with the multi-degree-of-freedom code CYLDY2 for the structure is underway.

All central routines of the system code FLUST have been coded and tested. First results in form of eigenfrequencies have been obtained from the integrated structure-fluid-code FLUX. Programming of a two phase flow drift flux model has begun. Shallow water experiments have been performed indicating that this technique is a useful tool for verifying fluiddynamic codes.

The structural dynamics code CYLDY2 has been coded and tested. Application to the HDR core barrel indicates significant performance improvement over multipurpose finite element codes. Furthermore a fast opening valves for pressure relief has been designed. It will be used to perform small scale experiments related to fluid structure interaction.

#### Plans for the Near Future

CYLDY2 results will be compared in detail with STRUDL-DYNAL. The test apparatus for small scale tests of fluid structure interaction will be prepared. STRUYA will be coupled with CYLDY2. The codes FLUST and FLUX will be applied to computer the HDR Blowdown loads.

4230 Fuel Behavior under Accident Conditions

4231 Theoretical Investigations of the Fuel Rod Behavior during  
a LOCA

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

#### Work Completed

During the period reported use of SSYST-Mod 1 was increased. In former times the work was primarily concentrated on analysing the blowdown test-rig PNS 4236. Now we consider the LOCA of a PWR.

The description of SSYST was completed. A shortened version was incorporated into the SSYST-library 'BASIS'.

Work on SSYST-Mod 2 was continued. The module for subchannel thermo-hydraulics during blowdown was tested, work on the correspondent module for refill and reflood phases was continued. The module for rod mechanics was revised.

Comparative runs for the steady state codes FRAP-S and SATURN-L were made.

Work on determining improved diffusion coefficients for oxygen in Zry-cladding is completed. To determine creep coefficients for Zry, tensile-test-data from PNS 4235.1 were used in the temperature range of 870 K to 1020 K.

For the statistical description of cladding deformation during a LOCA alternative methods were analysed.

#### Essential Results

The use of SSYST-Mod 1 shows up to now, that the models incorporated into SSYST give a qualitative correct description of the rod behaviour during a LOCA. The simple thermohydraulic models for refill and reflood phases allow only a conservative analysis.

Comparative runs of SATURN-L and FRAP-S showed a good agreement for these codes.

Diffusion coefficients were determined for oxygen in  $ZrO_2$  and  $\alpha$  Zry. Layer thickness data from ORNL and PNS 4235.2 were used in the temperature range  $1170 K \leq T \leq 1570 K$ . Temperature dependence for  $ZrO_2$  could not be modeled with one Arrhenius term only. For temperature  $< 1270 K$  additional experiments are needed.

From tensile-tests in the temperature range  $870 K \leq T \leq 1020 K$  Norton-creep-data were determined. The comparison of these data with burst tests of PNS 4238 showed a good agreement with respect to the assumptions necessary.

For the statistical analysis of rod behaviour during a LOCA the following tasks were defined:

1. Calculation of the probability-density function of peak cladding temperature for an ensemble of hot rods.
2. Calculation of the probability for:
  - burst of N rods out of the ensemble considered
  - coolant blockage in a subassembly.

To solve these tasks the methods of Monte Carlo 'stratified sampling' and 'moment matching' as well as the response surface method are applicable. Despite of the higher computer costs, compared to nonlinear error propagation previously preferred, we have the advantage of

- less code development necessary and
- higher accuracy using 'response surface' method.

#### Plans for the Near Future

Work on SSYST-Mod 2 will be continued. Incorporation of a steady state code has highest priority.

SSYST-Mod 1 will be used in PWR LOCA analysis and in burst tests of PNS 4238.

4234 Decay Heat Measurement of  $^{235}\text{U}$  in the Time Period from  
10 to 1000 Seconds

(K. Baumung, INR)

Work Completed and Essential Results

Nearly all components of the experimental facility were completed. The automatic control of the pneumatic transfer system and the active fuel sample handling mechanism was constructed and successfully tested. The computer programs for the calorimeter control and data recording by a 8K-minicomputer were provided and the measuring electronics completed. The shielding from  $\gamma$ - and delayed neutron radiation was designed and constructed and the security report for the operation of the facility at the reactor written.

Plans for the Near Future

After testing the whole facility in cold runs the irradiation experiments will start at the FR2 reactor.

4235 Studies on Material Behavior During LOCA and ATWS

4235.1 Investigations of the Mechanical Behavior of Zry-4 Cladding  
Material at High Temperatures

(M. Bocek, IMF II)

Work Completed

1. Analysis of the influence of  $\text{ZrO}_2$ -layers upon the strain rate sensitivity index  $m$ .
2. Examination of the influence of the environment on the change in shape of Zry-4 specimens during a tensile test.
3. Examination of the influence of temperature excursions into the  $\beta$ -phase region on the plastic behavior of Zry-4 tensile specimens tested in the  $\alpha$ -phase region.

### Essential Results

Ad 1. The test specimen is considered as a two element composite cylinder (a thin and brittle  $ZrO_2$  coating firmly covers the ductile metallic filament). Plastic deformation of the specimen can proceed only if cracking of the coating is possible. From considerations it follows that if the actual crack density depends on the strain rate (or stress), the strain rate sensitivity index does not solely reflect the plastic behavior of the filament but also depends on the properties of the coating.

Ad 2. From a comparison of results of tensile experiments performed in air atmosphere and vacuum resp. it follows that  $ZrO_2$ -coatings suppress macroscopic necking.

Ad 3. Temperature excursions performed in vacuum (up to  $1200^\circ C$ ) reduce the ductility of Zry-4 tensile specimens tested in the  $\alpha$ -phase region ( $800^\circ C$ ). The results are also dependent on the details of the temperature treatment.

### Plans for the Near Future

1. Examination of creep behavior of Zry-4 tensile specimens under very low loads and very low partial pressure.
2. Experimental examination of oxide coatings on the plastic behavior of the composite Zry-4/ $ZrO_2$ .
3. Investigation of the influence of  $ZrO_2$ -coatings upon the ductility of tensile specimens in the  $\alpha$ -phase region after a temperature excursion in the  $\beta$ -phase region (vacuum testing).



4235.2 Investigation of the High Temperature Steam Oxidation of Zircaloy 4  
Cladding Tubes  
(S. Leistikow, 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.

It could be demonstrated that an exposure of 3 min to LOCA-typical temperature transient conditions peaking at 1300°C and joined by controlled cooling (2.2 - 57.5°C/s) resulted in surplus weight gains (up to 30 %) and a coarse crystallisation of the  $\alpha'$ -phase.

In general, for all temperature-transient exposures no detectable influence of the thermal stresses on the kinetics could be measured. At temperatures above 800°C the resulting weight gains of LOCA-similar exposures were about 33 % lower than the corresponding isothermal ones.

The exposure of preoxidized specimens to LOCA-typical temperature transient conditions during 3 min and peaking at 1000 and 1100°C showed in comparison to the weight gains in the metallic state reduced oxygen consumption; increased up-take was measured at 1200°C. Thus, protection against oxidation by preformed oxide ZrO<sub>2</sub>-scales can not be expected above 1100°C.

Stress-rupture testing was performed in argon (900°C) and steam (800, 900, 950°C). Stress-rupture curves for steam exposure were established, but also creep curves under comparable argon and steam conditions were measured by interrupting single specimen tests at 900°C and by further metallographic and scanning electron microscopic evaluation. Thus, the strengthening and ductility reducing effect of oxidation was proven also for this temperature range. The crack pattern of the ruptured specimens varied with internal pressure, leading to different extent of superimposed mechanical load, and time of steam exposure. At high creep rate a small number of broad cracks are formed, at lower creep rate many narrow cracks

could be detected. Semi-quantitative relations between the number and width of cracks and the internal pressure, time-to-rupture, and maximum circumferential elongation were established.

#### Plans for the Near Future

Comprehensive documentation of oxidation kinetic results. Temperature-transient exposure of specimens which are preoxidized at lower temperatures. Stress-rupture testing under isothermal ( $> 1000^{\circ}\text{C}$ ) and temperature-transient conditions.

#### 4235.3 Investigations of the Influence of Oxide Fuel and Fission Products on the Mechanical Properties of Zry-Cladding Tubes under Accident Conditions

(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.
- Testing of methods of pressure measurement at temperatures of the diaphragm above  $200^{\circ}\text{C}$  (pressure measurements at high temperatures are necessary for studies relating to stress corrosion cracking of Zry-cladding tubes due to iodine).
- First  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -reaction experiments were carried out under PCM-conditions between  $1100$  and  $1400^{\circ}\text{C}$  in a high pressure autoclave system.
- Study of the chemical interactions between simulated fission products and Zry at temperature up to  $1200^{\circ}\text{C}$ .

### Essential Results

- Whereas at low internal pressure hyperstoichiometric  $UO_2$  causes a Zry cladding strengthening due to the oxygen uptake, at high internal pressures (>15 bar) the influence of the oxygen potential of the  $UO_2$  (O/U-ratio) on rupture behavior of the Zry cladding tubes is clearly reduced. At large differential pressures the heating rate and the pressure history have practically no influence on the burst temperature of the cladding tubes. In accordance with data from the literature the burst strains (circumferential strain) of the tubular specimens in argon vary between 20 and 130% and show a minimum in the two-phase region of Zry at about  $930^\circ C$  with values <60%; under these conditions the burst pressures reach values of around 30 bar.
- A method of pressure measurement up to  $400^\circ C$  was tested. At these temperatures the condensation of the volatile fission product element iodine, also at high gas pressures, will be prevented.
- Initial  $UO_2$ /Zry reaction experiments performed under PCM-conditions show that the chemical interactions depend on the contact pressure at the  $UO_2$ /Zry-phase boundary. Under good contact conditions  $UO_2$  is reduced  $>1000^\circ C$  by Zry with the simultaneous formation of  $\alpha$ -Zr(O), uranium and a (U,Zr)-alloy.
- Compatibility investigations of fission products and Zry up to  $1200^\circ C$  showed that only tellurium, iodine and cesium carbonate react with Zry.

### Plans for the Near Future

- Continuation of the experiments with short LWR fuel rod simulators under LOCA-typical temperature and pressure transients. Continuous determination of the strain rate of the cladding tubes.
- Isothermal and transient studies relating to stress corrosion cracking of Zry-cladding tubes due to iodine and other fission products.
- Influence of fission products and thin oxide layers on the chemical interactions of  $UO_2$  and Zry under PCM-conditions.
- Determination of reaction products formed as a result of the chemical interactions of the fission products and Zry.

4236 Investigation of the Fuel-Rod-Behavior during the Blowdown-Phase of a Loss-of-Coolant-Accident  
(G. Class, IRE; K. Hain, RBT)

#### Work Completed

The construction of the system was terminated and the definitive license for operation was granted by the supervising authority. The behavior during operation of single components group was tested and experiments were performed including the simulation fuel rods with loads applied of up to about 30 % of the maximum load.

Work was continued on the recording of measured values, component control and on measuring devices (True-Mass-Flow-Meter).

Theoretical activities centered around the establishment of the computer program for evaluation. This included the provision and conversion of data, their examination for inner consistency and, finally, the thermohydraulic interpolation of conditions prevailing in the test section on the basis of boundary conditions measured.

#### Essential Results

The test-loop reached the nominal operating values on Oct. 18 for the first time. The tests of single component groups including the rod-simulator yielded satisfactory results. However, delays occurred in the realization of measured values recording and component control and in the fabrication of the true-mass flowmeter.

A RELAP 4-Version for the thermohydraulic interpolation in the testsection was completed and worked satisfactory during performed tests. Also the parts of the evaluation program for the calculation of the heat transfer coefficients and for data conversion and consistency verification, too, essentially have been completed and tested.

#### Plans for the Near Future

The true-mass flowmeters and a safety scram for rod heating will be installed in the test loop; likewise the unit for the transmission of measured values and the control of components. Subsequently, test operation with the

simulation fuel rod can start. It is intended to complete the computer program for evaluation at such date that the first tests recorded by CALAS can be immediately evaluated. Based on preliminary test results, the test parameters can then be specified more accurately.

- 4237      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, RBT)

#### Work Completed

1. Within the second half year of 1976 the nuclear rod tests were given priority over the BSS-tests. Five nuclear rod tests in total were performed. Three tests completed the scoping test series. In this test series the internal pressure and axial power profiles were varied.

The design data of modern PWR's (45 to 100 bar) were taken as the range of internal pressures. In one test the internal pressure was adjusted to 25 bar.

Post-test examinations of the first two rods exposed to transients in Oct. 1975 were meanwhile completed in the Hot Cells; other rods from tests in 1976 are presently examined.

2. In 12 test series with the electrical fuel rod simulators BSS 05 and BSS 06 (calorimeter) the following problems were tackled:

a) BSS 05:

- "true" cladding tube temperature,
- comparison of thermal power with electrical power,
- influence of reactor power ( $\gamma$ -heat)

b) BSS 06:

- comparison of thermal power with electrical power.

2.1 On account of previous deviations between the power determined thermally and the power measured electrically further specific investigations were made with BSS 05 and BSS 06. The following operations were performed for this purpose:

- installation of cup springs in the head so as to increase the tightness;
- verification of the accuracy of electric power;
- commissioning of the system for electric power control;
- examination of the mass flow measurement (measurement orifice, Barton cells for  $\Delta p$ -measurement, pressure and temperature measurement points allowing to determine the vapor state at the orifice);
- check up of the transducers for pressure and temperature (inclusive of  $\Delta T$ ) in the test rig.

2.2 Since the manner of thermocouple attachment on the cladding automatically gives measured values deviating from the actual cladding wall temperature, BSS 05 was equipped as follows in order to determine a correcting value:

In the hottest part of the heating zone three pairs of TC's were placed at a distance of 5 cm. Each pair consisted of a 0.5 mm diameter TC positioned in a groove in the cladding wall and a second, 1.0 mm diameter TC in a Pt jacket, welded onto the cladding surface. With this instrumentation steady-state and transient data were recorded at powers of 20 to 50 W/cm.

2.3 To investigate the influence of reactor power on the thermal boundary conditions in the test section, new test series were made with BSS 05 with and without reactor operation at the same electric power.

3 To increase the oxygen potential during the transient in the test section, calculations were made relative to the question which smallest vapor mass flow

- is feasible technically,
- guarantees a sufficient  $O_2$ -potential

The considerations concerned a capillary allowing to set this mass flow.

4 IKE Stuttgart made comparative calculations on the tests performed with fuel rod simulators. For the first time more recent values were used for the specific heat  $c_p$  of Zry-4 (according to MATPRO) which is subject to abrupt changes above  $800^\circ C$ .

5 To mount and instrument pre-irradiated specimens, a coupling and welding device was bought which is to be installed in the FR 2 shielded cell. Cold testing has already started.

#### Essential Results

1 Since the Post-test examinations of the rods have to be performed in the Hot Cells, the results are available after some delay only. Immediately after the test only those data can be evaluated which had been recorded during the test. The most important variables are the

burst pressure and the burst temperature. After these variables had been defined, the values obtained from previous nuclear rod tests were compared with published out-of-pile data. It appears that the in-pile data are within the range of results obtained out of pile.

- 2.1 After inspection of the measuring devices mentioned for power determination the influence of the TC-arrangement in the test rig remains as the undetermined possible error source. It is assumed that as a result of inadequate mixing stream filaments of different temperatures are formed so that the  $\Delta T$ -measurement becomes erroneous. Neither can a leak stream in the head of the test rig be excluded which falsifies the mass flow indication. It has been demonstrated by the BSS 06 calorimeter that error sources arising outside the reactor rig can be ruled out. The deviation of thermal from electric power amounted up to 2.5 W/cm only in this case.
- 2.2 The tests relating to the "true" cladding tube temperature yielded little dependence of the temperature difference between the wall and surface TC's on the temperature level, but a clear dependence on the specimen power. This allows to establish a correcting value of  $75 \pm 35K$  for the 50 W/cm electric power. The scattering range of  $\pm 35K$  is attributable to the external TC's which are more or less closely fixed to the cladding tubes.
- 2.3 The influence of reactor power on transient heatup appeared to be very low. This is confirmed by the results of earlier BSS-tests and of calculations made. An estimate based on the measured temperature values yielded a power contribution by reactor operation of about 0.5 W/cm.



Obviously, the reference tests have not to be conducted at reactor power.

3. To ensure the desired  $O_2$ -potential at the specimen it is intended to install in the bypass circuit a 12.5 m long capillary of 0.5 mm inside width. This is to give a mass flow of 0.2 kg/h, its cooling capacity during heatup is acceptable. Regarding the steam velocity similar conditions prevail with this flow as in the LOCA of the PWR.
4. If the  $c_p$  values according to MATPRO are taken into account, the calculated curves yield a better approximation to the test curve in the upper temperature range above 800°C.

#### Plans for the Near Future

The test series B comprising fresh nuclear rods will be continued. Six tests have still to be made within this series. Also in the future priority will be given to the nuclear rod tests as against the BSS tests.

As a preparation of tests with preirradiated rods testing will start of the hot cell components (coupling, welding, inspection and handling device).

Preirradiation of presently three preirradiation rigs containing six rods each will be continued in FR 2.

It is intended to insert, calibrate and test the bypass system ensuring the  $O_2$ -potential.

Arrangements have been made to replace the pressure tube and immersion tube loop inserts since these components will reach the admissible service life within the foreseeable future. Studies will continue on the deviations in power determination by a special BSS test.

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

- Characterization of the fuel rod simulators by photo-scanning with regard to temperature distribution.
- Set-up of test rigs for the two-colour pyrometer and the capillary pressure measuring system.
- Theoretical studies of the response time characteristic of the capillary pressure measuring system.
- Theoretical investigations of the deformation and bending of zircaloy claddings during ballooning.
- Experiments on shortened fuel rod simulators to assess separate effects of the ballooning process of zircaloy claddings.
- First burst test on a fuel rod simulator with 3,90 m heated length and an axial power profile.

Essential Results

The development of the fuel rod simulators has been largely completed.

For characterization of the fuel rod simulators with regard to the temperature distribution, a photographic method in connection with an evaluation of the films by a micro-densitometer with respect to different blacknesses has been proved successfully. Further potentials for improving the fuel rod simulators were identified by this methods. The heated rods

exhibited a good axial temperature distribution with small local temperature deviations. Furthermore it has been shown that such temperature differences on the heater rod will be damped substantially up to the zircaloy cladding of the fuel rod simulator. To clarify the specific deformation shape of the claddings observed at the present burst tests some experiments with directly heated specimens have been performed. These tests resulted in circumferential burst strains over 100 % and axial shrinkages of the burst zircaloy claddings.

At recent experiments with indirectly heated fuel rod simulators with 325 mm heated length axial shrinkages of the zircaloy claddings were measured as well, after having modified the internal structure in a way, that no more internal constraints occur. Circumferential burst strains of about 30 % and axial shrinkages of about 1,5 mm were determined. These data are well within the lower scatter band of the burst strains measured at previous tests.

The test rig for full-length bundle tests has been commissioned. The first full-length fuel rod simulator with a stepped axial power profile has been subjected to a burst test with subsequent flooding. The resulting burst strain amounted to 27%. The circumferential strains measured over the total heated length of 3900 mm exhibited an extremely high sensitivity to the different temperatures in the general power steps as well to local thermal and mechanical influences caused by spacers and thermocouples. The cladding around the burst has the deformation shape known from the previous tests with shortened fuel rod simulators, e.g. straight surface line at the side of rupture, lifted opposite side.

For measuring the internal gas pressure of the fuel rod simulator in the area of the balloon a special measuring system with minimized dimensions consisting of a capillary and a micro strain gauge pressure transducer with a very small measuring chamber has been developed. For evaluating the pressure signal, basic theoretical work on the response time characteristic of this measuring system has been performed.

Heat-up and burst tests with fuel rod simulators under internal overpressure exhibited circumferential temperature distributions, a clad lifting on the colder side and a subsequent rupture on the hotter side, which did not lift from the pellets. This special deformation pattern of the zircaloy claddings may be produced by anisotropy effects of the zircaloy material and/or by mechanical forces. To clarify the influence of eventual mechanical effects, the forces and momentums induced by different thermal expansions of heater rod and zircaloy cladding and transmitted to the cladding, have been calculated. It has been shown that in the inelastic region the cladding gives way to the pairs of momentums built up in the elastic region. This may result in the special deformation pattern described above. It remains to be studied by further experiments and theoretical evaluations if the anisotropy effect has possibly the predominant influence.

#### Plans for the Near Future

- Testing and calibration of the two-colour pyrometer and the capillary pressure measuring system
- Verification of the model for the capillary pressure measuring system
- Verification of the SSYST-modul DRUSPA
- Separate effect tests on shortened fuel rod simulators of the ballooning process
- Single rod tests on full length fuel rod simulators
- Preliminary measurements for bundle tests to assess the bundle size and the radial temperature distribution

4239 Influence of the Size and Shape of Cooling Channel  
Blockages on the Emergency Core Cooling in the Reflood  
Phase of a LOCA

(S. Malang, IRB)

Work completed

Tests with a row of 5 heaters have been started. Varied are the following parameters:

- initial rod temperature
- flooding rate (constant during each test)
- flooding water temperature
- system pressure (constant during each test)
- level of the decay heat

Completed are the tests without blockages which serve as reference tests. Also completed are the tests using a perforated plate as blockage simulator with a 62 % reduction of the coolant channel cross section.

Results

The data are recorded digitally with a scan frequency of 10 cycles/s using 42 channels of 128 channels which are available. Parallel 14 channels are recorded on an analogue tape in order to get some information about higher frequencies and in addition some redundancy. The quantitative heat transfer analysis is made numerically using a computer code developed on the basis of the HETRAP-code.

The analysis of the experiments has been started. A comparison between the tests with free coolant subchannels and those with subchannels partially blocked show that at the same flooding rate the heat transfer was always better downstream of the blockage. It remains to be seen if this is the case with all types of blockages. Upstream of the grid plate the heat transfer was nearly uninfluenced. The increased heat transfer downstream of the blockage can be explained by the optical observation. Water droplets are dispersed by the blockage. In addition on top of the blockage

water is remaining which is kept in motion by the steam jet coming out of the plate holes. After a short time a second quench front starts at the blockage and moves upwards.

Plans for the Near Future

The tests with a row of 5 heater rods and a grid plate simulating coolant channel blockages are going on. In the next step the influence of size and shape of balloons attached to the outer surface of the rods will be investigated. These exchangeable balloons are attached to the heater rods at the same axial height and block uniformly all coolant subchannels.

Tests with a 5 x 5 rod array are being prepared.

4240 Core Meltdown of LWR

4241 Experimental Investigations of the Meltdown Phase of  
UO<sub>2</sub>-Zircaloy Fuel Rods under Conditions of Failure  
of Emergency Core Cooling  
(S. Hagen, RBT)

#### Work Completed

In the second half of 1976 the new vessel was installed and operation has started. The vessel allows experiments with longer rods, bundle arrangements up to 7 x 7 rods and the use of flowing steam. The experimental facility was connected to the necessary supply units (heating current, cooling of electrodes, temperature control of the walls, steam supply) and the measuring units (voltage, current, pressure, temperature). The tests of the bundle arrangements have started. Parallel to this work we have constructed a furnace, which can heat up the fuel rod simulator without a central tungsten rod. This furnace was set up to use the old vessel. Tests are on the way.

#### Essential Results

The tests for fuel rod simulators with central tungsten rods have shown, that the heating within the bundle arrangement is according to the expectations, so that we can start the bundle experiments. First experiments with solid pellets heated with the radiation furnace show that the interaction between Zircaloy and UO<sub>2</sub> in this case is the same as using the tungsten rod simulator.

#### Plans for the Near Future

In 1977 our main experiments will be done with bundle arrangements. In this experiments also the influence of the spacers and the guide tubes with the different control rods will be tested.

4243 Experiments on the Determination and Limitation of Fission and  
Activation Product Release during Core Meltdown

(H. Albrecht, IRCH; D. Perinic, RBT)

Work Completed

1. Continuation of the experiments to determine the release of the main components from a non-radioactive corium melt under the following specific objectives:
  - a) collection of quantitative release data for the elements Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Sb, Zr, and U as functions of atmosphere, temperature, pressure, and melt composition,
  - b) information about the behavior of the melt as related to the above parameters under the special test conditions ( $\text{ThO}_2$  crucible and induction heating with a frequency of 350 kHz), and particularly about the interaction between melt and crucible material.
  
2. Further Development of the Melting Facility SASCHA:

As a result of inspection by the Office for Environmental Protection, several additional requirements were added to the system in preparation for the planned experiments with radioactive specimens, e.g. a precision manometer to measure system leakage, a device providing additional venting of all furnace windows, and an instrument to monitor continuously the exhaust air activity.

In preparation for experiments with larger melt masses (ca. 3 kg compared to the current maximum of 60 g), extensive preliminary tests were conducted and a new high frequency generator with higher power and a hot water cooling system for the inductor was ordered.
  
3. Construction of the Fission Production Facility (FIFA):

For the conduction of release tests with fission product-containing fuel specimens, a series of shielded boxes has been assembled to produce low-activity fission pellets. This system includes remotely operated devices to weigh the ingredients ( $\text{UO}_2$  powder and irradiated fission product elements or oxides), to grind and mix the components, to coldpress pellets, and to sinter the pellets at temperatures up to  $1800^\circ\text{C}$ . After technical acceptance of the facility, preliminary operation has been started.



## Essential Results

1. In melting tests of 30 g corium specimens in air, a maximum release of 1.2 wt% was found at  $2850 \pm 100^{\circ}\text{C}$ . This value corresponds to the total release of all main components of the melt determined by activation analysis. The most volatile elements were found to be Mn and Sb with relative release values (compared to the initial concentrations in the melt) of 11-17 % at  $2850^{\circ}\text{C}$ . The remaining steel components (Fe, Cr, Ni, Co) exhibited moderate volatility with release values between 1.0 and 5.0 %, while the maximum release of U and Zr was not higher than 1.0 %.

Significant differences were found in the transport behavior of the various elements. Whereas about 90 % of the released U and Zr was deposited in the transport system, only 30-50 % of the other elements were found there.

In the temperature region  $2100-2900^{\circ}\text{C}$ , all elements showed an increase in release of some two orders of magnitude. An increase in the gas pressure (air) lead to no measureable difference in release.

2. In melting tests in argon and in  $\text{Ar} + 5\% \text{H}_2$ , an unusual, pressure dependent behavior was discovered in the temperature region  $2600-2800^{\circ}\text{C}$ ; the melt rose up in the crucible and there was a sudden initiation of bubbling or splattering, whereby small particles were thrown out of the crucible. There was a corresponding large increase (about one order of magnitude) in release to the filters, though the particles ejected from the melt could not reach the filters for geometrical reasons. The cause of this behavior appeared to be boiling of the steel components. It was found that the temperatures (as a function of pressure) of these boiling points lie between and parallel to boiling point curves for Fe, Cr, and Ni. Quantitative values for the release of the individual elements under Ar are not yet available. However, from gravimetric analysis of the filter deposits it was found that the release up to the boiling point was somewhat lower than in air.
3. Considerable information has been accumulated in the area of melt behavior and attack of the  $\text{ThO}_2$  crucible:

- a) Metallurgical examination of the crucibles and melts has shown that during heatup in air to  $1900^{\circ}\text{C}$  (at a rate of about  $50^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ) the Zircaloy is completely oxidized. With further heating to  $2900^{\circ}\text{C}$ , (at about  $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ) the steel components also (especially Cr) begin to oxidize, but most of the steel remains unoxidized. Consequently, continued heating of the specimen by coupling to the induction field is possible.
- b) In air, somewhat as in Ar, the melt climbs up in the crucible and glowing particles are thrown out by boiling of the unoxidized steel components. A pressure dependence of the initial temperature for this behavior has not been observed, but cannot be completely excluded.
- c) The attack of the  $\text{ThO}_2$  crucible by the melt begins- as seen after sectioning of the crucibles- at about  $1800^{\circ}\text{C}$  and accelerates with increasing temperature so that the wall is almost dissolved within a few minutes at  $3000^{\circ}\text{C}$ . At about  $2500^{\circ}\text{C}$  the  $\text{ThO}_2$  particles between the inner and outer crucibles begin to sinter and fuse to the  $\text{ThO}_2$  crucible, thus increasing the effective thickness of the wall and preventing complete penetration of the melt.
- d) The different reaction behavior of the metallic Zircaloy and steel with  $\text{ThO}_2$  was shown clearly by two experiments in Ar; one sample contained only  $\text{UO}_2$  and Zircaloy and the other only  $\text{UO}_2$  and steel. In the first case the bottom of the crucible was completely dissolved after 0.6 min at  $2620^{\circ}\text{C}$ , but in the second case the crucible suffered much less attack even at  $2800^{\circ}\text{C}$ . For corium melts, the aggressive interaction of the Zircaloy with the  $\text{ThO}_2$  apparently is strongly reduced by the presence of the steel.

#### 4. Conclusion:

Based on these experiments with 30 g melts, it appears that the relatively large surface/volume ratio and the described interactions between crucible and melt may influence the vaporization behavior of the individual components. Thus the need for experiments with larger melt masses (up to the planned 3 kg) is evident.

### Plans for the Near Future

The next step will be:

- conduction of a series of release tests with inactive corium in steam
- preliminary tests with specimens containing activated steel and/or activated Zircaloy
- release tests with low activity fission
- preparations for installation of the larger high frequency generator.

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

(H. Holleck, A. Skokan, IMF I )

### Work Completed and Essential Results

The reaction behaviour of fission products with Corium under inert conditions, the reaction behaviour of inert and partly oxidized Corium with different amounts of concrete (silicate aggregates) have been investigated.

Investigations of fuel rods molten down in oxygen and air have been continued.

Under inert or slightly oxidizing conditions the rare earth fission products are homogeneously dissolved in the oxide phase, whereas the alkaline earth metals are enriched in the oxide phase of the melt in regions with high Zr-concentrations. The amount of Zr in the oxide and metallic phase is strongly dependent on the oxidation state. The platinumium metals and Mo are dissolved in the metallic melt.

An increasing degree of oxidation causes Zr, Nb and later Mo, Tc to enter the oxide melt. The oxidation of these latter elements will occur only when the pressure vessel is molten through and the core melt is in contact with concrete. Concrete melts at about 1300 °C, and H<sub>2</sub>O and CO<sub>2</sub> (limestone aggregates) are released from the heated concrete. They both can oxidize the metallic part of the core melt. The complete miscibility of concrete and (U, Zr)O<sub>2</sub> in the

liquid state leads to a continuous dilution of the core melt connected with a decrease of the melting point. The metallic part of a core melt corresponding to the composition of partly oxidized Corium A+R is completely oxidized by approximately twice the amount of concrete (silicate aggregates); the metallic melt of partly oxidized Corium E+R requires about fourfold amounts of concrete to be completely oxidized.

#### Plans for the Near Future

The main objectives of further research work are:

Reaction behaviour of fission products with increasing oxidation  
Reaction of the core melt and fission products with concrete (silicate and limestone aggregates),  
Investigation of molten fuel bundles with and without spacers (s. 4241).

4245      Technology and properties of Corium melts  
            (S. Nazaré, G. Ondracek, IMF I)

#### Work Completed and Essential Results

The general aim of the program is to provide data on the behaviour of the core materials in a core meltdown accident with a view to assessing its course and consequences. One of the main objectives in the past has been the preparation of various types of core melts (Corium) which arise under varying oxidation conditions which might exist in the accident environment. The determination of properties such as thermal conductivity, thermal expansion, density, as well as the nature of the melt that exists in contact with concrete has been started. Up to now estimates of properties such as thermal conductivity, viscosity and heat capacity, have been carried out and partly verified. Methods of preparation of Corium melts under inert gas conditions have been established. Experiments are underway to determine the interaction of Corium with concrete.

It has been demonstrated that large quantities ( $\sim 250$  g) of Corium EX1 can be prepared by induction heating in Thoria crucibles in inert gas. Thoria is not a suitable material for the preparation of Corium EX3. Boronitride seems to be promising, although some Boron (5 wt.%) is present in the solidified melt.

Initial experiments on the reaction of oxidized Corium EX1 with concrete (BN 250, 12 - 13,1 wt.% Ca, 0,6 - 0,7 wt.% Fe, 1,3 - 1,4 wt.% Al, 41,1 - 46,1 wt.%  $O_2$ , 2,3 - 3,9 wt.% C, rest Si) under the following conditions: Concrete to Corium volume ratio  $\geq 1$ ; 1 atm steam, max. temperature 1800 K, time at max. temperature 5 min: have revealed that for all mixtures, the uranium and zirconium are present as oxides along with the oxides of the concrete, whereas iron, chromium and nickel are still metallic.

#### Plans for the Near Future

Future work includes the estimation of the surface energies of the core components in context of a steam explosion and measurements of density and thermal expansion of Corium to determine the probability of a segregated melt.

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

#### Work Completed and Essential Results

Preliminary investigations were conducted with three different melt masses (0,1 - 1 - 10 t).

The maximum power generated with the melt was determined. In the accident case the fission product power density at the melting front is estimated to be  $0,7 \text{ MW/m}^2$ . In order to match this condition we calculated the necessary electric net power:

Melt mass	kg	100	1000	10000
Melt power for H = D	MW	0,213	0,987	4,586
Melt power for 4H = D	MW	0,268	1,243	5,771

The maximum local power density at the melt front may be as high as  $3 \text{ MW/m}^2$  because of the cooling of the melt.

To simulate the accident atmosphere a pressure vessel capable of 6 bar will be required. In any case the melt will be covered with steam. However the containment pressure may be simulated by noncondensable gas (with cold pressure vessel walls) or with steam (with hot walls). Preliminary experiments to investigate electrical discharge within these atmospheres will be required.

Additional following investigations were conducted: Chemical reactions on the melt surface, Gas filtering, melt composition, fissionium production and analysis, temperature measurement, handling of radioactive waste, experimental building.

To investigate melt-concrete reaction and develop stable concrete crucibles two types of experiments were carried out.

- 1) 0,5 kg corium was melted in concrete crucibles
- 2) 300 kg molten iron was poured into large concrete crucibles. The use of glassfibre reinforcement in the crucible limited crack width.

A convective melt circulation in shallow crucibles was observed in two pour in experiments. At a melt temperature of about  $1400^\circ\text{C}$  in cool crucibles (approx.  $5^\circ\text{C}$ ) it appeared that a toroidal circulation cell developed. The velocity of this movement appeared to be faster than expected from free bubble movement.

- 4300 DISTRIBUTION AND REACTION PROCESSES OF NUCLEAR CONTAMINANTS  
IN MAJOR INCIDENTS, THEIR DEPENDENCE ON TIME AND THEIR  
MEASUREMENT
- 4310 Study of the Time Dependent Distribution and Reaction Processes  
of Fission Products and Aerosols in the Atmosphere and Hydrosphere  
Following Major Incidents
- 4311 Investigations on the Interactions of Fission Products and  
Aerosols in LWR-Containments  
(H. Bunz, G. Haury, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

#### Work Completed and Essential Results

The version NAUA-Modla of the model contains the temperature dependence of steam content and steam pressure only. During the report period the new version Mod2 has been established containing all relevant temperature functions. These are mainly the viscosity which influences the aerosol removal mechanisms and some parameters which are used in the calculation of steam condensation. The temperature functions have been approximated by polynomials of such high order as is needed for the necessary accuracy.

As a result of the sensitivity study the concept of the experimental facility has been updated and the vessel has been ordered. The main change consists in elevated operating temperature (150°C) and pressure (7 bar) ranges. Now all possible states of steam saturation in the reactor containment can be simulated in the facility, too. Calculations on the feasibility of the planned experiments were positive without exception.

The droplet size spectrometer has been tested with hot water droplet aerosol. All other aerosol measuring equipment has been delivered and is presently tested. The data logging system was conceived and ordered.

#### Plans for the Near Future

Before the delivery of the vessel in June 1977 the instrumentation will be completed and tested. Parallel to this numerical improvements of the code and calculations on steam condensations have to be done. The data logging system will be available simultaneously with the vessel, so that the

experiments can be started in late summer. The first experimental phase is intended for investigations of the steam condensation with special interest in the relation of containment wall effects to condensation on the particles.

- 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. Hübschmann, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

#### Work Completed

In the short-range (up to about 10 km distance from the source) six diffusion experiments have been performed using chemical tracers. Two tracer substances have been emitted simultaneously in 60 m und 100 m height from the meteorological tower. All experiments were carried out at night, when a stable stratification of the atmosphere had been established (categories D/E, E and F). Automatic sampling stations have been employed exclusively. An automatically measuring station for field measurements, including a 15 m high mast and a small computer, has been set up and tested. This station is intended to record wind and turbulence data over areas of various surface structure, especially areas of lower surface roughness than in the research center. The station is placed now in the Stutensee region.

The preparations of the diffusion investigations in the mesoscale (more than 10 km distance) are aimed at an agreement upon a collaboration with users of suitable radars, in order to avoid the purchase of an own radar. The necessary radar modifications have been specified. The negotiations are still going on.



### Essential Results

The diffusion experiments yielded a first survey of the atmospheric diffusion under stable stratification. Further experiments are necessary to evaluate a set of valid diffusion parameters which is representative on a statistical base. The meteorological data have been statistically analysed with respect to diffusion categories, precipitation, net radiation and particular meteorological situations (wind direction shear, calms etc.).

### Plans for the Near Future

The diffusion experiments will be continued preferably at night during stable stratification. The field measurements will be carried out continuously during 1977. For the radar scanned tetron flights it is intended to modify a suitable radar with respect to the scanning of a transponder equipped tetron. Tetron flights will be started then in the upper Rhine Valley.

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 code XPIC for the calculation of the atmospheric pollutant dispersion was developed in two versions. In version A a single cloud is followed downwind for a long distance with an expanding cell-system. In version B the pollutant dispersion is calculated in a large but limited area. The concentration time integral at ground level was investigated for different height dependent meteorological parameters.

### Essential Results

The calculations made with version A yield comparable results if the diffusion coefficients are averaged over the cloud, and if either constant or height dependent wind speed was assumed. For an additional height dependent windshear, the concentration time integral under the cloud centre line is lower, and according the reality, shifted towards the direction of the surface wind. In version B the dispersion

calculation is performed for sections of a very large cell-system and for groups of particles. Until now this version is in the state of testing.

#### Plans for the Near Future

The special meteorological conditions and the mechanism of deposition in the surface layer are to be simulated in a more realistic manner, additionally there will be considered the topography and the thereby caused inhomogeneities of the wind- and turbulent fields. The approach for the simulation of the vertical profile of the diffusion coefficients are to be extended to the non-neutral diffusion conditions. In version B a multiple source handling is planned. Finally criteria will be derived for a better relation between the computational and the meteorological parameters.

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

#### Work Completed and Essential Results

An analysis and conceptional investigation have been performed for the accident consequence model of the German reactor risk study. A dynamic atmospheric diffusion model is developed, which is applied in the first stage of the study to all distance ranges, and will be restricted finally to the long distance range. The wind direction and its variations are not taken into account in this model. The program set UFO-BAS calculates the time integrated nuclide concentration in air at any location downwind of the source. A further model which takes into account wind direction variations is being developed.

On the basis of the proposals for the calculation of the health effects in the German risk study considerations on the storage requirements were accomplished. By means of these assessments a revised grid of parameters was evaluated. Furthermore, considerations were made for the implementation of an evaluation model, which will be developed by the Institut für Unfallforschung.

Plans for the Near Future

To obtain results for the intermediate report of phase A of the German risk study, the relevant parts of the programme of the Rasmussen study will be re-programmed. Works to complete Phase A will follow. During Phase B typical German facts and situations will be considered.

4400 CONFINEMENT AND ELIMINATION OF THE CONSEQUENCES  
OF INCIDENTS

4410 Isolation and Removal of Contamination

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

1. Decontamination of metallic surfaces by paste type cleansers  
and molten salts

Work Completed

After testing of the fluid behaviour of paste type cleansers, a system for application of these pastes in thin layers has been constructed. All materials used had been selected according to their compatibility against the chemical agents of the pastes.

For application of molten salts to metal surfaces an induction heating system has been selected as heat source for heating the components to be decontaminated. A transportation system for the salt powders is tested.

Essential Results

All components for practical demonstration of the decontamination methods with paste type cleansers and molten salt are ordered.

Plans for the Near Future

Demonstration experiments with both systems will be started in the first weeks of 1977, aimed at finishing all experiments to this subject.

2. Optimisation of a liquid Cleanser for Decontamination

Work Completed

Base materials for a liquid cleanser have been tested by DT-analyses for their thermal stability. The most stable ones have been mixed for

a primary mixture, the foam generation rate of it was limited by adding special substances. After further adding of complexing agents, the decontamination efficiency has been tested with contaminated stainless steel samples. The cleanser was diluted by a factor of 100 in these tests.

#### Essential Results

A liquid cleanser, thermically stable up to 200°C consists of alkyl-phenol-polyglycol-ethers with fatty alcohol-ethyleneoxide addition products and some additives containing amine acetates. The mixture has a limited foam generation rate and foam stability.

Decontamination efficiency related to the Papan-Decopan-85-cleanser is partly higher with respect to Ru-106, about the same with respect to Cs-137 and poorer with respect to Co-60.

#### Plans for the Near Future

Experiments are continued with other thermically stable complexing agents, aimed at a composition of the cleansers which allows a most ample application.

### 3. Decontamination of Big Components

#### Work Completed

Experiments have been started with currently used decontamination chemicals to find the optimum working conditions with respect to working temperatures, concentrations and liquid decontamination waste generation. A dipping technique was used for application of the chemicals to the contaminated stainless steel samples. Up to now have been tested nitric acid, nitric-hydrofluoric acid mixture, alkaline potassium permanganate, oxalic acid and oxalic-citric acid mixture.

#### Essential Results

The experiments carried out up to now, show the following results.

- All chemicals are more efficient at 80°C working temperatures than at room temperature.

- 4 m nitric acid is an optimum with respect to decontamination efficiency and waste generation.
- The concentration of 3% HF/20% HNO<sub>3</sub> mixture can be reduced to 1,5% HF/10% HNO<sub>3</sub> without reduction of cleansing efficiency.
- The same reduction is possible for alkaline KMnO<sub>4</sub> solution. The decontamination efficiency for Ru-106 is excellent.
- Oxalic acid in a concentration of 1% is an optimum.
- Best decontamination results gives a mixture of 0.2 m citric acid plus 0.3 m oxalic acid

#### Plans for the Near Future

Other decontamination chemicals will be tested. With a proper selection other application techniques than dipping will be tested.

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

Work Completed

The time history of Pu-input into the soil from the past bomb-fallout was investigated for the Heidelberg area. Using a correlation between the measurements in Ispra and Heidelberg the course of Pu-concentration in the air was reconstructed. From this it was possible to obtain by use of an empirical relation the wet and dry fallout values.

For modeling the Pu-migration in the soil a laboratory apparatus was developed. It consists of a high pressure liquid pump, which presses the percolate through a column with the soil sample at a constant pressure. The column is mounted on an electronic balance. By this measure changes in the water content of soil sample can be controlled. Percolate samples are collected by an automatic sampler, the rotation speed of which can be adjusted to the column output rate.

Essential Results

The time history of the Pu-input is as follows:

Year	1954	1955	1956	1957	1958	1959	1960
cum. composition (mCi/km <sup>2</sup> )	0,066	0,14	0,25	0,37	0,53	0,79	0,82

Year	1961	1962	1963	1964	1965	1966	1967
cum. composition (mCi/km <sup>2</sup> )	0,85	0,91	1,61	2,09	2,32	2,39	2,41

Year	1968	1969	1970
cum. composition (mCi/km <sup>2</sup> )	2,48	2,51	2,54

Laboratory equipment is ready for percolation experiments with plutonium and soil samples. Different saturation conditions can be adjusted. The time acceleration effect is about 1:3000.

### Plans for the Near Future

Checking of the field results and of Pu-behaviour under changed conditions will be proved in laboratory experiments.

The Pu-distribution in different soil types will be compared, the main residence time computed and the relation between concentration distribution and packing, porosity and specific surface investigated.

4420      Techniques of Clearing and Disassembly Work

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

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

### Program of Investigations

1. Dismounting, crushing - steel/concrete  
Conditioning of large components  
auxiliary systems
2. Means of reactor component transportation from nuclear power station
3. Waste conditioning
4. Setup of time schedule for decommissioning
5. Special arrangement of reactor components
6. New reactor lines

### Work Completed

The investigations relating to 1 and 2 were performed and completed. Points 3 to 6 were treated but not completed during the period of reporting.



## 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 Sicherheitsbehälter-Atmosphäre

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

##### Untersuchung an einem Prototyp eines Tropfenabscheiders.

Bei einem GaU entsteht im Sicherheitsbehälter eine kondensierende Dampf-atmosphäre. Für die Funktion eines Störfall-Umluftfilters ist ein Trocknen der Atmosphäre erforderlich, da die HEPA-Filter und das Sorptionsmaterial nur eine begrenzte Beständigkeit in feuchter Atmosphäre haben.

Es ist ein Tropfenvorabscheider einzusetzen, der auch bei kleinen Tropfendurchmessern Abscheidegrade  $\geq 90$  % gewährleistet.

Im Auftrag des LAF II wurde von einer Firma ein Prototyp-Abscheider gebaut und geliefert, der dieser besonderen Anforderung entsprechen soll.

Der Prototyp-Abscheider ist dreistufig aufgebaut. Es ist ein Fangrillenabscheider mit einem freien Querschnitt von 250 x 360 mm und 22 Abscheideelementen mit je 7 Fangrillen von ca. 220 mm Tiefe. Der nachgeschaltete Agglomerator hat die Aufgabe, kleinste Tropfen durch Zusammenlagerung zu vergrößern. Er besteht aus einem speziellen Gewebepaket, von dem durch die Luftströmung die durch Agglomeration erzeugten größeren Tropfen wieder abgerissen werden. Diese Tropfen werden in einem zweiten, konstruktiv dem ersten identischen Tropfenabscheider abgeschieden. Durch Bilanzierung der Wassermengen, die im Tropfenabscheider 1 und im Agglomerator und Tropfenabscheider 2 anfallen, kann der massenbezogene Abscheidegrad ermittelt werden. Ein Meßfehler wird durch die Durchlässigkeit des zweiten Abscheiders verursacht. Er kann zum Teil korrigiert werden. Die im Agglomerator anfallenden Wassermengen sind extrem klein und wurden deshalb direkt dem zweiten Abscheider zugeführt (Abb. 4111-3).

Als Tropfengenerator wurden 2-Stoff-Düsen eingesetzt, die mit Hilfe von Preßluft Wasser als Feinst aerosol versprühen. Bei allen Versuchen erfolgt der Wasserzulauf zu den Düsen drucklos, bezogen auf den Systemdruck. Der mini-

male Tropfendurchmesser liegt bei ca. 5  $\mu\text{m}$ . Das Maximum befindet sich zwischen 5 und 10  $\mu\text{m}$ .

Es wurde parametrisch der Abscheidegrad als Funktion des Durchsatzes und der Tropfengröße untersucht. Erwartungsgemäß führt höherer Durchsatz über eine Vergrößerung der Fliehkräfte auf die Tropfen bei höherem Druckabfall zu höheren Abscheidegraden (Tab. 4111-1).

Steigender Druck der Preßluft verschlechtert die Abscheidung infolge Tropfenverkleinerung bis zu einem maximalen Druck, der bei den hier eingesetzten Zweistoff-Düsen bei ca. 3 bar liegt. In einer weiteren Versuchsreihe wurde die Abhängigkeit der Abscheideleistung vom absoluten Druck des Trägergasstromes bis zu 3 bar untersucht (Abb. 4111-1, Abb. 4111-2).

Die Messungen erwiesen sich als extrem zeitaufwendig, da je nach Abscheidegrad bis zu 16 Stunden für einen einzelnen Versuch benötigt wurden.

#### Diskussion der bisherigen Ergebnisse

Der Abscheider erbringt bei relativ hohem Druckabfall für Tropfen  $< 10 \mu$  je nach Betriebsdruck Abscheidegrade von ca. 90 - 95 %. Er eignet sich nur als Vorabscheider. Die Abscheidegrade sind im Verhältnis zu Faserabscheidern, die in einer neueren Veröffentlichung behandelt wurden, relativ schlecht (C.A. Burchsted, ERDA 76-21, S. 71).

Mit Fasermattenabscheidern werden bei wesentlich kleineren Druckabfällen Abscheidegrade bis zu 99 % erreicht. Allerdings ist zu beachten, daß die Fasermattenabscheider in der Regel nicht den Bedingungen eines Störfalles im Containment (Temperatur, Druck und Zeitdauer der Einwirkung sowie hohe Massenbeladung) standhalten.

Die Untersuchungen werden mit einem ausgewählten Fasermattenabscheider fortgesetzt. Mit einer neuen Meßapparatur soll das Tropfenspektrum genauer bestimmt werden.

Tab. 4111-1: Massenkonzentration abgeschiedener Tropfen in Abhängigkeit von Volumenstrom, Betriebs- und Sprühdruk

Betriebsdruck 1,1 - 1,2 bar				
Volumenstrom  m <sup>3</sup> /h	Sprühdruk 2 bar		Sprühdruk 3 bar	
	aufgegebene Wassermenge  l/h	abgeschiedene Wassermenge des 1. Abscheiders  l/h	aufgegebene Wassermenge  l/h	abgeschiedene Wassermenge des 1. Abscheiders  l/h
600	11,70	10,70	12,25	10,54
800	11,77	10,95	12,21	10,60
1000	7,17	6,59	10,21	8,89
1200	10,35	9,84	7,06	6,15
1400	7,47	7,15	6,57	5,9
Betriebsdruck 2 bar				
	Sprühdruk 4 bar		Sprühdruk 5 bar	
600	16,39	15,35	15,74	14,29
800	18,60	17,72	16,96	15,77
1000	18,73	18,06	17,44	16,50
1200	21,26	20,72	17,76	17,00
1400	20,11	19,68	17,24	16,65

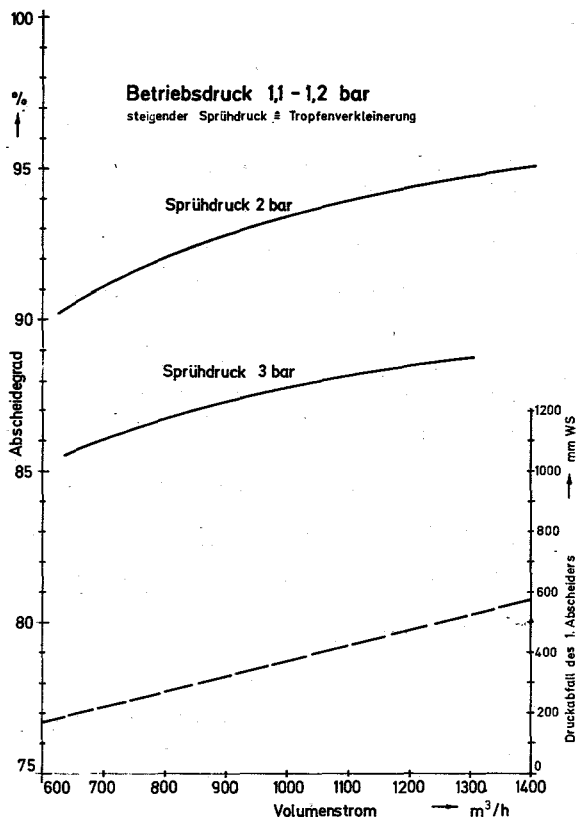


Abb. 4111 - 1 Abscheidegrad des Tropfenabscheiders

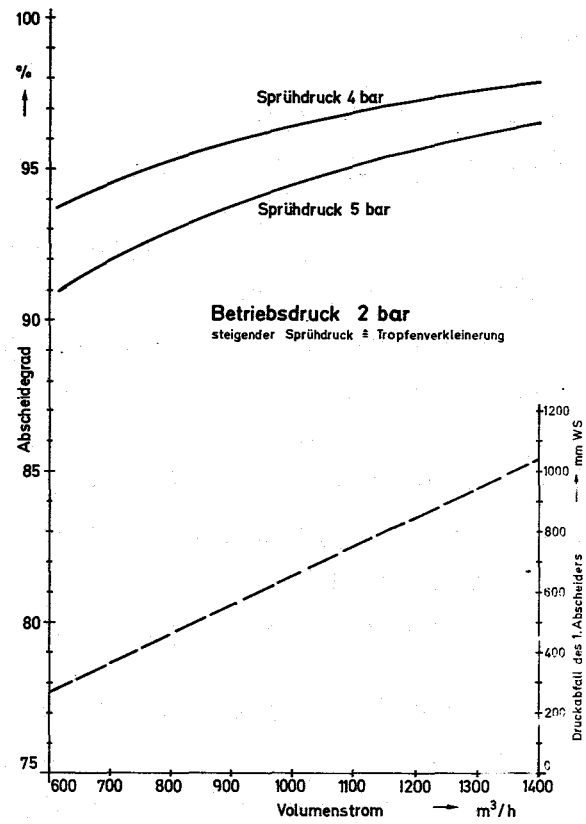


Abb. 4111 - 2 Abscheidegrad des Tropfenabscheiders

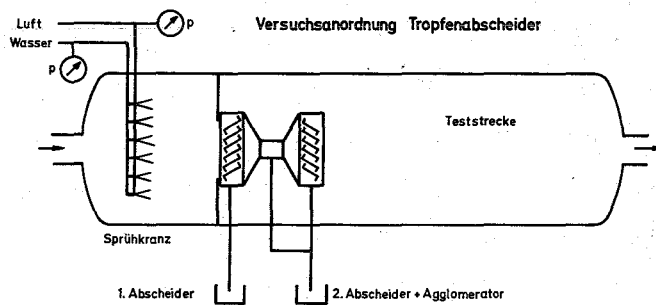


Abb. 4111 - 3

Entwicklung von Prüfverfahren für Schwebstofffilter unter simulierten  
Reaktorstörfallbedingungen

(A. Weinert)

Wegen der Korrosionsgefahr für den technischen Filterprüfstand war als Prüf-aerosol Silberjodid anstelle von Natriumchlorid ausgewählt worden.

Der Auftrag für die Auslegung und Konstruktion einer Zusatzeinrichtung zum Prüfstand für die Aerosolerzeugung wurde an eine Ingenieurfirma vergeben. Da die Anwendung des Flammenverdampfungsverfahrens mit Hilfe eines Gasbrenners wegen des erhöhten Druckes in der Teststrecke hohen sicherheitstechnischen Aufwand erfordert hätte, wird beim Prüfstand-Aerosolgenerator eine elektrisch erzeugte "Plasmaflamme" benutzt. Das plasmabildende Gas, meistens Argon, strömt durch einen zwischen zwei Elektroden brennenden Lichtbogen, wo es sich stark erhitzt. In diese heiße Zone wird das zu verdampfende Material mit einem geeigneten Dosiergerät eingespeist.

An einer Plasmaanlage wurden Versuche mit Natriumchlorid und Silberjodid durchgeführt. Zur Bestimmung des Teilchengrößenspektrums wurden Kernporenfilter (Porendurchmesser  $0,1 \mu\text{m}$ ) mit dem durch eine Plasmaflamme erzeugten Aerosol beaufschlagt. Die Auswertung mit dem Rasterelektronenmikroskop ergab, daß die Teilchen im gewünschten Größenbereich liegen. Abhängigkeiten des Aerosolspektrums von der Primärteilchengröße, der Lichtbogenstromstärke, des Plasmagasdurchsatzes und der Einspeisestelle in den Plasmabrenner werden z. Z. experimentell geklärt.

Bei dem vorgesehenen Pulverdosierrgerät dreht sich eine Lochscheibe exzentrisch im runden Vorratsbehälter. Das Pulver, das in die Löcher gelangt, wird mechanisch in eine Düse gefördert, wo es vom Trägergas übernommen und zur Plasmapistole gefördert wird. Das zu der Anlage lieferbare Pulverdosierrgerät ist für die Verarbeitung von Pulvermengen der Größenordnung kg pro Stunde ausgelegt. Durch bauliche Änderungen am Gerät, speziell an der Lochscheibe, wurden die geringen Dosierraten von einigen Gramm pro Stunde erreicht, die bei der Filterprüfung erforderlich sind.

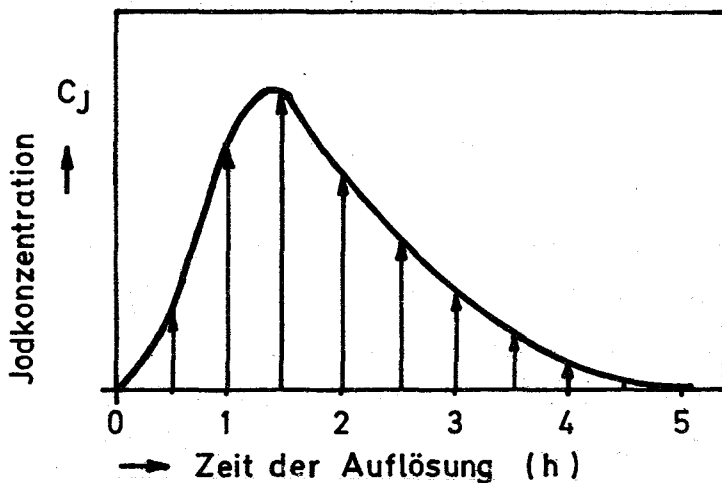
Zur Prüfung der Funktionsweise des Plasma-Aerosolgenerators unter erhöhtem Druck wurde eine Versuchseinrichtung konstruiert und gebaut, mit deren Hilfe auch Teilchengrößenanalysen und Aerosol-Massenkonzentrationsmessungen durchgeführt werden können. Die für eine endgültige Verfahrensfestlegung entscheidenden Experimente mit dieser Apparatur werden z. Z. durchgeführt.

4112-1 Entwicklung für Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen  
(J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm)

Ermittlung des Desorptionsverhaltens von Jod am Jod-Sorptionsmaterial

AC 6120/H<sub>1</sub>

Bei der Aufarbeitung von Kernbrennstoffen in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage mit einem mittleren Abbrand von 40 Gwd/t U und einem maximalen Durchsatz von 1800 jato werden aus dem Auflöser 580 kg Jod in 250 Arbeitstagen freigesetzt. Die anfallende Jodmenge pro Arbeitstag beträgt 2,32 kg. Bei einem angenommenen Durchsatz von 250 Nm<sup>3</sup>/h beträgt die Jodkonzentration bei gleichmäßiger Freisetzung aus dem Auflöser und der Desorptionskolonne ca. 387 mg/m<sup>3</sup>. Bisher durchgeführte Messungen in Abgasen von Wiederaufarbeitungsanlagen zeigen einen sehr ungleichmäßigen Konzentrationsverlauf des Jodes im Abgas während des Auflöseprozesses. Die Hauptmenge des Jodes wird bei einer sechsständigen Auflösung in den beiden ersten Stunden nach Auflösebeginn freigesetzt. Es treten im Auflöserabgas Jodkonzentrationsspitzen von > 1,2 g/m<sup>3</sup> Abgas auf.



Zeitlicher Konzentrationsverlauf des Jodes im Auflöserabgas ohne Rückfluß

Abb. 4112 -1

Bei Auftreten von hohen Konzentrationen > 1,2 g/m<sup>3</sup> Abgas wird neben der Chemisorption des Jodes am AgNO<sub>3</sub>-imprägnierten Jod-Sorptionsmaterial erhebliche Abscheidung durch rein physikalische Adsorption auf den Oberflächen von Geräteteilen und des Sorptionsmaterials vermutet.

Um die Adsorption quantitativ zu erfassen, sind Laborversuche und Versuche an den technischen Komponenten der PASSAT notwendig. Erste Voruntersuchungen wurden im Labor durchgeführt. In weiteren Laborversuchen sollen Grenzbe-

ladungseffekte und Desorptionszeiten ermittelt werden, um eine Festlegung der erforderlichen Reinluft-Spülzyklen für die in großen Wiederaufarbeitungsanlagen einzusetzenden Jodfiltereinheiten treffen zu können; das anfangs nur adsorbierte Jod muß ebenfalls durch Chemisorption gebunden werden. Eine Kontamination durch Desorption von adsorbiertem noch nicht zu AgJ umgesetzten Jod beim Filterwechsel und bei der Endlagerung in Rollreifenfässern muß ausgeschlossen werden.

Folgende Bedingungen wurden in ersten Laborversuchen eingestellt:

Jod-Konzentration :  $11 \text{ g/m}^3$   
Bett-Temperatur :  $150^\circ\text{C}$   
Jod-Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub>  
Taupunkt-Temperatur :  $30^\circ\text{C}$

Die aufeinanderfolgenden Spülperioden betragen 2, 4, 6, 8 und 16 Stunden; am Ende jeder Periode wurden die Sicherheitsbetten ausgemessen und erneuert. Die erste Spülperiode schließt den während der Beladung infolge der großen Jodmenge durchgebrochenen Anteil ein. Die Tiefe der Testbetten betrug jeweils 5 cm.

In Tab. 4112-1 sind die Versuchsergebnisse aufgeführt.

Aus der Tabelle ist zu entnehmen, daß bei extrem hohen Jod-Konzentrationen in der Zuluft zum Jod-Sorptionsfilter ein Anteil des Jodes nicht als AgJ oder AgJ<sub>3</sub> gebunden wird, sondern als desorbierbares Jod auf den Oberflächen der Materialien abgelagert wird. Erst längere Spülperioden (> 8 h) führen zur praktisch vollständigen Chemisorption in der Tiefe des Filterbettes.



Tab. 4112-1: Desorptionsversuch an zwei hochbeladenen Testbetten  
 ä 5 cm Bett-Tiefe

Spülperiode [h]	Testbett-Nr. (TB) Sicherheits- bett-Nr. (SB)	Jod [g]	Silber [g]	umgesetztes Ag <sup>W</sup> / <sub>o</sub>	desorbiertes Jod [%]
0-2	TB 1	1,827	1,553	84,2	
	TB 2	1,820	1,547	83,9	
	SB 1	1,648	1,401	76,0	
	SB 2	1,295	1,101	59,7	
	SB 3	0,622	0,529	28,7	
	SB 4	0,005	0,004	0,3	
	SB 5	$1,2 \times 10^{-5}$	-	-	
2-4	SB 1	0,016	0,014	0,8	0,44
	SB 2	$1,2 \times 10^{-5}$	-	-	
	SB 3	$2,5 \times 10^{-6}$	-	-	
4-8	SB 1	0,005	0,004	0,3	0,14
	SB 2	$5 \times 10^{-6}$	-	-	
	SB 3	$2,5 \times 10^{-6}$	-	-	
8-16	SB 1	$3 \times 10^{-4}$	-	-	< 0,0001
	SB 2	$5 \times 10^{-6}$	-	-	
	SB 3	$7,5 \times 10^{-6}$	-	-	

Untersuchung der Abscheideleistung von AC 6120/H<sub>1</sub> bei unterschiedlichen Taupunkt-Temperaturen

(J. Furrer, R. Kaempffer)

Beim Aufheizen des Trägergases für die Jod-Desorption können am Ausgang der Desorptionskolonne kurzzeitig Taupunkt-Temperaturen bis zu maximal 80°C auftreten. Um die Kapazitätsausnutzung und die Abscheideleistung von AC 6120/H<sub>1</sub> bei verschiedenen Taupunkt-Temperaturen zu untersuchen, wurden bei einer Temperatur des Sorptionsbettes von 150°C in der Zuluft Taupunkt-Temperaturen von 40, 60 und 80°C eingestellt. Dies entspricht relativen Luftfeuchten von 1,5, 4,2 und 10 %. Die Kapazitätsausnutzung zeigte keine Abhängigkeit von der Taupunkt-Temperatur (Tab. 4112-2, 4112-3, 4112-4).

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

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub> (Imprägnierung gemäß GWA-Bedingungen), 1 - 2 mm Kugeldurchmesser

Trägergas: Luft; Taupunkt-Temperatur: 40°C; Testbett-Temperatur: 150°C

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

Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 1,5 mCi <sup>131</sup>J<sub>2</sub>

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	11,7	2130	1	2130	1810	98,0
13,1	22,8	4140	2	2010	1710	92,6
19,7	34,3	6210	3	2070	1760	95,4
26,3	45,8	8300	4	2090	1780	96,3
32,9	57,1	10340	5	2040	1740	94,1
39,5	67,8	12270	6	1930	1640	89,2
46,0	77,6	14040	7	1770	1510	81,8
52,6	86,3	15620	8	1580	1340	72,8
59,2	93,0	16830	9	1210	1030	55,7
65,8	97,7	17680	10	850	720	39,3
72,3	99,8	18060	11	380	320	17,3
78,9	99,9996	18100	12	40	30	1,7
85,5	99,9998	18100	13	4 · 10 <sup>-5</sup>	3 · 10 <sup>-5</sup>	-
92,1	-	-	14	-	-	-
100,0	-	-	15	-	-	-

Tab. 4112-3: Hochbelastungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub> (Imprägnierung gemäß GWA-Bedingungen), 1 - 2 mm Kugeldurchmesser

Trägergas: Luft; Taupunkt-Temperatur: 60°C; Testbett-Temperatur: 150°C

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

Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 0,7 mCi <sup>131</sup>J<sub>2</sub>

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	11,3	2040	1	2040	1740	94,2
13,1	22,7	4100	2	2060	1750	95,2
19,7	33,8	6120	3	2020	1720	93,1
26,3	45,2	8180	4	2060	1750	94,9
32,9	56,3	10190	5	2010	1710	92,6
39,5	67,2	12160	6	1970	1680	90,9
46,0	77,7	14060	7	1900	1610	87,6
52,6	82,2	15780	8	1720	1460	79,2
59,2	94,3	17060	9	1280	1090	58,9
65,8	98,8	17880	10	820	690	37,6
72,3	99,994	18100	11	220	190	10,1
78,9	99,9998	18100	12	1 · 10 <sup>-3</sup>	1 · 10 <sup>-3</sup>	0,05
85,5	-	-	13	-	-	-
92,1	-	-	14	-	-	-
100,0	-	-	15	-	-	-

Tab. 4112-4: Hochbelastungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub> (Imprägnierung gemäß GWA-Bedingungen), 1 - 2 mm Kugeldurchmesser

Trägergas: Luft; Taupunkt-Temperatur: 80°C; Testbett-Temperatur: 150°C

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

Beladung : 18,1 g J<sub>2</sub>, vermischt mit 1,42 mCi <sup>131</sup>J<sub>2</sub>

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	11,6	2100	1	2100	1780	96,7
13,1	23,1	4180	2	2080	1770	95,8
19,7	34,5	6260	3	2080	1770	95,8
26,3	46,0	8330	4	2070	1760	95,4
32,9	57,3	10380	5	2050	1740	94,5
39,5	68,0	12310	6	1930	1640	88,9
46,0	77,9	14120	7	1810	1530	83,2
52,6	86,8	15730	8	1610	1370	74,4
59,2	93,7	16960	9	1230	1050	56,9
65,8	98,3	17790	10	830	710	38,4
72,3	99,95	18090	11	300	260	14,0
78,9	99,9998	18100	12	10	10	0,4
85,5	-	-	13	-	-	-
92,1	-	-	14	-	-	-
100,0	-	-	15	-	-	-

Einfluß von TBP-Konzentrationen in der Abluft auf die Abscheidung des Jodes am Jod-Sorptionsmaterial AC 6120/H<sub>1</sub>

(J. Furrer, R. Kaempfer, H. Barth)

In den Abgasen der Lagerbehälter für MAW, HAW und der Extraktionsprozesse sowie im besonderen im Auflöserabgas der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wird Tributylphosphat als luftgetragene Abgaskomponente erwartet. Um den Einfluß von Tributylphosphat auf die AgNO<sub>3</sub>-Imprägnierung des AC 6120/H<sub>1</sub> zu ermitteln, wurde AC 6120/H<sub>1</sub> mit TBP vorbehandelt. Nach der Beaufschlagung mit TBP wurden Abscheideversuche mit elementarem radioaktiv getracertem Jod durchgeführt.

Wie in früheren Untersuchungen bereits festgestellt wurde (KFK 1973, S. 94), setzt sich ein Teil des TBP bei 150°C mit der AgNO<sub>3</sub>-Imprägnierung des AC 6120/H<sub>1</sub> wie folgt um:



Bei einer Konzentration von  $1,63 \cdot 10^{-3}$  g TBP/l Luft war eine Umsetzung der Imprägnierung mit TBP von < 5 % zu beobachten.

Ein Abscheideversuch nach Vorbehandlung des AC 6120/H<sub>1</sub> über 24 h mit 15 m<sup>3</sup> Luft und einer TBP-Konzentration von 28,7 mg/m<sup>3</sup> Luft mit der in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage erwarteten Jodkonzentration erbrachte keine nennenswerten Unterschiede im Jod-Sorptionsverhalten. Aus Tab. 4112-5 ist zu ersehen, daß Kapazitätsausnutzung der Silberimprägnierung sowie das Abscheideverhalten nicht beeinträchtigt wurden.

Erst die Behandlung des AC 6120/H<sub>1</sub> mit einer 10fach stöchiometrischen Menge (siehe Reaktionsgleichung) an TBP zeigte als Ergebnis eine Verringerung der Aufnahmekapazität des Sorptionsmaterials sowie eine Erniedrigung der Abscheideleistung.

Über 44 g der Silbernitratimprägnierung wurden im Vakuum (10 mm Hg) 230 g TBP bei 150°C Bett-Temperatur geleitet. Anschließend wurde eine analytische Bestimmung des Phosphatgehaltes des Trägermaterials sowie des Restgehaltes an freiem AgNO<sub>3</sub> durchgeführt:

Tab. 4112-5: Hochbelastungsversuch an Jod-Sorptionsbetten, GWA-Auslegung

Versuchsbedingungen

Sorptionsmaterial: AC 6120/H<sub>1</sub>, 1 - 2 mm Kugeldurchmesser

Trärgas: 625 l Luft/h über 20 g TBP; in 24 h sind 0,43 g TBP verdampft

Vorströmzeit: 1 h; Beaufschlagung: 4 h; Nachströmzeit: 16 h

Beladung : 18,1 g Jod, vermischt mit 1,02 mCi <sup>131</sup>Jod

integrale Werte			differentielle Werte			
Bett-Tiefe in % der Gesamtbett-Tiefe	Abscheidegrad [%]	integrale Jodmenge [mg]	Einzelbett-Nr.	Jodmenge im Einzelbett [mg]	umgesetzte Silbermenge [mg]	Kapazitätsausnutzung pro Einzelbett [%]
6,6	11,1	2015	1	2015	1713	92,9
13,1	22,4	4052	2	2037	1732	93,9
19,7	33,7	6099	3	2047	1740	94,4
26,3	44,8	8110	4	2011	1709	92,7
32,9	55,9	10114	5	2004	1704	92,4
39,5	66,4	12017	6	1903	1618	87,7
46,0	76,5	13852	7	1835	1560	84,6
52,6	85,3	15441	8	1589	1351	73,3
59,2	92,3	16716	9	1275	1084	58,8
65,8	97,2	17601	10	885	752	40,8
72,3	99,9	18079	11	478	406	22,0
78,9	99,9994	18100	12	21	18	1,0
85,5	99,9996	-	13	-	-	-
92,1	99,9996	-	14	-	-	-
100,0	99,9998	-	15	-	-	-

AC 6120/H<sub>1</sub> Analyse:

AgNO<sub>3</sub>-Gehalt vor der Behandlung mit TBP

$$18,89 \% \text{ AgNO}_3 \stackrel{\Delta}{=} 12,11 \% \text{ Ag}^0$$

AgNO<sub>3</sub>-Gehalt nach der Behandlung mit TBP

$$4,19 \% \text{ AgNO}_3 \stackrel{\Delta}{=} 2,66 \% \text{ Ag}^0$$

Phosphatgehalt als PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> analysiert

$$1,67 \% \text{ PO}_4^{3-} \stackrel{\Delta}{=} 5,70 \% \text{ Ag Umsatz}$$

Der Restgehalt an nicht umgesetztem Silber beträgt somit 6,41 % Ag. Ein Teil des Silbernitrats wurde zu Ag<sub>2</sub>O umgesetzt bzw. durch reduzierende Stoffe in Ag<sup>0</sup> umgewandelt.

Die Umsetzung von Silberphosphat mit elementarem getracertem Jod in Hinblick auf die Feststoff-Gasreaktion ist Ziel weiterer Untersuchungen. Ebenfalls soll die Regeneration von mit TBP vorbehandeltem Material mit Stickstoffdioxid untersucht werden.

4112-2 Entwicklung und Bau einer Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen.

K.Jannakos, W.Apenberg, H.Jochim, W.Lange, W.Mendel,  
H.Mock, G.Pötgeter, G.Zabel, RBT/IT  
J.Furrer, J.G.Wilhelm, LAF

### 1. Prototyp-Abgasfilteranlage PASSAT

Für die Beschaffung der PASSAT-Anlage sind alle Unterlagen erstellt. Die entsprechenden Angebote liegen bereits vor. Die Bestellung soll Anfang 1977 erfolgen.

Abb. 4112-2 zeigt das RI-Fließbild der PASSAT-Anlage. Sie ist so konzipiert, daß vor den zu entwickelnden bzw. untersuchenden Komponenten: Tropfenabscheider  $F_2$ , Brink-Filter  $F_3$ , Schwebstoff-Filter  $F_4$  und Jodfilter  $F_5$  - die Parameter: Temperatur, Druck, Feuchte, Trocken-, Naßaerosolkonzentration, Jodkonzentration, Filter-Wechselfrequenz, Spülhäufigkeit und  $\text{NO}_2$ -Konzentration in einem breiten Bereich analog den entsprechenden Daten großer Wiederaufarbeitungsanlagen variiert werden können. Außer der Entwicklung und Erprobung der o.g. Komponenten sind noch die folgenden Entwicklungsarbeiten mit der PASSAT-Anlage vorgesehen:

- Entwicklung und Erprobung der Fernbedienungseinrichtungen für das Auswechseln und-schleusen der Filterpatronen.
- Untersuchungen über Jodablagerung in Rohrleitungen und Behältern.
- Kondensatzzusammensetzung in Abhängigkeit von den Versuchsparametern.

Die Anlage kann in Abluft- oder Umluftbetrieb gefahren werden. Umluftbetrieb ist immer erforderlich, wenn im Gas  $\text{NO}_2$  enthalten ist.

Für die Sicherheitsbetrachtung wurden die Unfallverhütungsvorschriften und die Bedingungen zur Erlangung einer Betriebsgenehmigung nach § 3 der Strahlenschutzverordnung zugrundegelegt.



Das Stahlgerüst für die Installation der Anlage in der LAF-Technikumshalle ist fertiggestellt.

Betriebsdaten für PASSAT:

Prozeßgasmenge	80 - 250 Nm <sup>3</sup> /h
Gaszusammensetzung	Luft/Dampfanteil entsprechend der eingestellten relativen Feuchte rel. Feuchte 50 bis 100 % NO <sub>2</sub> 5 % Jod 0,3 kg/h Jod 131 ca. 10 mCi Fest- und Naßaerosole nach Versuchsplan
Betriebstemperatur	max. 150 °C
Betriebsdruck	min. 0,5 bar, max. 1,1 bar

2. Transportvorrichtungen für die PASSAT-Anlage

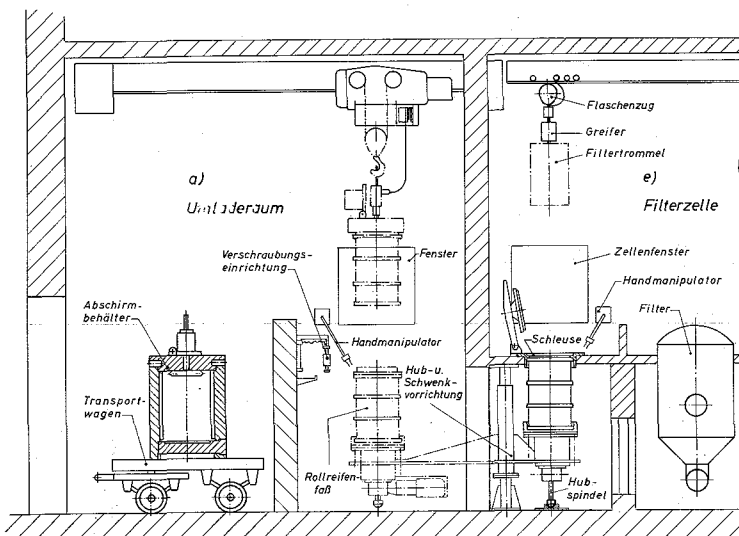


Abb. 4112-3

Ankoppel- und Trans-  
portsystem für  
Filterzellen

Im KFK 2262 (PNS-Halbjahresbericht 1975/2, Vorhaben 4112) ist das Ausschleus- und Transportsystem einer Filterzelle dargestellt. Dieses wurde so konzipiert, daß für das Ankoppeln des Rollreifen-



fasses im Umladeraum ein Ankoppelwagen verwendet wird. Eine Verbesserung der o.g. Konzeption zeigt das in der Abb. 4112-3 angegebene Ankoppel- und Transportsystem. Bei diesem wird anstelle des Ankoppelwagens ein Schwenk-Hub-Mechanismus verwendet. Die Vorteile dieses Mechanismus sind:

- Schienen und Schienenantrieb entfallen
- Kabelaufwickeltrommel und Kabel entfallen
- Notbedienung für den Wagenantrieb entfällt
- Genaue Positionierung über Handantrieb

Für den Transport der Filter innerhalb der Filterzelle wird ein Flaschenzug mit Greifer verwendet. Abb. 4112-4 zeigt den vorgesehenen Greifer.

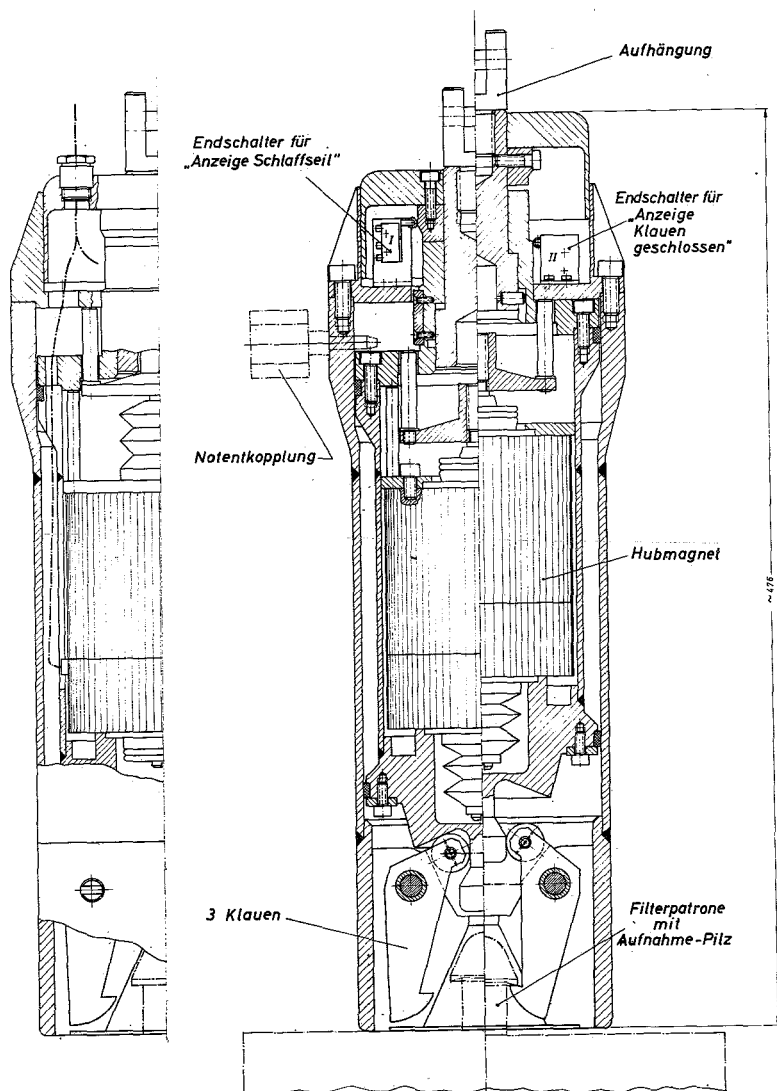


Abb. 4112-4

Greifer für den Transport der Filter innerhalb der Filterzelle.

Der Greifer wird nach dem Aufsetzen auf der Filtertrommel und abgeschaltetem Hubmagnet beim Anheben automatisch an die Filtertrommel angekoppelt und verriegelt. Für das Entkoppeln wird der Hubmagnet verwendet. Beim aufgesetzten Greifer und eingeschalteten Hubmagnet öffnen sich die Klauen und der Greifer kann von der Filtertrommel entkoppelt werden. Während des Transportes ist durch die vorgesehene Verriegelung das Öffnen der Klauen nicht möglich.

Für die Bedienung des Greifers ohne Sicht sind Endschalter vorgesehen, die das Aufliegen des Greifers und die Position der Klauen am Bedienungspult anzeigen.

#### 4114 Abluftfilterung an Reaktoren

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

(J. Furrer, R. Kaempfer, J.G. Wilhelm)

Die Untersuchungen über das Absinken der Abscheideleistung von Jod-Sorptionsfilterkohlen gegenüber  $^{131}\text{J}$  durch Schadstoffbeladung von Lösungsmitteln, u. a. organische Verbindungen, z. B. Paraffine (KFK 2262, S. 124 sowie KFK 2375, S. 145), wurden fortgesetzt.

Auch nach Verlängerung der Beaufschlagungszeit von Jod-Sorptionskohle mit Anlagenraumabluft eines Kernkraftwerkes von zwei auf vier Monate könnte durch Schadstoff-Desorption eine wesentliche Verbesserung der Jod-Abscheideleistung erreicht werden.

##### Regenerationsversuche

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

Aktivkohle des Jod-Sorptionsfilters: CG II, 1 % KJ-imprägniert, Stäbchendurchmesser: 2 mm

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

Beaufschlagung mit vorgefilterter Anlagenraumabluft über einen Zeitraum von 4 Monaten.

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

Desorptionsdauer [h]	Gewicht der Aktivkohle [g]
0	105,0
5	95,4
10	95,15
15	95,15
20	95,15

Der Gewichtsverlust von 9,85 g entspricht einer Lösungsmittelbeladung von 9,38 Gew.%. Bei einer zweimonatigen Beaufschlagung ergab sich eine durchschnittliche Lösungsmittelbeladung vom 5,4 Gew.%.

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

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

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

Beaufschlagung mit vorgefilterter Anlagenraumabluft: 4 Monate

Bett-Tiefe [cm]	12,5	25,0	37,5	50,0
Verweilzeit [s]	0,25	0,50	0,75	1,0
Filterzustand	Abscheidegrad $\eta$ in %			
vor Desorption	22,9	62,4	87,1	96,2
nach Desorption	67,7	91,5	98,1	99,6
vor Desorption (Parallelprobe)	27,0	65,2	88,1	96,5
frische Aktiv- kohle gleichen Typs	80,2	96,6	99,5	99,91

Aus der Tab. 4114-2 ist zu ersehen, daß mit einer Beaufschlagungszeit der Jod-Sorptionskohlen von vier Monaten mit Anlagenraumabluft im Kernkraftwerk (DWR) und nachfolgender Desorption nur ein Abscheidegrad von 99,6 % erreicht wird.

Zum Vergleich: In den vorangegangenen Versuchen wird nach einer Beaufschlagungszeit von zwei Monaten und anschließender Desorption eine vollständige Entfernung der Schadstoffe und der ursprüngliche Abscheidegrad (99,9 %) annähernd erreicht.

Dieses Ergebnis zeigt, daß die Lösungsmittelbeladung sich nicht nur quantitativ (9,4 Gew.% statt 5,4 Gew.%), sondern auch qualitativ gegenüber dem Zwei-monatsversuch verändert hat. Die Aufnahmekapazität der Vorfilterkohlen ist erschöpft. Auf den Jod-Sorptionskohlen sind jetzt schwerflüchtige Komponenten adsorbiert, die sich durch einfache Desorption nicht mehr austreiben lassen. Durch erhöhte Bett-Tiefe des Vorfilters dürfte dies zu vermeiden sein.

## Bestimmung von Jodkomponenten in der Abluft kerntechnischer Anlagen

(H. Deuber)

Die Schilddrüsendosen infolge einer Freisetzung der Spaltjodkomponenten anorganisches Jod ( $J_2$ ), aerosolförmiges Jod und organisches Jod ( $CH_3J$ ) verhalten sich bei Emission gleicher Anteile etwa wie 100 : 10 : 1. Zur Gewinnung von Daten für eine realistische Abschätzung der Schilddrüsendosen in der Umgebung von kerntechnischen Anlagen sind die Anteile der Spaltjodkomponenten in der Kaminabluft zu bestimmen. Zur Verbesserung der Lüftungskonzepte von kerntechnischen Anlagen ist eine Bestimmung der Spaltjodkomponenten in einzelnen Abluftsträngen vorzunehmen.

Die Bestimmung von aerosolförmigem, anorganischem und organischem Jod wird mit diskriminierenden Jodsammlern durchgeführt, in denen die Spaltjodkomponenten in der genannten Reihenfolge an Schwebstofffiltern bzw. selektiven Sorptionsmaterialien abgeschieden werden.

Erste Messungen in verschiedenen Raum- und Abluftarten von Kernkraftwerken hatten die Brauchbarkeit von diskriminierenden Jodsammlern mit DSM 10 als  $J_2$ -Sorptionsmaterial gezeigt. Allerdings hatte sich auch ergeben, daß in bestimmten Fällen (Abluft eines Forschungsreaktors) eine Vergiftung des  $J_2$ -Sorptionsmaterials eintreten kann (KFK 2375, S. 147). Im Berichtszeitraum wurde ein neues  $J_2$ -Sorptionsmaterial, DSM 11, entwickelt. Unter Verwendung von DSM 10 bzw. DSM 11 wurden Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern in verschiedenen Abluftarten von Kernkraftwerken durchgeführt.

### Laborversuche

Das neue  $J_2$ -Sorptionsmaterial DSM 11 wurde bei mittlerer Temperatur und Feuchte hinsichtlich der Abscheidegrade für  $J_2$  und  $CH_3J$  untersucht. Die Abscheidegrade für  $J_2$  sind in Tab. 4114-3 angegeben. Unter den gegebenen Bedingungen besteht praktisch kein Unterschied zu DSM 10: Bei einer Bettiefe von 2,5 cm (Verweilzeit 0,1 s) ist der integrale Abscheidegrad bei beiden Materialien > 99,9 %. (Die geringen differentiellen Abscheidegrade bei größeren Bettiefen sind auf geringe Verunreinigungen des  $J_2$  zurückzuführen.)

Der integrale Abscheidegrad von DSM 11 für  $CH_3J$  beträgt unter den gleichen Bedingungen bei einer Bettiefe von 2,5 cm 0,06 % und dürfte ebenfalls demjenigen von DSM 10 entsprechen. (Bei DSM 10 war bei 30°C und 70 % r.F. bei einer Bettiefe von 2,5 cm ein integraler Abscheidegrad von 0,04 % festgestellt worden.) Die Abscheidung von  $J_2$  und  $CH_3J$  an DSM 11 bei anderen Temperaturen und Feuchten ist noch zu prüfen.

Tab. 4114-3: Abscheidegrad von DSM 10 und DSM 11 für  $^{131}\text{J}$  in Form von  $\text{J}_2$

Trägerkonzentration: 1  $\text{mg}/\text{m}^3$   
 Betttemperatur : 40  $^{\circ}\text{C}$   
 Luftfeuchte : 50 %  
 Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm  
 Beaufschlagungszeit: 1 h  
 Vorströmzeit :  $\geq$  20 h  
 Nachströmzeit : 2 h

Sorptionsmaterial	Bettiefe [cm]	Abscheidegrad integral [%]	Abscheidegrad differenziell <sup>1)</sup> [%]
DSM 10	1,25	99,55	99,55
	2,5	99,949	76,6
	3,75	99,954	9,4
	5,0	99,955	3,5
	6,25	99,957	3,1
	7,5	99,958	2,8
	8,75	99,959	2,1
	10,0	99,960	1,6
	11,25	99,960	1,2
	12,5	99,960	1,0
DSM 11	1,25	99,80	99,80
	2,5	99,971	85,2
	3,75	99,974	10,0
	5,0	99,975	2,7
	6,25	99,975	1,9
	7,5	99,975	1,5
	8,75	99,976	1,4
	10,0	99,976	1,1
	11,25	99,976	1,0
	12,5	99,977	1,1

<sup>1)</sup> Abscheidegrad eines Bettes von 1,25 cm Tiefe

### Vor-Ort-Versuche

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

1. Stufe für Aerosoljod: 2 Schwebstofffilter GF/A;
2. Stufe für anorganisches Jod ( $J_2$ ): 5 Betten DSM 10;
3. Stufe für organisches Jod ( $CH_3J$ ): 5 Betten Aktivkohle CG 0,8.

In einigen Fällen wurde ebenfalls das neue  $J_2$ -Sorptionsmaterial DSM 11 benutzt. Bei Messungen in der Abluft von Jodfiltern wurde eine kleinere Anzahl von Sammlerkomponenten verwendet.

Die Luftgeschwindigkeit in den Schwebstofffiltern und Sorptionsmaterialien betrug 50 cm/s, bei Messungen in der Abluft von Jodfiltern jedoch 100 cm/s. Die Verweilzeit betrug in allen Fällen 0,05 s pro Bett. (Je nach Volumen der Betten entspricht diese Verweilzeit einem Durchsatz von 0,9, 3,6 oder 7,2 m<sup>3</sup>/h.) Die während derselben Sammelperiode in derselben Abluft eingesetzten Sammler wurden parallel betrieben. Die Sammelperioden umfaßten in der Regel 7 Tage. Temperatur und Feuchte der Abluft lagen zwischen 25 und 34°C bzw. 22 und 53 %, d. h. innerhalb der Auslegungsbereiche (10 - 70°C bzw. 20 - 80 % r.F.).

Über die Messung der  $^{131}J$ -Aktivität der Sammlerkomponenten mit Ge(Li)-Detektoren wurde bereits berichtet (KFK 2375, S. 147). Die Nachweisgrenze pro Sammlerkomponente lag meistens unterhalb von 0,1 % der insgesamt gemessenen  $^{131}J$ -Aktivität.

Die Ergebnisse der Messungen in einem SWR-Kernkraftwerk (SWR 1), zwei DWR-Kernkraftwerken (DWR 1, DWR 2) und einem Forschungsreaktor (FR) sind in den folgenden Tabellen und Abbildungen wiedergegeben. Die  $^{131}J$ -Aktivität der Sammlerkomponenten ist in den Tabellen und Abbildungen aufgeführt, sofern sie mindestens 0,1 % bzw. 0,4 % der insgesamt gemessenen  $^{131}J$ -Aktivität betrug und größer oder gleich der Nachweisgrenze war. Die Nachweisgrenze pro Sammlerkomponente ist in den Abbildungen (als punktierte Gerade) eingetragen, falls sie  $\geq 0,4$  % der insgesamt gemessenen  $^{131}J$ -Aktivität war. Die  $^{131}J$ -Konzentration der Abluft wurde ohne Zerfallskorrektur aus der Menge an  $^{131}J$  im Sammler am Ende der Sammelperiode errechnet. Im Falle zeitlich konstanter  $^{131}J$ -Konzentration der Abluft würde sich die Zerfallskorrektur auf maximal 40 % belaufen. Es ist darauf zu verweisen, daß die in der

Kaminabluft festgestellte  $^{131}\text{J}$ -Konzentration in allen Fällen unterhalb des zulässigen Wertes lag.

Aus den in den Tab. 4114-4 bis 4114-10 und den Abb. 4114-1 bis 4114-20 angeführten Ergebnissen geht folgendes hervor:

1. In parallel betriebenen Sammlern war die Verteilung der  $^{131}\text{J}$ -Aktivität auf die Sammlerkomponenten nahezu gleich. Die Reproduzierbarkeit ist also gut.
2. 7tägiges Nachströmen hatte praktisch keinen Einfluß auf die Verteilung. Es liegt also eine starke Fixierung des Jods an den Sammlerkomponenten vor.
3. Die Abscheidung von gasförmigem Jod an den Schwebstofffiltern ist, auch bei kleiner Luftgeschwindigkeit, sehr gering.
4. Sowohl bei Verwendung von DSM 10 als auch von DSM 11 ergab sich in der Abluft von Kernkraftwerken in der Stufe für anorganisches Jod in der Regel die gleiche, durch einen starken anfänglichen Abfall gekennzeichnete Verteilung. (In einem Falle (Abb. 4114-7) trat ein nicht erklärbarer flacher Abfall auf.) Bei dem FR ergab sich der anfänglich steile Abfall nur bei DSM 11. DSM 11 erscheint somit als das universeller einsetzbare der beiden  $\text{J}_2$ -Sorptionsmaterialien.
5. Auch in den hinteren DSM 10- und DSM 11-Betten wurde in der Regel Jod abgeschieden. Ein kleiner Anteil einer sich an diesen Materialien schlechter als  $\text{J}_2$  und besser als  $\text{CH}_3\text{J}$  abscheidenden Jodkomponente dürfte mit dafür verantwortlich sein.
6. In der Stufe für organisches Jod schied sich das Jod praktisch vollständig in den ersten beiden Betten ab. (Von den 5 Betten wurden daher die letzten beiden meistens nicht gemessen.) CG 0,8 ist also in diskriminierenden Jodsammlern einsetzbar.

Aus den bisher durchgeführten Messungen ergibt sich, daß in der vorliegenden Ausführung und Betriebsweise die diskriminierenden Jodsammler sowohl mit DSM 10 als auch mit DSM 11 als  $\text{J}_2$ -Sorptionsmaterial zur Bestimmung der Jodkomponenten in der Abluft von Kernkraftwerken geeignet sind. In der Regel dürfte die Brauchbarkeit auch bei einer geringeren Anzahl an Sammlerkompo-



zenten gewährleistet sein. Die einfachste Ausführung (bei 0,05 s Verweilzeit pro Bett) wäre: 1. 1 Schwebstofffilter; 2. 2 Betten  $J_2$ -Sorptionmaterial; 3. 2 Betten Aktivkohle. Bei dieser Ausführung hätte man sich zu vergewissern, daß das Verhältnis der Aktivitäten des 1. und 2. Bettes jeweils  $\geq 5 : 1$  ist, sofern die Summe dieser Aktivitäten prozentual nicht sehr klein ist.

Hinsichtlich des Anteils der Jodkomponenten ist folgendes zu erkennen (Tab. 4114-11):

1. Der Anteil an Aerosoljod war in allen Fällen sehr gering ( $\leq 3 \%$ ).
2. Der Anteil an anorganischem Jod variierte je nach Reaktor und Abluft in einem weiten Bereich (0 - 91 %).
3. Bei vollständiger Jodfilterung war der Anteil an anorganischem Jod sehr gering ( $\leq 2 \%$ ).

Auffallend ist der große Anteil an  $J_2$  in der Kaminabluft im Falle des DWR 1 und des FR. Beim DWR 1 wurde das  $^{131}J$  der Anlagenraumabluft durch das entsprechende Filter praktisch vollständig abgeschieden. (Aus diesem und anderen Gründen konnten keine eindeutigen Messungen in der Abluft des Anlagenraumabluftfilters vorgenommen werden.) Daraus geht hervor, daß Abluftströme, die wegen der relativ geringen  $^{131}J$ -Konzentration nicht jodgefiltert werden, hinsichtlich des Anteils an  $J_2$  in der Kaminabluft und damit auch im Hinblick auf die Umgebungsbelastung von entscheidender Bedeutung sein können.

In Tab. 4114-12 sind die Dekontaminationsfaktoren und Abscheidegrade der Jodfilter, bei denen eindeutige Messungen durchgeführt werden konnten, verzeichnet. Die starke Abscheidung des anorganischen Jods ist deutlich zu erkennen.

Die Messungen werden während eines repräsentativen Zeitraumes (ca. 1 Jahr) in verschiedenen Abluftarten eines modernen DWR-Kernkraftwerkes fortgesetzt.

Tab. 4114-4: Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: SWR 1

Betriebszustand : BE-Wechsel  
 Art der Luft : Zuluft Spülluftfilter  
 Zustand der Luft : ungefiltert  
 Sammelperiode : 1  
<sup>131</sup>J-Aktivität im Sammler am Ende der Sammelperiode  
 Sammler 1 :  $1,9 \cdot 10^{-8}$  Ci  
 Sammler 2 :  $1,9 \cdot 10^{-8}$  Ci  
 Sammler 3 :  $1,9 \cdot 10^{-8}$  Ci  
 Sammler 4 :  $2,0 \cdot 10^{-8}$  Ci  
<sup>131</sup>J-Aktivitätskonzentration:  $1 \cdot 10^{-10}$  Ci/m<sup>3</sup>

Sammler- stufe	Sammler- komponente	<sup>131</sup> J-Aktivität [%]			
		Sammler 1	Sammler 2 1)	Sammler 3 2)	Sammler 4 1),2)
Stufe für Aerosol- jod	1	1,1	1,1	1,2	0,5
	2	0,1	-	0,4	0,2
	1-2	1	1	2	1
Stufe für anorga- nisches Jod	3	70,9	71,4	70,5	70,6
	4	5,2	5,2	5,5	5,3
	5	1,8	1,8	1,9	1,9
	6	1,3	1,2	1,2	1,2
	7	1,1	1,0	1,0	1,0
	3-7	80	81	80	80
Stufe für orga- nisches Jod	8	17,4	17,7	17,6	18,7
	9	0,4	0,3	0,4	0,5
	10	0,2	-	0,1	0,1
	11	0,2	0,1	-	-
	12	0,3	0,1	0,2	-
	8-12	19	18	18	19

1) 7 Tage mit aktivitätsfreier Luft bei 20°C, 50 % r. F. und unveränderter Luftgeschwindigkeit nachgeströmt

2) Luftgeschwindigkeit in den Schwebstofffiltern 15 cm/s

Tab. 4114-5: Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: SWR 1

Betriebszustand : BE-Wechsel  
 Art der Luft : Zuluft Spülluftfilter  
 Zustand der Luft : ungefiltert  
 Sammelperiode : 2  
<sup>131</sup>J-Aktivität im Sammler am Ende der Sammelperiode  
 Sammler 1 :  $1,4 \cdot 10^{-8}$  Ci  
 Sammler 2 :  $1,3 \cdot 10^{-8}$  Ci  
<sup>131</sup>J-Aktivitätskonzentration:  $3 \cdot 10^{-11}$  Ci/m<sup>3</sup>

Sammler- stufe	Sammler- komponente	<sup>131</sup> J-Aktivität [%]	
		Sammler 1	Sammler 2 1)
Stufe für Aerosoljod	1	2,0	2,7
	2	0,3	0,3
	1-2	2	3
Stufe für anorganisches Jod	3	61,2	64,0
	4	3,4	4,2
	5	1,5	1,6
	6	1,0	1,0
	7	0,8	0,7
	3-7	68	71
Stufe für organisches Jod	8	28,9	24,8
	9	0,8	0,7
	10	0,1	-
	8-10	30	26

1) J<sub>2</sub>-Sorptionsmaterial DSM 11

Tab. 4114-6: Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: SWR 1

Betriebszustand : BE-Wechsel  
 Art der Luft : Abluft Spülluftfilter  
 Zustand der Luft : ungefiltert (außer durch Spülluftfilter)  
 Sammelperiode : 1; 2

<sup>131</sup>J-Aktivität im Sammler am Ende der Sammelperiode

Sammelperiode 1 :  $3,9 \cdot 10^{-9}$  Ci

Sammelperiode 2 :  $3,8 \cdot 10^{-10}$  Ci

<sup>131</sup>J-Aktivitätskonzentration

Sammelperiode 1 :  $3 \cdot 10^{-12}$  Ci/m<sup>3</sup>

Sammelperiode 2 :  $4 \cdot 10^{-13}$  Ci/m<sup>3</sup>

Sammlerstufe	Sammler-komponente	<sup>131</sup> J-Aktivität [%]	
		Sammelperiode 1	Sammelperiode 2
Stufe für Aerosoljod	1	-	-
Stufe für anorganisches Jod	2	7,5	2,0
	3	6,9	-
	2-3	14	2
Stufe für organisches Jod	4	57,1	96,9
	5	28,4	1,1
	4-5	86	98

Tab. 4114-7: Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: SWR 1

Betriebszustand : Leistungsbetrieb <sup>1)</sup>  
 Art der Luft : Kaminabluft  
 Zustand der Luft : teilweise aerosol- und jodgefiltert (durch Filter der Stopfbuchsen- und Ringspaltabsaugung)

Sammelperiode : 3

<sup>131</sup>J-Aktivität im Sammler am Ende der Sammelperiode:

$6,2 \cdot 10^{-10}$  Ci

<sup>131</sup>J-Aktivitätskonzentration:  $9 \cdot 10^{-13}$  Ci/m<sup>3</sup>

Sammlerstufe	Sammlerkomponente	<sup>131</sup> J-Aktivität [%]
Stufe für Aerosoljod	1	1,6
	2	-
	1-2	2
Stufe für anorganisches Jod	3	20,0
	4	3,2
	5	0,4
	6	0,7
	7	-
	3-7	24
Stufe für organisches Jod	8	70,8
	9	1,8
	10	1,7
	8-10	74

1) Reaktor während der 8tägigen Sammelperiode 3 Tage abgeschaltet

Tab. 4114-8: Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: DWR 1

Betriebszustand : Leistungsbetrieb  
 Art der Luft : Zuluft Anlagenraumabluftfilter; Kaminabluft  
 Zustand der Luft  
 Zuluft Anlagenraumabluftfilter : teilweise aerosol- und jodgefiltert (durch Anlagenraumluftfilter)  
 Kaminabluft : teilweise aerosol- und jodgefiltert (durch Anlagenraumluftfilter und -abluftfilter) <sup>1)</sup>  
 Sammelperiode : 4; 5  
<sup>131</sup>J-Aktivität im Sammler am Ende der Sammelperiode  
 Zuluft Anlagenraumabluftfilter  
 Sammelperiode 4 :  $9,8 \cdot 10^{-8}$  Ci  
 Sammelperiode 5 :  $6,1 \cdot 10^{-8}$  Ci  
 Kaminabluft  
 Sammelperiode 4 :  $7,0 \cdot 10^{-9}$  Ci  
 Sammelperiode 5 :  $4,6 \cdot 10^{-9}$  Ci

<sup>131</sup>J-Aktivitätskonzentration

Zuluft Anlagenraumabluftfilter  
 Sammelperiode 4 :  $2 \cdot 10^{-10}$  Ci/m<sup>3</sup>  
 Sammelperiode 5 :  $1 \cdot 10^{-10}$  Ci/m<sup>3</sup>  
 Kaminabluft  
 Sammelperiode 4 :  $1 \cdot 10^{-11}$  Ci/m<sup>3</sup>  
 Sammelperiode 5 :  $8 \cdot 10^{-12}$  Ci/m<sup>3</sup>

Sammlerstufe	Sammlerkomponente	<sup>131</sup> J-Aktivität [%]			
		Zuluft Anlagenr.		Kaminabluft	
		Sammelperiode 4	Sammelperiode 5	Sammelperiode 4	Sammelperiode 5
Stufe für Aerosoljod	1	-	-	0,2	0,8
	2	-	-	0,2	0,2
	1-2	-	-	-	1
Stufe für anorganisches Jod	3	14,9	14,6	54,8	62,8
	4	3,1	2,9	11,2	9,7
	5	1,7	1,9	1,8	1,9
	6	1,5	1,7	0,6	0,8
	7	1,3	1,5	0,3	0,5
	3-7	23	23	69	76
Stufe für organisches Jod	8	76,1	76,0	30,6	23,2
	9	1,3	1,2	0,2	0,1
	10	-	-	-	-
	8-10	77	77	31	23

<sup>1)</sup> während der 7tägigen Sammelperiode 5 außerdem Abluft aus Betriebsräumen, Ringraum, Hilfsanlagegebäude und Abgas während ca. 2 Tagen aerosolgefiltert

Tab. 4114-9: Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: DWR 2

Betriebszustand : Leistungsbetrieb  
 Art der Luft : Zu- und Abluft Anlagenraumabluftfilter  
 Zustand der Luft : ungefiltert (außer durch Anlagenraumabluftfilter im Falle der Abluft)  
 Sammelperiode : 3  
<sup>131</sup>J-Aktivität im Sammler am Ende der Sammelperiode  
 Zuluft  
 Sammler 1 :  $2,7 \cdot 10^{-9}$  Ci  
 Sammler 2 :  $2,7 \cdot 10^{-9}$  Ci  
 Abluft :  $2,2 \cdot 10^{-10}$  Ci  
<sup>131</sup>J-Aktivitätskonzentration  
 Zuluft :  $5 \cdot 10^{-12}$  Ci/m<sup>3</sup>  
 Abluft :  $2 \cdot 10^{-13}$  Ci/m<sup>3</sup>

Sammlerstufe	Sammlerkomponente	<sup>131</sup> J-Aktivität [%]		
		Zuluft		Abluft <sup>1)</sup>
		Sammler 1	Sammler 2 <sup>2)</sup>	
Stufe für Aerosoljod	1	1,2	1,3	-
	2	-	-	-
	1-2	1	1	-
Stufe für anorganisches Jod	3	36,5	35,8	-
	4	4,0	4,4	-
	5	1,4	1,5	-
	6	1,1	0,8	-
	7	0,6	0,4	-
	3-7	44	43	-
Stufe für organisches Jod	8	52,6	52,5	88,4
	9	2,2	2,7	11,6
	10	0,5	0,6	-
	8-10	55	56	-

<sup>1)</sup> Anzahl der Sammlerkomponenten 5

<sup>2)</sup> J<sub>2</sub>-Sorptionsmaterial DSM 11

Tab. 4114-10: Verteilung von  $^{131}\text{J}$ -Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: FR

Betriebszustand : Leistungsbetrieb  
 Art der Luft : Kaminabluft  
 Zustand der Luft : aerosolgefiltert, nicht jodgefiltert  
 Sammelperiode : 4; 5

$^{131}\text{J}$ -Aktivität im Sammler am Ende der Sammelperiode

Sammelperiode 4

Sammler 1 :  $1,4 \cdot 10^{-9} \text{ Ci}$

Sammler 2 :  $1,1 \cdot 10^{-9} \text{ Ci}$

Sammelperiode 5

Sammler 1 :  $9,1 \cdot 10^{-10} \text{ Ci}$

Sammler 2 :  $1,2 \cdot 10^{-9} \text{ Ci}$

$^{131}\text{J}$ -Aktivitätskonzentration

Sammelperiode 4 :  $2 \cdot 10^{-12} \text{ Ci/m}^3$

Sammelperiode 5 :  $2 \cdot 10^{-12} \text{ Ci/m}^3$

Sammlerstufe	Sammler- komponente	$^{131}\text{J}$ -Aktivität [%]			
		Sammelperiode 4		Sammelperiode 5	
		Sammler 1	Sammler 2 <sup>1)</sup>	Sammler 1	Sammler 2 <sup>1)</sup>
Stufe für Aerosol- jod	1	0,6	0,6	0,6	0,5
	2	0,3	0,2	0,6	0,4
	1-2	1	1	1	1
Stufe für anorga- nisches Jod	3	52,5	74,4	44,8	78,9
	4	18,5	12,4	29,2	9,9
	5	5,7	1,9	6,9	1,1
	6	1,8	0,6	2,2	0,5
	7	1,0	-	0,4	0,5
	3-7	79	89	84	91
Stufe für orga- nisches Jod	8	19,2	8,3	14,9	7,8
	9	-	1,7	-	0,4
	10	0,4	-	0,4	-
	8-10	20	10	15	8

1)  $\text{J}_2$ -Sorptionsmaterial DSM 11

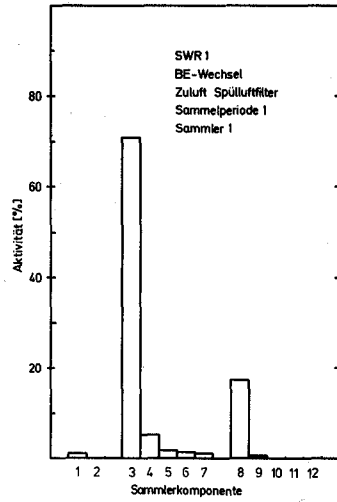


Abb. 4114-1

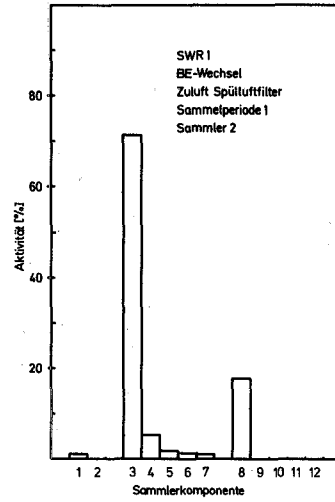


Abb. 4114-2

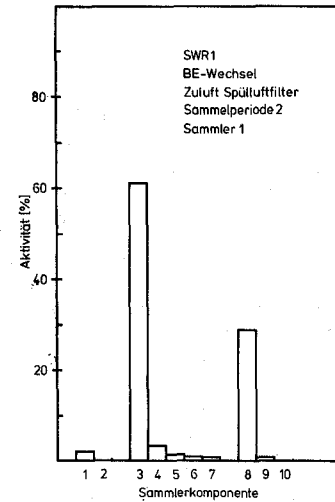


Abb. 4114-5

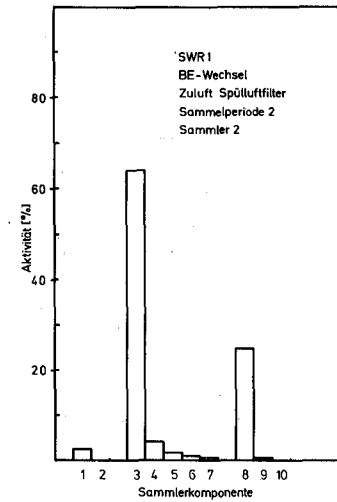


Abb. 4114-6

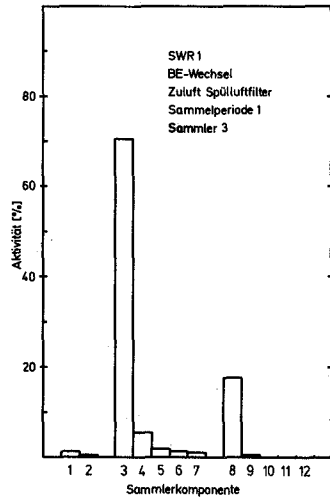


Abb. 4114-3

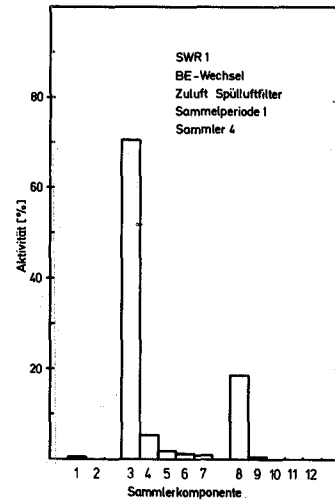


Abb. 4114-4

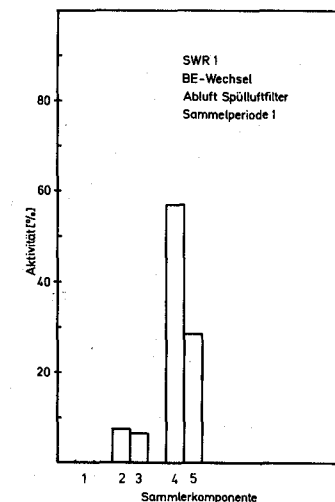


Abb. 4114-7

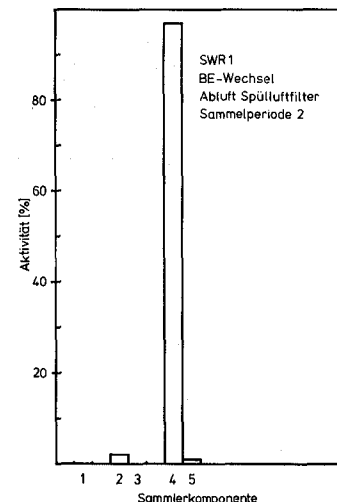


Abb. 4114-8

Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: SWR 1

Abb. 4114-2, 4114-4: Nachströmzeit 7 Tage

Abb. 4114-3, 4114-4: Luftgeschwindigkeit in den Schwebstoffiltern  
15 cm/s

Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: SWR 1

Abb. 4114-6: J<sub>2</sub>-Sorptionsmaterial DSM 11

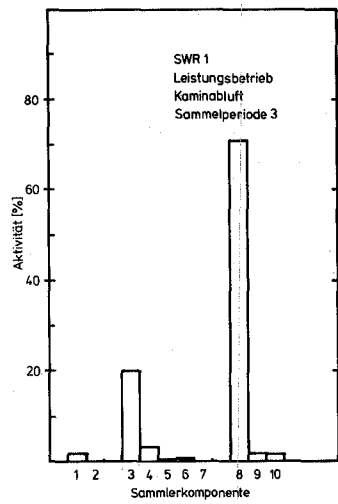


Abb. 4114-9

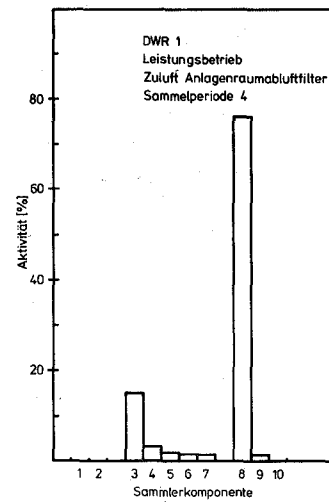


Abb. 4114-10

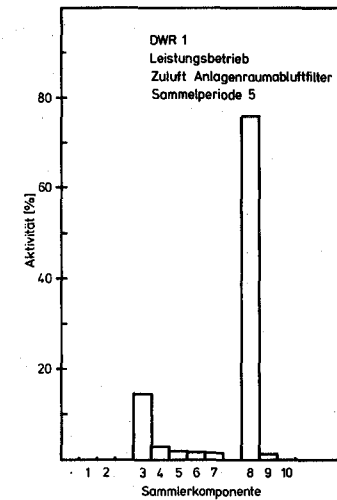


Abb. 4114-11

Verteilung von  $^{131}\text{J}$ -Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: SWR 1

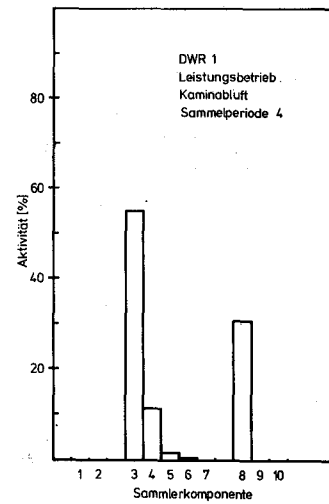


Abb. 4114-12

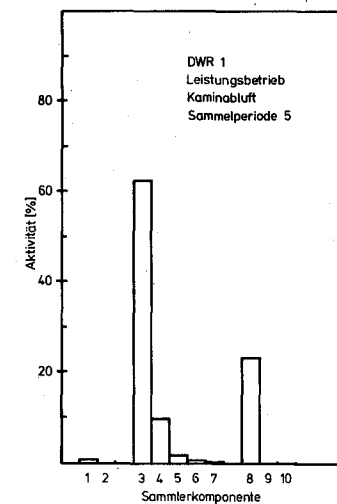


Abb. 4114-13

Verteilung von  $^{131}\text{J}$ -Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: DWR 1

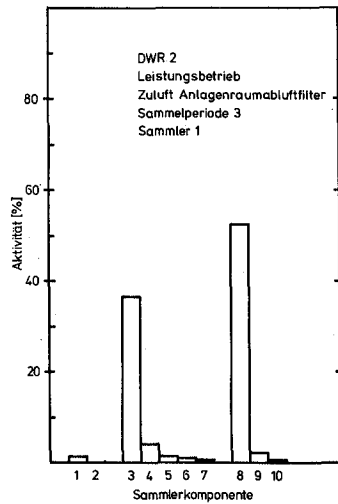


Abb. 4114-14

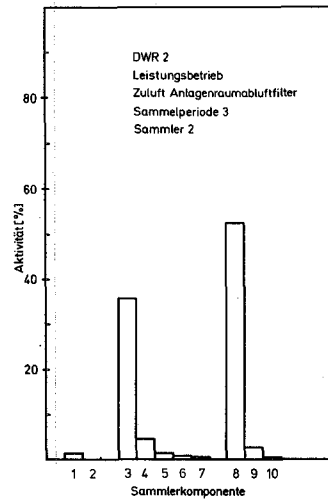


Abb. 4114-15

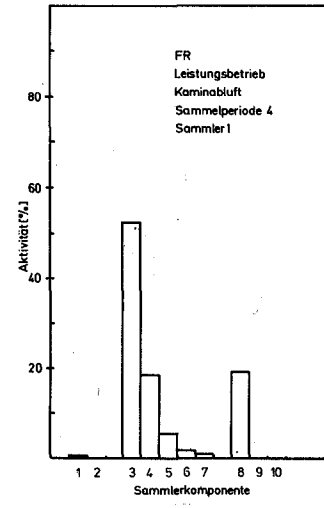


Abb. 4114-17

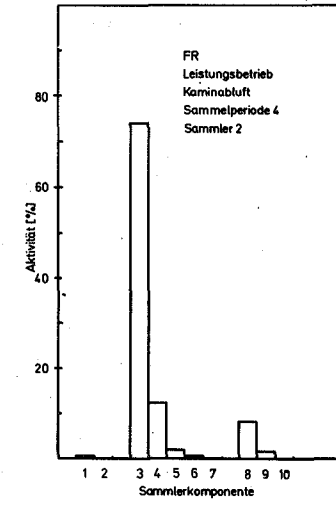


Abb. 4114-18

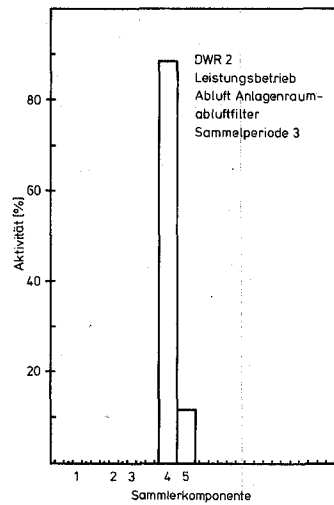


Abb. 4114-16

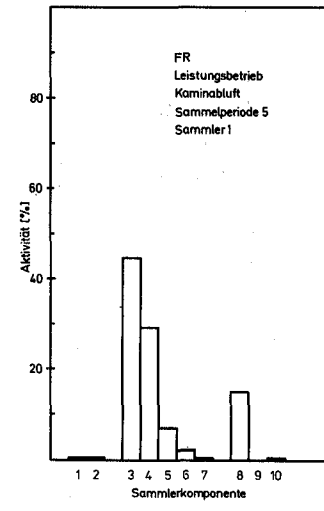


Abb. 4114-19

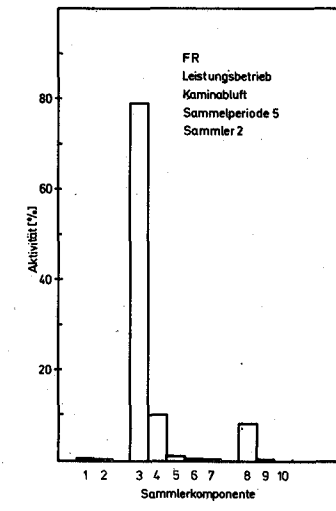


Abb. 4114-20

Verteilung von  $^{131}\text{J}$ -Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: DWR 2  
Abb. 4114-15:  $\text{J}_2$ -Sorptionsmaterial DSM 11

Verteilung von  $^{131}\text{J}$ -Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern: FR  
Abb. 4114-18, 4114-20:  $\text{J}_2$ -Sorptionsmaterial DSM 11



Tab. 4114-11: Verteilung von <sup>131</sup>J-Aktivität in diskriminierenden Jodsammlern (Übersicht)

Werte der Tab. 4114-4 bis 4114-10

Anlage	Art der Luft	Anzahl der Messungen	<sup>131</sup> J-Aktivität [%]		
			Stufe für Aerosol-Jod	Stufe für anorg. Jod	Stufe für org. Jod
SWR 1	Zuluft Spülluftfilter 1),2)	6	1-3	68-81	18-30
	Abluft Spülluftfilter 1),3)	1	0	2	98
	Kaminabluft	1	2	24	74
DWR 1	Zuluft Anlagenraumabluftfilter	2	0	23	77
	Kaminabluft	2	0-1	69-72	23-31
DWR 2	Zuluft Anlagenraumabluftfilter 2)	2	1	43-44	55-56
	Abluft Anlagenraumabluftfilter	1	0	0	100
FR	Kaminabluft 2)	4	1	79-91	8-20

1) BE-Wechsel (in den anderen Fällen Leistungsbetrieb)

2) keine Jodfilterung (in den anderen Fällen teilweise oder vollständige Jodfilterung)

3) Ergebnisse der Sammelperiode 1 nicht berücksichtigt

Tab. 4114-12: Charakteristik der Jodfilter

Filter	Anlage	Jodkomponente 1)	DF	Abscheidegrad [%]
Spülluftfilter 2)	SWR 1	anorg. Jod	2500	99,96
		org. Jod	22	95,5
		Gesamtjod	73	98,6
Anlagenraumabluftfilter	DWR 2	anorg. Jod	> 2000	> 99,95
		org. Jod	13	92,3
		Gesamtjod	23	95,7

1) in den jeweiligen Stufen bzw. insgesamt abgeschiedenes gasförmiges Jod

2) Ergebnisse der Sammelperiode 1 nicht berücksichtigt

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen

4123 Fremdstoffe in Leichtwasserreaktor-Kühlmitteln

( I. Michael, G. Bechtold, R. Melcher )

Bekanntlich ist die Metallabgabe der Dampferzeuger eine wesentliche Ursache der Primärkreis-Kontamination von Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktoren. Die bisherigen experimentellen Untersuchungen der Hauptlegierungskomponenten des Dampferzeugerwerkstoffes INCOLOY alloy 800 in Autoklaven hatten ergeben, daß der Metallgehalt im Druckwasser bei 342°C und 150 bar durch Absenkung des Sauerstoffgehaltes ebenfalls geringer wird /1/. Diese Tendenz setzt sich fort, wenn das Druckwasser alkalisiert wird. Erste Ergebnisse der Alkalisierung des Ausgangswassers mit Lithiumhydroxid entsprechend 2 mg Li/kg und einem pH-Wert von 9,7 (bei Raumtemperatur gemessen) zeigten diese Tendenz, die jedoch durch Kontrolluntersuchungen noch weiter erhärtet werden muß.

Metallabgabe-Untersuchungsläufe ohne Alkalisierung über 1000 Stunden und mit einem Sauerstoffgehalt von 0,05 mg/kg im Ausgangswasser, zeigten nach etwa 400 Stunden plötzlich und für kurze Zeit wesentlich erhöhte Metallgehaltswerte im Druckwasser. Diese diskontinuierliche Metall oder/und Metalloxidabgabe legt die Vermutung nahe, daß nach dem Anwachsen der oxidischen Deckschicht auf den INCOLOY-Proben bis zu einer bestimmten Dicke plötzlich ein verstärktes Ablösen und Freisetzen von Material dieser Schichten erfolgt. Das so freigesetzte Metall oder/und Metalloxid wandert über das Druckwasser an die Autoklavenwand oder lagert sich partikelförmig in strömungstoten Räumen ab. Dieser diskontinuierlichen Materialabgabe ist eine kontinuierliche mit wesentlich geringerer Abgaberate überlagert. Diese Vorstellung eines möglichen Abgabemechanismus bedarf der weiteren Untersuchung, insbesondere der Untersuchung der Oberflächen des Materialspenders (INCOLOY) und des Materialaufnehmers (vergoldete Autoklavenwand) mit Hilfe der oberflächenphysikalischen Untersuchungsverfahren der Sekun-

därionen-Massenspektroskopie und der Augerelektronen-Spektroskopie.

Die anorganisch-chemische Ultra-Mikro-Analyse für die Bestimmung des Metallgehaltes im Autoklavenwasser erfolgt mittels der Atomabsorptions-Spektrometrie. Das dafür zur Verfügung stehende Gerät von Perkin-Elmer, Typ 303, entspricht einem älteren Entwicklungsstand und enthält deshalb noch keinerlei Rechnerauswertung. Der dadurch bedingte verhältnismäßig hohe Arbeitsaufwand und das Fehlen von Fachpersonal für allgemeine chemische Routineanalytik machten es notwendig, die Atomabsorptions-Spektroskopie zu automatisieren /2/. Die nun geschaffene AAS-Laborautomatisierung ist schematisch in Abb. 4123-1 dargestellt. Der mit der Probeneingabe verbundene Spannungsimpuls am Photomultiplier des Spektrometers ist ein Maß für die Transmission, die das monochromatische elementspezifische Hohlkathodenlicht im Dampfvolumen der Probe erfährt. Dieser Impuls wird von einem Speicher-Voltmeter übernommen, digitalisiert der Rechnerinterface zugeleitet und im programmierbaren Rechner verarbeitet. In diese Verarbeitung sind vor allem einbezogen:

1. Umwandlung von Transmission in Extinktion über das Beersche Gesetz
2. Mittelung und Fehlerrechnung
3. Berechnung der Ultraspuren-Konzentration

Die Datenverarbeitung der Atomabsorptionswerte wurde im on-line-Betrieb mit dem Speicher-Voltmeter VID (Gay-Milano), dem Interface HP 11203 A und dem programmierbaren Rechner HP 9821 verwirklicht. Das digitale Speicher-Voltmeter wurde entsprechend dem Impulssignal aus dem Spektrometer mit einem potentialfreien Eingang ausgerüstet. Die zur Datenverarbeitung mit dieser Anordnung notwendige software wurde erstellt.

Mit der auf diese Weise verbesserten Auswertung der Atomabsorptionspektrometrie im Ultra-Mikrobereich (ng - ug) konnte die Auswertzeit um etwa zwei Drittel vermindert und die AAS-Genauigkeit, die allgemein mit 1...10% angegeben wird, deutlich in den unteren Bereich gelegt werden. Eine weitergehende Automatisierung der ASS-Analytik unter Verwendung eines Probenwechslers ist in Vorbereitung.

Literatur

- /1/ I. Michael, G. Bechtold  
Fremdstoffe in Leichtwasserreaktor-Kühlmitteln, in  
PNS-Halbjahresbericht 1975/2,  
KFK 2262
- /2/ G. Bechtold, I. Michael  
Zur Notwendigkeit der Laborautomation für die Atom-  
Absorptions-Spektroskopie im IRB (unveröffentlicht)  
August 1975



Abb. 4123-1. Arbeitsprinzip der AAS-Meßwertverarbeitung

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

4132 Untersuchungen zur  $^{129}\text{J}$ -Radioökologie

(H. Schüttelkopf, ASS)

In der 2. Hälfte 1977 wurden die Messungen von  $^{129}\text{J}$  in der WAK abgeschlossen. Parallel zu  $^{14}\text{CO}_2$ -Messungen wurde anorganisches, gasförmiges  $^{129}\text{J}$  in der Abluft der WAK bestimmt. Die Bestimmung erfolgte während 15 Wochen in 22 Proben durch kontinuierliche Probenahme und diskontinuierliche Auswertung. Die so bestimmte monatliche  $^{129}\text{J}$ -Emission stimmt gut überein mit den Ergebnissen der Messung der  $^{129}\text{J}$ -Gesamtemission, welche in der WAK durchgeführt wird. Dies bedeutet, daß der Anteil von organisch gebundenem  $^{129}\text{J}$  in der Abluft der WAK sehr gering ist. Die hohe Leistungsfähigkeit des installierten Jodfilters zeigt sich in der unwesentlichen Erhöhung der  $^{129}\text{J}$ -Emission während der Betriebsphase um den Faktor 2, verglichen mit der Betriebspause.

Insgesamt wurden 4  $^{129}\text{J}$ -Bestimmungen in mittelaktiven Abwässern durchgeführt. Monatliche Mischproben des niederaktiven Abwassers der WAK enthielten bis 129 pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$ . Die destillativ gereinigten Abwässer enthalten in monatlichen Mischproben bis 3,9 pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$  und in den Endbecken wurden Werte bis 0,8 pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$  gemessen. Der  $^{129}\text{J}$ -Gehalt ist leicht abnehmend; die Messungen wurden Ende September abgeschlossen.

In der Umgebung der WAK wurden Schilddrüsen-, Milch- und Bodenproben auf  $^{129}\text{J}$  analysiert. In Schilddrüsen von Rehen, einem Hirsch und einem Wildschwein aus dem Gebiet der Hauptbeaufschlagung durch die Abluftfahne der WAK wurden 1,6 - 196 pCi  $^{129}\text{J}/\text{Schilddrüse}$  gemessen. In 13 Kuhmilchproben wurden Werte zwischen 0,0015 - 0,27 pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$  gefunden. Die letzten Messungen von  $^{129}\text{J}$  in Ziegenmilch lagen bei einigen 0,1 pCi  $^{129}\text{J}/\text{l}$ . Die Konzentration in der Ziegenmilch ist im Mittel 1976 um den Faktor 2 niedriger als im Jahre 1975. Da die  $^{129}\text{J}$ -Emission um mehr als Faktor 20 gesunken ist (Abb.1), werden folgende mögliche Ursachen untersucht. Die Auflösezeiten der seit 1971 gelösten Brennstoffchargen wurden eruiert; es soll geprüft werden, ob in den Jahren 1975 und 1976 eine von der mittleren meteorologischen Jahresstatistik abweichende Umgebungscontaminationen erfolgt ist. Außerdem wurden 24 Bodenproben - dies ist der erste Teil der in der 1. Jahreshälfte genommenen Proben - auf  $^{129}\text{J}$  analysiert. Die bisher ausgewerteten Proben enthielten (0,4 - 7,4)  $10^{-15}$  Ci  $^{129}\text{J}/\text{g}$ . Die Bestimmung

der  $^{127}\text{J}$ -Gehalte dieser Proben wird zeigen, wie weit diese Werte über dem natürlichen  $^{129}\text{J}/^{127}\text{J}$ -Verhältnis liegen und welchen Anteil daher die Bodenkontamination am  $^{129}\text{J}$ -Gehalt der Milch hat. Die Analysen von Boden- und Ziegenmilchproben werden 1977 und 1978 fortgesetzt um die Abnahme einer vorhandenen Langzeitkontamination zu beobachten. Insgesamt wurde 1977  $^{129}\text{J}$  in 376 Proben bestimmt.

Die letzten Schwierigkeiten bei der Probenahme und der Analytik nach der Neutronenaktivierung von  $^{127}\text{J}$  in Luftproben wurden beseitigt. In 13 Wochenproben wurden in der Umgebungsluft vom KFZ Karlsruhe  $0,6 - 6,5 \text{ ng } ^{127}\text{J}$ -Aerosole/ $\text{m}^3$  und  $1,8 - 22 \text{ ng } ^{127}\text{J}_2/\text{m}^3$  gemessen. Die wesentlich höhere  $\text{J}_2$ -Konzentration stimmt mit den wenigen Veröffentlichungen zu diesem Thema überein. Die Konzentration ist wesentlich niedriger, als die  $1-2 \text{ } \mu\text{g } ^{127}\text{J}/\text{m}^3$ , die in Düsseldorf, Graz oder an der Ostsee gemessen wurden. Die Installation von 5 Anlagen zur Probenahme in Norddeutschland wird vorbereitet.

Wesentliche Verbesserungen wurden bei der Analytik erreicht. Eine elektrolytische Abtrennung von Ag aus AgJ, die Veraschung von Ionenaustauschern ohne Jod zu verlieren, die PdJ<sub>2</sub>-Fällung, die Bestimmung von  $^{127}\text{J}$  in Milch durch Neutronenaktivierung und spektralphotometrische Methode wurden erfolgreich eingeführt.

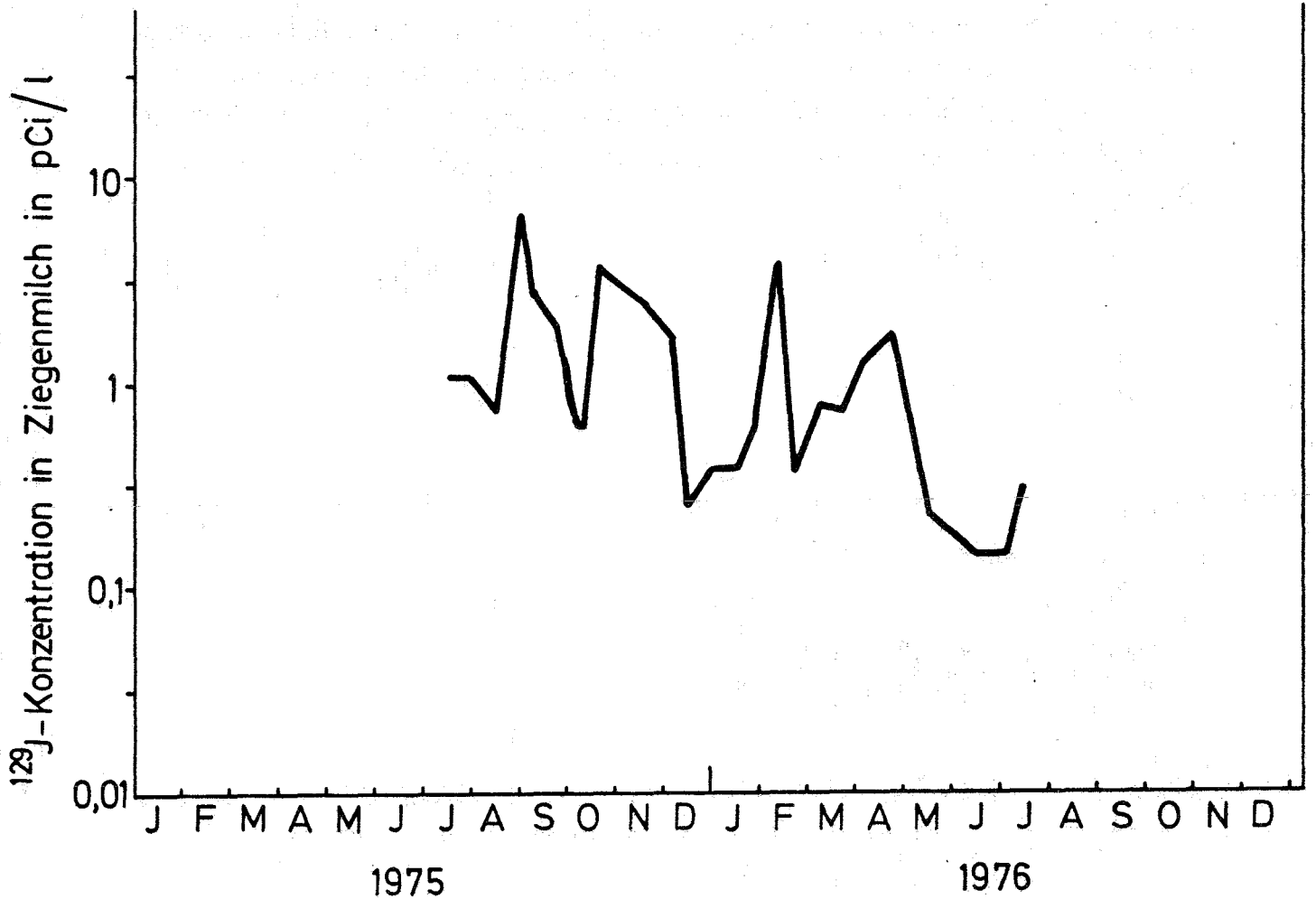
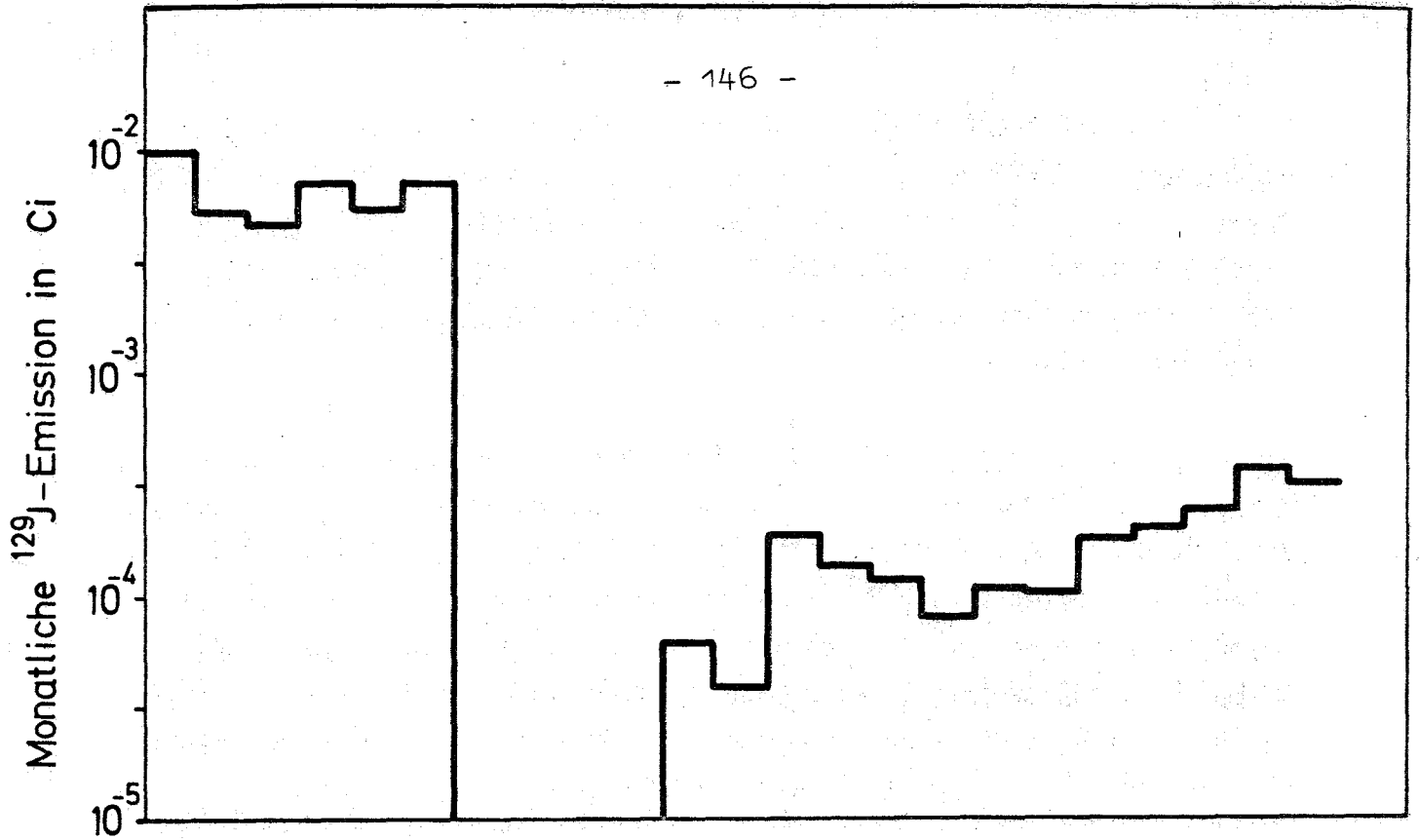


Abb.4132-1:  $^{129}\text{J}$ -Emissionen aus der WAK mit der Abluft und  $^{129}\text{J}$ -Konzentration in Ziegenmilch 1975 und 1976



4134 Langfristige radiologische Belastung durch eine Anhäufung kern-  
technischer Anlagen

(A. Bayer, B.G. Beier, R. Kalckbrenner, M. Schückler; INR)

Das Programm zur Berechnung der radiologischen Belastung der Bevölkerung über die verschiedenen Expositionspfade wurde fertiggestellt. Bei der Anwendung des Programms auf das Gebiet des Oberrheins wurden Ergebnisse erzielt. Infolge eingeschobener Arbeiten für die deutsche Risikostudie (4330) hat sich eine Verschiebung des Arbeitsplanes ergeben, so daß die Dokumentation im ersten Halbjahr 1977 erfolgen wird. Darüber wird dann im HJB 1977/1 unter 4330 berichtet. Dieses Vorhaben ist danach beendet. Über gelegentliche Arbeiten aus diesem Themenkreis wird künftig ebenfalls unter 4330 berichtet.

Allgemeines Interesse an den Methoden zur Berechnung der Bevölkerungsdosis durch kerntechnische Anlagen in der UdSSR hat zur Übersetzung und Bearbeitung zweier russischer Berichte geführt, in denen über Freisetzungsraten sowjetischer Anlagen /1/ und über die Bestrahlung der lokalen Bevölkerung als auch der Bevölkerung von entfernteren Gebieten /2/ berichtet wird.

Aus aktuellen Anlässen wurden zwei Berichte analysiert

- Zum GESMO-Report, einer US Environmental-Study zur Rezyklierung von Plutonium in LWR's, wurden einige allgemeine Feststellungen getroffen sowie einige speziellen Punkten ausführlicher kommentiert. Es wurden Vorschläge zur Durchführung einer ähnlichen europäischen Studie gemacht /3/.
- Die Einzelfaktoren, die in einer Empfehlung von Ingestionsdosisfaktoren zur Berechnung der Dosisbelastung durch Radiojod über den Expositionspfad Luft-Weide-Kuh-Milch-Kleinkind angewandt werden, wurden ausführlich kommentiert /4/.

Eine spezielle Untersuchung /5/ befaßte sich mit den Isotopen der schweren Elemente, wobei der besondere Schwerpunkt auf den Thorium-, Uran-, Neptunium-, Plutonium-, Americium- und Curium-Isotopen lag.

Das mit zunehmendem Abbrand sich ändernde Inventar dieser Isotope in den Cores der verschiedenen Reaktortypen (LWR, HTR und LMFBR) wurde für verschiedene Zusammensetzungen der Brennstoffbeladung in Abhängigkeit von der Zeit berechnet. Die Berechnungen wurden mithilfe des Computercodes "ORIGEN" durchgeführt. In den Abb. 4134-1 und 4134-2 sind als Beispiel die zeitabhängigen Inventare einiger wichtiger Isotope in einer Tonne LWR-Brennstoff über fünf Zyklen gezeigt. Bei diesem Beispiel wurde angenommen, daß das erzeugte Plutonium vollständig in LWR's rezykliert wird. In /5/ sind weitere Beispiele angeführt. Aus dieser Abbildung können weiterhin die bei verschiedenen Dekontaminationsfaktoren während der Wiederaufarbeitung pro Tonne zu erwartenden Freisetzungsraten abgelesen werden.

In Tab. 4134-1 sind die bei einer 1500t/a -Wiederaufarbeitungsanlage für LWR-Brennstoff unter der Annahme eines Dekontaminationsfaktors  $DF=10^9$  zu erwartenden Freisetzungsraten zusammengestellt. Die bei der Erstellung dieser Tabelle getroffenen Annahmen sind in der Fußnote erläutert.

/1/ N. G. Gusev et al.

Strahlensicherheit der Bevölkerung beim Betrieb von Kernkraftwerken in der UdSSR

Übersetzt von R. Corssen, bearbeitet von A. Bayer  
Bericht KFK-tr-502 (1976)

/2/ V. A. Belyaev

Zur Frage der Bevölkerungsdosis

Übersetzt von R. Corssen, bearbeitet von A. Bayer  
Bericht KFK-tr-484 (1976)

/3/ A. Bayer

Several Statements on the GESMO-Report and Recommendations for a European Version of a Similar Study

Parts Submitted to the ad-hoc Group on "Radiological Health Assessments and Radiological Hazards " of the European Commission.  
Okt. 1976 (unveröffentlicht)

/4/ A. Bayer

Einige Bemerkungen zum Bericht "Empfehlungen von Ingestionsdosisfaktoren zur Berechnung der Dosisbelastung durch Radiojod über des Expositionsweg Luft-Weide-Kuh-Milch-Kleinkind" von F. O. Hoffman, H. Bonka und K. -J. Vogt Den Mitgliedern des ad-hoc-Ausschusses "Jod-131 -Ingestionsdosisfaktor" vorgelegt.

Dez. 1976 (unveröffentlicht)

/5/ B.G. Beier

Erzeugung und Freisetzung von Aktiniden durch Kernkraftwerke und Wiederaufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung bis zum Jahr 2000.

(in Vorbereitung)

/6/ A. Bayer

Radiological Impact from Nuclear Facilities Under Normal Operation  
Lecture Notes

IAEA-Interregional Training Course, Karlsruhe 1976

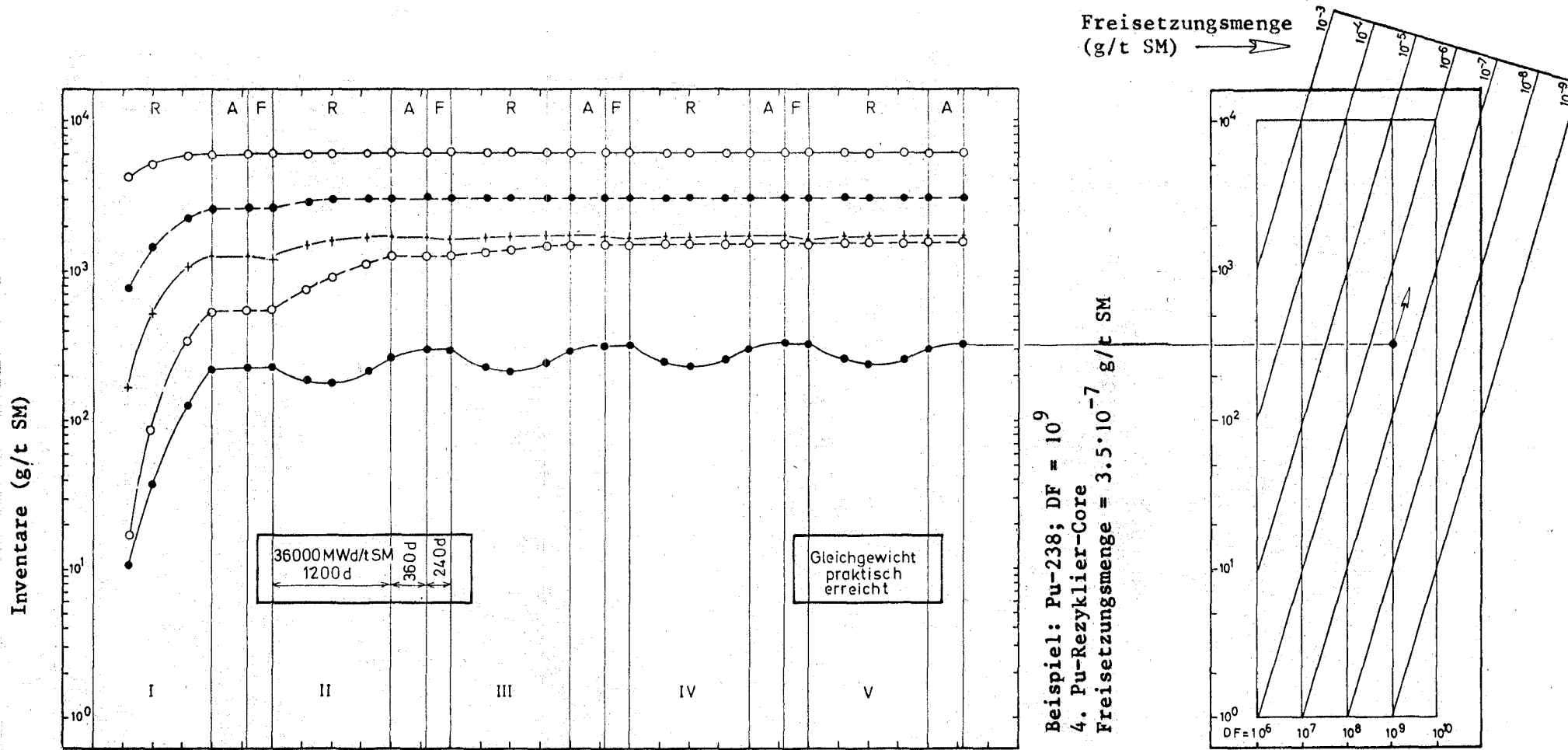


Abb.: 4134-1: Plutonium-Inventare in LWR-Brennstoff über mehrere Zyklen bei vollständiger Pu-Rezyklrierung (mittlerer Endabbrand jeweils 36000 MWd/t SM) und Nomogramm zur Ablesung von Freisetzungsmengen bei der Wiederaufarbeitung für verschiedene Dekontaminationsfaktoren (DF)

- |                            |                          |            |            |
|----------------------------|--------------------------|------------|------------|
| I: Uran-Core               | R: Reaktor               | ●—● Pu-238 | +—+ Pu-241 |
| II: 1. Pu-Rezyklrier-Core  | A: Abklingzeit           | ○—○ Pu-239 | ○—○ Pu-242 |
| III: 2. Pu-Rezyklrier-Core | F: Brennstofffabrikation | ●—● Pu-240 |            |
| IV: 3. Pu-Rezyklrier-Core  |                          |            |            |
| V: 4. Pu-Rezyklrier-Core   |                          |            |            |

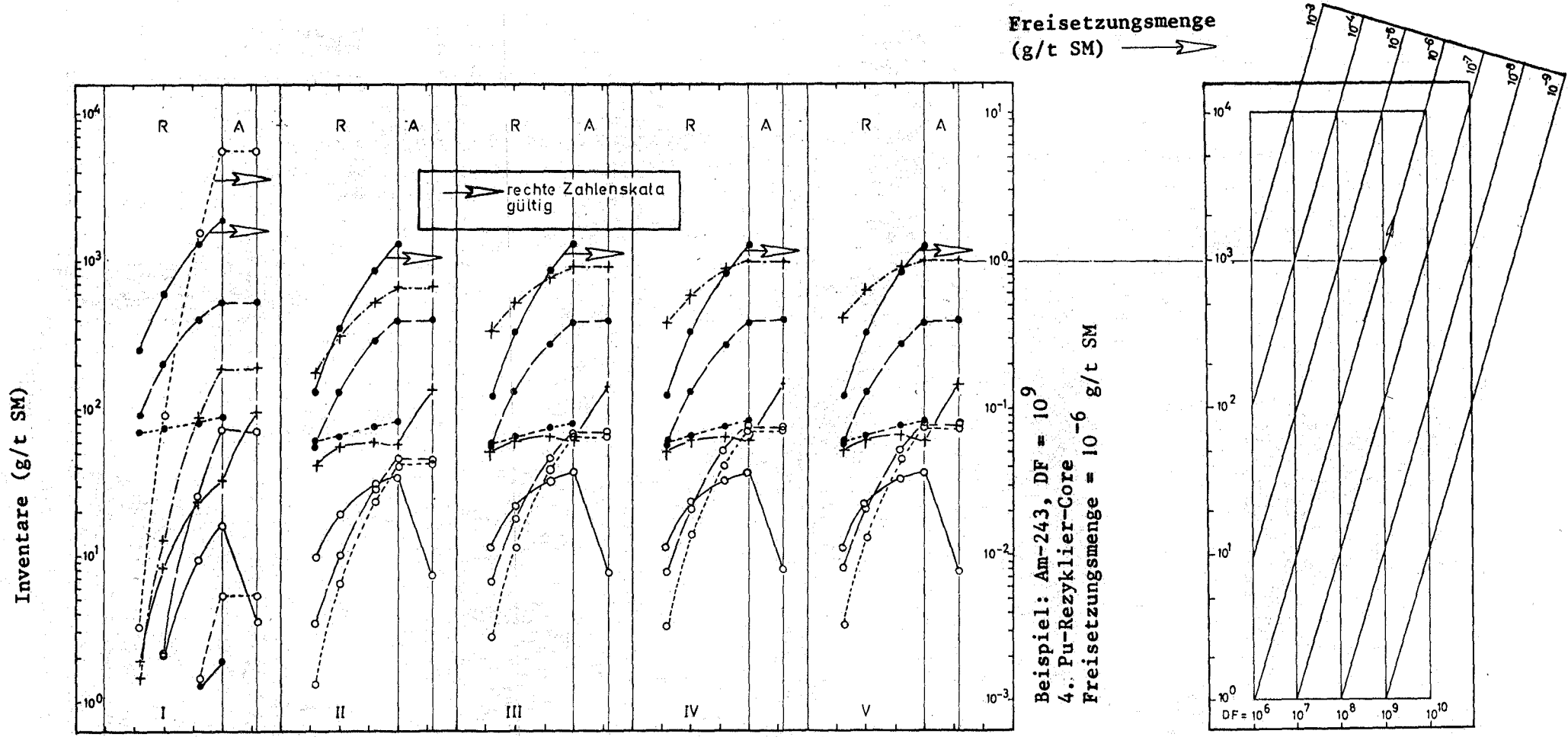


Abb. 4134-2: Np-, Am-, Cm-Inventare in LWR-Brennstoff über mehrere Zyklen bei vollständiger Pu-Rezyklrierung (mittlerer Endabbrand jeweils 36000 MWd/t SM) und Nomogramm zur Ablesung von Freisetzungsmengen bei der Wiederaufarbeitung für verschiedene Dekontaminationsfaktoren (DF)

- |                |              |                |                    |
|----------------|--------------|----------------|--------------------|
| ● — ● Np-237   | + — + Am-241 | ○ — ○ Cm-242   | I - V              |
| ● — ● Np-238   | + — + Am-243 | ○ — ○ Cm-244   | R, A, F            |
| ● - - ● Np-239 |              | ○ - - ○ Cm-245 | siehe Abb.: 4134-1 |

Tab. 4134-1 Aktivität von abgebranntem LWR-Brennstoff und Freisetzungsraten einer 1500 t/a Wiederaufarbeitungsanlage

Nuklid	Spez. Aktivität [Ci/g]	Aktivität pro Tonne Schwermetall nach 1 Jahr Abkühlzeit [Ci/t]					Freisetzungsraten einer 1500 to/a WAA. DF = 1,0 +9 [Ci/a] 1)
		Uran-Core (I)	1. Pu-Rezyklier- Core (II)	2. Pu-Rezyklier- Core (III)	3. Pu-Rezyklier- Core (IV)	4. P-Rezyklier- Core (V)	
U-234	6.20 -3	2.41 -2	3.87 -2	4.37 -2	4.57 -2	4.62 -2	4.32 -8
U-235	2.14 -6	1.12 -2	1.12 -2	1.16 -2	1.18 -2	1.18 -2	1.70 -8
U-236	6.33 -5	2.75 -1	2.17 -1	2.16 -1	2.18 -1	2.18 -1	3.93 -7
U-238	3.33 -7	3.14 -1	3.13 -1	3.13 -1	3.12 -1	3.12 -1	4.70 -7
Np-237	6.90 -4	3.86 -1	2.83 -1	2.77 -1	2.77 -1	2.77 -1	5.42 -7
Np-239	2.33 +5	3.53 +1	1.26 +2	1.72 +2	1.87 +2	1.91 +2	1.02 -4
Pu-238	1.68 +1	3.98 +3	4.97 +3	5.38 +3	5.52 +3	5.56 +3	6.47 -3
Pu-239	6.10 -2	3.27 +2	3.76 +2	3.76 +2	3.76 +2	3.76 +2	5.07 -4
Pu-240	2.27 -1	5.86 +2	6.68 +2	6.78 +2	6.79 +2	6.79 +2	9.10 -4
Pu-241	1.14 +2	1.32 +5	1.68 +5	1.71 +5	1.72 +5	1.72 +5	2.11 -1
Pu-242	3.90 -3	2.22 +0	4.83 +0	5.82 +0	6.12 +0	6.21 +0	4.61 -6
Am-241	3.24 +0	3.28 +2	4.68 +2	4.87 +2	4.89 +2	4.89 +2	5.45 -4
Am-243	1.85 -1	3.53 +1	1.26 +2	1.72 +2	1.87 +2	1.91 +2	1.02 -4
Cm-242	3.32 +3	1.12 +4	2.40 +4	2.57 +4	2.59 +4	2.59 +4	2.17 -2
Cm-244	8.20 +1	3.75 +3	3.54 +4	5.36 +4	5.96 +4	6.15 +4	2.38 -2
Cm-245	1.04 -1	9.50 -1	7.45 +0	1.16 +1	1.30 +1	1.35 +1	5.34 -6

Dekontaminationsfaktoren aus der Literatur:

DF=10<sup>9</sup>  
Environmental Analysis of the Uranium Cycle  
EPA-520/9-73-003 (1973)

DF=10<sup>8</sup>  
Environmental Statement, Barnwell Nuclear Fuel Plant  
Docket Nr. 50-332 (1974)

DF=2,5 · 10<sup>9</sup>  
Generic Environmental Statement  
Mixed Oxide Fuel - GESMO  
Wash-1327 (1974)

- 151 -

$$6.2 + 3 \approx 6.2 \cdot 10^3$$

1) Unter der Annahme, daß zukünftig 25 % des in LWRs anfallenden Plutoniums in diesen Reaktoren rezykliert wird, wurde von folgenden Anlieferungsmengen ausgegangen:

Brennstoff aus einem Core vom Typ:	(III) 2,5 % $\approx$ 37,5 t
(I) 77,5 % $\approx$ 1162,5 t	(IV) 2,5 % $\approx$ 37,5 t
(II) 2,5 % $\approx$ 37,5 t	(V) 15,0 % $\approx$ 225,0 t

4140      Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft  
kerntechnischer Anlagen  
(R.v.Ammon, G.Franz, E.Hauß, E.Hutter, G.Neffe,  
W.Pfeifer, K.Strauch, W.Weinländer, W.Wurster )

1. Tieftemperatur-Rektifikation mit CO<sub>2</sub>- und H<sub>2</sub>O-Entfernung

1.1 KRETA-Versuchsanlage

Die Anlage wurde in Betrieb genommen. Nach ersten Betriebsphasen mit N<sub>2</sub> bzw. Gemischen aus N<sub>2</sub>-Ar und N<sub>2</sub>-Kr als Prozeßgas wurde ein Teilabnahmeversuch durchgeführt, bei dem das definierte Gasgemisch

N<sub>2</sub>    :    50,0 Nm<sup>3</sup>/h  
Kr     :    7,3 NL/h  $\hat{=}$  146 ppm  
Xe     :    40,0 NL/h  $\hat{=}$  800 ppm

eingespeist und getrennt wurde.

Bei diesem ersten Versuch mit dem Dreikomponentengemisch konnte der geforderte Dekontaminationsfaktor (DF = 10<sup>3</sup>) für Krypton im Kopfprodukt der ersten Kolonne noch nicht erreicht werden (DF<sub>gemessen</sub> = 3,7 · 10<sup>2</sup>), da die Kolonne infolge zu geringen Kr-Inventars nicht kalt genug gefahren werden konnte, ohne daß die Gefahr des Xenon-Ausfrierens bestand. Die Tendenz zu besserer Kr-Rückhaltung konnte aber durch verstärkte Kr-Einspeisung gezeigt werden. Ein Langzeitversuch Anfang 1977 soll unter geänderten Bedingungen den Garantiewert erbringen.

Die Trennung des Sumpfprodukts der ersten Kolonne in angereichertes Krypton im Kopf und Xenon im Sumpf der zweiten Kolonne gelang, mit besseren Reinheiten als garantiert, einwandfrei.

Kopfprodukt:	Kr 99,9 Vol%,	Xe 100 vpb
Sumpfprodukt:	Kr 300 vpm,	Xe 99,99 Vol%

In einer weiteren Versuchsreihe wurden anlagenspezifische Daten bestimmt:

1. Druckverlust der trockenen und gefluteten Böden der Kolonne C-1 und Druckverlust der trockenen Füllkörper von Kolonne C-2 (Abb. 4140-1).
2. L/G-Verhältnisse bei verschiedenen Drücken im Abtriebs- sowie im Verstärkungsteil der ersten Kolonne.

Betriebsmedium war Stickstoff ohne Zugabe der Verunreinigungen.

Obwohl diese Messungen in einer technischen Anlage schwierig sind, konnte gute Übereinstimmung mit der Theorie festgestellt werden.

Für die zur Versuchsauswertung wesentliche Gasanalytik wurde ein Prozeßchromatograph beschafft, der im Frühjahr 1977 einsatzbereit sein wird.

## 1.2 ADAMO-Versuchsanlage

Die Adsorptionsanlage zur CO<sub>2</sub>- und H<sub>2</sub>O-Entfernung ist in der Fertigung und wird Anfang 1977 ausgeliefert. Je ein Silicagel- und ein Molekularsieb-Behälter werden so ausgerüstet, daß die Entleerung der Adsorberbetten mit  $\alpha$ -Sack-Technik demonstriert werden kann.

### 1.3 Berechnungen

Die entwickelten Rechenprogramme zur Kolonnenberechnung wurden ergänzt, um den Einfluß der durch Kr85 eingebrachten Zerfallswärme zu erfassen. Es wird gezeigt, daß das Krypton-Inventar in der ersten Rektifizierkolonne begrenzt bleiben muß, d.h. es muß eine Mindestmenge an Sumpfprodukt kontinuierlich oder diskontinuierlich abgezogen werden, um bei gegebenen Anlagendaten das Krypton im Sumpf halten zu können. Damit die Zerfallswärme nicht zu groß wird, sollte eine Sumpftemperatur von 170 K nicht überschritten werden, was im konkreten Fall einem Sumpfabzug von 2,14 Mol/h entspricht (Abb. 4140-2).

Um erste Anhaltswerte für eine Abschirmung der TTR-Anlage im Bereich des Kolonnen-Abtriebsteils zu haben, wurde eine Abschirmrechnung als Maximalbetrachtung durchgeführt. Danach ist eine Abschirmdicke von ca. 8 cm Blei um den Abtriebsteil erforderlich um die Strahlenbelastung an der Wand des Vakuums tankes auf 2,5 mrem/h zu begrenzen, d.h. den Raum dauernd begehbar zu halten.

## 2. Untersuchungen zur Vorreinigung

### 2.1 Reduktion von O<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> mit H<sub>2</sub>

#### 2.1.1 Thermische Stabilität eines Ru-Katalysators

Ein ausgewählter Ru-Katalysator (Fa. Doduco, spez. Oberfläche 9 m<sup>2</sup>/g) wurde einem Hochtemperatur-Test unterworfen, um seine Empfindlichkeit gegen kurzzeitige Überhitzung zu prüfen. Dazu wurde das Katalysatorbett jeweils 6 Std. auf einer Temperatur gehalten, die in Schritten von 50° von 600°C bis 1000°C erhöht wurde. Die Gaszusammensetzung betrug wie bei den früheren Versuchen 0,5 Vol.% NO, 0,75 Vol.% O<sub>2</sub>, 2,75 Vol.% H<sub>2</sub> in N<sub>2</sub>, die Katalysatorbelastung 5 Nm<sup>3</sup>/l.h. Vor dem Einstellen einer höheren Temperatur wurde der über Nacht erkaltete Katalysator langsam aufgeheizt, um die "Anspringtemperatur" der NO-Reduktion zu bestimmen, die als Maß für die Katalysator-Aktivität gewählt wurde.



Wie aus Tab.4140-1 zu sehen ist, läßt die Aktivität mit steigender Temperatur langsam nach, wie sich in der Erhöhung der "Anspringtemperatur" von 300° auf 420°C zeigt. Der NO-Umsatz beträgt aber in allen Fällen 100%, die NH<sub>3</sub>-Bildung ist erwartungsgemäß sehr gering, oberhalb 800°C unmeßbar klein.

### 2.1.2 Thermische Reduktion von O<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> mit H<sub>2</sub>

Bei der katalytischen Verfahrensvariante der O<sub>2</sub>-, NO<sub>x</sub>-Reduktion muß eine mögliche Verringerung der Standzeit des Katalysators infolge Vergiftung in Kauf genommen werden. Als Alternative kommt die direkte (thermische) Reduktion in Frage. In einem Versuchsprogramm sollte in Zusammenarbeit mit der Firma Decatox, Hanau geklärt werden, welche Temperaturen und Verweilzeiten dabei erforderlich sind. Die Versuche wurden an einem el. beheizten Röhrenofen im Labor der Fa. Hobeg, Hanau durchgeführt.

Die Eingangszusammensetzung des Gasgemisches betrug 0,963 Vol.% O<sub>2</sub>, 0,512 Vol.% NO<sub>2</sub> und 2,01 Vol.% H<sub>2</sub> in N<sub>2</sub>. Variiert wurden die Temperatur im Bereich von 600°C bis 1120°C, der Gasdurchsatz zwischen 52 und 200 Nl/h und der H<sub>2</sub>-Gehalt.

Der Temperatur-Einfluß ist in Abb. 4140-3 gezeigt, wie aus der H<sub>2</sub>-Abnahme zu erkennen ist, setzt die Reduktion von O<sub>2</sub> bei ca. 350°C ein, während sich NO ab ca. 250°C durch thermische Zersetzung aus NO<sub>2</sub> bildet. Die Reduktion von NO setzt bei 600°C ein, zunächst erkenntlich an der Bildung von NH<sub>3</sub>. Bei dieser Temperatur hat sich das gesamte NO<sub>2</sub> zu NO umgesetzt.

Da der H<sub>2</sub>-Gehalt zunächst unterstöchiometrisch war und bei 700°C verbraucht war, wurde zusätzlich 1 Nl/h bis zur stöchiometrischen Zusammensetzung zudosiert. Dadurch steigt der O<sub>2</sub>-Umsatz an und die NH<sub>3</sub>-Bildung wird erhöht. Bei weiterer Temperaturerhöhung steigt der Umsatz von NO zu N<sub>2</sub> fast/linear an und die NH<sub>3</sub>-Bildung geht zurück, während

die  $O_2$ -Reduktion bei  $800^\circ C$  nahezu quantitativ verläuft. Der bei  $1112^\circ C$  erreichte NO-Endwert beträgt 105 vpm.

Der Einfluß des  $H_2$ -Gehalts ist noch deutlicher in den Abb. 4140-3/4 zu sehen: bei  $916^\circ C$  und einem Gasdurchsatz von 100 NI/h erreicht der NO-Gehalt erst im stark überstöchiometrischen Bereich Endwerte um 250 vpm, während die  $NH_3$ -Bildung mit der  $H_2$ -Konzentration stark ansteigt (von 8 auf 190 vpm). Bei  $1114^\circ C$  und einem Gasdurchsatz von 52 NI/h wird ein quantitativer NO-Umsatz erreicht (Endwert 1 vpm) bei erwartungsgemäß niedrigerer  $NH_3$ -Bildung.

Der Einfluß der Verweilzeit ist schließlich aus Abb. 4140-5 zu erkennen: während bei  $1110^\circ C$  der  $O_2$ -Umsatz im gesamten Bereich quantitativ verläuft, ist die NO-Reduktion nur bei 52 NI/h vollständig und fällt über 98% auf 67% beim doppelten bzw. vierfachen Gasdurchsatz ab. Bei der rel. hohen Temperatur ist die  $NH_3$ -Bildung nicht stark von der Verweilzeit abhängig.

Als wesentlichstes Ergebnis dieser Versuche ist festzustellen, daß die thermische Reduktion von NO mit  $H_2$  bei  $1100^\circ C$  schon mit einem geringen  $H_2$ -Überschuß quantitativ ablaufen kann, daß aber die erforderliche Verweilzeit relativ lang ist. Sie ergibt sich aus den Versuchsbedingungen zu 7.9 sec. Bei einem Gasstrom von  $50 Nm^3/h$  wäre somit ein auf  $1100^\circ C$  beheiztes Reaktionsvolumen von 110 l erforderlich. Andernfalls müßte zur Verkleinerung dieses Reaktors die Temperatur erhöht werden.

#### Veröffentlichungen:

W.Pfeifer, G. Neffe

Berechnung von Rektifikationskolonnen zur Trennung polynärer Gemische. Unveröffentlichter Bericht

E.Hauß

Beitrag zur Berechnung von Trennsäulen. Mehrstoffgemische mit nuklearer Wärmequelle. Unveröffentlichter Bericht

Temperatur [°C]	Gesamt- Betriebsdauer [h]	Gaszusammensetzung hinter dem Katalysator [vpm]		"Anspring temperatur" [°C]
		NO	NH <sub>3</sub>	
600	6	<1	2	300
650	12	<1	2	300
700	18	<1	2	320
750	24	<1	1	330
800	30	<1	<1	-
850	36	<1	<1	400
900	42	<1	<1	420
950	48	<1	<1	400
1000	54	<1	<1	420

Tab. 4140-1:

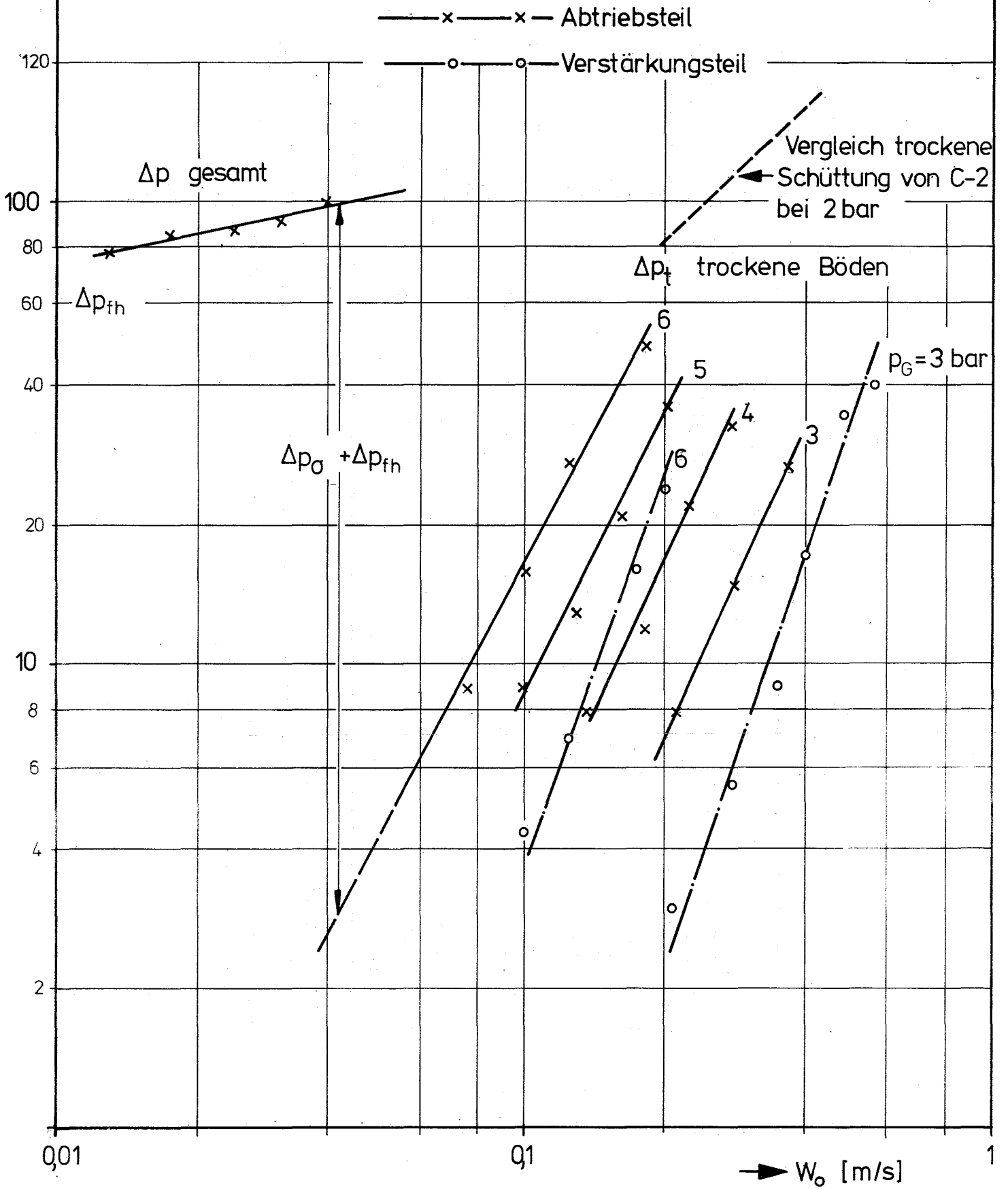
Temperatur-Stabilität eines Ru-Katalysators (Doduco, spez. Oberfläche 9 m<sup>2</sup>/g);

Gaszusammensetzung: 0.75 Vol.-% O<sub>2</sub>, 0.5 Vol.-% NO, 2.75 Vol.-% H<sub>2</sub> in N<sub>2</sub>;

Katalysator-Belastung: 5 Nm<sup>3</sup>/l·h

$\Delta p$  [m bar]

Abb. 4140-1 Druckverlust im Abtriebsteil der Kolonne C-1



P [Watt]

- 159 -

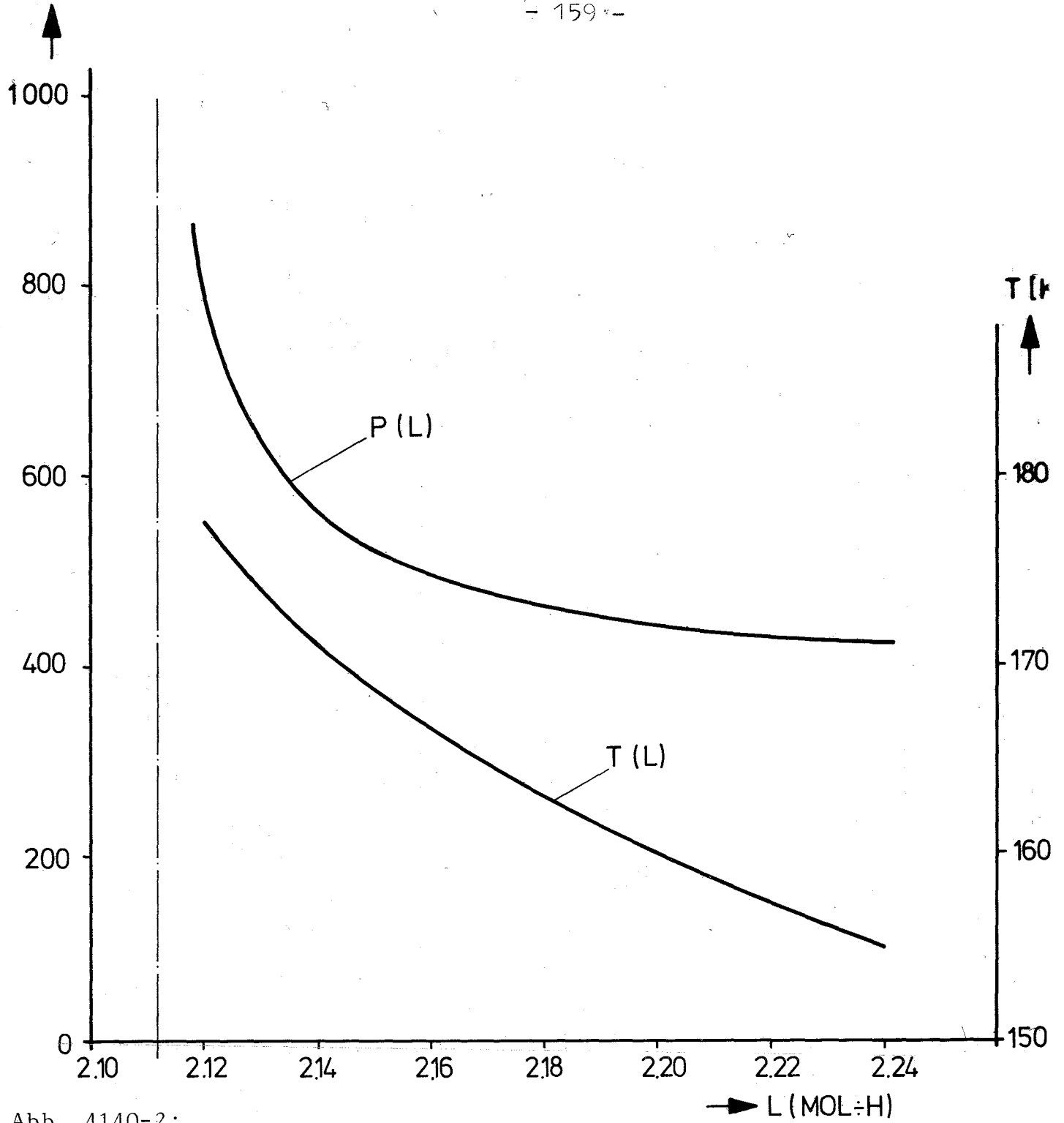


Abb. 4140-2:

Leistung aus dem Zerfall von KR-85 und Temperatur im Sumpf in Abhängigkeit vom Sumpfabzug L [N]

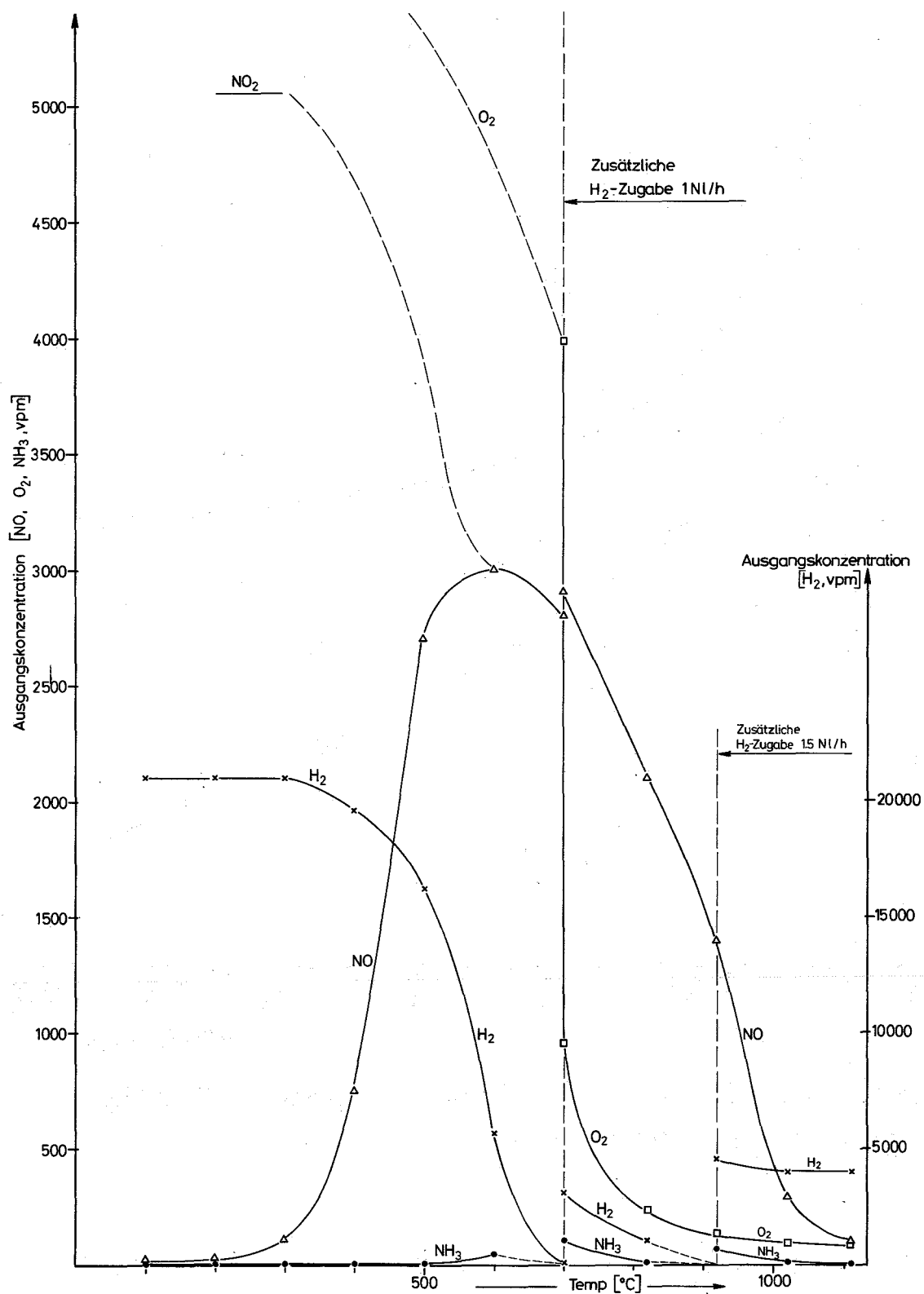


Abb. 4140-3: Die thermische Reduktion von O<sub>2</sub> und NO<sub>2</sub>/NO in Abhängigkeit von der Temperatur; Zusammensetzung des Gasgemisches hinter dem Reaktionsrohr; Gasdurchsatz: 100 NI/h

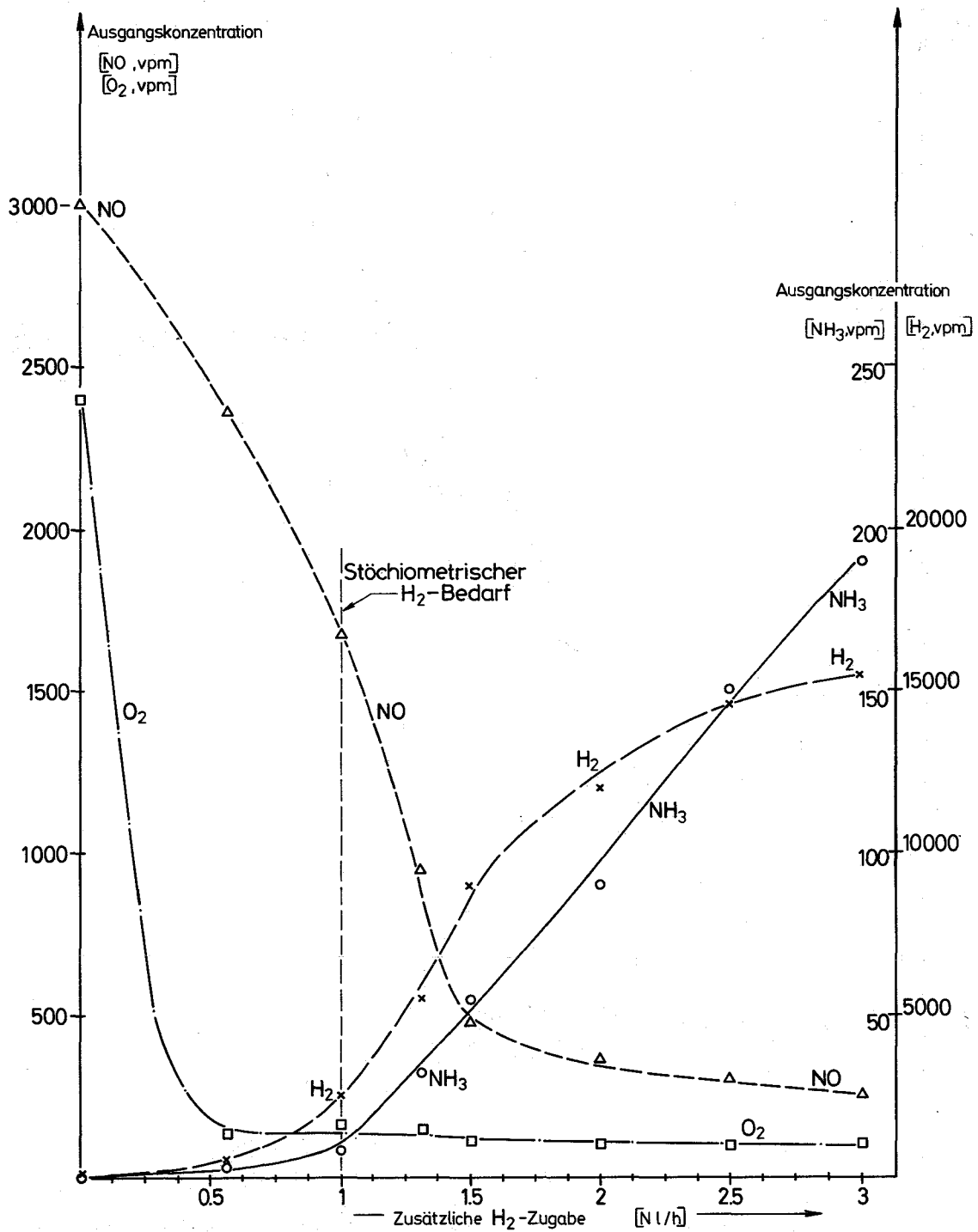


Abb. 4140-4:

Die thermische Reduktion von  $O_2$  und  $NO_2/NO$  in Abhängigkeit von der  $H_2$ -Konzentration; Abszisse:  $H_2$ -Zugabe in  $Nl/h$  zusätzlich zu der im vorgemischten Gas vorhandener  $H_2$ -Menge; Gasdurchsatz:  $100 Nl/h$ ; Temperatur:  $916 \pm 5^\circ C$ .

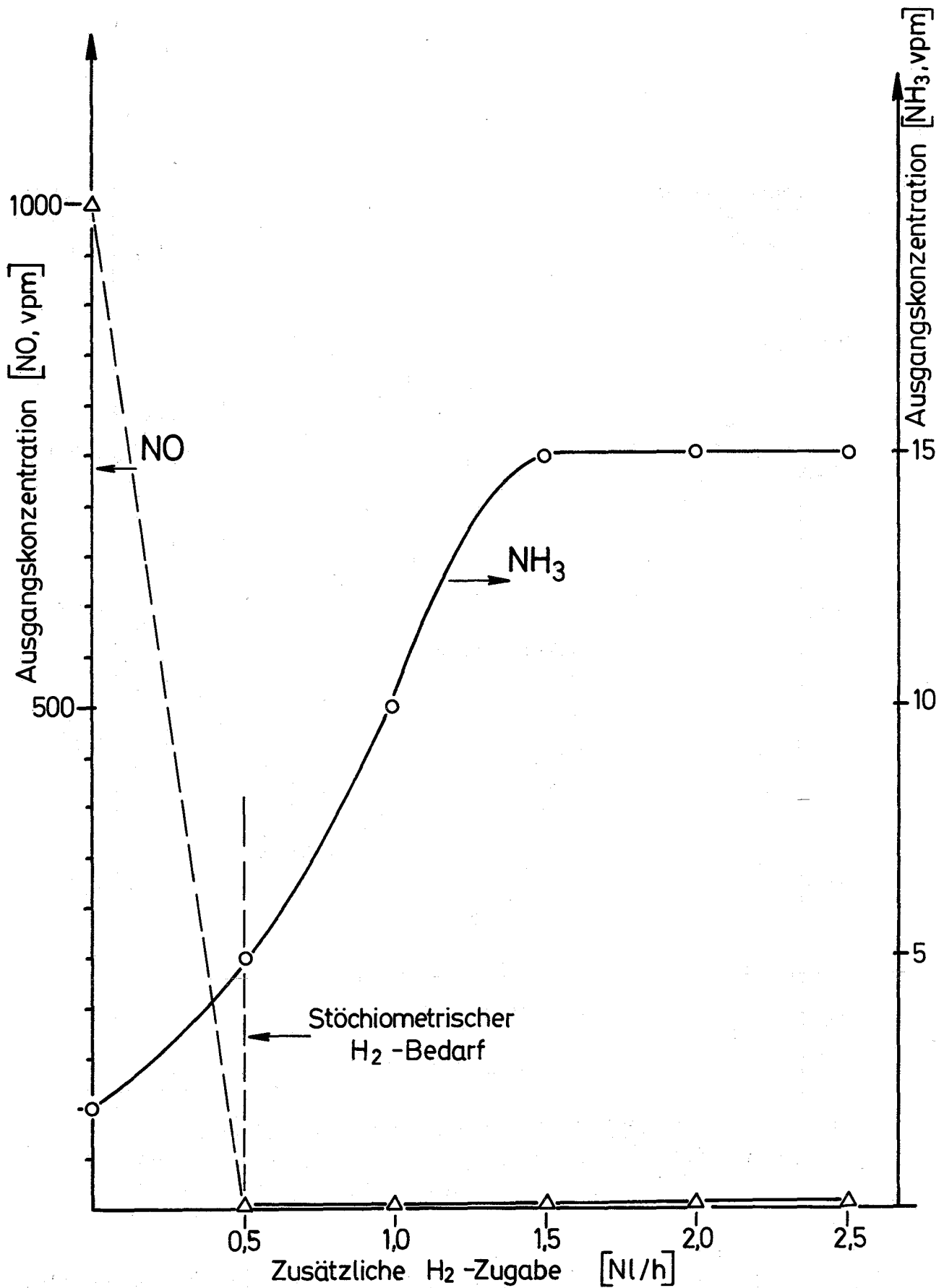


Abb. 4140-5: Die thermische Reduktion von O<sub>2</sub> und NO<sub>2</sub>/NO in Abhängigkeit von der H<sub>2</sub>-Konzentration; <sup>2</sup>Abszisse wie in Abb. 2; Gasdurchsatz: 52 Nl/h; Temperatur: 1114 ± 5°C.



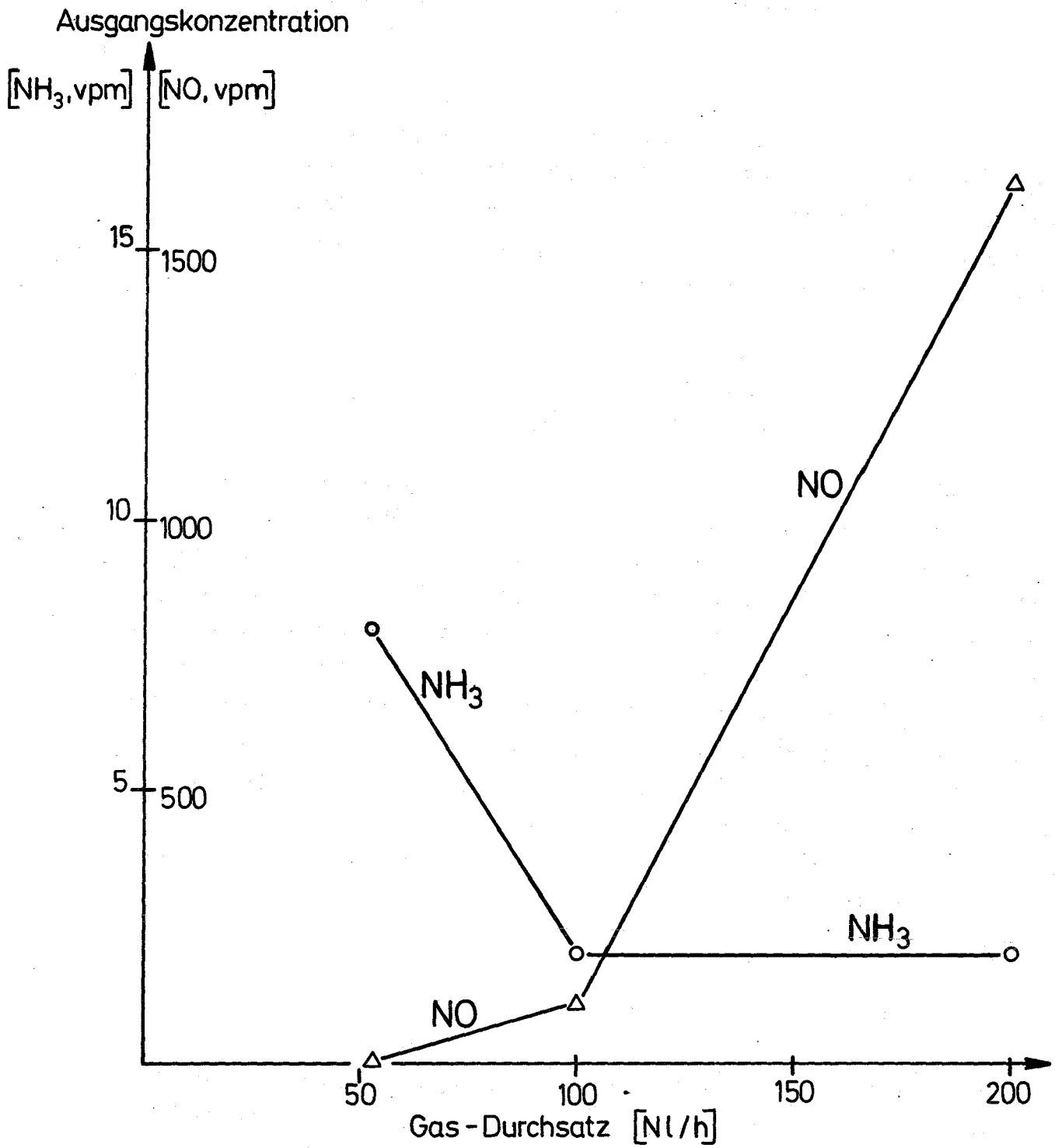


Abb. 4140-6: Die thermische Reduktion von O<sub>2</sub> und NO<sub>2</sub>/NO in Abhängigkeit vom Gasdurchsatz; Temperatur: 1110 ± 3°C.

### 3. Entwicklung eines Verfahrens zur Ozon-Beseitigung in der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage

(K. Günther, P. Schuster, H.-E. Noppel, R.D. Penzhorn, IRCH)

Am Zuge der Untersuchungen zur Beseitigung des u.U. im Sumpf einer Tieftemperatur-Rektifikationskolonne (TTR) durch Strahleneinwirkung auf Sauerstoff entstehenden Ozons, wurde zur Auswahl eines wirksamen Katalysators für die Zerstörung dieses instabilen Gases besonderen Wert auf den Einfluß folgender Parameter gelegt

Temperatur

Strömungsgeschwindigkeit

Vergiftung durch  $N_xO_y$ .

Eine eingehende Beschreibung der für diese Versuche eingesetzten Apparatur ist in einem früheren Bericht (KFK-2375, Nov. 1976) enthalten. Sie besteht aus einem Ozongenerator, der an einem von  $-80^{\circ}\text{C}$  bis  $200^{\circ}\text{C}$  temperierbaren Edelstahlreaktor angeschlossen ist, dessen Zu- und Abgas über einen 4-Weghahn direkt und so gut wie kontinuierlich mit einem Chemilumineszenzdetektor auf Ozon analysiert werden kann. Ozon kann mit dieser Anordnung in einem Konzentrationsbereich, der bei einigen ppm anfängt und bis zum Reingas reicht, bestimmt werden. Es ist zu vermerken, daß Edelstahl keinen katalytischen Effekt auf die Ozonzersetzung zeigt und daher  $\text{O}_3/\text{O}_2$ -Mischungen über mehrere Meter Rohrleitung unverändert geleitet werden können. Dies steht im Gegensatz zu der Beobachtung von Kashtanov u.a. (1), die besagt, daß Eisen die Ozonzersetzung beeinflusst.

#### Temperatur

Da Ozon bekanntlich thermisch instabil ist, wurde vor Beginn der eigentlichen katalytischen Versuche der homogene Zerfall des Ozons in dem Edelstahlreaktor untersucht (Abb. 4140-7) Die Ergebnisse zeigen, daß bei Temperaturen  $\geq 100^{\circ}\text{C}$  mit einer Ozonzersetzung zu rechnen ist. Um die quantitative Aussage der katalytischen Experimente nicht unnötig zu komplizieren wurde, im folgenden auf Ar-

beitstemperaturen  $>80^{\circ}\text{C}$  verzichtet.

Der Einfluß der Temperatur, insbesondere unter  $0^{\circ}\text{C}$ , auf den katalytischen Wirkungsgrad einer Reihe von Katalysatoren wurde bei konstantem  $\text{O}_3/\text{O}_2$ -Verhältnis und einer Gasströmung von 28 l/h untersucht (Abb.4140-8). Aus den Ergebnissen geht hervor, daß eine katalytische Ozonzerlegung bei niedrigen Temperaturen durchaus möglich ist. Ab einer gewissen Temperatur nimmt der Ozonzersetzungsgrad steil ab und wird bei weiterer Kühlung in den meisten Fällen unmeßbar klein. Im Gegensatz dazu nimmt die Wirksamkeit des Katalysators Pd-MKO-9 (0,5 % Pd auf  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) verhältnismäßig langsam mit der Temperatur ab und bleibt zumindest im Temperaturbereich von 200-230 K, bei etwa 10 % Ozonzersetzung unverändert. In der Tat ist die Tieftemperaturzerersetzung des Ozons, allerdings im flüssigen Zustand, durch Palladiumschwarz selbst bei  $-196^{\circ}\text{C}$  beobachtet worden (2). Die Leistung ( $1,2 \cdot 10^{-2}$  Moleküle/Atom s) ist zwar nicht hoch aber dennoch überraschend für einen katalytischen Tieftemperaturprozeß dieser Art. Wie für einen heterogen-katalytischen Prozeß zu erwarten ist, hängt die Wirksamkeit des Katalysators stark von dessen Beschaffenheit ab. So ist z.B. Pd in der Katalysatorform Pd-MKO-4 (Pd auf Asbest) bis zu tieferen Temperaturen hoch aktiv gegenüber Pd-RKO-11 (Pd-Schwamm) oder Pd-MKO-9 (Pd auf  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Andererseits behält nur der Katalysator Pd-MKO-9 bei Temperaturen unter  $-80^{\circ}\text{C}$  einen Teil seiner Aktivität. Offensichtlich tritt hier eine Änderung des Reaktionsmechanismus ein, der von einer Abnahme der scheinbaren Aktivierungsenergie von 5,4 (kcal/mol) bis zu einem Wert, der mit der eigenen Versuchsanordnung nicht mehr gemessen werden konnte, begleitet ist. Zum Vergleich sei auf den Wert von 0,5 kcal/mol, der von Emel'yanova u.a. (2) für die scheinbare Aktivierungsenergie der Zersetzung von flüssigem  $\text{O}_3$  an Platinschwarz bestimmt wurde, hingewiesen.

#### Einfluß der Strömungsgeschwindigkeit

Auf die hohe Ozonzerstörungswirksamkeit des Katalysators AG-RKO-1 wurde bereits in einem vorhergehenden Halbjahresbericht hingewiesen. Die Ozonzerstörung verläuft gleich gut an einem in einer Glasspirale aufgetragenen Ag-Film (Abb. 4140-9). Mit dieser Anordnung konnte das von dem Ozongenerator gelieferte Ozon über mehr als 8 Tage vollständig, ohne Druckgefälle und - trotz zunehmender, durch Schwarzwerden bemerkbarer Oxidation -

kontinuierlich zerstört werden. Neuere Untersuchungen über den Einfluß der  $O_2/O_3$ -Strömungsgeschwindigkeit auf den Ozonzersetzungsgrad ergaben, daß dieser nur unter einer gewissen Strömungsgeschwindigkeit - die durch die Katalysatormenge (wahrscheinlich Oberfläche) und die Katalysatortemperatur bedingt ist - hundertprozentig ist. Über dieser Grenze nimmt der Ozonzersetzungsgrad linear mit der Gasströmungsgeschwindigkeit ab. Die Steigungen der Geraden sind für jede Katalysatormenge, bei einer bestimmten Temperatur, charakteristisch und sind völlig unabhängig von der Katalysatorschüttungsdichte. Sie können dargestellt werden durch die Gleichung

$$f = \frac{K \cdot w}{m_{Ag}} \quad (I)$$

wobei

$f = O_3 / (O_3)_0$ , d.h. dem Verhältnis zwischen dem Ozon nach und vor dem Katalysator

$K$  = Proportionalitätskonstante in (g h/l)

$w$  = Gesamtdurchfluß in (l/h) und

$m_{Ag}$  = Gewicht in (g) des 0,06 mm  $\phi$  Silberdrahtes.

Somit lassen sich aus den Ergebnissen die in Tabelle I zusammengefaßt sind die Konstanten  $K(25^\circ C) = (2,6 \pm 1,3) \cdot 10^{-3} \text{ [g} \cdot \text{h/l]}$  und  $K(80^\circ C) = 1,8 \pm$

Tab. 4140-1: Zusammenstellung der Versuchsparameter zur Ozonzerstörung durch AG-RKO-1

$m_{Ag}$ (g)	$f/w$ (h/l)	Temp. $^\circ C$	$K$ (g·h/l)
0,72	$(5,9 \pm 1,3)10^{-3}$	25	$4,3 \cdot 10^{-3}$
1,00	$(1,9 \pm 1,5)10^{-3}$	25	$1,9 \cdot 10^{-3}$
1,08	$1,37 \cdot 10^{-3}$	25	$1,5 \cdot 10^{-3}$
1,13	$(3,20 \pm 0,7)10^{-3}$	25	$3,6 \cdot 10^{-3}$
8,4	$(0,20 \pm 0,1)10^{-3}$	25	$1,7 \cdot 10^{-3}$
0,72	$(3,0 \pm 1,5)10^{-3}$	80	$2,16 \cdot 10^{-3}$
1,55	$(0,46 \pm 0,06)10^{-3}$	80	$0,71 \cdot 10^{-3}$

1,1)  $10^{-3} \text{ [g} \cdot \text{h/l]}$  ermitteln.

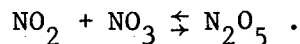
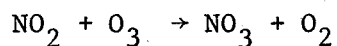
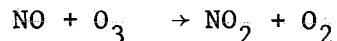
Gemäß Gleichung (I) erhält man, wenn  $f = 1$ , die minimal erforderliche

Ag-Menge die bei einer gewissen Temperatur und Strömungsgeschwindigkeit für eine komplette Ozonzerstörung erforderlich ist.

Der Einfluß der Gasstromgeschwindigkeit im Bereich zwischen 0,1 und 0,8 (m/s) auf die Wirksamkeit anderer Katalysatoren wurde ebenfalls untersucht. Der Gasstromgeschwindigkeitsbereich entspricht nicht dem vorgesehenen Verfahrenskonzept, doch lassen sich aus diesen Versuchen einige Katalysatoren ermitteln, die für die Verfahrensweise (wesentlich höhere Strömungsgeschwindigkeiten) in Frage kommen. Abb. 4140-10 zeigt die Abhängigkeit des Ozonzersetzungsgrades von der linearen  $O_2/O_3$ -Strömungsgeschwindigkeit über je 2 g der Katalysatoren Pt-MKO-8 (Pt auf  $Al_2O_3$ ), Pd-MKO-6 (Pd auf  $Al_2O_3$ ), Misch. Ox. MKO-7 (Metalloxide auf  $Al_2O_3$ ), Pd-MKO-9 und AG-RKO-1 bei einer Behältertemperatur von ca.  $80^\circ C$ . Man sieht aus der Abbildung, daß nur die Katalysatoren AG-RKO-1 und PD-MKO-9 im untersuchten Strömungsgeschwindigkeitsbereich von dieser unabhängig sind. Dementsprechend wird von diesen Katalysatoren der geringste Druckabfall erwartet. Entgegen den Erwartungen erwies sich der untersuchte platinhaltige Katalysator als besonders empfindlich gegenüber der  $O_3$ -Durchflußgeschwindigkeit.

### Stickoxide

Wird zur Ozonentfernung ein Teil des Sumpfes der ersten TTR-Kolonne über einen Katalysator geleitet, ist mit der Anwesenheit von geringen Mengen an radiolytisch erzeugten Stickoxiden zu rechnen. In der Gasphase liegen die Stickoxide wahrscheinlich in Form von  $N_2O_5$  vor. Dieser Vermutung liegen folgende Reaktionen, die alle sehr schnell verlaufen, zugrunde



In der Tat konnte weder NO noch  $NO_2$  in einem  $O_2/O_3$ -Gasstrom, dem vorher NO zugespeist wurde, mit einem für eine solche Bestimmung sehr empfindlichen (Absorptionsküvette 12 m optischen Weg) UV-Derivativ-Spektrometer nachgewiesen werden. Die direkte Erfassung des  $N_2O_5$  mit dem UV-Derivativ-Spektrometer ist nicht möglich.

Der Einfluß des  $N_xO_y$  auf den Zerfall von Ozon an dem Katalysator AG-RKO-1 wurde bei 20 und  $80^\circ C$  untersucht. Hierfür wurde  $N_xO_y$  durch Chemilumineszenz-

Titrierung des Ozons ermittelt. In Abb.4140-11 ist die Abhängigkeit des Ozonzersetzungsgrades (in %) von der Zeit dargestellt. Die Ergebnisse zeigen, daß bei 20°C, einem Sauerstoff-Durchsatz von 24 l/h, einer Ozonkonzentration von ca. 0,2 g/h und einem  $(O_3(NO)) / (O_3)_O = 0,18$  Verhältnis der Katalysator völlig inaktiviert wird. Der Katalysator erholt sich auch nicht, wenn die Zugabe von  $NO_2$  unterbrochen wird. Bei 80°C hingegen, wenn kein  $NO_2$  mehr zugespeist wird, erreicht der Katalysator nach 40 min seine volle Wirksamkeit zurück. Diese Ergebnisse deuten darauf hin, daß das  $NO_2$  den Katalysator vermutlich durch Adsorption vergiftet. Man überzeugt sich anhand der Abb.4140-12 sehr leicht, daß zur völligen Vergiftung dieses Katalysators, schon sehr geringe  $N_xO_y$ -Mengen ausreichen bei Temperaturen um 80°C ( $f = 0,1$ ). In der Abbildung ist f durch

$$f = \frac{(O_3(NO))}{(O_3(NO)) + (O_3)_O}$$

gegeben, wobei  $(O_3)_O$  die aus dem Ozongenerator kommende Ozonkonzentration ist und  $(O_3(NO))$  die Abnahme der Ozonkonzentration durch  $NO$ -Zugabe darstellt.

Zur Ermittlung des Einflusses von  $N_xO_y$  auf andere Katalysatoren, wurden einige Versuche über den Einfluß der linearen  $O_2/O_3$ -Strömungsgeschwindigkeit (m/s) auf den Ozonzersetzungsgrad (%), bei einem konstantem  $(O_3(NO)) / (O_3)_O = 0,10$  Verhältnis und 80°C, durchgeführt (Abb.4140-13). Der Ozonzersetzungsgrad nimmt bei allen Katalysatoren mit zunehmender  $O_2/O_3 / N_xO_y$ -Strömungsgeschwindigkeit z.T. recht beachtlich ab. Während jedoch der AG-RKO-1 Katalysator schon bei 0,5 m/s völlig inaktiv wird, ist bei den Pd-haltigen Katalysatoren eine wesentlich geringere Abnahme des Wirkungsgrades festzustellen.

#### Zusammenfassung

Unter der Voraussetzung, daß das in der Gasphase zu zerstörende Ozon nicht oder kaum durch Stickoxide begleitet ist, ist die Ozonzerlegung am besten mit dem Katalysator AG-RKO-1 zu bewerkstelligen. Aufgrund der günstigen Beschaffenheit dieses Katalysators, geschieht dies mit nur geringem Druckgefälle des Prozeßgases.

In Anwesenheit von Stickoxiden ist der PD-MKO-6 oder -9 zu empfehlen. Diese Katalysatoren haben den zusätzlichen Vorteil, ihre Wirksamkeit bezüglich der Ozonzerlegung bis zu sehr niedrigen Temperaturen beizubehalten.

Literatur

- 1) L.I. Kashtanov, N.P. Ivanova, V.P. Ryzhov  
Zhurnal prikladnoi khimii 9, 2176 (1936), KFK tr
  
- 2) G.I. Emel'yanova, V.P. Lebedev, N.I. Kobozer  
Vestnik Moskovskogo Universiteta, Ser. II, Khimiya, 6, 31 (1961)

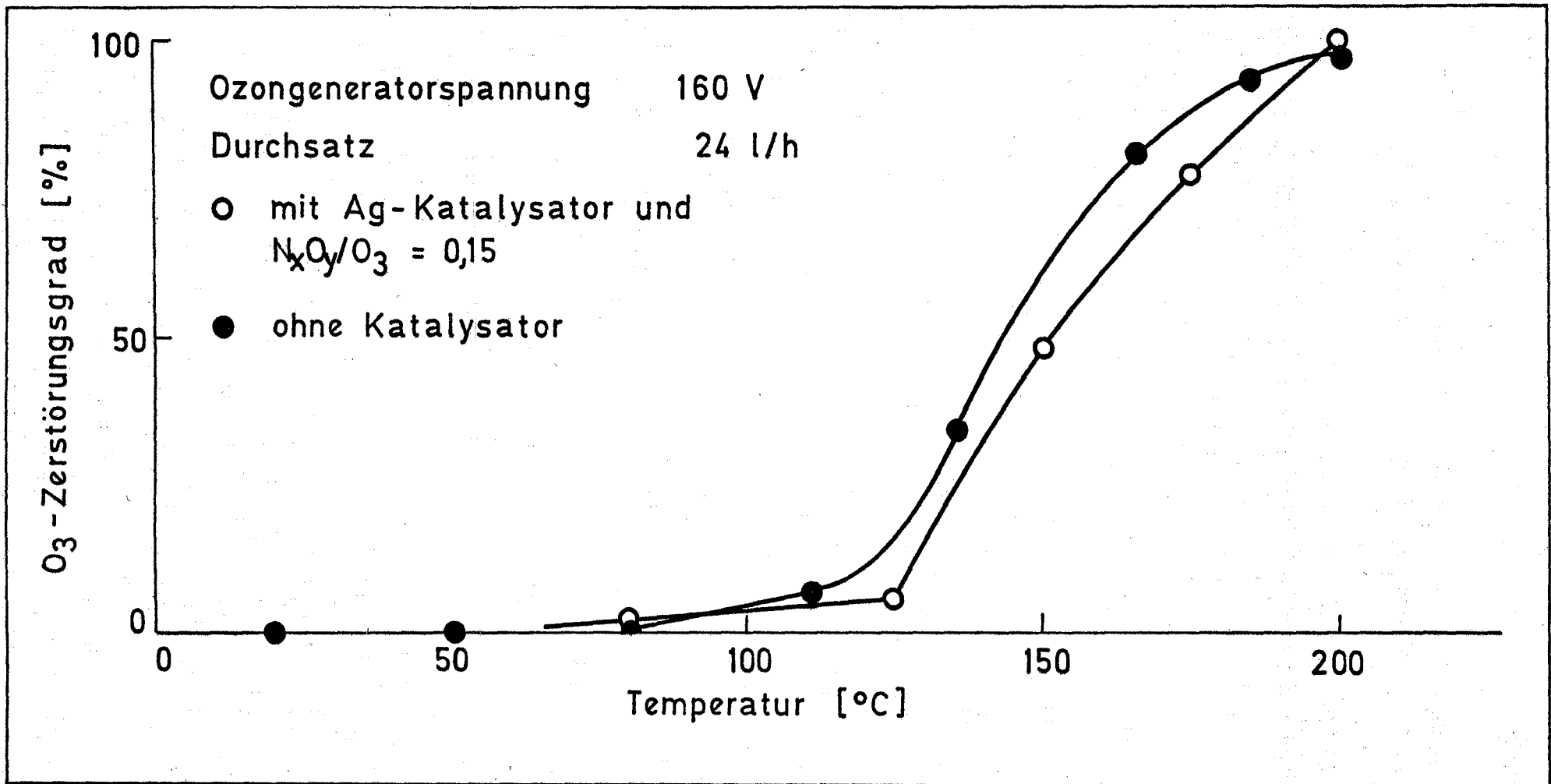


Abb. 4140-7: Einfluß der Temperatur auf die Ozonzerstörung mit und ohne Katalysator



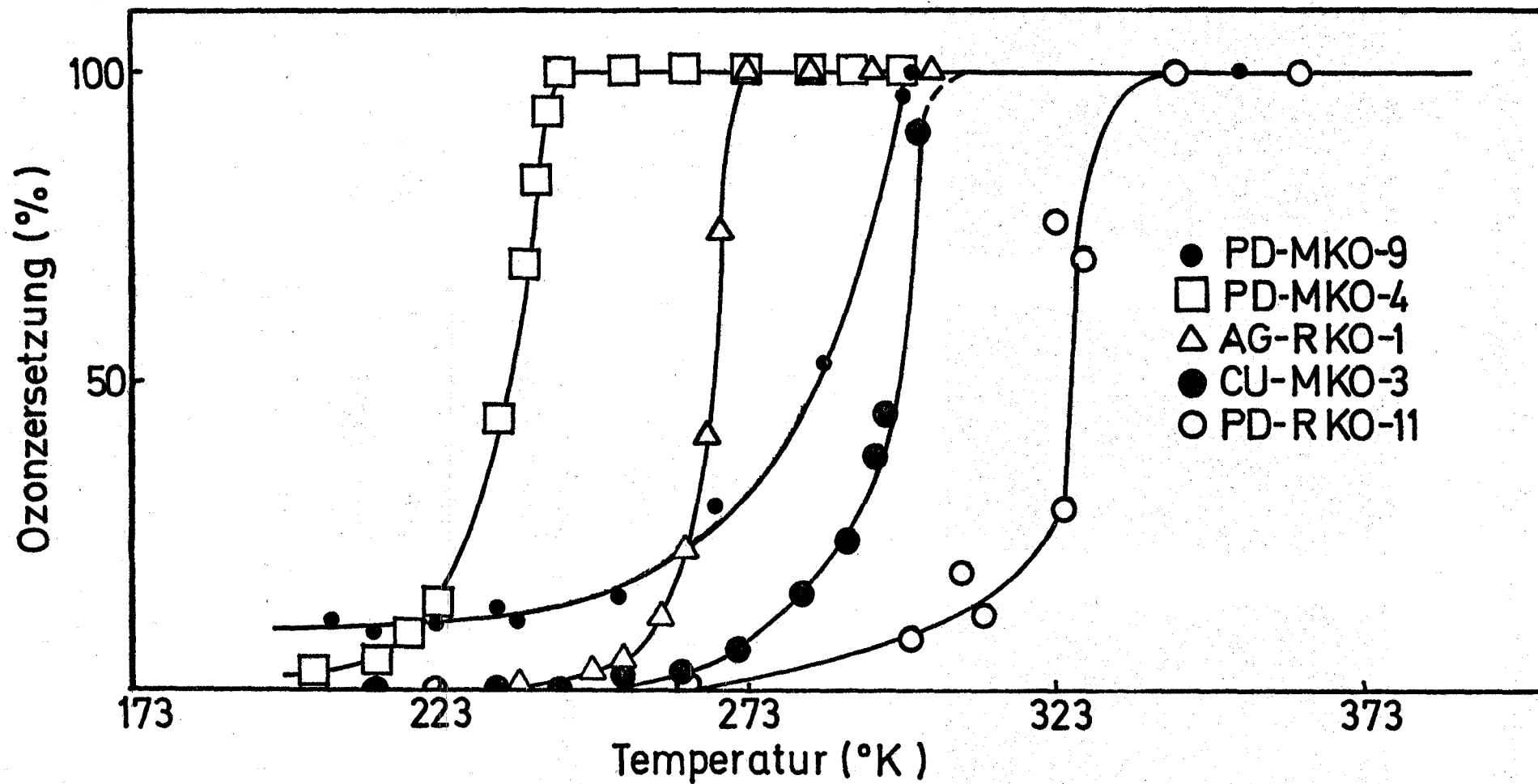
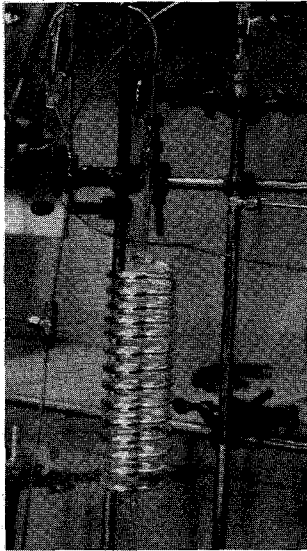


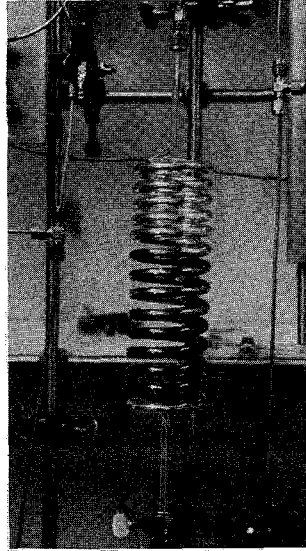
Abb. 4140-8: Abhängigkeit der Ozonersetzung von der Temperatur an verschiedenen Katalysatoren

Abb. 4140-9:

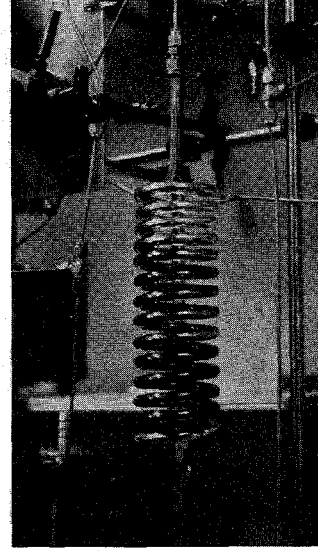
OZONZERSTÖRUNG AN EINER SILBERBESCHICHTETEN GLASSPIRALE



24 h



48 h



49 h

SPIRALE

LÄNGE 2,45 m  
AG-OBERFLÄCHE  $4,6 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2$   
INNEN Ø 6 mm

OZONGENERATOR

SPANNUNG 230 V  
 $\text{O}_2$ -DURCHSATZ 28 l/h

OZON

GESAMTE ZERSTÖRTE  
MENGE 13,9 g  
BETRIEBSZEIT 51 h

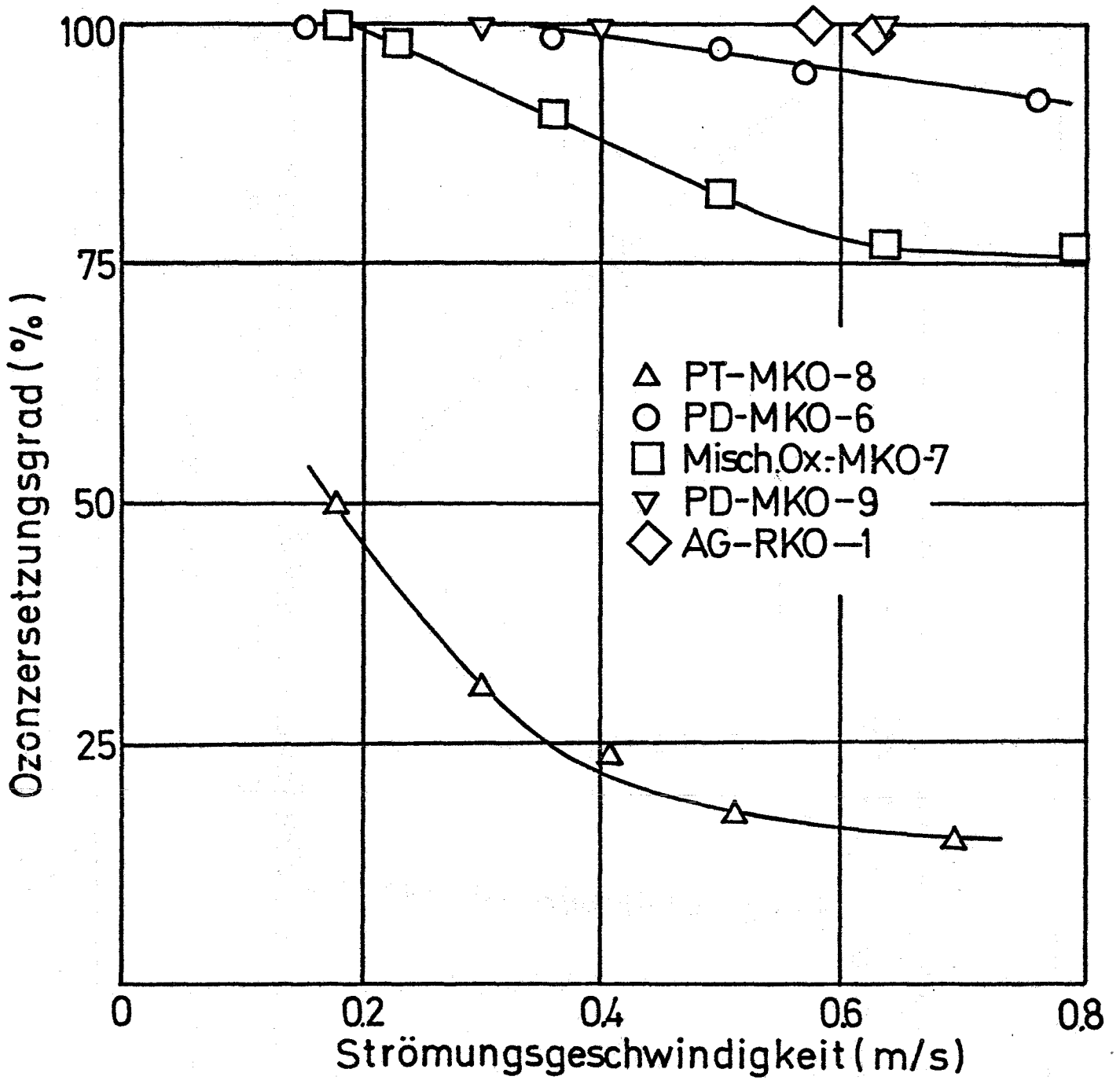


Abb. 4140-10: Aktivitätsabfall verschiedener Katalysatoren in Abhängigkeit von der linearen  $O_2/O_3$ -Strömungsgeschwindigkeit

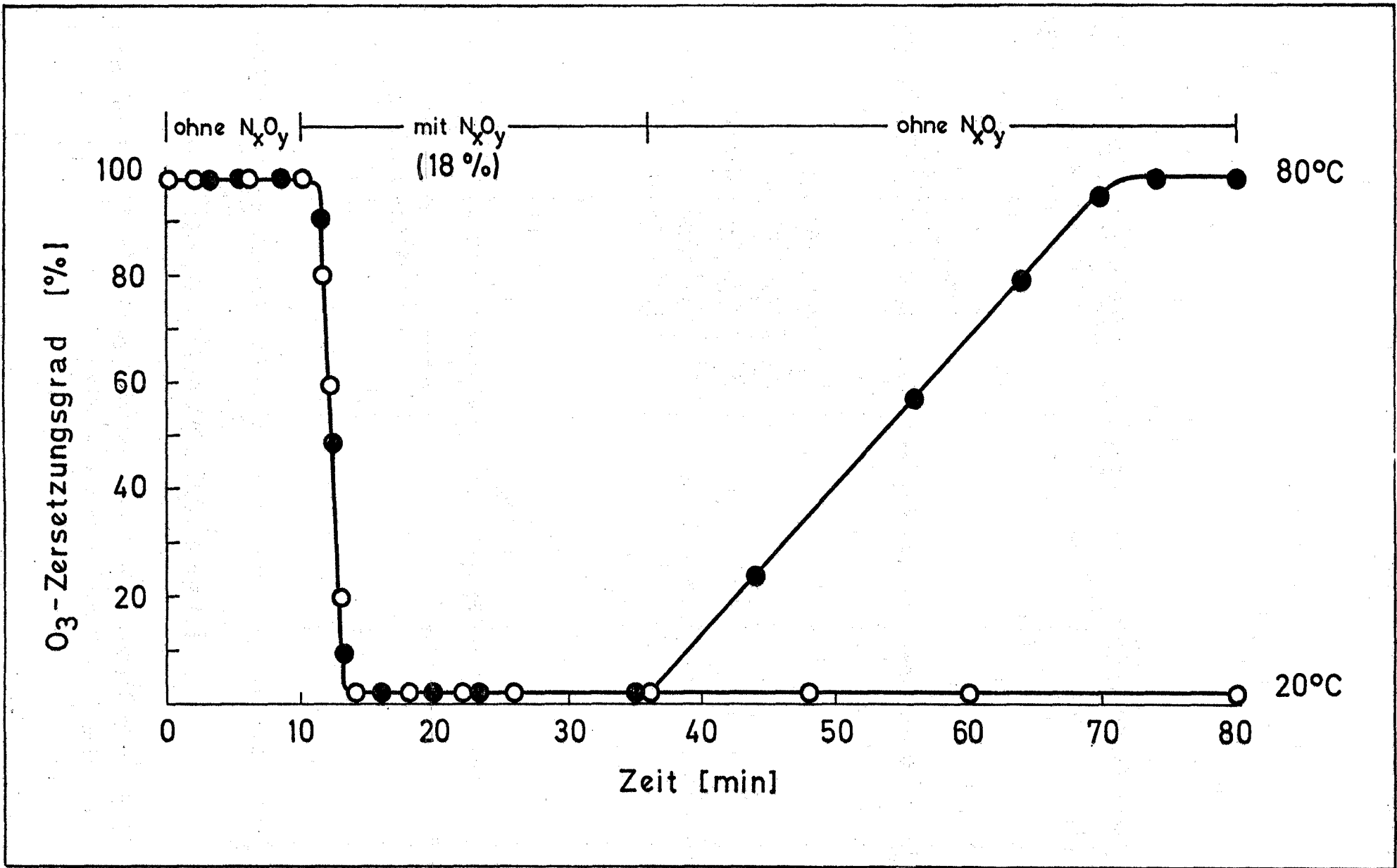


Abb. 4140-11: Vergiftung des AG-RKO-1-Katalysators durch N<sub>x</sub>O<sub>y</sub> bei 20 und 80°C

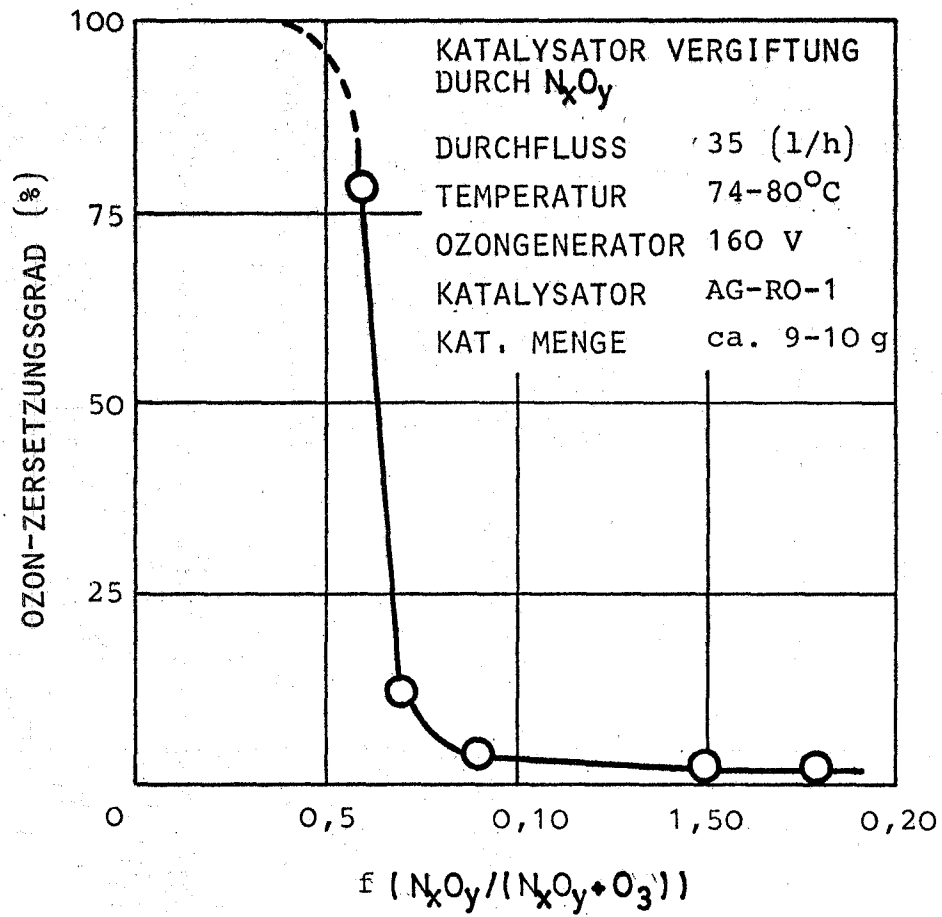


Abb. 4140-12: Katalysatorvergiftung durch  $N_xO_y$

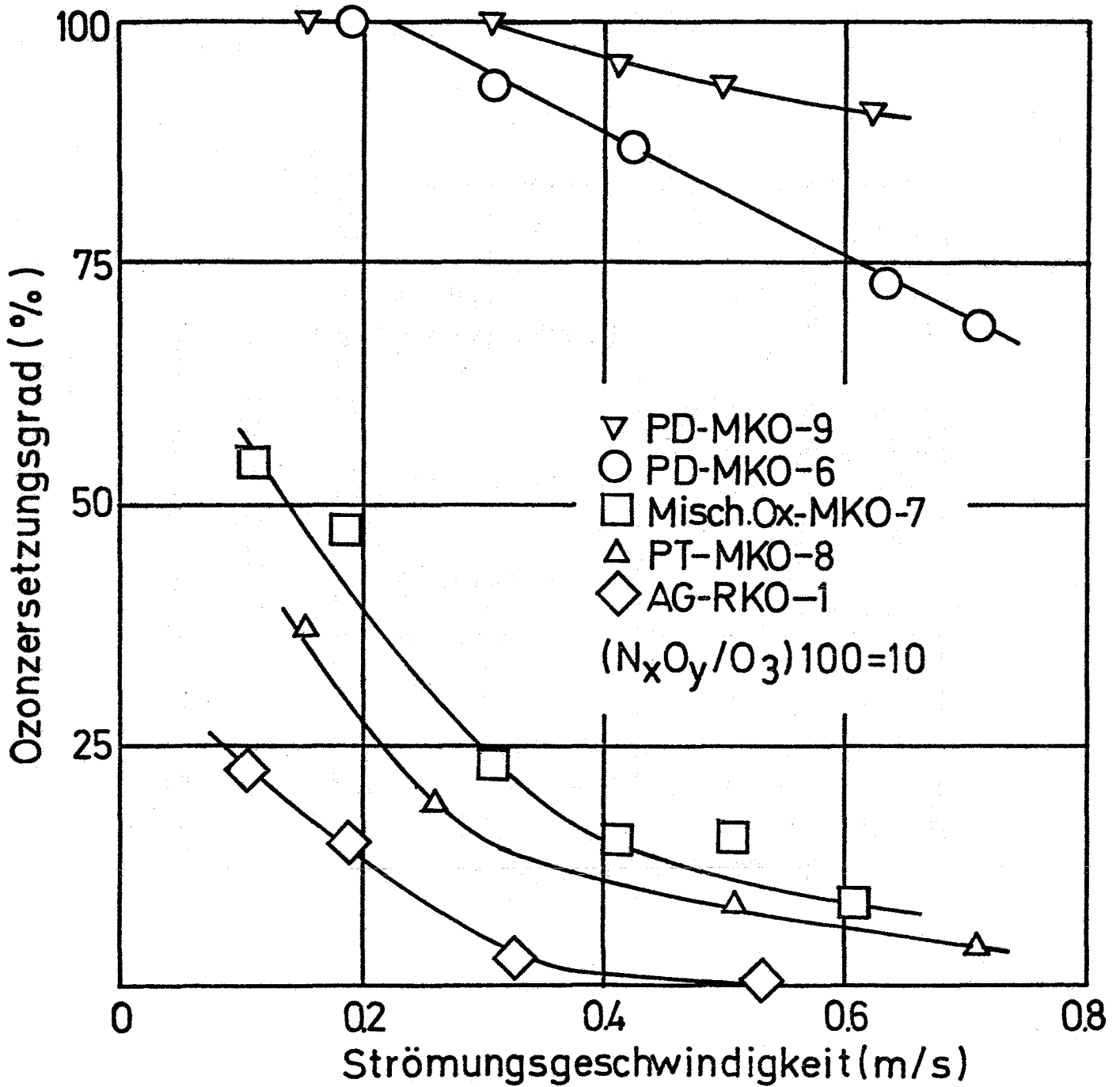


Abb. 4140-13: Abhängigkeit des Ozonersatzungsgrades an verschiedenen Katalysatoren von der  $O_2/O_3/N_xO_y$ -Strömungsgeschwindigkeit

4150 Abwärmeprobleme nuklearer Anlagen

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

Verbesserungen im Programm WALKÖRE

Die Rechnungen mit dem Programm WALKÖRE zeigten, daß vor allem bei den Fällen mit kleineren horizontalen Windgeschwindigkeiten die Konvergenz des Iterationsverfahrens verbessert werden mußte. Es wurde deshalb das "up-wind" Differenzenschema eingeführt. Das Modell für die induzierte Turbulenz, das in der bisherigen Version bereits ein Feld des Diffusionskoeffizienten zu berechnen gestattete, erwies sich als noch nicht flexibel genug. Besonders bei der Überlagerung der Fahnen aus Kühltürmen mit unterschiedlicher Leistung ergaben sich Schwierigkeiten. Da das Programm WALKÖRE aber besonders für Überlagerungsrechnungen eingesetzt werden soll, war es erforderlich, ein erheblich aufwendigeres, aber dafür allgemein gültigeres Modell in das Programm einzubauen. Bei diesem Modell wird von der turbulenten kinetischen Energie  $k$  und der Dissipationsrate  $\epsilon$  ausgegangen. Im Gegensatz zu dem bisherigen Ansatz macht die Berechnung des Diffusionskoeffizienten die Lösung zweier weiterer Differentialgleichungen notwendig.

$$u \frac{\partial k}{\partial x} + v \frac{\partial k}{\partial y} + w \frac{\partial k}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial y} K_{yh} \frac{\partial}{\partial y} k + \frac{\partial}{\partial z} K_{zh} \frac{\partial}{\partial z} k + a \frac{k^2}{\epsilon} P - \epsilon$$

$$u \frac{\partial}{\partial x} \epsilon + v \frac{\partial}{\partial y} \epsilon + w \frac{\partial}{\partial z} \epsilon = \frac{\partial}{\partial y} K_{ym} \frac{\partial}{\partial y} \epsilon + \frac{\partial}{\partial z} K_{zm} \frac{\partial}{\partial z} \epsilon + 2ca k P - 2 \frac{\epsilon^2}{k}$$

Es gelten die Abkürzungen:

$$P = 2 \left[ \left( \frac{\partial v}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial w}{\partial z} \right)^2 \right] + \left( \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right)^2 - \frac{K_h}{K_m} \frac{g}{T_u} \frac{\partial \theta}{\partial z}$$

$$K_{ym} = K_m + K_{yu}$$

$$K_{zm} = K_m + K_{zu}$$

$$K_{yh} = 1.3 K_{ym}$$

$$K_{zh} = 1.3 K_{zm}$$

$K_m = a \frac{k^2}{\epsilon}$  = induzierter Diffusionskoeffizient

$K_{yu}, K_{zu}$  : Diffusionskoeffizienten in der Umgebungsatmosphäre

$T_u$  : Umgebungstemperatur

$\theta$  : potentielle Temperatur in der Fahne

$x, y, z$  : kartesische Koordinaten

$u, v, w$  : Geschwindigkeiten in den entsprechenden Koordinatenrichtungen

$g$  : Erdbeschleunigung

$a, c$  : Konstanten

Die Zahl der zu lösenden Differentialgleichungen erhöht sich damit auf sieben.

Durch die Verwendung dieses Modells steigt die Rechenzeit um etwa 25 %. Dieser zusätzliche Rechenaufwand beruht nicht nur auf der größeren Zahl der Differentialgleichungen sondern auch auf einer Erhöhung der Rechenschritte. Wegen des steilen Anstiegs der Parameter  $k$  und  $\epsilon$  in Transportrichtung mußte die Schrittweite bis zum Erreichen des Maximums dieser Parameter gegenüber früheren Rechnungen wesentlich verkleinert werden.

#### Ergebnisse der durchgeführten Rechnungen

Die bei den Rechnungen mit komplexen meteorologischen Bedingungen erzielten Ergebnisse machen den Einfluß der Schichtung von Temperatur und Feuchte auf die Form der Kühlturm-fahne ganz deutlich. In Abbildung 4152-1 ist das Beispiel einer sichtbaren Fahne dargestellt, die sich aufgrund des Feuchteunterschiedes in der bis in 250 m Höhe reichenden Bodeninversion und der darüber liegenden Schicht in zwei Äste aufspaltet. Die zugrundliegende meteorologische Situation ist allerdings ein selten auftretender Fall. Der Einfluß der Tem-



peraturschichtung macht sich besonders auffällig in der Form des Kühlturm-fahnenquerschnitts bemerkbar. Die Verteilung der Feuchteerhöhung gegenüber der Umgebung in einem derartigen Querschnitt zeigt Abbildung 4152-2 für den Fall einer bis 400 m hoch reichenden Bodeninversion. Der durch die Inversion dringende Teil der Fahne hat ein pilzförmiges Aussehen. Unterhalb der Inversionsobergrenze ist eine ausgeprägte Verbreiterung der Fahne festzustellen. Die Änderung der Temperaturschichtung führt in diesem Fall zu einer Fahne mit zwei unterschiedlichen Teilbereichen. Die angeführten Beispiele machen deutlich, daß besonders bei derartigen komplexen meteorologischen Umgebungsberechnungen die Ergebnisse von ein- und dreidimensionalen Modellen wesentlich voneinander abweichen.

Eine typische Verteilung des Diffusionskoeffizienten, die mit dem neuen Modell errechnet wurde, ist in Abbildung 4152-3 dargestellt. Diese Verteilung hat Ähnlichkeit mit derjenigen der Feuchte. Die Abhängigkeit des induzierten Diffusionskoeffizienten mit der Entfernung von der Quelle ist allerdings wesentlich anders als bei der Feuchteüberhöhung.

Der Diffusionskoeffizient steigt mit der Entfernung von der Quelle stark an und erreicht ein Maximum in etwa 100 m. Der Abfall nach dem Maximum verläuft dann sehr viel flacher. Das absolute Maximum kann den (5-10)-fachen Wert des Diffusionskoeffizienten in der Umgebung erreichen.

#### Vergleich mit Messungen

Der vorgesehene quantitative Vergleich der Rechenergebnisse mit den Messungen der DFVLR in den Kühlturm-fahnen der Kraftwerke Neurath und Meppen konnte innerhalb dieses Projekts nicht mehr durchgeführt werden, da die Daten erst seit Mitte Dezember 1976 zur Verfügung stehen. Es ist jedoch vorgesehen, diesen Vergleich im Rahmen des Oberrhein Projekts des Umweltbundesamtes im nächsten Jahr nachzuholen. Außerdem soll das Programm WALKÖRE in diesem Projekt zu Untersuchungen über die Auswirkungen von Überlagerungen von Kühlturm-fahnen eingesetzt werden.

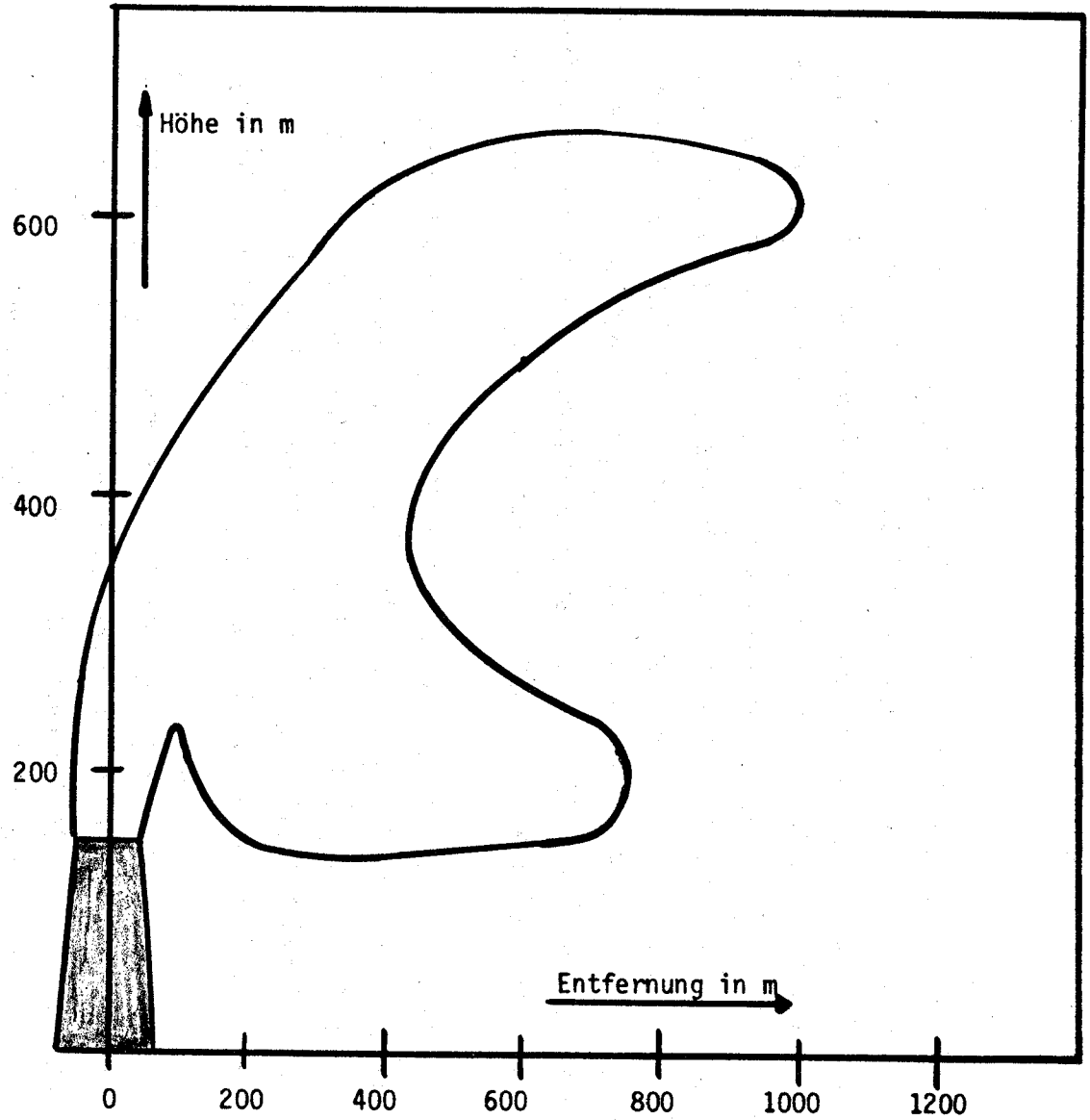
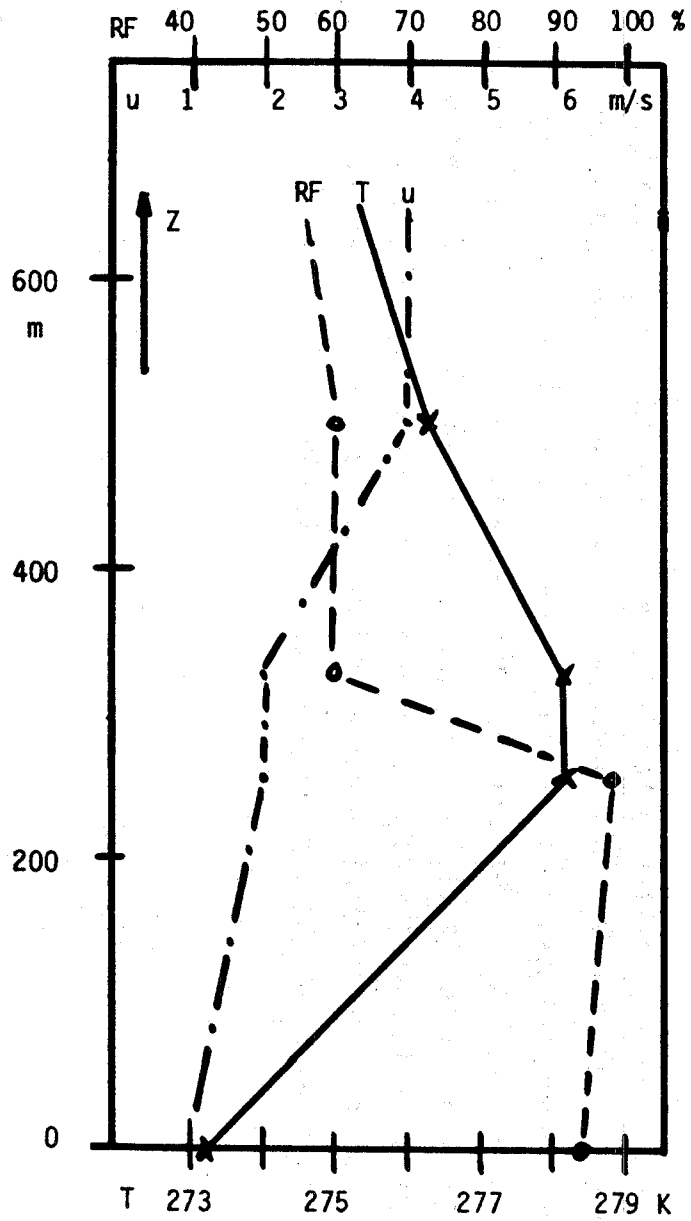


ABB. 4152-1: METEOROLOGISCHE UMGEBUNGSBEDINGUNGEN UND SICHTBARE FAHNE EINES  $2500 \text{ MW}_{th}$  KÜHLTURMS.

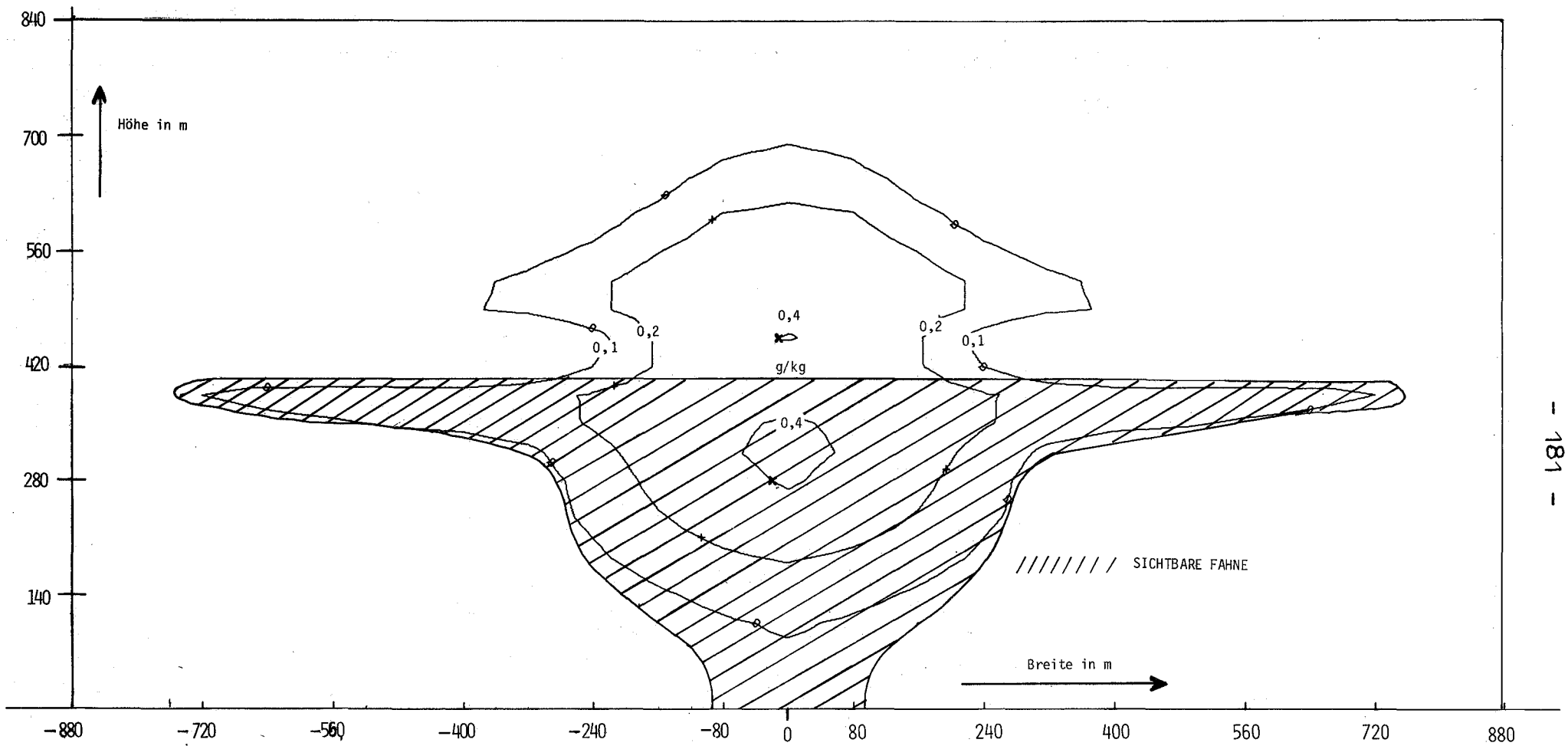


ABB. 4152-2: SPEZIFISCHE FEUCHTEÜBERHÖHUNG IN EINEM QUERSCHNITT DURCH EINE KÜHLTURMFAHNE IN 3 Km ENTFERNUNG VOM KÜHLTURM.

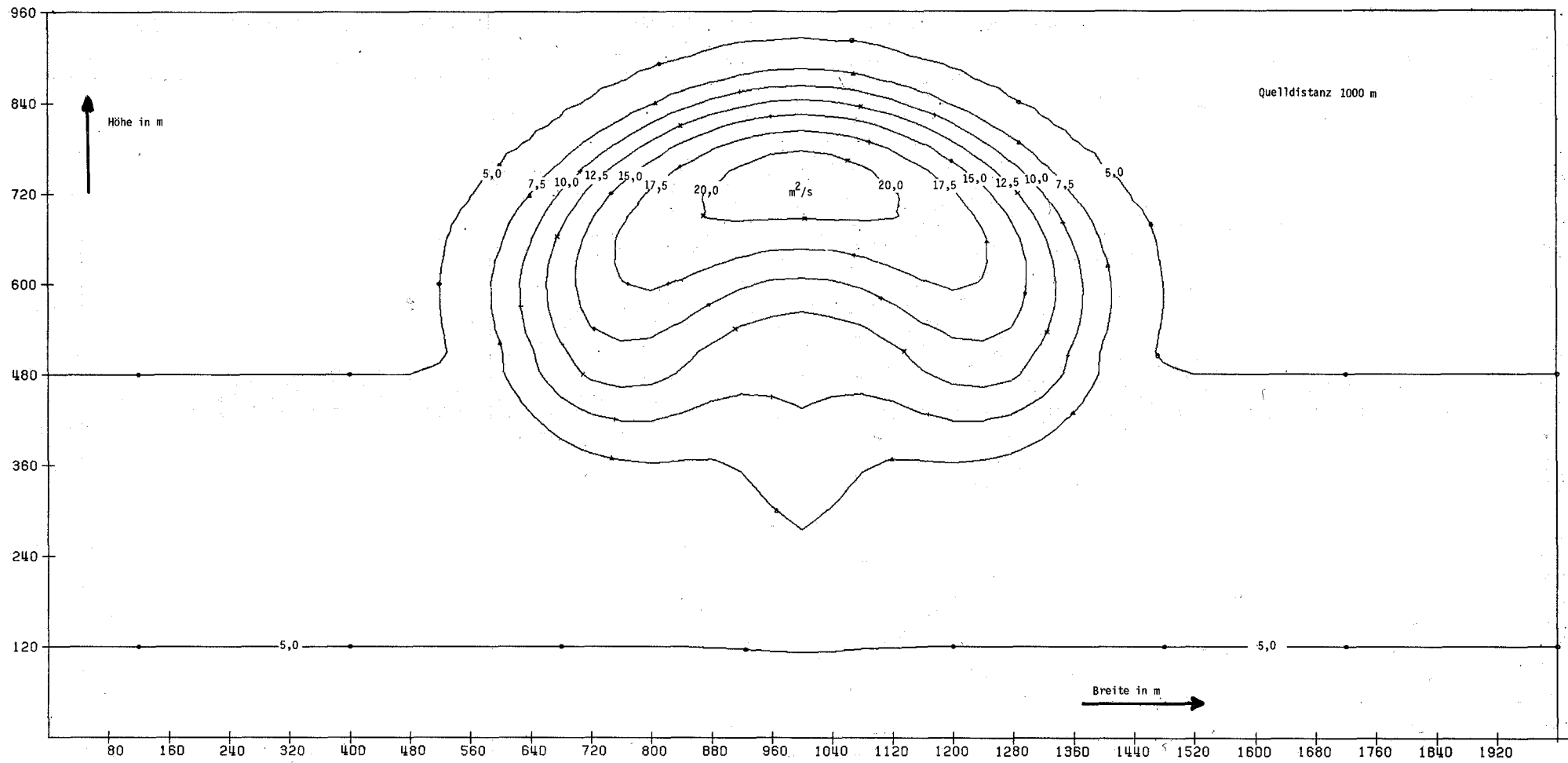


ABB. 4152-3: VERTEILUNG DES DIFFUSIONSKOEFFIZIENTEN

- 4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN
- 4210 Untersuchungen von LWR-Druckabbausystemen, Entwicklung und Anwendung von Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren
- 4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

1. Marviken-Blowdown-Experiment; experimentelle Arbeiten  
(D.Barschdorf<sup>x</sup>, E.Erb, M.Neumann<sup>x</sup>, P.Philipp, E.Wolf)

Mit der nach Marviken gelieferten Infrarot-Meßeinrichtung wurden bei weiteren fünf Blowdown-Versuchen zuverlässige Messungen durchgeführt. Bei den letzten drei Versuchen betrug die Meßlänge 300 mm. Das Marviken II-Versuchsprogramm ist damit beendet. Die mit der Infrarot-Meßtechnik unter den für eine Großanlage typischen Bedingungen gemachten Erfahrungen sind insgesamt positiv.

Die Meßergebnisse der Blowdown-Versuche Nr. 18-21 wurden am ITS ausgewertet, die Auswertealgorithmen dem Projekt übergeben und Einzelheiten der Auswertung besprochen. Das Projekt übernahm die Auswertung ab Blowdown 19. Die Werte sind in den Marviken-Berichten dokumentiert. Ein quantitativer Vergleich mit den durch andere Meßverfahren ermittelten, zum Teil integralen Werten wird zur Zeit durchgeführt.

2. Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim  
(M.Cramer, G.Lang, H.Schnauder)

Im Berichtszeitraum wurden keine weiteren Messungen durchgeführt. Die Aufbereitung aller bisher gemessenen Daten wurde abgeschlossen und die Ergebnisse wurden dem TÜV Baden zugestellt.

3. Berechnung dynamischer Containment-Beanspruchungen  
(B.Göller)

Die Arbeiten konzentrierten sich auf die äußere Wand der Brunsbüttel-Kondensationskammer, die mit den Randbedingungen (näherungsweise) frei - aufliegend am Boden - bzw. Dachanschluß untersucht wurde. Das Verhalten dieser Kugelschale wird mit der Flügge'schen Schalentheorie beschrieben, die

---

<sup>x</sup> Dr.Ing.Barschdorf ist wissenschaftlicher Rat und Professor und M.Neumann wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Thermische Strömungsmaschinen (ITS) der Universität Karlsruhe (TH)

um die Trägheiten in radialer und tangentialer Richtung erweitert wurde. Bild 4211-1 zeigt die berechneten Eigenfrequenzen abhängig von der Eigenschwingungsform (Umfangsordnung  $M$ =Zahl der Cosinus-Wellen am Umfang, Meridionale Ordnung  $N$ =Zahl der Sinus-ähnlichen Halbwellen am Meridian). Ein wesentliches Ergebnis war, daß ähnlich wie bei der früher untersuchten Zylinderschale die Eigenfrequenzen sehr dicht beieinander liegen.

Für eine verteilte Druckbelastung wurde mit Hilfe modaler Superposition die Schalenauslenkung bestimmt. Die statische Lösung ist in Bild 4211-2 dargestellt. Bemerkenswert ist, daß sich nennenswerte Radialauslenkungen nur im belasteten Schalenbereich ergeben. Dies deckt sich nicht mit den früheren Finite-Element Rechnungen (STRUDL), wird aber durch die experimentellen Befunde gestützt (Brunsbüttel I-Experimente 1974).

Erste Bemühungen wurden unternommen, die strukturdynamischen Rechnungen derart zu erweitern, daß der Trägheitseinfluß des mitbewegten Wassers erfaßt wird. Für diese Rechnungen werden als Eingabe nicht die experimentell bestimmten Druckverteilungen zwischen Wasser und umgebender Schale, sondern Informationen über die Kondensationsvorgänge benötigt.

#### 4. Kontrollmessungen im Kernkraftwerk Philippsburg (M.Cramer, P.Philipp)

Im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden, Mannheim, wurden während der Heißtests des Druckentlastungssystemes die Wandbelastungen und Wandreaktionen des Reaktorsicherheitsbehälters gemessen. Insgesamt wurden 86 Versuche mit unterschiedlichen Parameterkombinationen durchgeführt. Die gemessenen und aufbereiteten Daten wurden dem TÜV Baden direkt zugestellt. Eine eigene, vertiefte Auswertung der gemessenen Daten wurde nicht vorgenommen.

#### 5. Modellrechnungen zum Kondensationsvorgang (G.Class, F.Eberle)

Die im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden durchgeführten Parameterrechnungen mit dem hierfür entwickelten Rechenprogramm KONDAS wurden fortgesetzt. Dieses Programm berücksichtigt im Vergleich zu den bisher bekannten Modellen eine ganze Reihe weiterer Phänomene, wie z.B. den Auftrieb, die Trägheit, die Oberflächenaufrauung und die Ablösung von Dampfblasen sowie die Dynamik der Dampfsäulen in den Kondensationsrohren und die dampf-

und wasserseitige Beeinflussung parallel arbeitender Rohre. Mit diesem Rechenmodell wurde es möglich, sowohl die niederfrequenten Vorgänge der pulsierenden Kondensation, d.h. die Dampfblasenbildung und den Blasen-Kollaps zuverlässig nachzurechnen als auch Vorhersagen über die bei einem Vielrohrverband auftretenden Wandbelastungen zu machen. Der Vergleich der Rechenergebnisse mit den in Mannheim gefundenen experimentellen Daten und mit den Ergebnissen der Marviken-Versuche ergab insgesamt eine zufriedenstellende Übereinstimmung. Über das Rechenmodell KONDAS und einige damit gewonnene Ergebnisse wurde auf der ANS-ENS International Conf. 1976 im November 1976 in Washington D.C. vorgetragen.

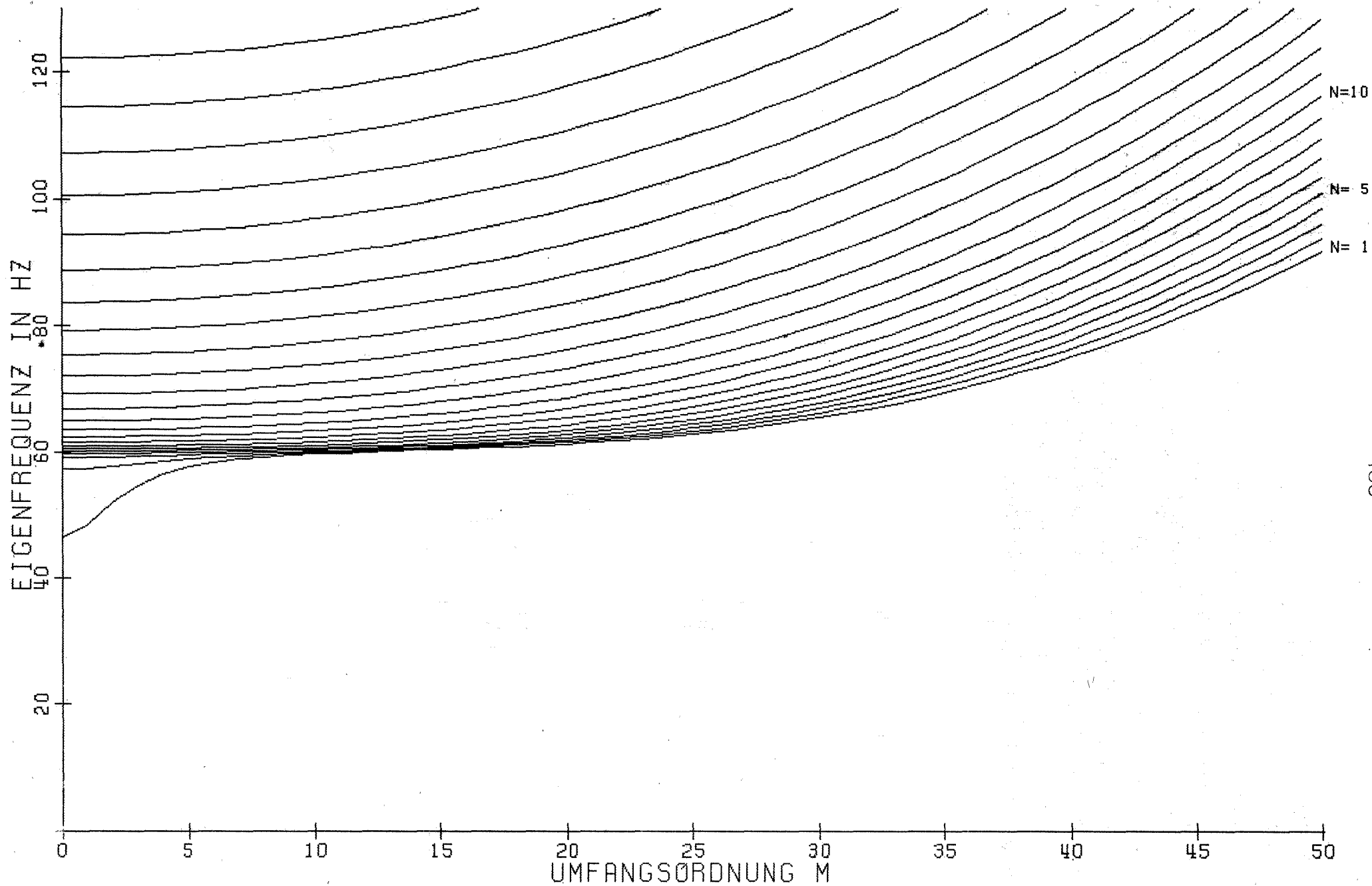
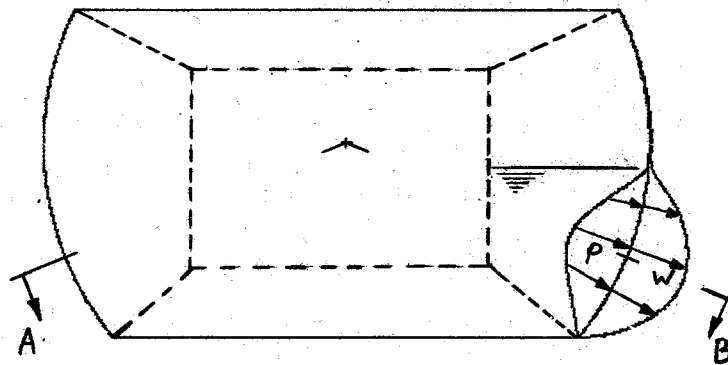


Bild 4211-1: Eigenfrequenzen der Kugelschale (äußere Wand der Kondensationskammer) abhängig von der Eigenschwingungsform (N = Meridionale Schwingungsordnung)





Schnitt AB

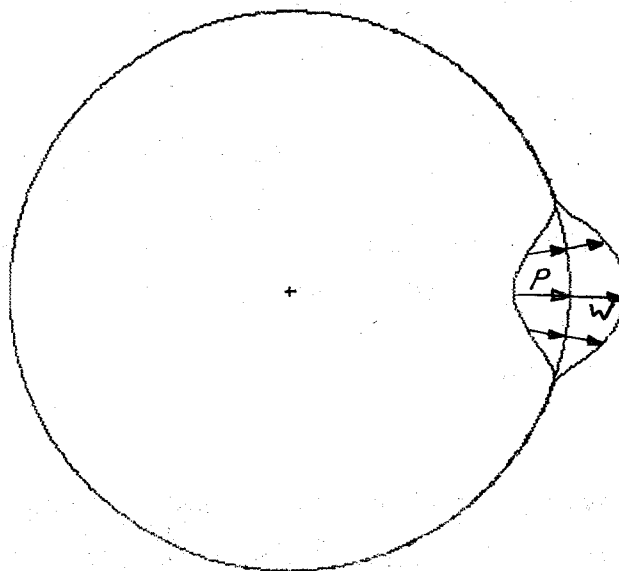


Bild 4211-2: Belastung der äußeren Schale der Kondensationskammer mit dem statischen Druck  $p$  und hervorgerufene Radialauslenkungen  $w$  ( $p_{\max} = 1 \text{ bar}$ ;  $w_{\max} \approx 5 \text{ mm}$ )

## 4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massenstrommessung in instationären Mehrphasenströmungen

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

### 1. Durchgeführte Arbeiten

Die Marviken-II-Experimente wurden fortgesetzt mit den letzten 5 Blowdowns (BD 21 bis BD 25), die von Juli bis Oktober stattfanden. Zusätzlich zu den mit dem MXII-CRT-Projekt vertraglich vereinbarten Gasgeschwindigkeitsmessungen in einem der 4 Abblasekanäle wurden als Vorbereitung für die HDR-Experimente Geschwindigkeits- und Dichtemessungen im Bruchstutzen durchgeführt. Die Versuche wurden im Oktober mit insgesamt 9 Blowdowns abgeschlossen. Dabei wurden die vertraglichen Verpflichtungen voll erfüllt.

Die für die Durchführung der Experimente an dem "Gemeinsamen Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren" (PNS 4215) vorgesehene Radionuklidmeßeinrichtung wurde fertiggestellt.

### 2. Erzielte Ergebnisse

#### 2.1 Abblasekanäle

Die bei den einzelnen Blowdowns in den Abblasekanälen gemessenen Geschwindigkeiten lagen zwischen 0 und 100 m/s. Ein erster Vergleich der Geschwindigkeit der Gasphase (gemessen mit dem Radiotracerverfahren des LIT) und der Flüssigphase (gemessen mit dem Infrarotabsorptionsverfahren, das ebenfalls im Rahmen des PNS entwickelt wurde) zeigte gute Übereinstimmung der Ergebnisse. Damit ist nachgewiesen, daß in den Abblasekanälen praktisch **kei n S c h l u p f z w i s c h e n G a s - u n d F l ü s s i g p h a s e** (Nebelströmung) vorlag.

#### 2.2 Bruchstutzen

Die zusätzlich im Bruchstutzen durchgeführten Geschwindigkeits- und Dichtemessungen verliefen besonders erfolgreich,

da es erstmals gelungen ist, den Massenstrom des Kühlmittels im Bruchstutzen zuverlässig zu bestimmen. Es war der erste Einsatz des Radionuklid-Massenstrommeßverfahrens /1/ unter harten Blowdown-Bedingungen.

### 2.2.1 Blowdown 21

#### 2.2.1.1 Geschwindigkeitsmessung

Da bei diesem Blowdown nur der Flüssigtracer Mn-56 zur Verfügung stand, wurde hier nur die Geschwindigkeit der Flüssigphase gemessen. Bedingt durch die geringe von Studsvik gelieferte Aktivitätsmenge konnte in diesem Fall nur bis 140 Sekunden nach dem Bruch der Berstscheibe gemessen werden. Es wurde nachgewiesen, daß die gewählten 0,3 m Anlaufstrecke und 0,25 m Meßstrecke ausreichen, um brauchbare Ergebnisse zu erzielen.

Die durch Korrelationsanalyse ermittelte Geschwindigkeit der Flüssigphase ist in Abb. 4214-1 dargestellt. Die Geschwindigkeit erhöhte sich zwischen 0 und 1,5 s auf 32 m/s und nahm danach ab auf ca. 26 m/s ( $t = 6$  s). Von  $t = 6$  bis 85 s fiel sie geringfügig weiter ab. Die Änderung der Geschwindigkeit zwischen 90 und 100 s wurde durch die Betätigung des Sicherheitsventils (Schließversuch) ausgelöst.

#### 2.2.1.2 Dichtemessung

Die Dichte wurde mit einem senkrecht durch die Rohrmitte gerichteten  $\gamma$ -Strahlenbündel (Ir-192) mit einer Zeitauflösung von 10 ms gemessen. Die damit erzielten Ergebnisse werden in Abb. 4214-2 für den gesamten Blowdown und in den Abb. 4214-3 und 4 mit besserer Zeitauflösung für die Anfangsphase des Blowdowns gezeigt.

Die wesentlichen Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle in chronologischer Reihenfolge aufgeführt:

<u>Zeit nach Bruch [s]</u>	<u>Ergebnisse der <math>\gamma</math>-Absorptionsdichtemessung</u>
0 - 6,2	Es strömt nur unterkühltes Medium (Wasser) aus ( $\alpha = 0$ ).
6,5	Erste Dampfblasen treten kurzzeitig auf ( $\alpha = 0,08$ ).
6,5 - 8,5	Es strömt nur Wasser aus ( $\alpha = 0$ ).
8,5	Endgültiger und eindeutiger Einsatz der Zweiphasenströmung ( $\alpha > 0$ ).
8,5 - 12	Starke Abnahme der Dichte ( $\alpha \uparrow$ ).
102	Zunahme der Dichte, verursacht durch das (teilweise) Schließen des Sicherheitsventils ( $\alpha \downarrow$ ).
102 - 200	Ungleichmäßigere und unruhigere Strömung mit höherer Dichte.
210 - 215	Erhöhung der Dichte durch das vollständige Schließen des Sicherheitsventils. $\alpha$ geht auf 0 zurück.
215 - 240	$\alpha$ bleibt 0. Die Dichte nimmt weiter geringfügig zu entsprechend der Temperaturabnahme des Kühlmittels (Wasser).

### 2.2.1.3 Ermittlung des Massenstromes

Der Massenstrom  $\dot{m}$  wurde berechnet aus

$$\dot{m} = \bar{\rho} \cdot v \cdot \frac{\pi}{4} \cdot D^2$$

D Rohrinnendurchmesser

v Geschwindigkeit der Flüssigphase  
(Ergebnisse in Abb. 4214-1)

$\bar{\rho}$  mittlere Dichte  
(Ergebnisse in Abb. 4214-2 bis 4)



Der von uns mit dem Radionuklidverfahren (RNV) ermittelte Massenstrom wurde in die Diagramme E:4 und E:7 aus dem Interim-Report MX2-69 zum Vergleich mit dem vom MXII-Projekt mit der DP<sup>+</sup>- und Pitotrohr-Methode bestimmten Massenstrom eingetragen (vgl. Abb. 4214-5, 6 und 7). Die DP- und RNV-Ergebnisse (Abb. 4214-5) zeigen starke Abweichungen am Anfang des Blowdown und nach dem teilweisen Schließen des Sicherheitsventils. Eine relativ gute Übereinstimmung wird für die Zeit von 20 bis 100 s erreicht. Beim Vergleich der Pitotrohr- und RNV-Ergebnisse (Abb. 4214-7) fällt eine Ähnlichkeit im Kurvenverlauf auf. Die Pitot-Werte liegen jedoch wesentlich unter den RNV-Werten. Die Abweichungen werden zur Zeit mit der Marviken-Projektgruppe diskutiert.

### 2.2.2 Blowdown 24

Der beim Blowdown 21 erstmals beobachtete "Drossелеffekt" trat beim Blowdown 24 noch stärker auf (vgl. Abb. 4214-8). Während des Schließens des Sicherheitsventils nahmen die Dichte um 100% und der Massenstrom um 65% zu, während die Geschwindigkeit nur geringfügig abfiel.

Dieser "Drossелеffekt" und seine Ursachen werden zur Zeit noch diskutiert. Als mögliche Ursache kommt eine geringfügige, jedoch "folgenreiche" Druckerhöhung von der Drosselstelle an rohraufwärts bis zum Reaktordruckbehälter in Frage, die eine Dampfbildung vermindert oder gegebenenfalls sogar vollständig verhindert. Eine endgültige Aussage ist jedoch erst nach gründlicher Überprüfung und weiterer Auswertung der vom Projekt durchgeführten Druck- und Temperaturmessungen möglich.

Die bisher ermittelten Geschwindigkeiten beider Phasen deuten darauf hin, daß im Bruchstutzen ebenfalls praktisch kein Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase vorlag.

---

<sup>+</sup>) DP = Druckdifferenzmessung im Reaktordruckbehälter

### 3. Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse

In den Abblasekanälen wurden Geschwindigkeiten von 0 bis 100 m/s gemessen. Es wurde nachgewiesen, daß kein Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase vorlag.

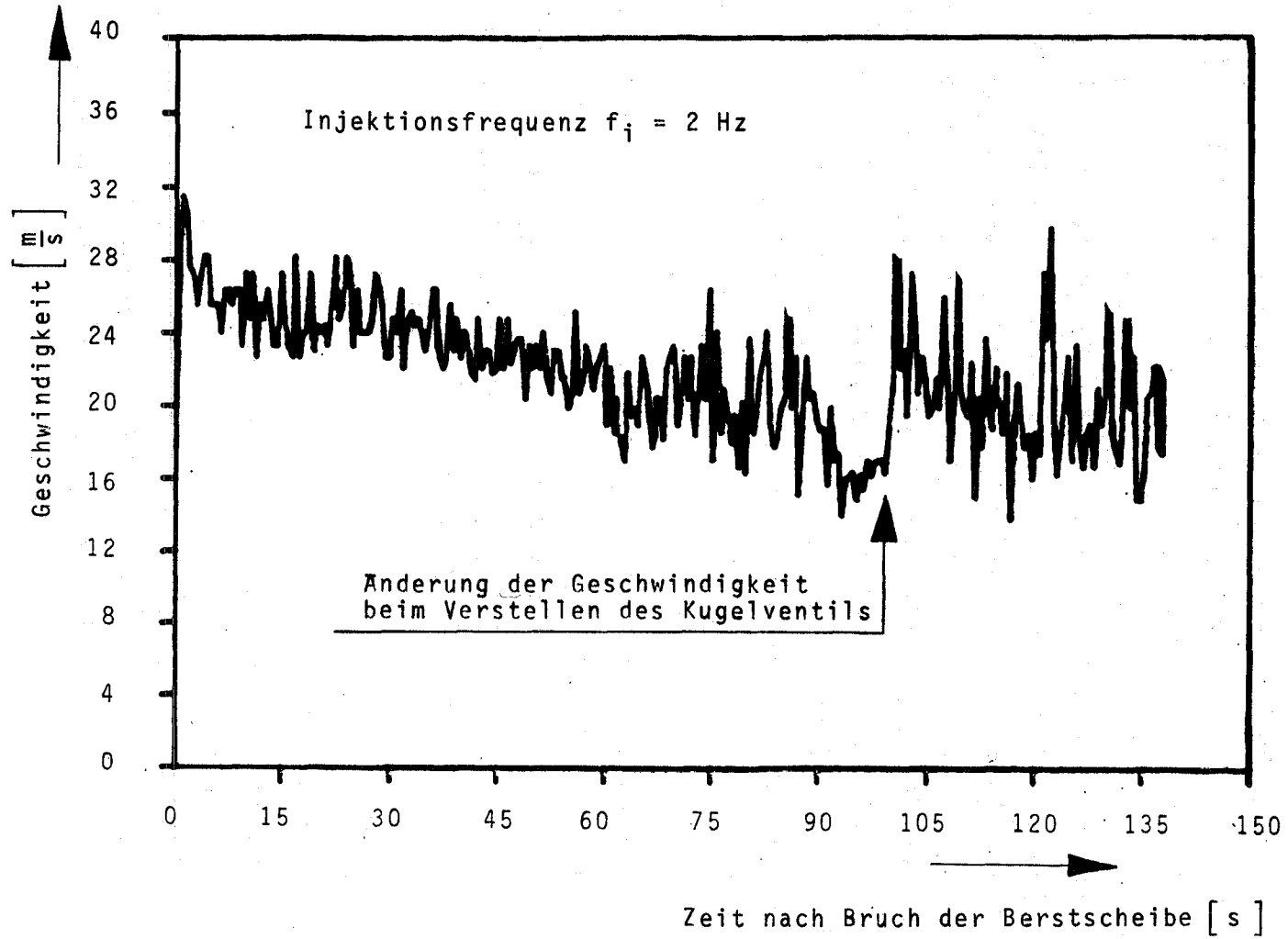
Im Bruchstutzen stieg der Massenstrom innerhalb der ersten 2 Sekunden nach dem Bruch der Berstscheibe von 0 auf 3 bis 4 Tonnen pro Sekunde (je nach Blowdown) und fiel danach wieder stark ab. Die  $\gamma$ -Absorptions-Dichtemessungen zeigten eindeutig, daß in den ersten Sekunden lediglich Wasser auströmte und die Zweiphasenströmung erst nach ca. 8 Sekunden einsetzte. Der Dampfvolumenteil (Void-Faktor  $\alpha$ ) stieg bis etwa 0,5 an. Die bisherigen Ergebnisse deuten darauf hin, daß im Bruchstutzen ebenfalls kein Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase vorlag.

Ein überraschendes Ergebnis war, daß der Massenstrom während des Schließens des Sicherheitsventils (Kugelventil) zunächst stark ansteigt. Bei Blowdown 24 wurde eine Massenstromzunahme von 65% gemessen.

#### Literatur

- /1/ Löffel, R.  
Durchflußmessung mit Radiotracer.  
VDI-Berichte 254, Durchfluß-Meßtechnik  
Tagung Düsseldorf, 10. - 11. März 1976  
Düsseldorf, VDI-Verl. 1976, S. 133-142

Abb. 4214-1: Geschwindigkeit der flüssigen Phase im Bruchstutzen beim Blowdown 21





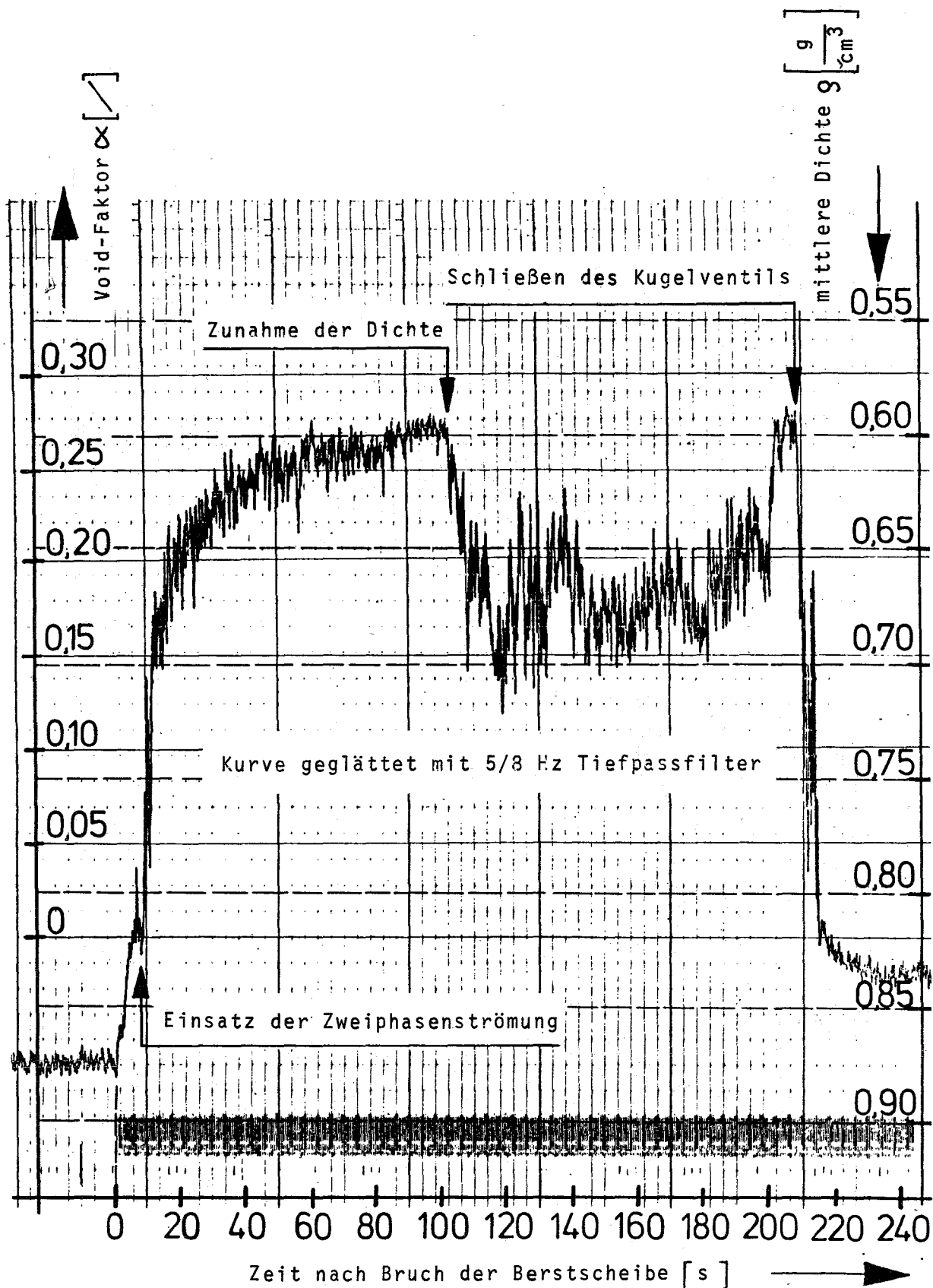


Abb. 4213-2: Mittlere Dichte und Void-Faktor im Bruchstutzen beim Blowdown 21 während der Zeit von 0 bis 240 Sekunden

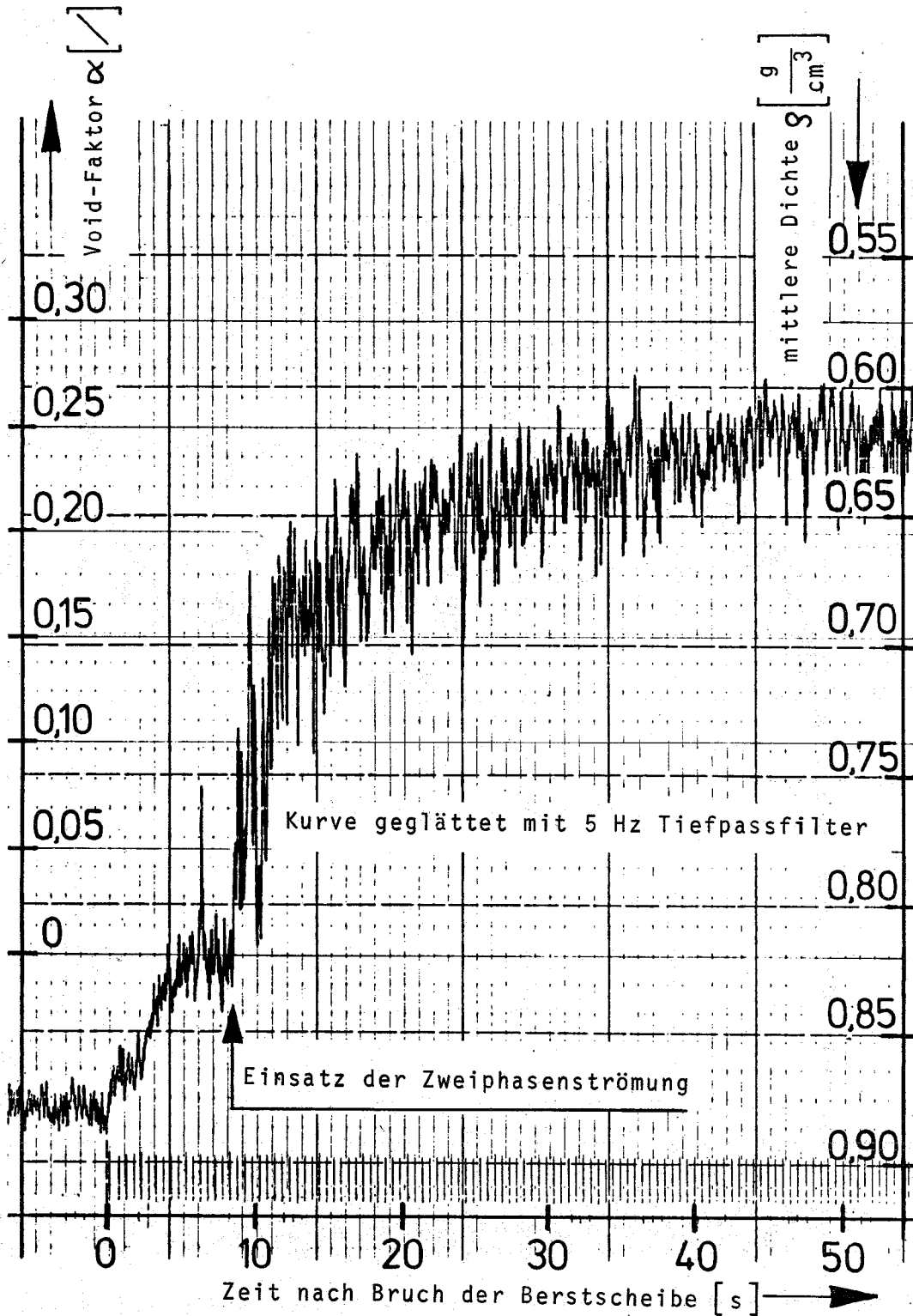


Abb. 4214-3: Mittlere Dichte und Void-Faktor im Bruchstutzen beim Blowdown 21 während der Zeit von 0 bis 50 Sekunden

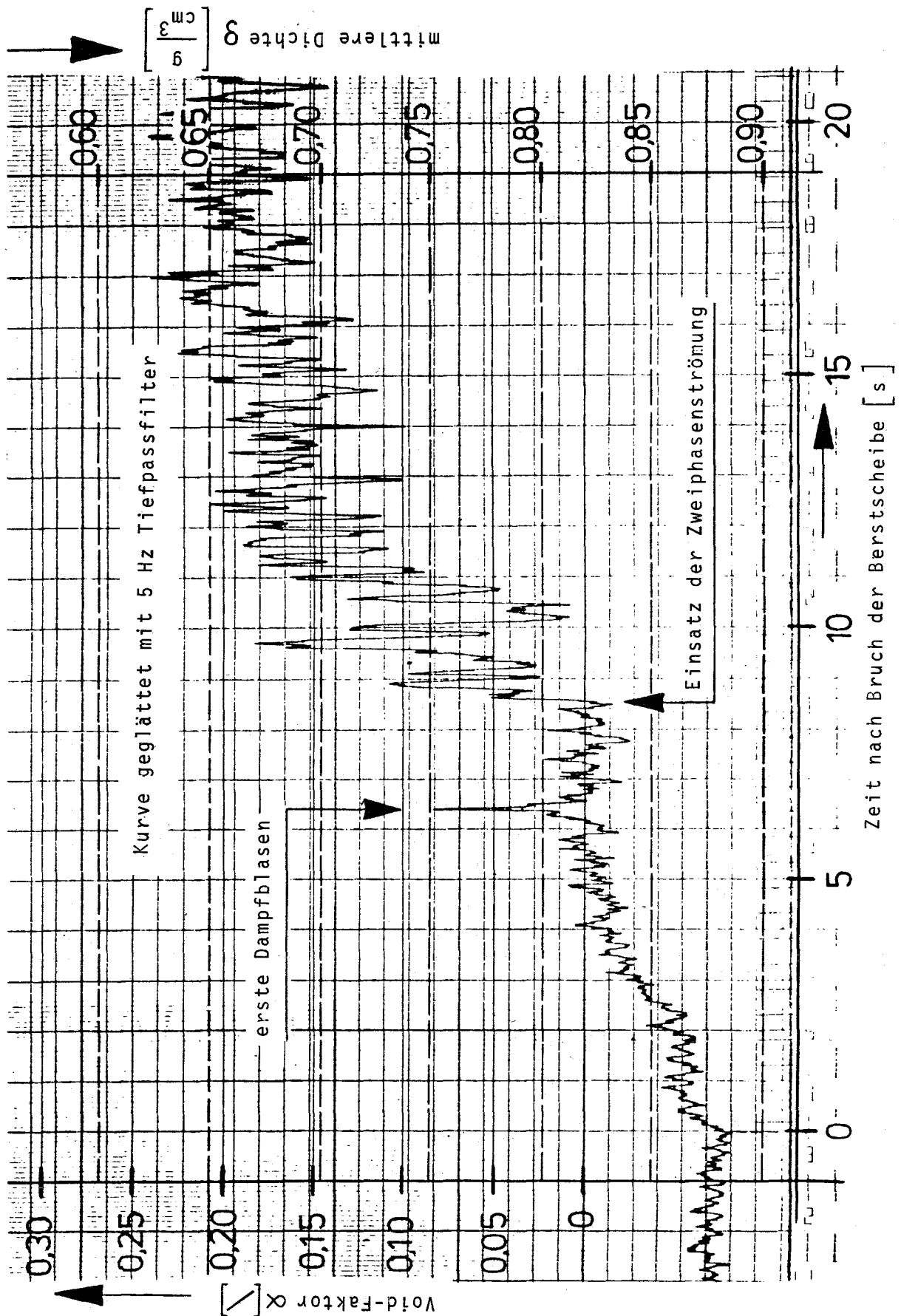
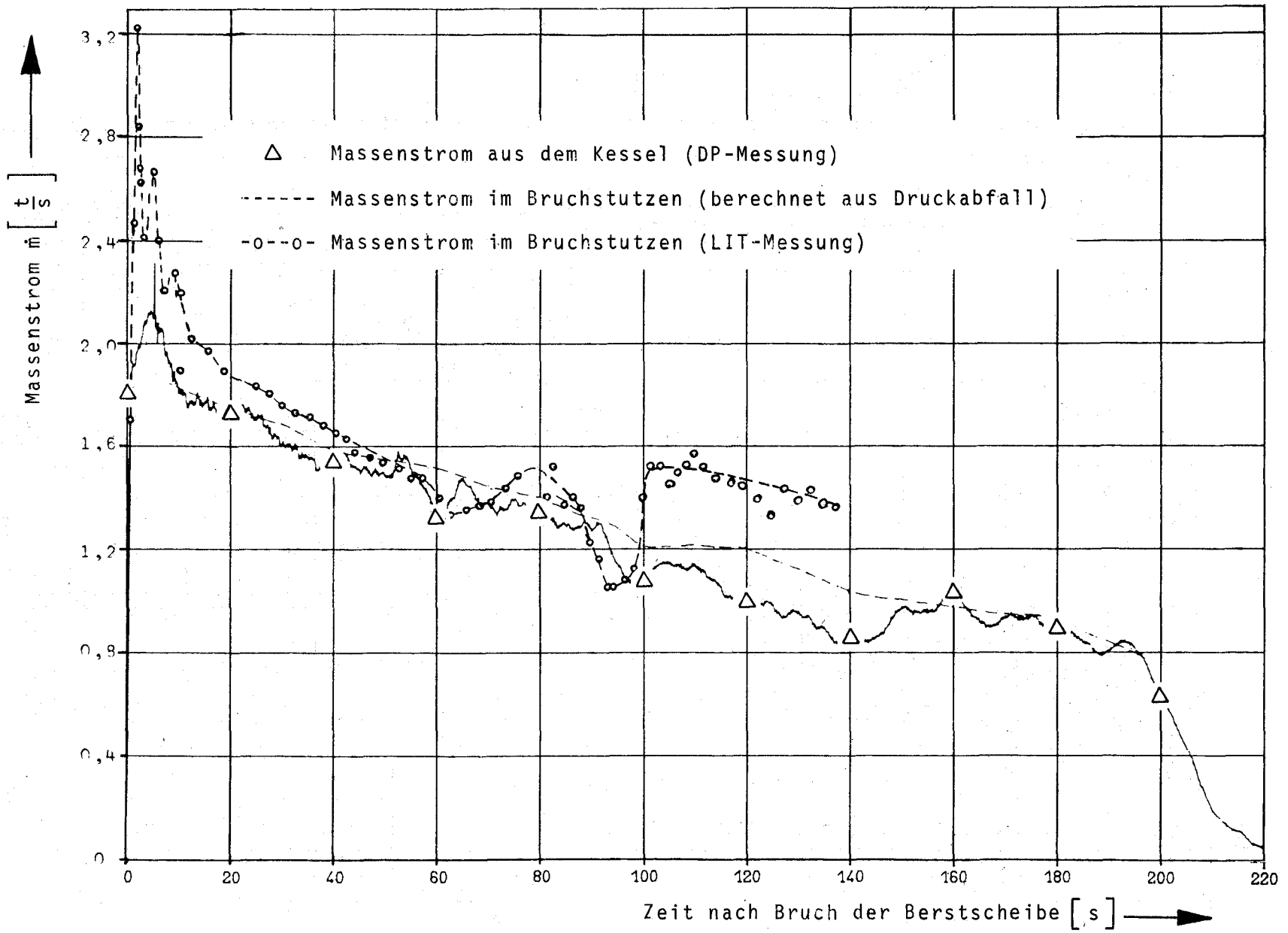


Abb. 4214-4: Mittlere Dichte und Void-Faktor im Bruchstutzen beim Blowdown 21 während der Zeit von 0 bis 20 Sekunden

Abb. 4214-5: Massenstrom im Bruchstutzen beim Blowdown 21  
(Vergleich der DP/LIT-Ergebnisse)



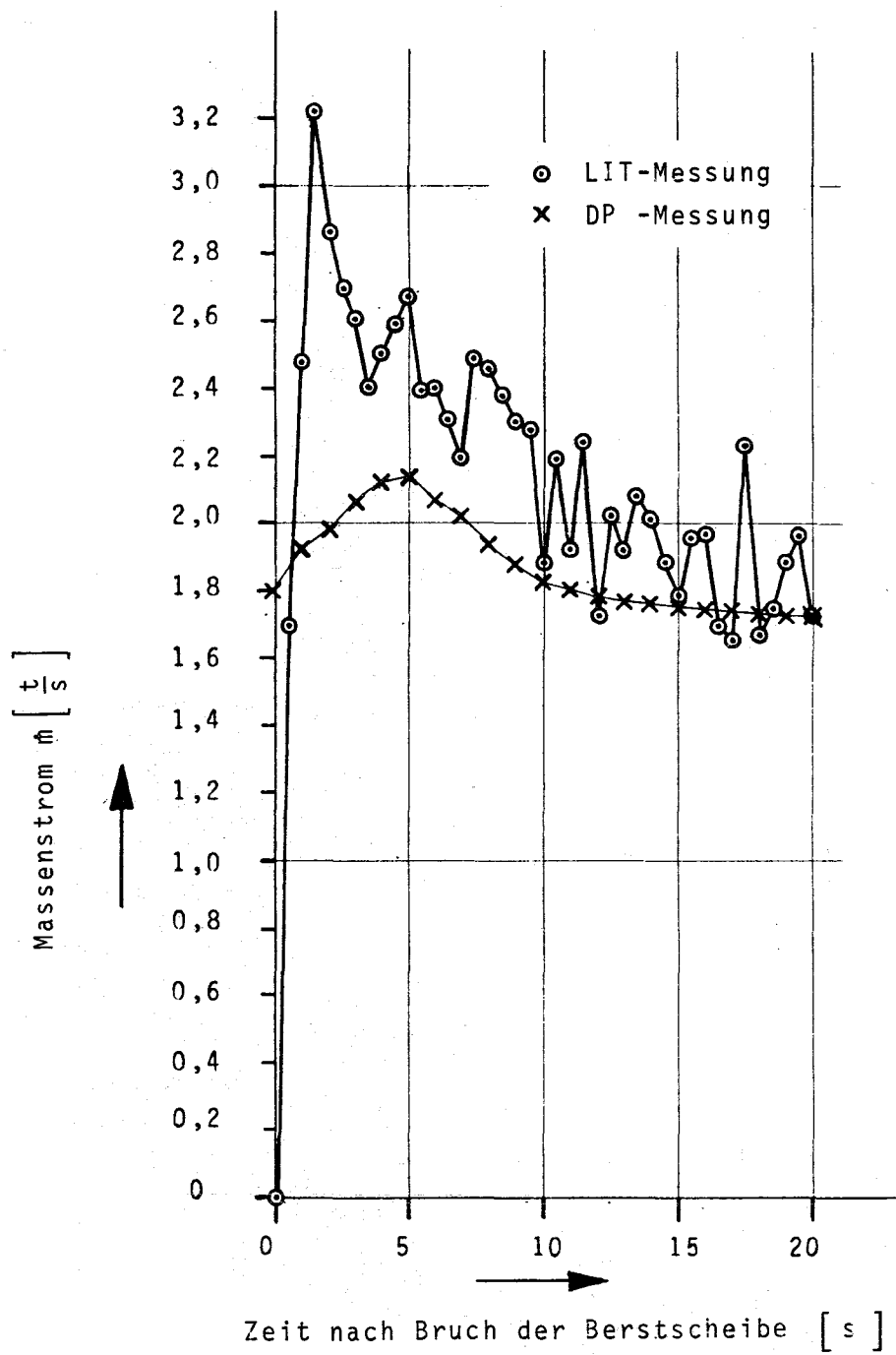
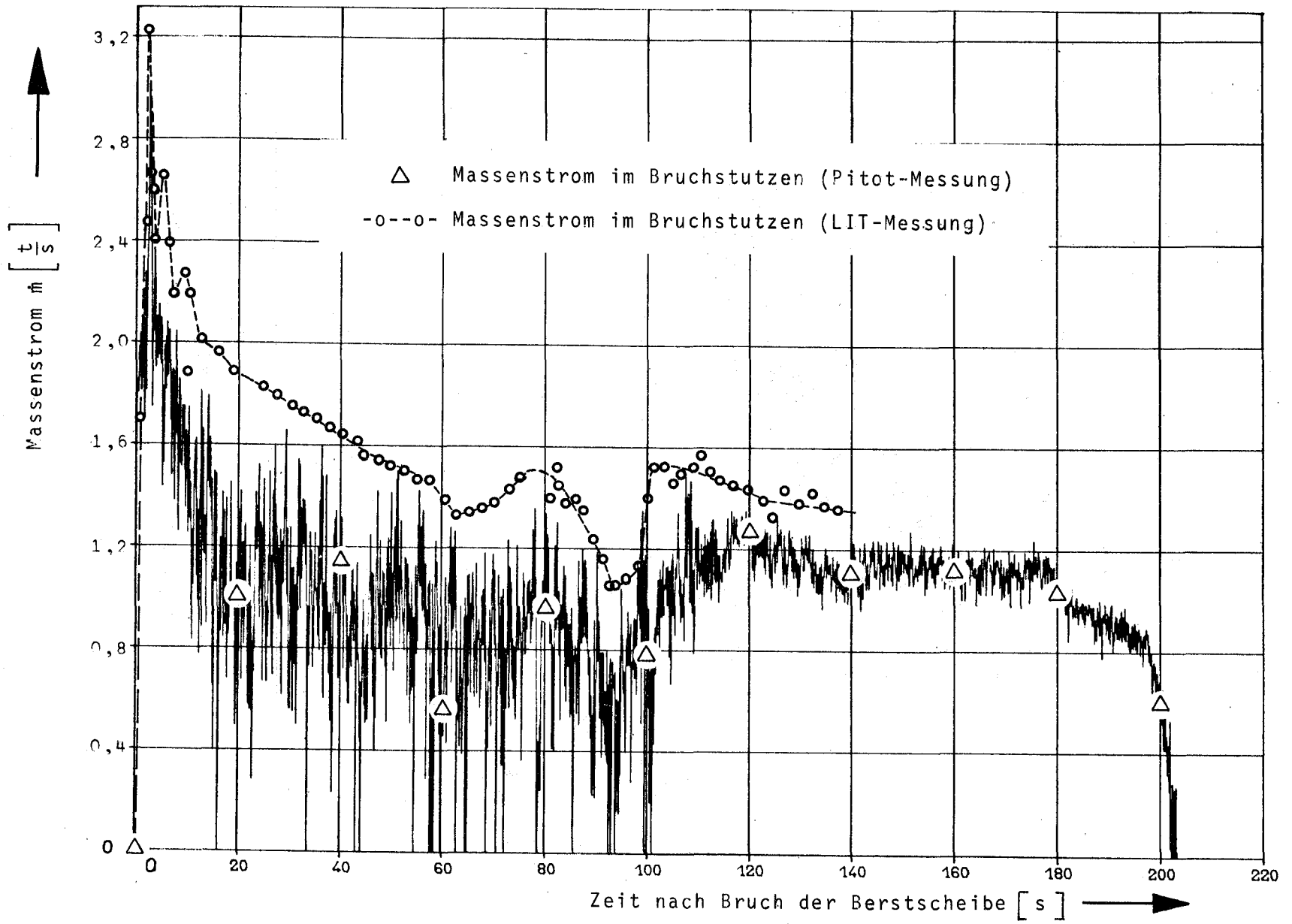


Abb. 4214-6: Massenstrom im Bruchstutzen während der Anfangsphase des Blowdown 21 (Vergleich der DP/LIT-Ergebnisse)

Abb. 4214-7: Massenstrom im Bruchstutzen beim Blowdown 21  
(Vergleich der Pitot/LIT-Ergebnisse)



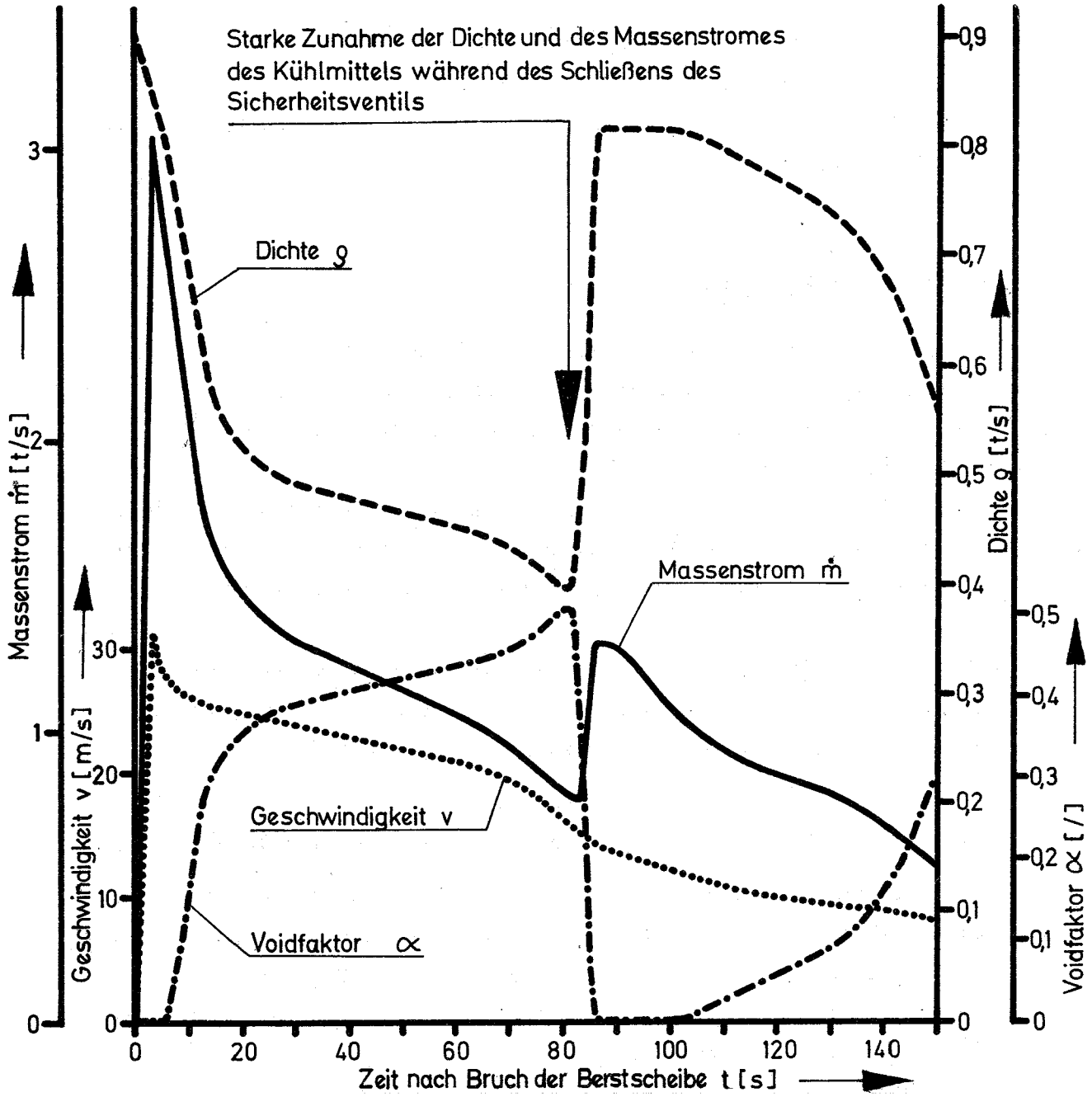


Abb. 4214-8: Dichte, Geschwindigkeit und Massenstrom des Kühlmittels beim Blowdown 24

- 4215    Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren  
(J. Reimann, G. Arnold, M. Chung, H. Hahn, H. John, St. Müller, E. Wanner, IRB)

### 1. Dampf-Wasser-Kreislauf

Die Inbetriebnahmephase des Kreislaufs wurde abgeschlossen.

Die der Auslegung des Kreislaufs zugrundegelegten maximalen Werte für den Massenstrom als Funktion des Dampfgehaltes und Druckes werden im wesentlichen erreicht.

Eine wichtige Forderung für die späteren Experimente ist das Erreichen möglichst vieler stabiler Betriebspunkte pro Versuchstag. Dazu hat sich folgende Fahrweise der beiden Kesselanlagen als günstig erwiesen:

- Nach Anfahren der Kessel wird der gewünschte Systemdruck angesteuert und gleichzeitig jeder Kessel für den, bei den folgenden Versuchen, maximal von ihm geforderten Massenstrom eingeregelt.
- Für diesen ersten Versuchspunkt werden, wegen der Trägheit der Kessel, bis zum Erreichen des Gleichgewichts ca. 3 Stunden gebraucht.
- Alle weiteren Punkte werden dadurch erreicht, daß von den einzelnen Kesselströmen, vor Eintritt in die Mischkammer und vor der einphasigen Massenstrommessung, ein bestimmter Teil über ein Bypaß-Reduzier-Ventil zum Kondensator abgeleitet wird. Dadurch wird in jeweils 30 Min. ein neuer Versuchspunkt erreicht.
- Für die Umstellung der Anlage auf einen anderen stark geänderten Systemdruck wird ca. 1 Stunde benötigt.

Da beide Kessel für unterschiedliche maximale Förderleistungen ausgelegt sind, müssen, je nach gewünschtem Betriebspunkt (in Bezug auf  $\chi$ ), verschiedene Fahrweisen der Kessel, wie folgt, gewählt werden:

- Bei hohen Massenstromdichten und kleinem Dampfgehalt liefert der Bensonkessel Wasser, der Henschelkessel Dampf, bei hohem Dampfgehalt umgekehrt.
- Die Änderung der Fahrweise der Kessel während der Versuche erfordert ca. 2 Stunden.



- Bei geeigneter Wahl des Versuchsprogramms kann der Wechsel der Fahrweise während eines Versuchstages jedoch vermieden werden.

Die Konstanthaltung des Absolutdruckes in der Teststrecke verursacht keine Schwierigkeiten. Die Massenstromschwankungen bei einphasigem Betrieb liegen unter 1%. Bei zweiphasigem Betrieb sind die Schwankungen aufgrund der Heterogenität der Strömung naturgemäß größer, bei hohen Massenstromdichten ( $\dot{m} > 1000 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ ) und nicht zu kleinen Dampfgehalten ( $x > 0,2$ ) betragen sie 2-3%. Starke Massenstromschwankungen traten bei kleineren Massenstromdichten ( $\dot{m} < 1000 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$ ) und kleineren Dampfgehalten ( $x < 0,2$ ) auf, wenn sich in der Teststrecke bzw. dem nachfolgenden Rohrsystem eine Kolbenströmung ausbildete. Durch eine Modifikation der Mischkammer und zusätzliche Drosseln in den Rohrleitungen soll der Einfluß der für Kolbenströmung charakteristischen Druckschwankungen auf die Teilmassenströme unterdrückt werden.

## 2. Zweiphasen-Sonde

Zur Bestimmung der Strömungsform wurde erfolgreich die Zweiphasensonde eingesetzt.

Abb. 4215-1 zeigt im oberen Teil das Sondensignal bei einer Ringströmung. Die Sondenspitze, die sich in Kanalmitte befindet, zeigt die meiste Zeit Dampfströmung an, unterbrochen durch einzelne Flüssigkeitspeaks, hervorgerufen durch das Auftreffen einzelner Flüssigkeitströpfchen bzw. losgerissener Flüssigkeitsrippen. Die drei unteren Schriebe zeigen das Signal einer Schwallströmung (Kolbenströmung). Zeiten, in denen hauptsächlich Dampf am Meßort vorhanden ist, unterbrochen durch kleine Flüssigkeitströpfchen, wechseln ab mit Bereichen, in denen Schwälle, d.h. Flüssigkeit mit vielen Einzelblasen, vorliegen.

Abb. 4215-2 zeigt Signale bei einer Schwallströmung bei  $p = 50 \text{ at}$ . Es wurden zwei axial versetzte Sonden verwendet sowie ein Differenzdruckaufnehmer, der im wesentlichen den Beschleunigungsdruckabfall der Strömung bei einer speziellen Querschnittsverengung (Chawla-Drossel) mißt. Aus der Autokorrelationsfunktion der Sondensignale ( $R_{11}$  bzw.  $R_{22}$ ) kann die Schwallfrequenz bestimmt werden, aus der Kreuzkorrelationsfunktion ( $R_{12}$ ) die mittlere Geschwindigkeit der Dampfkolben (Abb. 4215-3).

In entsprechender Weise kann das Differenzdrucksignal zur Korrelation verwendet werden. Diese ersten Ergebnisse sind quantitativ noch nicht befriedigend, u.a. weil die Korrelationszeiten zu kurz waren.

Für die Entwicklung eines Dichtemeßgerätes, für die Erweiterung der Versuchseinrichtungen für Luft-Wasser-Strömung sowie für instationäre Dampf-Wasser-Strömungen werden im Berichtszeitraum vom BMFT zusätzlich Sondermittel bewilligt.

### 3. Serielles $\gamma$ -Strahl-Densitometer

Die Entwicklung dieses Meßverfahrens für die Gemischdichte erfolgt in enger Zusammenarbeit mit dem LIT (PNS 4214). Wesentliche Komponenten wie Kollimatorblock, Anschlußstück für den  $\gamma$ -Quellen-Behälter wurden gefertigt; mit der Herstellung der Abschirmung und Kühlung des Szintillators wurde begonnen. Die Optimierung der Meßtechnik bei "kalten" Bedingungen. (Luft-Wasser-Strömung, bzw. simulierte Strömungszustände) steht unmittelbar bevor.

### 4. Luft-Wasser-Versuchsstand

Aufgrund von Vorarbeiten konnte nach Bewilligung der Sondermittel diese Erweiterung sehr rasch durchgeführt werden. Im Berichtszeitraum wurden die erforderlichen Kreislauf-Komponenten bestellt, der Kreislauf errichtet und erste Funktionstests durchgeführt.

### 5. Instationärer Dampf-Wasser-Versuchsstand

Aufgrund der zusätzlich hinzugekommenen Arbeiten zu Punkt 4 verzögerte sich die Errichtung des Blowdown-Kreislaufs. Mit Berechnungen der während des Blowdowns auftretenden Spannungen in der Wand des Druckbehälters wurde begonnen, die Ausschreibung des Druckbehälters wurde vorbereitet.

### 6. Anzahl der zu testenden Meßverfahren

Bei der Konzeption des gemeinsamen Versuchsstandes war der Test folgender

Verfahren vorgesehen:

Dragbody (Battelle Frankfurt); True-Mass-Flow-Meter (GfK-IRE);

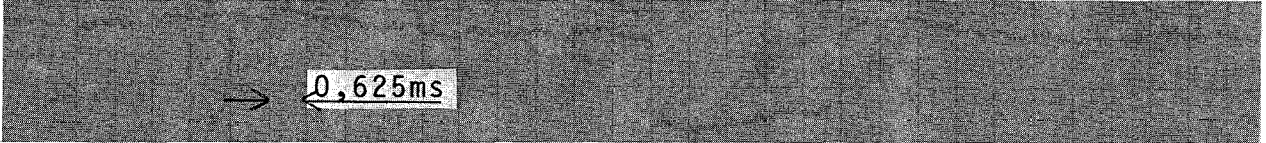
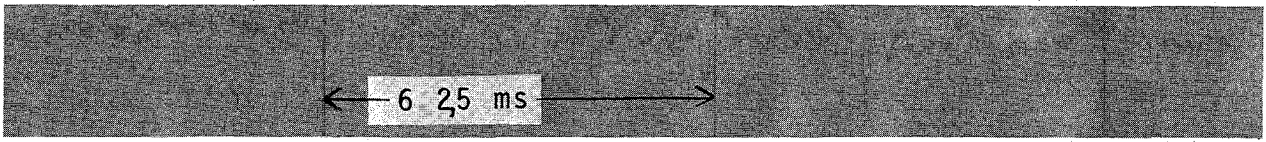
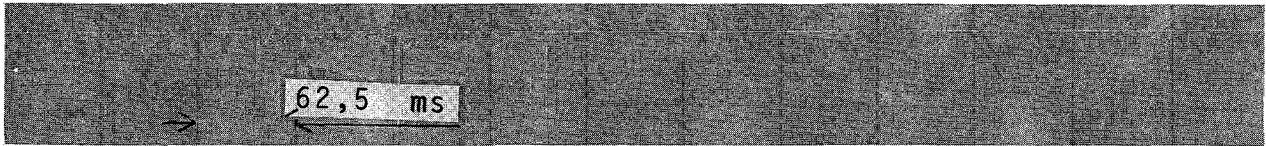
Radionuklid-Verfahren (GfK-LIT); Temperaturreauschsignal-Korre-  
lation (TU-Berlin);

Magnetische Kernspinresonanz-Methode (TH-Aachen, KWU-Erlangen).

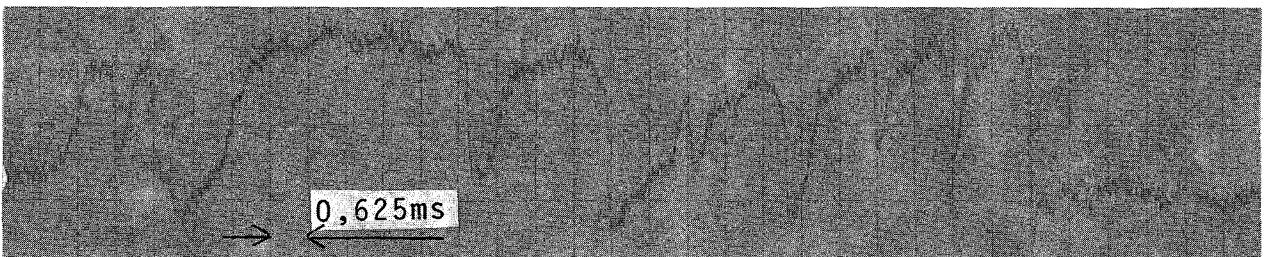
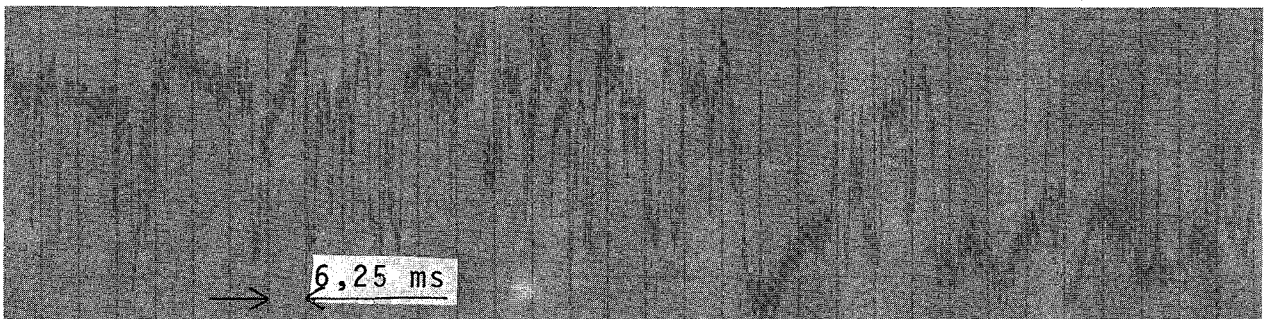
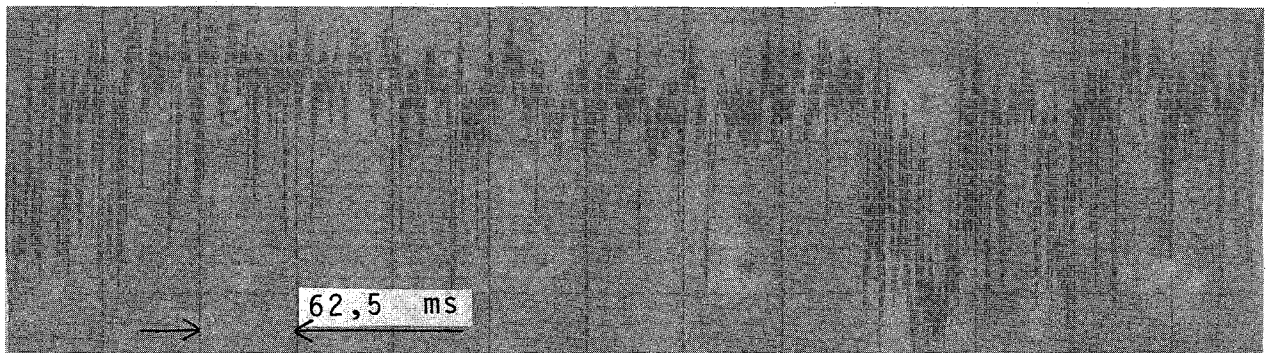
Ende 1975 kam ein weiteres Verfahren hinzu: eine Kombination aus Drag-body, Turbinendurchflußmesser und  $\gamma$ -Strahl-Densitometer, das von Euratom-Ispira im Rahmen des Projektes RS 109 entwickelt wird. Dieses Verfahren entspricht im Prinzip dem, bei den Semiscale-Experimenten eingesetzten Meßverfahren, unterscheidet sich jedoch in der konstruktiven Ausführung so stark, daß Ergebnisse nicht übertragbar sind.

Innerhalb des Berichtszeitraumes zeigte die US NRC zunehmendes Interesse an einem Test, der bei den PBF, Semiscale- und LOFT-Experimenten eingesetzten Verfahren im gemeinsamen Versuchsstand. Erste Spezifikationen wurden ausgetauscht, eine detaillierte Ausarbeitung des Zeitplans und Versuchsprogramms steht unmittelbar bevor.

Außerdem besteht Interesse von Seiten der CEA ein für die PHEBUS-Experimente konzipiertes Verfahren ungefähr Ende 77 zu testen.



$\dot{m} = 1300 \text{ kg/m}^2\text{s}$  ;  $X = 0,52$  : Annular Flow



$\dot{m} = 750 \text{ kg/m}^2\text{s}$  ;  $X = 0,18$  : Slug-Flow

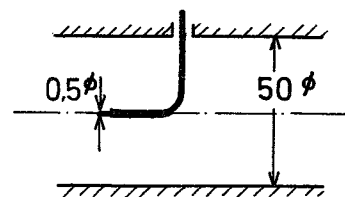
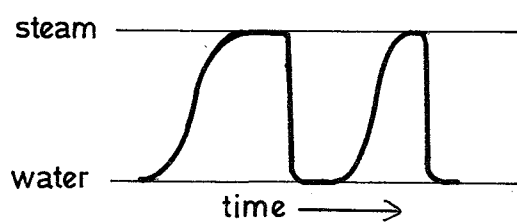


Abb. 4215-1 Sondesignale von verschiedenen Strömungsformen (Dampf-Wasser-Strömung,  $p = 100 \text{ at}$ ;  $T = 309^\circ\text{C}$ )

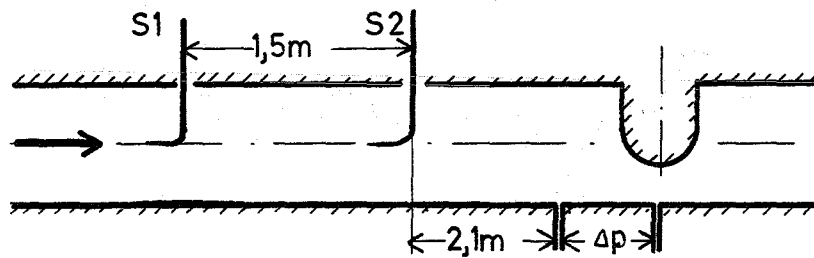
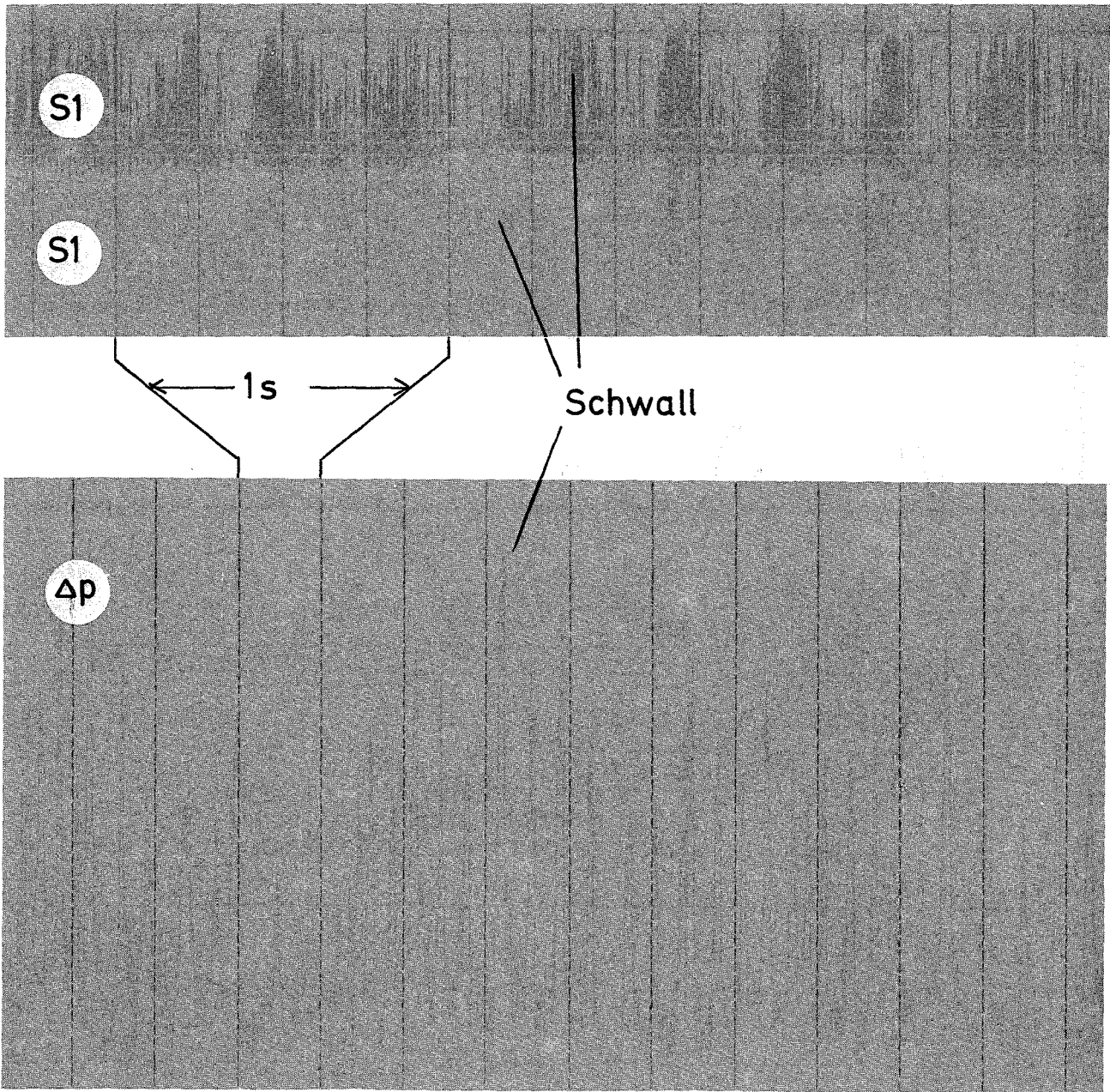


Abb. 4215-2 Sondensignale von einer Schwallströmung  
( $p = 50 \text{ at}$   $m = 1500 \text{ kg/m}^2\text{s}$   $x = 0,075$ )

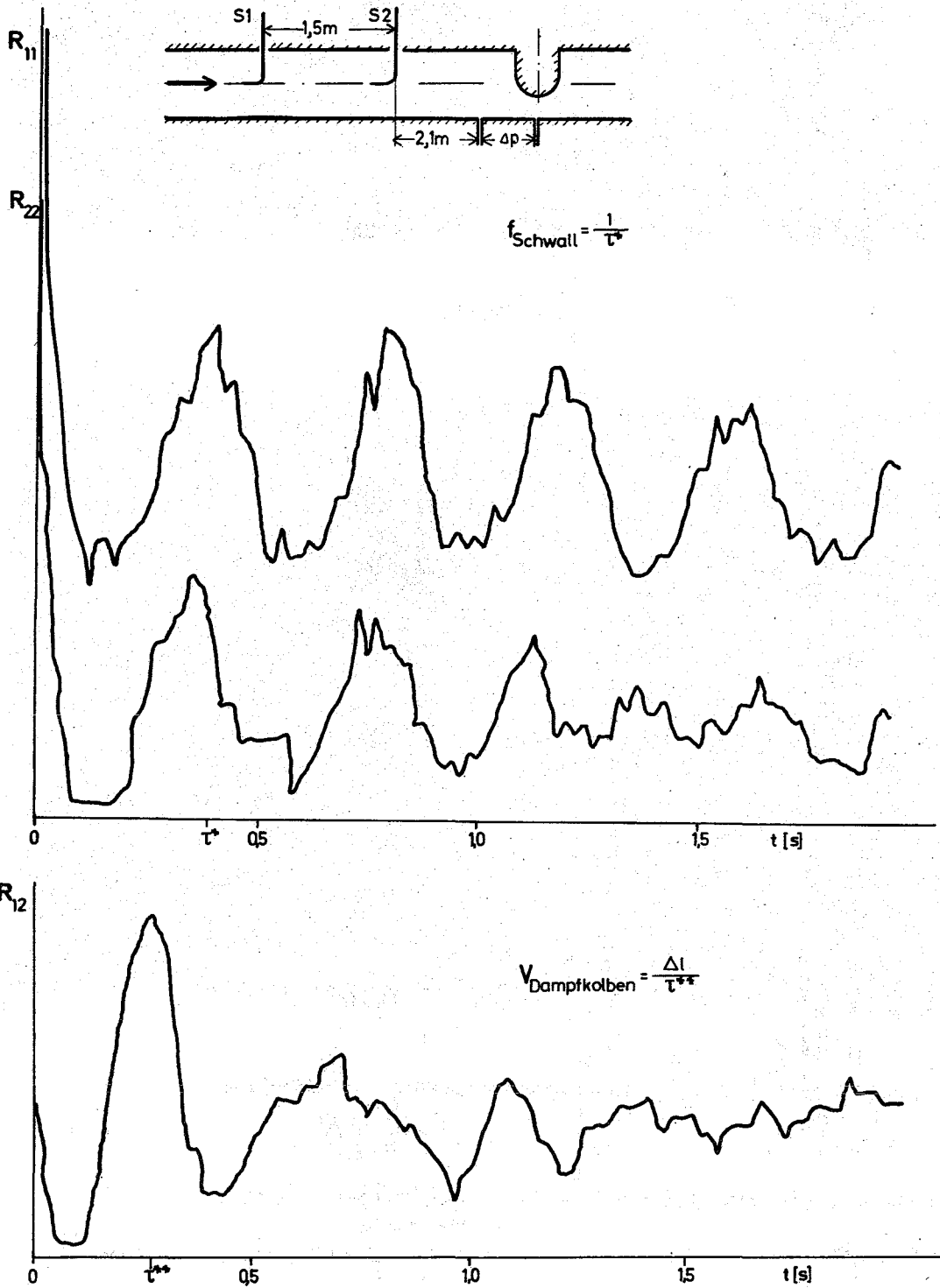


Abb. 4215-3 Autokorrelationsfunktionen ( $R_{11}$  und  $R_{22}$ ) der Sondensignale sowie Kreuzkorrelationsfunktion ( $R_{12}$ ) bei einer Schwallströmung

4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen

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

### Einleitung

Mit Hilfe der HDR-Blowdown-Experimente sollen insbesondere die dynamischen Beanspruchungen des Kernmantels in einem Druckwasserreaktor bei einem angenommenen plötzlichen Bruch des kalten Stranges der Primärrohrleitung simuliert werden. Zu diesem Zweck wurden in den vorangegangenen Berichtszeiträumen eine Versuchskonzeption entwickelt und geeignete Versuchseinbauten konstruiert und in Fertigungsauftrag gegeben.

### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

In einigen kritischen Punkten wurde eine detaillierte Nachrechnung der Versuchsauslegung durchgeführt. Eine Spannungsanalyse des oberen Kernmantelflansches, der bei der Montage zwischen Reaktordruckbehälter und Deckel eingeklemmt wird, ergab, daß der Flansch die Blowdown-Last - ohne abzuheben - aufzunehmen in der Lage ist und daß die sich ergebende Flächenpressung zwischen Flansch und Reaktordruckbehälter gerade noch akzeptabel ist. Bei dieser Analyse wurde der Flanschquerschnitt zur Anwendung des finite-Elemente-Codes STRUDL sehr fein diskretisiert. Abweichungen der Spannungs-Dehnungs-Kennlinie vom linear-elastischen Verhalten wurden berücksichtigt. An der am höchsten beanspruchten Stelle des Einspannflansches ergaben sich Spannungen, die im plastischen Bereich liegen. Die zugehörigen Dehnungen überschreiten jedoch den in der Technik als elastisch klassifizierten Bereich von 0.2% nur unwesentlich. Außerdem wurde das in Abb.4221-1 dargestellte Verspannungsdiagramm zwischen Kernmantel-Einspannflansch und Reaktordruckbehälter ermittelt.

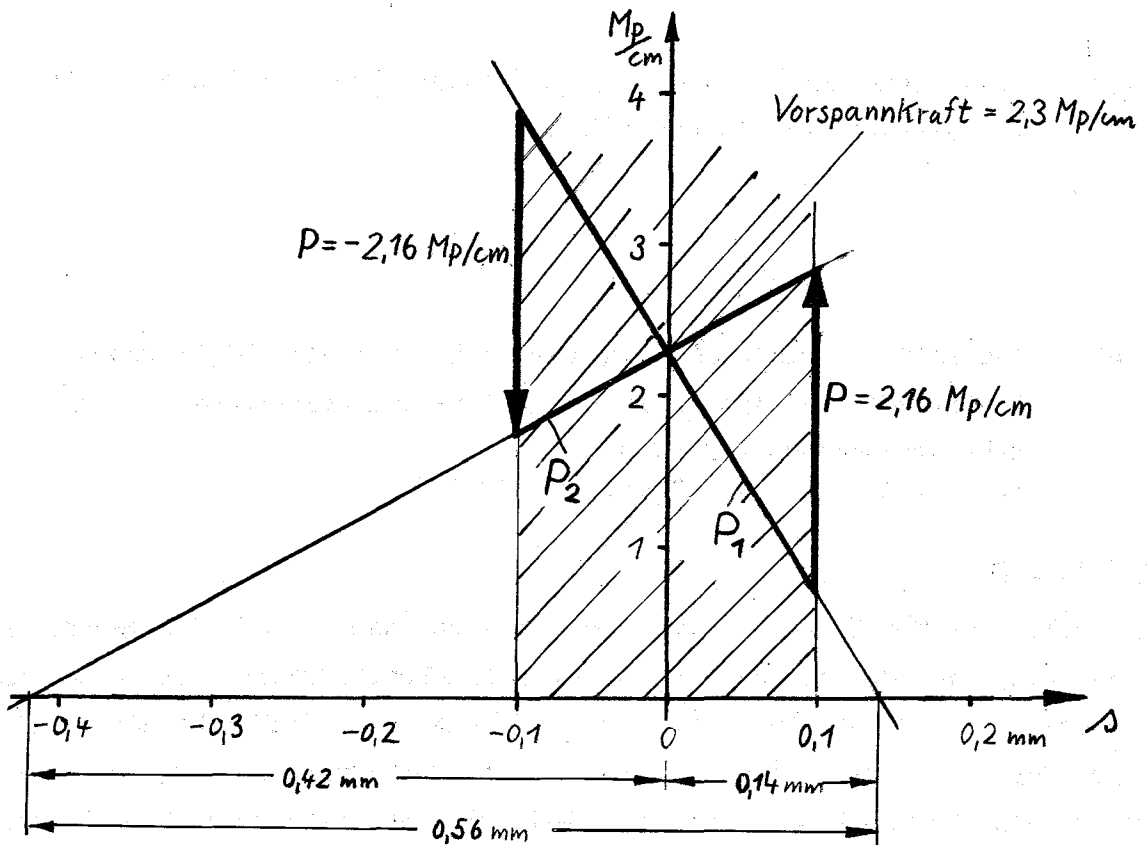


Abb.4221-1: Verspannungsdiagramm für den Kernmantel-Einspannflansch

Auf der Abszisse ist die Flansch-Zusammendrückung, auf der Ordinate sind die am Flanschumfang sich ergebenden Linienlasten  $P_1$  (zwischen Flansch und Reaktordruckbehälter) und  $P_2$  (zwischen Flansch und Deckel) dargestellt. Es zeigt sich, daß beim Auftreten der maximalen Blowdownlast von  $P = 2,16 \text{ Mp/cm}$ , die am Deckel angreifende Last  $P_2$  nur um  $0,55 \text{ Mp/cm}$  erhöht oder erniedrigt wird. Daraus ergibt sich für die Deckelschrauben des Reaktordruckbehälters eine kurzzeitige Spannungsänderung beim Blowdown von nur  $100 \text{ kp/cm}^2$ .

Ferner wurde der in Abb.4221-2 dargestellte genaue Instrumentierungsplan für insgesamt 168 schnelle Meßaufnehmer ausgearbeitet.

Für den Referenzversuch Nr.3 wurden mit dem Code YAQUIR Vorausberechnungen durchgeführt. Da mit YAQUIR nur der Ringraum simuliert werden kann (Stützen, Plena und Innenraum nicht) war es notwendig, am Stützen und im unteren Plenum die zeitlichen Druckverläufe aus DAPSY-Rechnungen des IRA vorzugeben. Für die YAQUIR-Rechnungen wurde ein zweidimensionales Maschennetz benutzt, dessen Gitterlinien den Strom- und Potentiallinien einer Potentialströmung vom unteren Plenum zum Stützen folgen. Abb.4221-3 zeigt den berechneten Druckver-



lauf an verschiedenen Meßstellen im HDR. Die Meßstellennummer entspricht dem Meßstellenplan 4221-2. Abb.4221-4 gibt für diesen Referenzversuch 3 die resultierende Horizontalkraft und das auf die Einspannstelle bezogene Moment des auf den Kernmantel wirkenden Druckfeldes. Dabei ist der Kernmantel als starr angenommen.

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Die Dicken der Kalibrierplatten, die zwischen Kernmanteleinspannflansch und Behälterdeckel gelegt werden, sind genau zu ermitteln. Das Konzept für die Schwingungsversuche am eingebauten Kernmantel - mit oder ohne Wasserfüllung - unmittelbar vor den Blowdown-Versuchen ist auszuarbeiten.

Für weitere HDR-Versuche wird das Druckfeld ermittelt werden. Die Vorausrechnungen der Spannungen im Kernmantel für verschiedene Blowdown-Fälle wird in Angriff genommen.

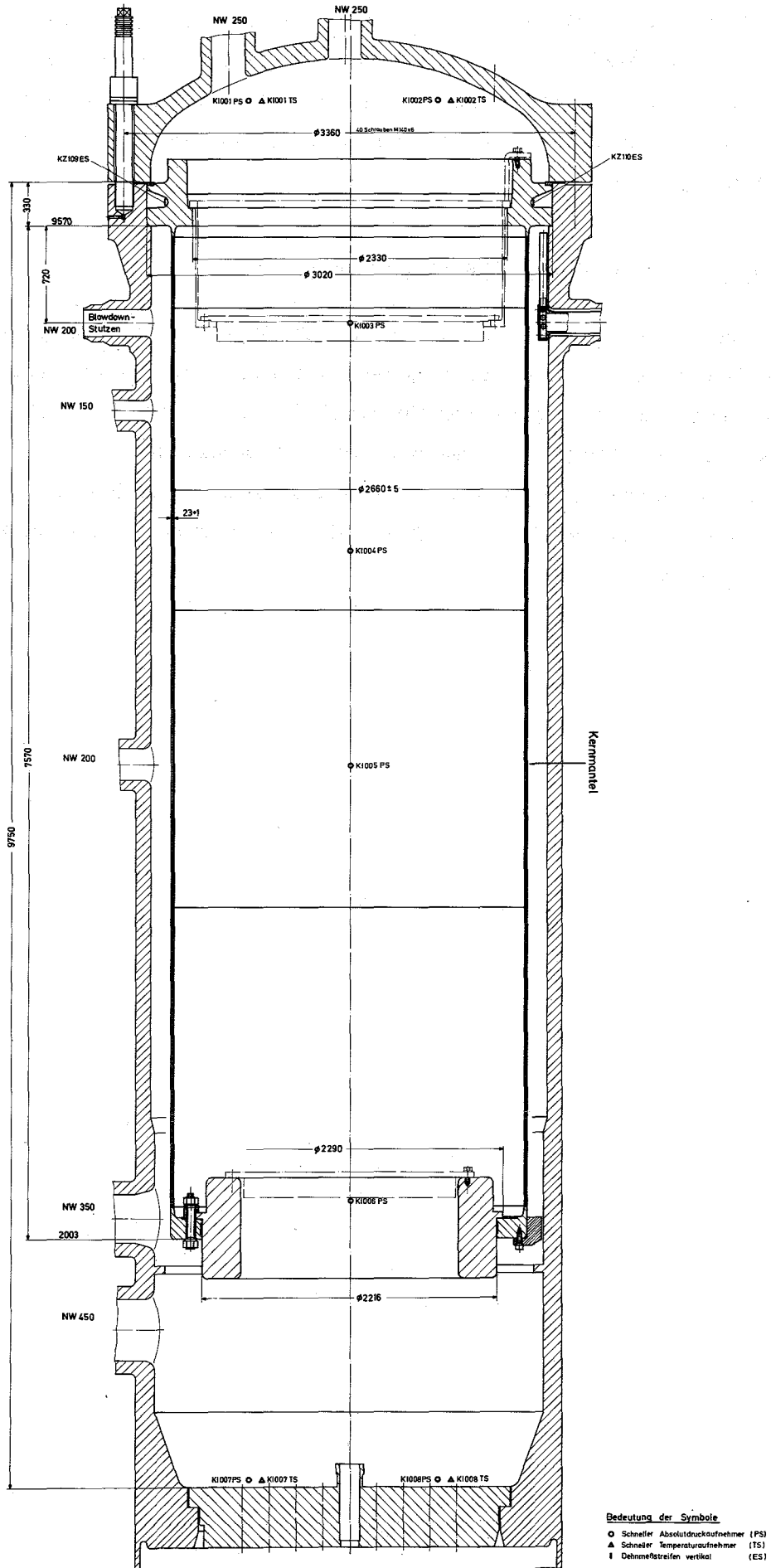


Abb. 4221-2a: HDR-Meßstellenplan für den Kernmantelinnenraum





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

(K.D.Appelt, M.Cramer, F.Eberle, J.Kadlec, G.Lang, H.Schnauder)

Der Autoklav wurde fertiggestellt und vom TÜV abgenommen. Die Aufstellung der gesamten Testeinrichtung wird auf einem neu gebauten, schwingungs isolierten Betonfundament in der Technikumshalle des IRE erfolgen. Der dazugehörige elektromagnetische Schwingungserreger wurde im Dezember in den USA abgenommen und inzwischen angeliefert.

Das Versuchsprogramm zur Untersuchung der Prototyp-Meßaufnehmer wurde im Berichtszeitraum im Detail spezifiziert. Nach den im Labor auszuführenden Basisprüfungen sind zunächst Autoklaventests unter transienten Temperatur- und Druckbedingungen ohne mechanische Beaufschlagung vorgesehen. Danach werden mit dem elektromagnetischen Schwingungserreger dynamische Tests zunächst in Luft, dann auch bei erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur in Wasser durchgeführt werden. Den Abschluß bilden Schocktests mit einer aperiodischen Schwingungseinrichtung unter hohen Beschleunigungsbelastungen, um die mechanische Grenzbelastbarkeit der einzelnen Aufnehmer experimentell zu ermitteln. Die für diese Versuche noch zusätzlich notwendigen Versuchseinrichtungen wurden konstruiert, in die Fertigung gegeben und zum Teil bereits gebaut und in Betrieb genommen.

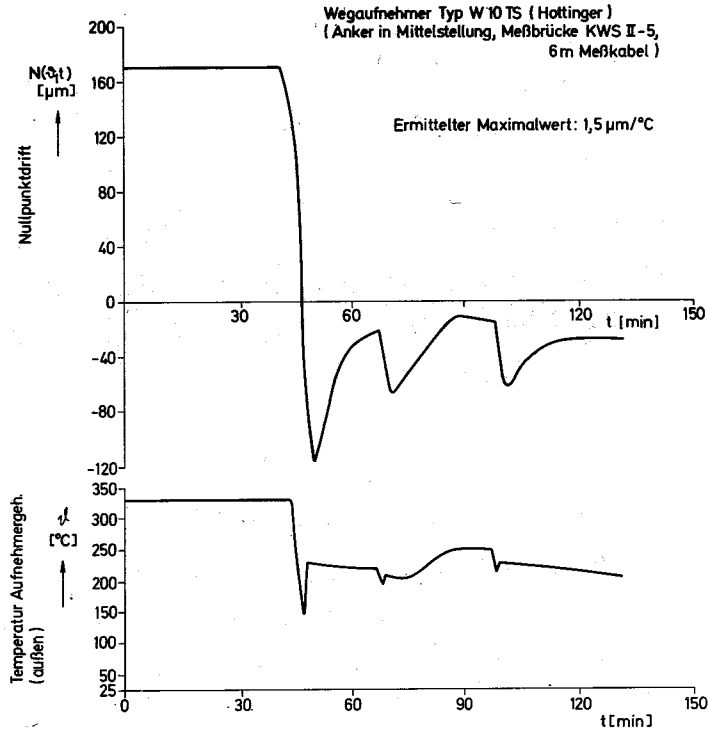
Die bisher durchgeführten Labor-Basisprüfungen mit drei Prototyp-Wegaufnehmern der Firmen Hottinger und Micro-Epsilon erbrachten recht zufriedenstellende Ergebnisse. Bei diesen Tests werden die charakteristischen technischen Daten der Aufnehmer überprüft sowie die Abhängigkeit von Nullpunkt, Empfindlichkeit und Linearität von der Temperatur im Ofen unter Atmosphärendruck ermittelt (s. Abb. 4222-1). Außerdem wird dabei der Temperatureinfluß auf die mit den Aufnehmern integral verbundenen Stahlrohrkabel gemessen. Infolge von Lieferverzögerungen der Hersteller standen weitere Wegaufnehmer für derartige Messungen bis Ende 1976 noch nicht zur Verfügung.

Die Gespräche mit der Fa. Battelle über die Spezifikationen der gesamten Meßtechnik und das Konzept der zentralen Meßdatenerfassungsanlage wurden weitergeführt. Eine erste Untersuchung zur Ermittlung des Zeitverhaltens der Prototyp-Meßstellen liegt vor. Die Ausschreibung der Trägerfrequenzmeßbrücken für die induktiven Wegaufnehmer wurde vorgenommen.

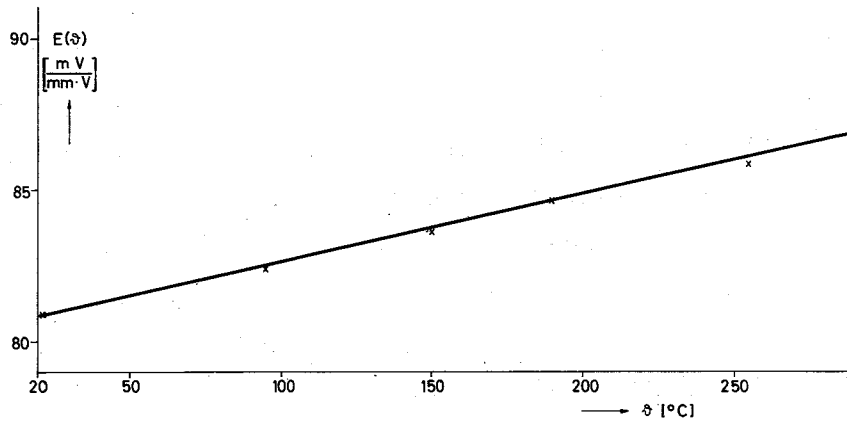
Die im HDR gegebenen Verhältnisse hinsichtlich der Störeinstrahlungen in die Meßkreise wurden in einem Vorversuch unter Benutzung verschiedener Meßkabel mit Originallänge, die vom Raum 1.605 bis zur Meßwarte verlegt waren, überprüft. Das Ergebnis zeigt, daß die vorhandenen Störverhältnisse weit weniger zu Befürchtungen Anlaß geben als ursprünglich erwartet worden war.

Die im Rahmen des Vorhabens 4221 ausgeführten Untersuchungen zur Einstellung der gewünschten thermodynamischen Anfangsbedingungen im Reaktordruckbehälter für die Blowdown-Versuche haben ergeben, daß es sehr wünschenswert ist, die erzielbare Temperaturschichtung in Vorversuchen experimentell zu überprüfen. Hierfür wurden ein Konzept zur Messung der Temperaturverteilung erarbeitet und die für die Ausschreibung und Vergabe dieser Meßeinrichtungen an eine Fremdfirma benötigten Spezifikationen fertiggestellt.

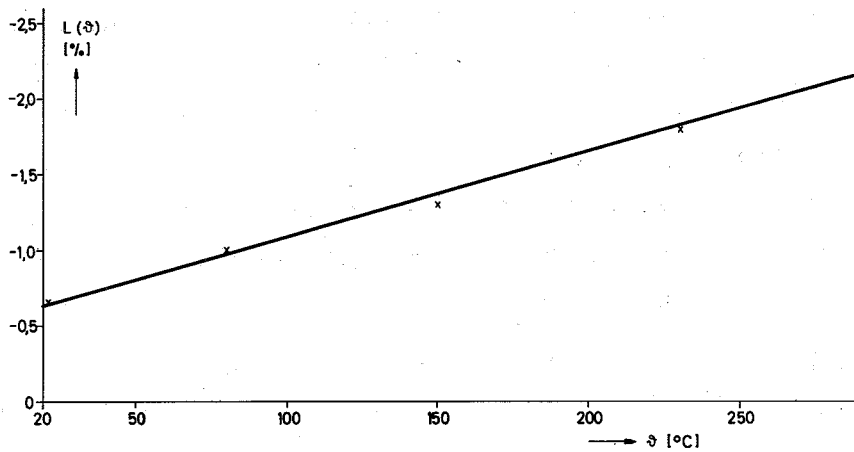
Für die bei den Blowdown-Versuchen auftretenden dynamischen Fehler der Meßsignale, die durch den nicht idealen Frequenzgang der Meßketten bestimmt werden, wurde ein erstes Korrekturprogramm fertiggestellt. Es gestattet, dynamische Meßfehler transienter Meßsignale im Zeitbereich nach Betrag und Phase zu korrigieren.



A: Nullpunktdrift  $N(\Delta, t)$  als Funktion von Temperatur  $\Delta$  und Zeit  $t$



B: Empfindlichkeitsänderung  $E(\Delta)$  als Funktion der Temperatur  $\Delta$



C: Linearitätsänderung  $L(\Delta)$  als Funktion der Temperatur  $\Delta$

Abb. 4222-1: Charakteristische Kurven des induktiven Wegaufnehmers Typ W10TS der Fa. Hottinger

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

#### Einleitung

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

#### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Der Fluiddynamikcode YAQUIR wurde durch ein spezielles Auswertesystem für die HDR-Blowdownversuche ergänzt. Dieses REGENT-Subsystem berechnet und zeichnet die Zeitverläufe der Drucksignale an den verschiedenen Meßstellen, sowie die integrierte Horizontalkraft und das auf die Einspannstelle bezogene Moment der Druckverteilung auf dem Kernmantel. Die Druckverteilung wird graphisch durch Reliefs und Höhenlinien dargestellt (siehe Abb.4223-1). Die Ergebnisse zeigen, daß die wesentliche Kernmantelbelastung durch die Schiefstellung der im Ringraum auf und ab laufenden Wellen entsteht.

Im Hinblick auf die Koppelung mit Strukturmodellen wurde YAQUIR modifiziert (Name des modifizierten Codes: STRUYA). Zur Prüfung des Koppelungsverfahrens wurde eine Koppelung mit zwei primitiven Strukturmodellen mit jeweils nur einem Strukturfreiheitsgrad ausgeführt. Abb.4223-2 zeigt das Ergebnis einer Koppelung von STRUYA mit einem Kesselformelmodell des HDR-Kernmantels bei einem (nur als Testfall gedachten) axisymmetrischen Blowdown nach unten. Erkennbar sind drei Schwingungsvorgänge:

- 1) eine hochfrequente Schwingung des Kernmantels radial gegen das elastische Wasser (512 Hz)



- 2) eine (gegenüber starrer Wand beschleunigte) axiale Druckwellenbewegung im Wasser (120Hz)
- 3) ein axiales Ein- und Ausströmen des (nahezu inkompressiblen) Wassers gegen die Elastizität des Kernmantels (20 Hz)

Die Druckverläufe weichen wesentlich von denen ab, die man für einen <sup>starr</sup> Kernmantel erhält (Abb. 4223-3). Ähnliche Abweichungen wurden auch bei der Koppelung von STRUYA mit einem Balkenmodell des Kernmantels festgestellt. An der Koppelung von STRUYA mit CYLDY2 wird derzeit gearbeitet.

Für den neu zu entwickelnden Systemcode FLUST wurden alle zentralen Systemroutinen codiert und getestet. Die Routinen zur expliziten Phase der Fluidsimulation in komplexen zweidimensionalen Modellen sind zu 80% fertiggestellt.

Aufbauend auf früheren Untersuchungen zu Potentialströmungen wurden mit der Entwicklung eines Programms "FLUX" (Fluid in flexible structure) begonnen. Hiermit wird die Blowdown-Strömung transient und dreidimensional als Potentialströmung gekoppelt mit dem elastisch verformbaren Kernmantel simuliert. Die Dynamik des Kernmantels wird dabei mit CYLDY2 beschrieben. Hiermit wurden zunächst die Eigenfrequenzen des Systems mit und ohne Fluid berechnet. Typische Werte sind ( $\nu_0$  im Vakuum,  $\nu_1$  in Wasser [1/s]) 0-ter Umfangsmode ("Atmungsmode")  $\nu_0 = 560$ ,  $\nu_1 = 33$ , 1-ter Umfangsmode ("Biegemode")  $\nu_0 = 20$ ,  $\nu_1 = 32,7$ .

Die grundlegenden Vorgänge bei der Ausbreitung einer einphasigen Entspannungswelle beim Blowdown wurden mit Hilfe der Flachwasser-Analogie untersucht. Es wurde gefunden, daß hierbei nirgends Drucksprünge (Stoßwellen) auftreten. Die zweiphasige Strömung in der Nähe des Blowdown-Stutzens kann mit SOLA-DF berechnet werden. Es handelt sich hierbei um ein in Los Alamos entwickeltes Rechenverfahren, das gegenwärtig im IRE neu programmiert wird. Zur Bestimmung der eingehenden Modellparameter für Phasenschlupf und Verdampfungsrate werden Experimente geplant.

Der Strukturmechanikcode CYLDY2, der zur Analyse des Kernmantels eingesetzt werden soll, wurde entwickelt und getestet. CYLDY2 liefert die dynamische Antwort einer einseitig eingespannten, am anderen Ende ausgesteiften Zylinderschale unter nichtrotationssymmetrischer Belastung. Die Lösung wird auf halbanalytischem Wege erreicht. Das dynamische Schalenverhalten wird durch Eigenfunktionen beschrieben, die in Anlehnung an die Biegung eines trägen Balkens gewonnen wurden. Die Überlagerung einer statischen Lösung gestattet die Erfüllung der

Anfangsbedingungen und liefert die Amplituden der Eigenfunktionen. Die Ergebnisse von Testrechnungen für zwei auf einen relativ kleinen Schalenbereich konzentrierte Belastungen, die zum Zeitpunkt  $t=0$  schlagartig aufgebracht werden, sind in Abb. 4223-4 dargestellt. Gegenüber den bekannten Finite-Elemente-Codes ergeben sich erhebliche Vorteile bezüglich der örtlichen Auflösung der Ergebnisse und bezüglich der Rechenzeit. Der letztere Punkt ist von besonderer Wichtigkeit, da bei gekoppelten fluid-struktur-dynamischen Rechnungen der Lösungsalgorithmus für die Schale sehr oft durchlaufen werden muß.

Eine Einrichtung zur schnellen Druckentlastung eines Autoklaven (Durchmesser 300 mm, Länge 2000 mm) wurde entwickelt und bestellreife Konstruktionsunterlagen wurden angefertigt. Die Einrichtung besteht aus einem pneumatisch angetriebenen Hammer, der den Deckel des Autoklaven in Bruchteilen einer Millisekunde soweit anhebt, daß der Flüssigkeitsdruck im oberen Bereich des Autoklaven schlagartig zusammenbricht und eine relativ scharfe ebene Druckentlastungswelle sich in Behälterlängsrichtung ausbreitet. Eine erste Serie von Versuchen zum Studium der Fluid-Struktur-Wechselwirkung (elastische Platte/Fluidschicht, konzentrischer Zylinder/Fluidschicht) wurde konzipiert.

Die Technik von Analogieexperimenten im Flachwasserbett wurde erprobt. Die Versuche bestätigen den außerordentlich flachen Charakter der Druckentlastungswelle.

#### Geplante Weiterarbeit

Der Strukturdynamikcode CYLDY2 wird durch einen Modul erweitert, der aus den transienten Schalenverformungen die zugehörigen transienten Spannungsverteilungen berechnet. Anschließend werden Ergebnisvergleiche mit dem Finite-Elemente-Code STRUDL/DYNAL durchgeführt. Möglichkeiten der Erweiterung des Codes CYLDY2 zur Berücksichtigung nichtlinearelastischen Werkstoffverhaltens werden untersucht.

Der Autoklav mit der Einrichtung zur schnellen Druckentlastung wird bereitgestellt, und geeignete Versuchseinbauten werden entworfen und beschafft. Mit der Durchführung der vorgesehenen Laborversuche wird begonnen. Weitere Laborversuche zur Untersuchung stark beschleunigter 2-phasen-Strömungen werden konzipiert. Flachwasserexperimente in HDR-ähnlicher Geometrie werden zur Verifizierung des Codes YAQUIR herangezogen.

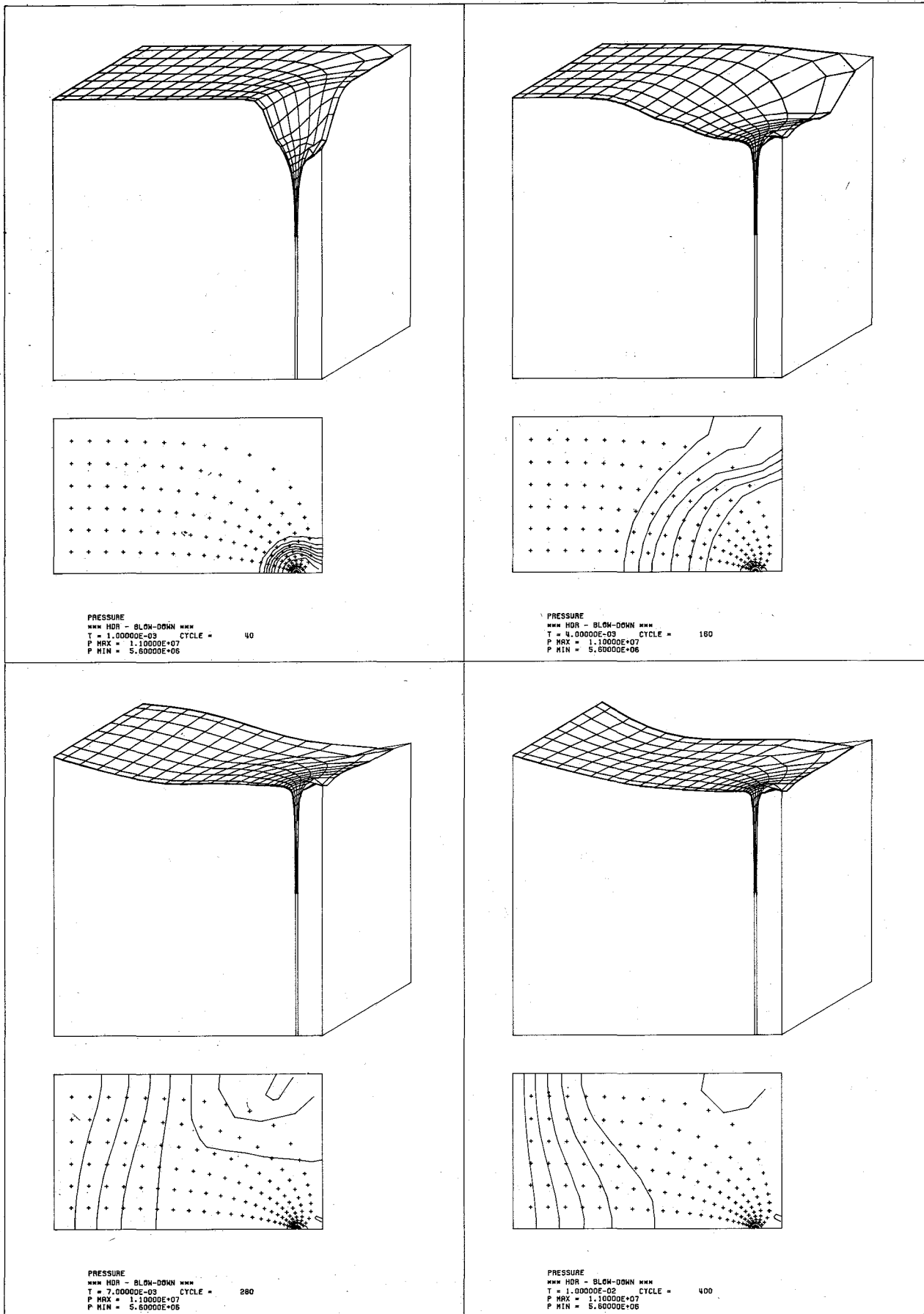


Abb. 4223-1: Druckverteilung im Ringraum des HDR unter verschärften Blowdownbedingungen zu verschiedenen Zeiten.

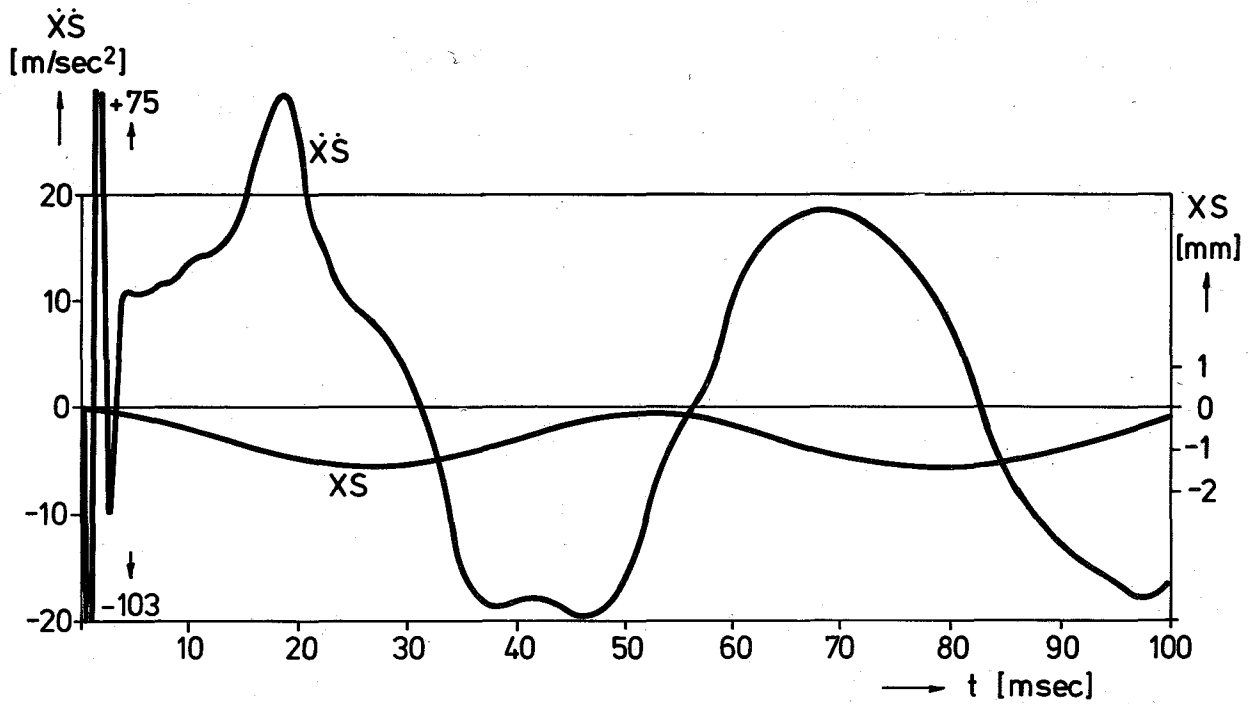


Abb.4223-2: Beschleunigung ( $\ddot{X}_S$ ) und Bewegung ( $X_S$ ) des Zylindermodells "Kesselformel" in radialer Richtung beim axisymmetrischen Blowdown nach unten.

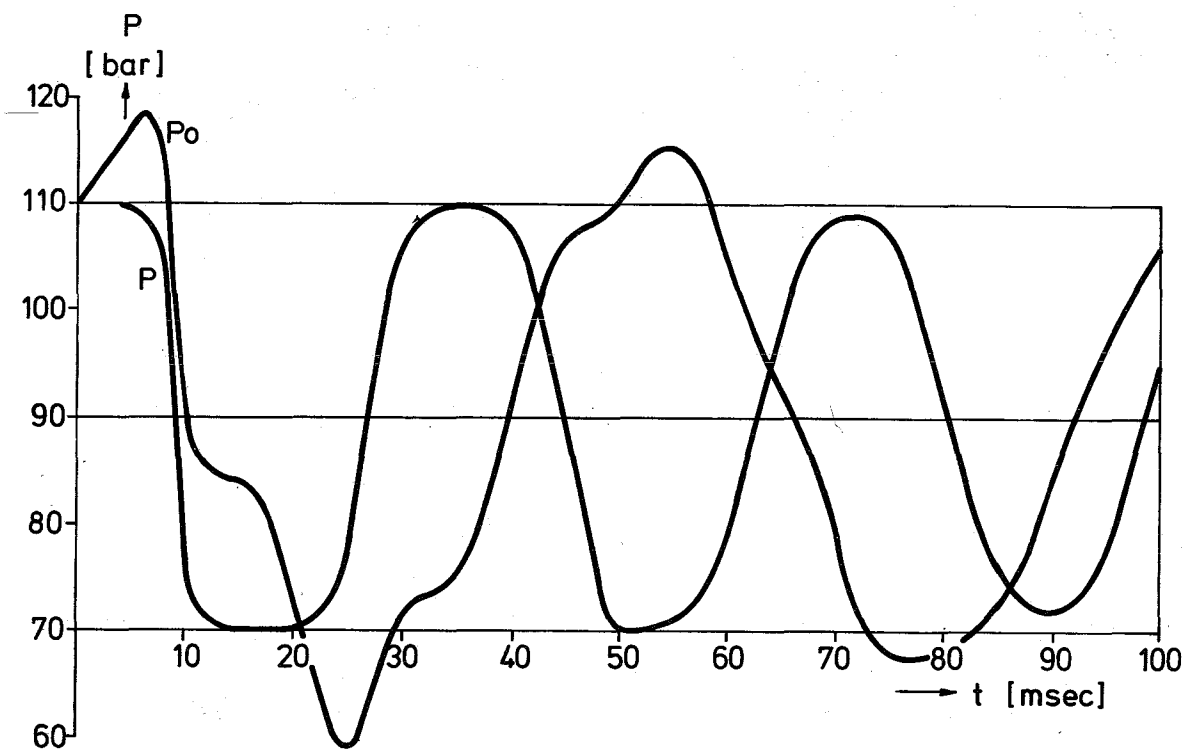


Abb.4223-3: Druckverlauf am oberen Ende des Ringraumes beim axisymmetrischen Blowdown mit ( $P$ ) und ohne ( $P_o$ ) Rückwirkung des Strukturmodells "Kesselformel".

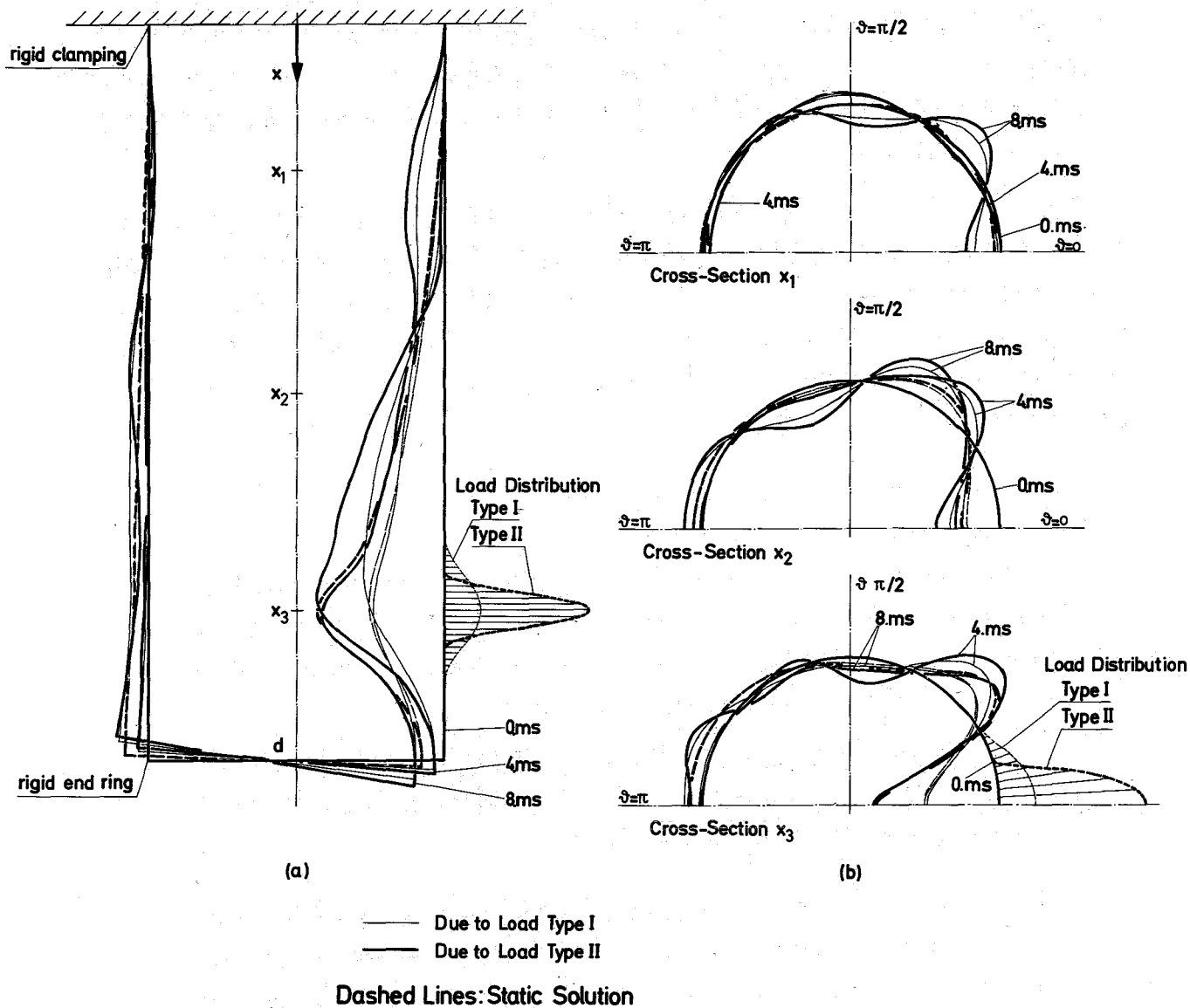


Abb. 4223-4: Kernmantel-Verformung berechnet mit CYLDY2 für eine plötzlich aufgebrachte Belastung.

4230 Notkühlung von LWR

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

4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen

(R.Meyder, IRE; U.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 wurde die Dokumentation von SSYST in mehreren Stufen (1 - 4) weiter aufgebaut. Die Vergleichsrechnungen zwischen SSYST-1 und FRAP-T2 wurden fortgesetzt. Für einen verbesserten Deformationsmodul wurden Modelle und Lösungsverfahren entwickelt. Der Flutmodul ZETHYF wurde weiterentwickelt. Für einen DWR-Brennstab wurden Blowdown- und Flutrechnungen durchgeführt.

1. Dokumentation von SSYST

(W.Gulden)

Um dem Benutzer sowohl einen guten Überblick über den aktuellen Stand der SSYST-Moduln als auch einen detaillierten Einblick in die physikalischen Modelle der Moduln zu geben, wurde die SSYST-Dokumentation in mehreren Stufen aufgebaut.

1.1 Die Beschreibung von SSYST-1 1 enthält einen Überblick über die Systemphilosophie, eine Darstellung aller SSYST-1-Moduln und ein Anwendungsbeispiel.

1.2 Der Bericht über die Eingabebeschreibung 2 enthält u.a. die einzelnen Eingabebeschreibungen für alle Moduln und die für CDC und IBM benötigten Steuerkarten für Routinerechnungen sowie die dem Modulprogrammierer zur Verfügung gestellten Unterprogramme des Systemkerns zur Datenverwaltung.

1.3 Die Überblicksdokumentation gibt im Gegensatz zu den vorher zitierten ausführlichen Dokumentationen 1 u. 2 über SSYST-1 einen knappen Überblick (ca. 6 - 8 Seiten) über die momentan installierten Moduln. Sie ist auf der permanenten Datei gespeichert und kann von jedem Benutzer mit dem SSYST-Befehl (1 Datenkarte)

DR-BCD

1000

3. Spalte

48. Spalte

ausgedruckt werden.

1.4 Die Aktuellen Hinweise für den Benutzer werden bei jedem SSYST-Lauf vor Beginn der Rechnung ausgedruckt. Sie informieren z.B. über Änderungen in den Eingabedaten und Erweiterungen in den Moduln.

1.5 Der Bericht über die speziellen Eigenschaften des IBM-Systemkerns [ 3 ] beschreibt u.a. das Anladen von Testmoduln, die Veränderung der Größe des Arbeitsspeichers und die Integration neuer Moduln.

Die Eigenschaften des CDC-Systemkerns sind in [ 4 ] enthalten.

Die beiden letztgenannten Berichte sind vorwiegend für Spezialisten gedacht, die das System warten; für den normalen Anwender sollten die Berichte [ 1 ] und [ 2 ] ausreichende Information bereitstellen.

## 2. Vergleichsrechnungen SSYST-1 und FRAP-T (M. Mesina)

Im Berichtszeitraum wurden verschiedene SSYST-Moduln getestet und zur Nachrechnung des stationären Anfangszustands für ein weiteres FRAP-Standardproblem<sup>+) herangezogen. Bei diesen Rechnungen wurden die Moduln WUEZ, HYDRA, STT-2D, SPAGAD und STADEF iterativ eingesetzt. Als Kriterium für den Abbruch der Iterationsfolge wurde der relative Fehler der Temperaturen in Maschenmitten angenommen. Die berechneten Temperaturen und  $\alpha$ -Zahlen in Kühlmittel und Spalt generieren Wärmeströme, die innerhalb jeder Axialzone des Brennstabs der produzierten Wärmemenge entsprechen. Die durchgeführten Testrechnungen bewiesen die Zuverlässigkeit der angewandten Moduln für stationäre Rechnungen.</sup>

Aufgrund der noch laufenden transienten Rechnungen für dieses FRAP-T-Standardproblem wurden bestimmte Einschränkungen für die Anwendung der jetzigen Version des Moduls STADEF festgestellt. Z.B. kann bei höheren

<sup>+) PBF-Power Cooling Mismatch Test</sup>

Hüllrohrtemperaturen (über 1500 K) zur Zeit die Kriechdehnung aus numerischen Gründen noch nicht mitberücksichtigt werden.

Um das Langzeitverhalten des Brennelements (Einfluß des Abbrandes) zu beschreiben, wurde auf der CDC 6600 eine Version des Programms FRAP-S implementiert und für Testrechnungen verwendet. Die bisherigen Ergebnisse sind qualitativ als gut zu bezeichnen. Ein Teil der Ergebnisse ist auch quantitativ nachprüfbar (Vergleich der aus  $\alpha$ -Zahlen und Temperaturen berechneten Wärmeströmen mit produzierten Wärmemengen in einzelnen Axialzonen). Um noch bessere Vergleichsmöglichkeiten zu gewinnen, wurde mit der Nachrechnung eines SATURN-L- [5] Testbeispiels begonnen.

### 3. Entwicklung eines verbesserten Deformationsmoduls (M. Schindler)

Von den Erfahrungen mit dem bisher verwendeten Deformationsmodul STADEF ausgehend, wurden Modelle und Lösungsverfahren für einen verbesserten Deformationsmodul in SSYST-2 entwickelt. Die zunächst hauptsächlich der Dehnungsberechnung der Brennstabhülle geltenden Modellverbesserungen lassen sich in folgenden Punkten zusammenfassen:

3.1 In axialer Richtung brauchen Brennstoff- und Hüllrohrbereich nicht übereinzustimmen. Unterschiedliche Axialdehnung von Brennstoff und Hülle werden berücksichtigt. Damit läßt sich das jeweilige Volumen der Spaltgasplena für die Berechnung des Spaltgasdrucks korrekt ermitteln.

3.2 Brennstoff- und Hüllrohrdehnung sind auch in axialer Richtung gekoppelt. Solange ein durchgehender Spalt zwischen Brennstoff und Hülle vorhanden ist, erfolgt die Kopplung über die Kraft der Haltefeder im oberen Spaltgasplenum. Tritt Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle auf, so wird der untere Stabbereich - unterhalb des obersten Segements mit Kontakt - gesondert betrachtet. Dabei kann sowohl der Fall vorliegen, daß durch größere axiale Brennstoffdehnung das Hüllrohr zusätzlich gestreckt wird, so daß die Längen in diesem Bereich übereinstimmen, als auch daß durch eine stärkere Hüllrohrdehnung Lücken zwischen den Pellets der Brennstoffsäule entstehen.



Es wird weiter der Fall betrachtet, daß die aus dem radialen Kontaktdruck herrührende Haftreibungskraft nicht ausreicht, die axialen Kräfte aufzunehmen, so daß axiales Gleiten eintritt. Die Kräfteverhältnisse sind dann ähnlich denen, als ob ein Spalt vorhanden wäre.

3.3 Für die Berechnung der radialen Dehnung wird die vorgegebene Maschenstruktur berücksichtigt und nicht mehr - wie im Rahmen der bisher verwendeten Schalentheorie - nur eine Quasi-Masche zur Spannungsberechnung herangezogen. Unterschiedliche thermische und plastische Dehnungen in den einzelnen radialen Maschen sind zugelassen.

Der Algorithmus erlaubt auch unterschiedliche elastische Konstanten in den radialen Maschen, so daß eine Erweiterung auf geschichtete Strukturen (Oxidschichten) möglich ist.

3.4 Die permanente Dehnung kann sowohl nach einem zeitabhängigen Gesetz über Kriechraten als auch einem zeitunabhängigen Plastizitätsgesetz mit Verfestigungsansatz beschrieben werden. Je nach Temperatur- und damit Phasenbereich ist die Wahl des einen oder anderen Ansatzes oder eine Überlagerung beider möglich.

3.5 Das in STADEF bewährte Vorgehen, große Verformungen dadurch korrekt zu erfassen, daß die Spannungen auf die jeweils aktuelle Geometrie bezogen sind, wird grundsätzlich beibehalten. Wegen der Hinzunahme der zeitunabhängigen Plastizität sowie der verbesserten Berücksichtigung der mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle genügt jedoch eine einfache explizite Zeitintegration nicht mehr. Die Rechnung innerhalb jedes Zeitschritts erfolgt deshalb nach einem iterativen expliziten Verfahren.

#### 4. Entwicklung des Flutmoduls ZETHYF (R. Schützle)

Bei der Konzeption eines Flutmoduls wurde von Anfang an eine direkte Kopplung zwischen Kühlmittelhydraulik und Wärmeleitung vorgesehen. Bei ersten im Berichtszeitraum durchgeführten Testrechnungen ergaben sich Stabilitätsprobleme mit der in SSYST üblichen Darstellung der Kühlmittel-

telrandbedingungen. In dieser Darstellung wurden nur Wärmeströme betrachtet. Die Wandtemperatur wurde nachträglich interpoliert. Bei den in der Flutphase benötigten kleinen Maschenvolumina wurde dieses Verfahren instabil.

Dieses Problem wurde beseitigt durch die Einführung einer zusätzlichen Masche, mit der die Wandtemperatur (ähnlich wie im Modul ZETHYD [6]) direkt berechnet wird.

Der Modul ZETHYF berücksichtigt im Brennstab zweidimensionale Wärmeleitung (r,z-Geometrie). Die aus der Fourier-Gleichung abgeleiteten Differenzgleichungen werden nach dem ADI-Verfahren gelöst. Hierauf sei nicht näher eingegangen.

Die Temperatur der neu eingeführten Randmasche wird nun aus der Beziehung

$$-\lambda \frac{\partial T_w}{\partial r} = \alpha(T_w - T_k)$$

mit  $\lambda$  - Wärmeleitfähigkeit  
 $\alpha$  - Wärmeübergangskoeffizient  
 $T_w$  - Wandtemperatur  
 $T_k$  - Kühlmitteltemperatur

berechnet. Diese Gleichung wird in das Lösungsschema für die radiale Lösung der 2D-Wärmeleitung eingebaut und liefert die Wandtemperatur  $T_w$ .

Einen weiteren Schritt bei der Erstellung von ZETHYF stellte die Einführung einer instationären Energiebilanz im Kühlmittel dar. Dabei traten Stabilitätsprobleme auf, die auf das Fortschreiten des Wasserspiegels ( $E_{flut}$ ) zurückzuführen sind und das Verhältnis von Zeitschrittweite  $\Delta t$  und axialer Maschengröße  $\Delta z$  mit

$$W_{flut} = \frac{\Delta z}{\Delta t}$$

vorschreiben. Da in ZETHYF nun verschiedene Größen von  $\Delta z$  auftreten, kann diese Bedingung nicht erfüllt werden. Deshalb wurde so vorgegangen, daß die Energiebilanz oberhalb und unterhalb des Wasser- bzw. Gemischspiegels getrennt gelöst wird. Erste Ergebnisse mit einem einfachen Modell zeigen, daß damit eine stabile Lösung ermöglicht wird. Eine Verbesserung der Darstellung der jeweiligen Randbedingungen muß jedoch noch erfolgen.

## 5. SSYST-Rechnungen für einen DWR

(R.Schützle)

Ausgehend von früheren Rechnungen mit SSYST für einen DWR-Brennstab wurden Blowdown- und Flutrechnungen durchgeführt, um das Programmsystem SSYST-1 im Zusammenhang zu testen.

Der Anfangszustand des Brennstabs wurde mit STT-2D, STADEF und SPGAD aus Daten für den kalten Stab iteriert. In der sich anschließenden Blowdown-Phase steigen die Hüllrohrtemperaturen vom stationären Zustand aus infolge schlechten Wärmeübergangs rasch an und erreichen 1000 K (727 °C) bzw. 1207 K (934 °C) beim mittleren bzw. Heißstab ( $F_q = 2,1$ ) nach 9 s (Abb. 4231-1). Zu diesem Zeitpunkt steht das Hüllrohr bereits unter Innendruck, so daß beim Heißstab eine Dehnung von etwa 8,4 % auftritt (s. Abb. 4231-2).

Danach fallen die Temperaturen und das Aufdehnen kommt zum Stillstand, bis zum Wiederauffüllen die Temperaturen erneut ansteigen. Der Heißstab dehnt sich und perforiert unter Zugrundelegung eines vorläufigen, rein empirischen Berstkriteriums /15/ in diesem Beispiel bei einer Temperatur von 1150 K nach 37 s. Die erreichte Enddehnung beträgt etwa 37 %. Bedingt durch den großen Spalt zwischen Brennstoff und Hülle verlangsamt sich die Aufheizung.

Nach 50 s ist das untere Plenum aufgefüllt, der Wärmeübergang verbessert sich und die Temperaturen sinken. Die Benetzungsfront erreicht die Stabmitte (s. Abb. 4231-1) nach 100 s. Damit gleicht sich die Hüllrohrtemperatur schnell der Kühlmitteltemperatur an.

Es ist zu beachten, daß nur sehr wenigen Stäben (< 5 %) des Reaktorkerns rechnerisch ein Heißkanalfaktor von 2,1 zugeordnet werden kann. Die Maximaltemperatur aller anderen Stäbe liegt bis zu einigen Hundert °C tiefer als die des Heißstabes. Für den mittleren Stab zeigt sich, daß dieser keine nennenswerte Verformung nach Ende des Störfalls aufweist.

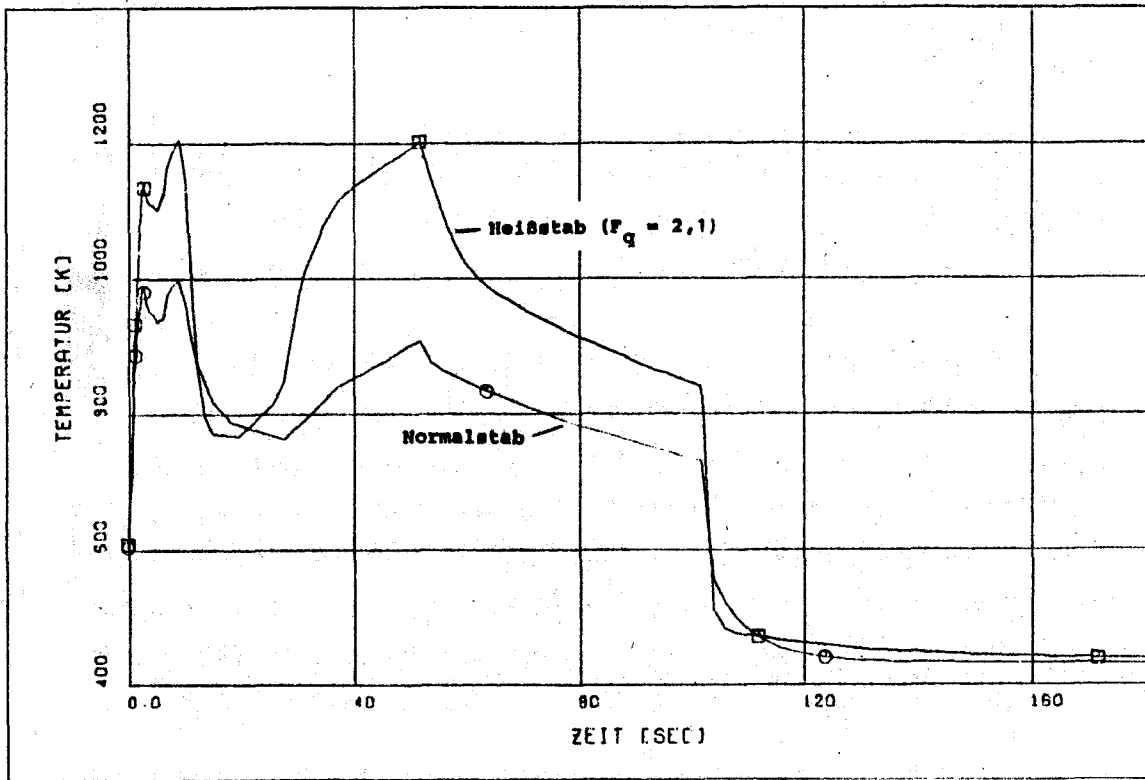


Abb. 4231-1: Hüllrohrtemperaturverlauf für einen DWR-Brennstab während eines Kühlmittelverluststörfalls

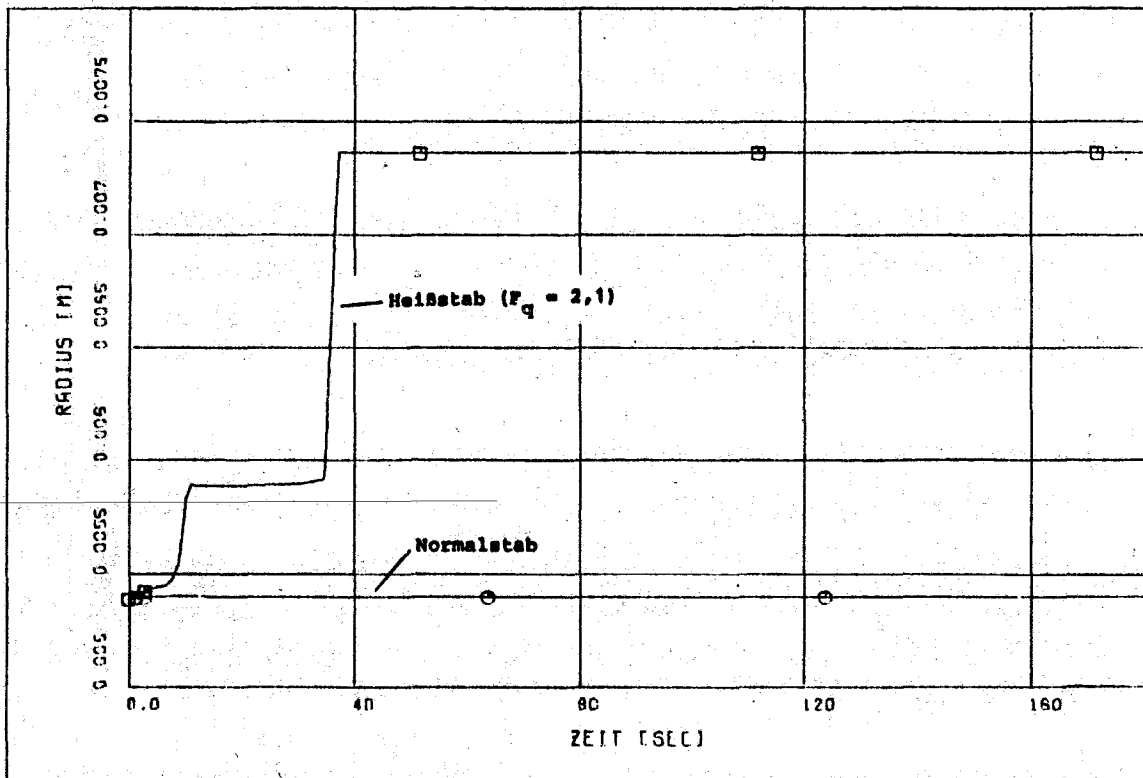


Abb. 4231-2: Verlauf der Hüllrohrradien eines DWR-Brennstabs während eines Kühlmittelstörfalls

## 6. Modellmäßige Erfassung von chemischen und mechanischen Eigenschaften von Zry

(S.Raff)

### 6.1 Konstanten für die Sauerstoffdiffusion

Mit dem Programm OPAL [7] wurden Diffusionskonstanten der Phasen Oxid und  $\alpha$  für Zry-4-Hüllrohrmaterial bestimmt [8]. Den Auswertungen liegen Meßreihen des Schichtenwachstums der Phasen Oxid und  $\alpha$  sowie der Gewichtszunahme isothermer Oxidationsversuche in Dampf-atmosphäre im Temperaturbereich  $900 \leq T \leq 1300$  °C an drucklosen Zry-4-Hüllrohrproben (DWR-Spezifikation) zugrunde, die am IMF<sup>x</sup> der GfK und am ORNL gewonnen wurden.

Die Auswertung erfolgte getrennt nach IMF-Daten (zweiseitige Oxidation) und ORNL-Daten (nur äußere Oxidation). Die beiden Meßreihen decken nur teilweise denselben Zeitbereich ab. Während am ORNL bei allen Versuchen die Meßzeiten so eingestellt wurden, daß etwa gleiche Schichtstärken erzielt wurden (ca. 50  $\mu\text{m}$ ), wurde am IMF an allen Temperaturpunkten mit gleicher Zeitdauer oxidiert. Dieser Umstand hat zur Folge, daß bei Temperaturen unter 1100 °C die Meßzeiten der IMF-Daten kleiner, über 1100 °C größer sind als diejenigen am ORNL. Demzufolge kommt es bei den IMF-Versuchen teilweise zu großen Schichtstärken ( $\beta$ -Phase wird teilweise ganz aufgezehrt) und als Begleiterscheinung zu  $\alpha$ -Einwachsungen ins  $\beta$ -Gebiet. Bei den ORNL-Messungen sind  $\alpha$ -Einwachsungen nicht festgestellt worden und bei der dort erreichten oxidativen Durchdringung nach Beobachtungen am IMF auch nicht zu erwarten.

Die mit OPAL bestimmten Diffusionskonstanten sind in das Arrheniusdiagramm (Abb. 4231-3) eingetragen. Für das Oxid läßt sich eine experimentelle Temperaturabhängigkeit nach der Beziehung  $D = D_0 \exp(-Q/RT)$  nur im Temperaturbereich 1000-1300 °C finden. Die Werte bei 900 °C weichen von dieser Geraden stark ab, so daß bei tieferen Temperaturen eine veränderte Temperaturabhängigkeit vermutet wird, die jedoch durch weitere Messungen bei tieferen Temperaturen noch bestimmt werden muß.

---

<sup>x</sup> bezüglich der IMF-Daten handelt es sich um vorläufige Werte

Für die Diffusionskonstanten der  $\alpha$ -Phase läßt sich für den gesamten Temperaturbereich (900-1300 °C) eine Arrheniusgerade finden. Die Auswertung der IMF-Daten erfolgte mit und ohne Berücksichtigung der  $\alpha$ -Einwachsungen ins  $\beta$ -Gebiet. Bei der Festlegung der Ausgleichsgeraden wurden beide Auswertungen berücksichtigt. Tab. 4231-1 zeigt die jeweils ermittelten Aktivierungsenergien sowie die dazugehörenden Vorkonstanten.

Ein Vergleich der Auswertungen der IMF-Daten und der ORNL-Daten zeigt mit abnehmender Temperatur größer werdende systematische Abweichungen: die ORNL-Daten ergeben höhere bzw. niedrigere Werte der Diffusionskonstanten Oxid bzw.  $\alpha$ . Die Ursache davon ist noch nicht geklärt.

## 6.2 Norton-Parameter

Eine Auswertung von Zugversuchen im Temperaturbereich  $600 \leq T \leq 800$  °C bei Verformungsgeschwindigkeiten von  $4 \cdot 10^{-4} \leq \dot{\epsilon} \leq 1,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$  ergab eine Brauchbarkeit des Norton'schen Kriechansatzes

$$\dot{\epsilon} = A \sigma^n e^{-Q/RT}$$

im Temperaturbereich  $600 \leq T \leq 750$  °C bis zu einer Dehnung von etwa 20 %.

Mit den Parametern  $n = 7,14$ ,  $Q = 3,175 \cdot 10^5 \text{ [}^{-\text{W}}\text{s/mol]}_7$ ,  $A = 0,77 \cdot 10^{-42} \text{ [}^{-\text{N/m}^2}\text{]}_7^{-n}$  lassen sich die Zugversuche im Temperaturbereich  $600 \leq T \leq 750$  °C gut verifizieren. Ein Vergleich der stress sensitivity  $m = \frac{1}{n}$  mit am IMF ermittelten Werten  $[\bar{9}]_7$  zeigt gute Übereinstimmung. Die hier ermittelte Aktivierungsenergie ist größer als die in  $[\bar{10}]_7$  mit ca.  $1,3 \cdot 10^5 \text{ Ws/mol}$  angegebene, die jedoch nach Angabe jener Autoren zu niedrig ist. Eine signifikante Abhängigkeit der stress-sensitivity in den angegebenen Bereichen von der Temperatur und der Verformungsgeschwindigkeit wurde nicht festgestellt.

Die Übertragbarkeit dieser anhand von Zugversuchen gewonnenen Stoffparameter auf Rohrgeometrie wurde durch Verifizierung von Berstversuchen (PNS 4238) geprüft. Abb. 4231-4 zeigt den Vergleich der unter der Annahme stets vorhandener Gleichmaßdehnung in Umfangsrichtung gewonnenen Umfangsdehnungen mit dem gemessenen Dehnver-

lauf. Nach [11] traten bei diesen Versuchen Schwankungen der Temperatur in azimuthaler Richtung von bis zu 100 °C auf, und die gemessene Temperatur ist  $\leq$  der maximalen Temperatur in Umfangsrichtung. Bei Anhebung der vorgegebenen Temperatur um 40 °C ergibt sich in Betracht der Vereinfachungen des hier verwendeten Hüllrohrmodells eine gute Übereinstimmung.

Ab Temperaturen  $> 750$  °C, also bereits vor dem Phasenumwandlungsbereich von  $\alpha \rightarrow \beta$ , zeigt sich ein verändertes Materialverhalten, das sich durch einen einfachen Ansatz nach Norton nicht mehr beschreiben läßt.

Die hier mitgeteilten Stoffgesetzkoeffizienten sind insofern als vorläufig zu betrachten, als eine weitere Auswertung in diesem Temperaturbereich bei wesentlich verbreiteter Datenbasis erfolgen soll.

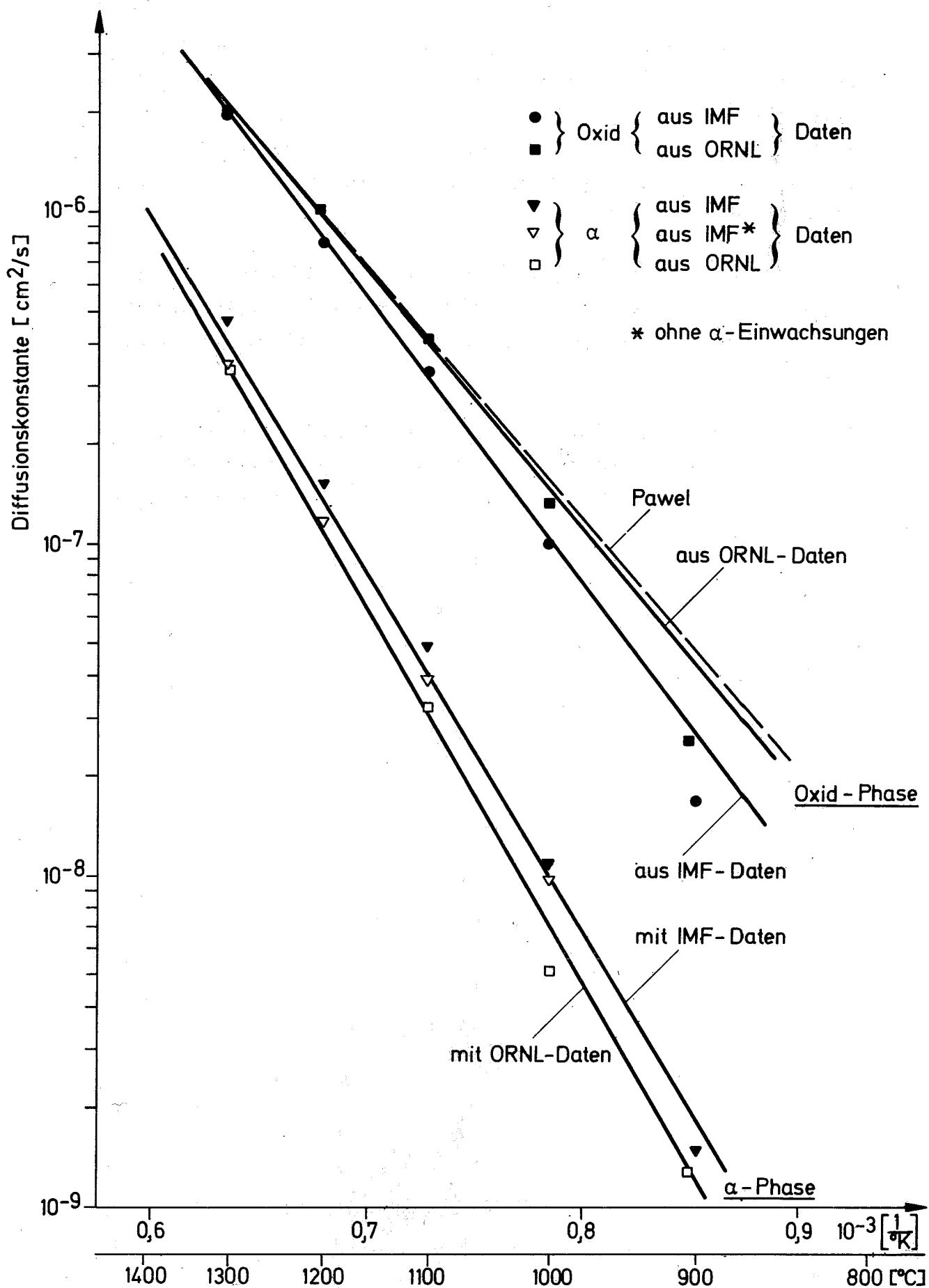


Abb. 4231-3: Diffusionskonstanten Zircaloy-4 für die Phasen Oxid und α



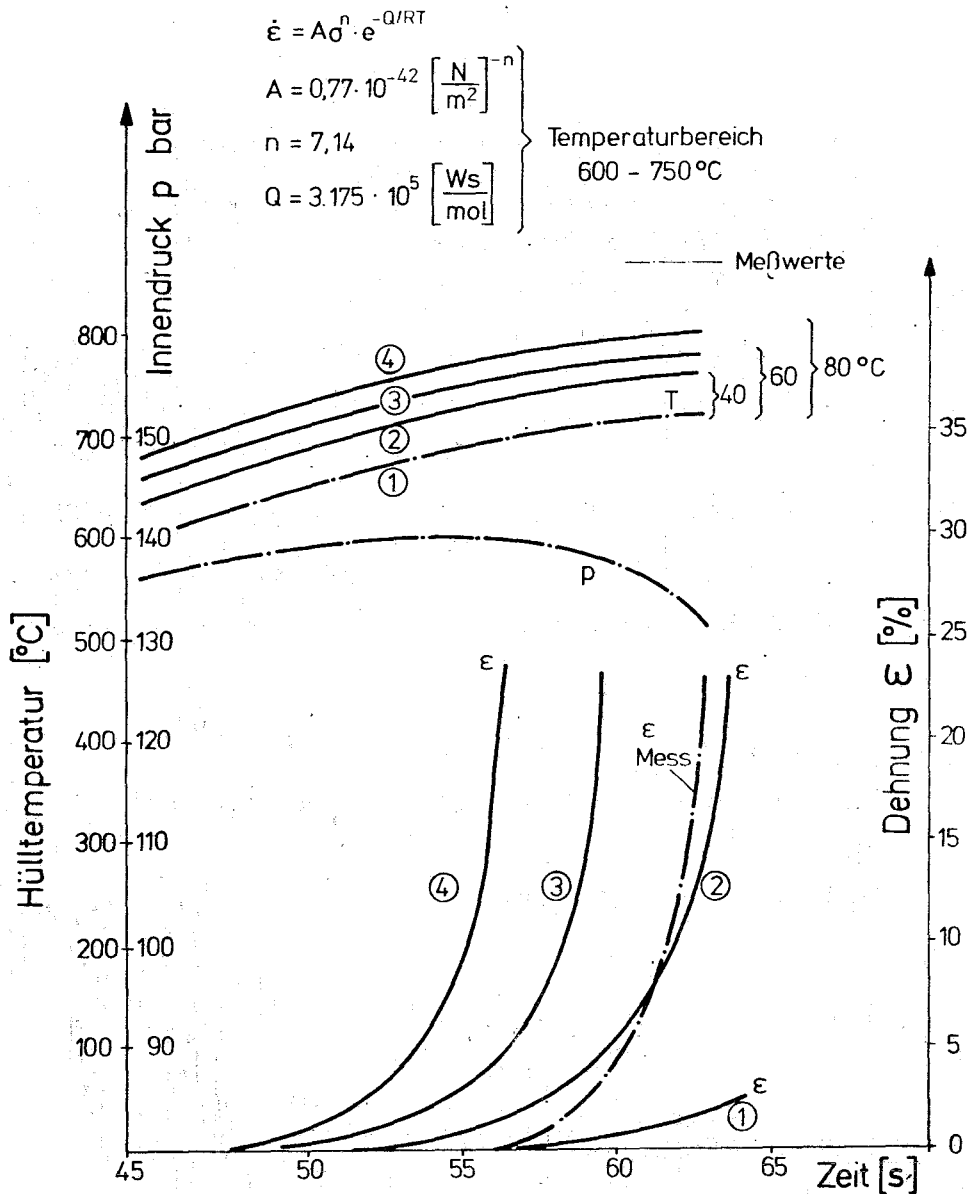


Abb. 4231-4:

Nachrechnung eines Berstversuchs (PNS 4238)  
 (Voraussetzung: Gleichmaßdehnung)  
 mit Nortonkoeffizienten aus Zugversuchen  
 für den Temperaturbereich 600 - 750 °C

Materialansatz:

$$D = D_0 \exp (-Q/RT)$$

Phase	$D_0$ [cm <sup>2</sup> /g]	Q [cal/mol]	Temperatur- bereich [°C]	verwendete Meßdaten
Oxid	0.435	38747.	1000-1300	IMF
α	2.5178	48936.	1000-1300	IMF (Daten mit und ohne α-Einwach- sungen)
Oxid	0.21686	36045.	1000-1300	ORNL
α	3.5858	50766.	900-1300	ORNL

Tab. 4231-1: Temperaturabhängige Diffusionskoeffizienten  
für Oxid- und α-Phase von Zircaloy-4-Hüllrohr-  
material  
Temperaturbereich: 1000-1300°C

## 7. Probabilistische Analyse des Brennstabverhaltens im Falle eines hypothetischen DWR-LOCA

(W. Sengpiel)

Die Untersuchungen probabilistischer Methoden für deren Einsatz zur Analyse des Brennstabverhaltens unter LOCA-Bedingungen sind vorläufig abgeschlossen worden. Dabei ist von folgender Aufgabenstellung ausgegangen worden:

1. Berechnung der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Peak Cladding Temperatur für einen Brennstab aus einer charakteristischen "heißen" Klasse.
2. Berechnung der Wahrscheinlichkeit, mit der
  - 2.1 N Stäbe aus einer charakteristischen Stabklasse am Ende eines hypothetischen LOCA geborsten sind,
  - 2.2 in einem Stabverband (z.B. einem Brennelement) Kühlkanalblockaden entstehen können.

Zwei Methoden scheinen zur Lösung dieser Aufgaben geeignet zu sein:

- a) Varianz-reduzierendes Monte Carlo ("Hypercube Sampling" [12]) zur Berechnung der ersten vier Momente der gesuchten Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion u. "Moment Matching" [13]
- b) Response Surface-Methode u. Sampling [14].

Beide Verfahren erfordern die Durchführung von Experimenten (Simulationen) mit dem vorhandenen deterministischen Programmsystem SSYST.

### Zu 1.:

Mit den unter a) und b) angegebenen Verfahren wird die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Peak Cladding-Temperatur in Abhängigkeit von statistisch verteilten Einflußvariablen (s. Tab. 4231-2) berechnet. Damit ist es möglich, die Wahrscheinlichkeit  $p(T \geq \hat{T})$ , mit der eine Grenztemperatur  $\hat{T}$  erreicht bzw. überschritten wird (z.B.  $\hat{T} = 1200 \text{ }^\circ\text{C}$ ), zu ermitteln.

Besteht die betrachtete Stabklasse aus  $N_L$  Stäben, so ist die Wahrscheinlichkeit, daß davon N Stäbe eine Grenztemperatur  $\hat{T}$  überschreiten entsprechend einer Binomialverteilung:

$$P_{T \geq \hat{T}}(N) = \binom{N_L}{N} (p_{T \geq \hat{T}})^N (1 - p_{T \geq \hat{T}})^{N_L - N}$$

mit dem Erwartungswert

$$E \{ N \} = N_L \times p_{T \geq \hat{T}}$$

und der Varianz

$$\sigma^2(N) = N_L \times p_{T \geq \hat{T}} (1 - p_{T \geq \hat{T}})$$

Zu 2.1:

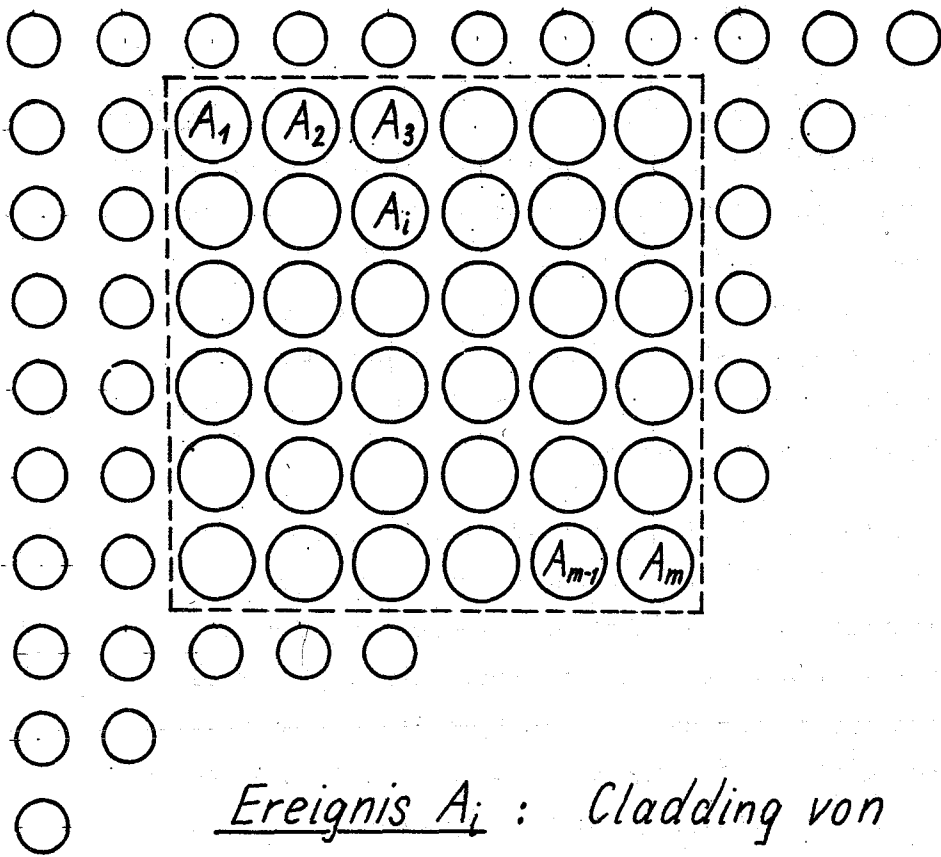
Über ein experimentell gewonnenenes Versagenskriterium (Berstwahrscheinlichkeit des Hüllrohres als Funktion des aktuellen Zustandes Spannung/Dehnung, Temperatur, Oxydationsgrad u.a.) wird die Versagenswahrscheinlichkeit eines Hüllrohres während des Störfallablaufs ermittelt. Simulationen führen über die Methoden a) und b) zu einer Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion für die Versagenswahrscheinlichkeit eines charakteristischen Stabes aus der betrachteten Stabklasse. Der Erwartungswert der Versagenswahrscheinlichkeit  $E \{ p^v \}$  kann als charakteristische Versagenswahrscheinlichkeit  $p_L^v$  für die Stabklasse angesehen werden. Damit läßt sich die Wahrscheinlichkeit, daß aus der Stabklasse (bestehend aus  $N_L$  Stäben)  $N$  Stäbe versagen, entsprechend dem Vorgehen unter 1. berechnen.

Zu 2.2:

Im Hinblick auf die (z.Zt. nicht auszuschließende) Entstehung von Kühlkanalblockaden durch umfangreiches lokales Hüllrohrdehnen in einem Stabverband (z.B. einem Brennelement) soll untersucht werden, mit welcher Wahrscheinlichkeit Kühlkanalblockaden auftreten können.

Zunächst wird, ähnlich wie bei 1. und 2.1 über Simulationen mit SSYST, berechnet, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Hüllrohr aus der charakteristischen Stabklasse an einer bestimmten axialen Position  $\bar{z}$  eine Grenzdehnung  $\hat{\epsilon}$  erreicht oder überschreitet;  $\hat{\epsilon}$  sei die Hüllrohrdehnung, die, wenn sie von einer größeren Zahl Brennstäben an der gleichen axialen Position erreicht wird, zur Blockade führt (z.B.  $\hat{\epsilon} = 60 \%$ ). Werden die Ereignisse  $\epsilon \geq \hat{\epsilon}$  für jeden Stab aus dem betrachteten Stabverband mit  $A_i$ ,  $i = 1 \dots m$  bezeichnet, dann gilt:

$$p(A_1 \cap A_2 \cap A_3 \dots \cap A_m)_{z=\bar{z}} = \left\{ p(A_1) \cdot p(A_2 | A_1) \cdot \dots \cdot p(A_m | A_1 \cap A_2 \dots \cap A_{m-1}) \right\}_{z=\bar{z}}$$



Ereignis  $A_i$  : Cladding von Stab  $i$  erreicht  
 eine Dehnung  $\epsilon \geq \hat{\epsilon}$  an der axialen Position  $\bar{z}$   
gesucht :  $p(A_1 \cap A_2 \cap A_3 \dots \cap A_m)_{z=\bar{z}}$

Die Wahrscheinlichkeit, daß  $m$  Stäbe von den  $N_L$  Stäben der Stabklasse ein  $\epsilon \geq \hat{\epsilon}$  erreichen, läßt sich über die Binomialverteilung der Anzahl der Stäbe mit  $\epsilon \geq \hat{\epsilon}$  berechnen.

Dann gilt:

$$p(A_1 \cap A_2 \cap A_3 \dots \cap A_m) = \left( p^{(m)} \right)_{\epsilon \geq \hat{\epsilon}}^m \prod_{i=1}^m \frac{m+1-i}{N_L+1-i}$$

Hierbei ist Voraussetzung, daß alle betrachteten  $m$  Stäbe der gleichen Stabklasse angehören; die Vorgehensweise ist aber sehr ähnlich, wenn diese Voraussetzung nicht erfüllt ist.

In Abb. 4231-5 ist ein Schema für den Ablauf der Rechnungen mit den unter a) und b) angegebenen Methoden dargestellt. - Über das direkte Hypercube-Sampling werden die vier ersten Momente der gesuchten Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion berechnet. Ordnet man die Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion einer bestimmten Familie von Verteilungen zu (z.B. der Familie der Pearson-Verteilungen), dann lassen sich Typ und Form der Verteilung eindeutig bestimmen. Dieses Vorgehen stellt eine Näherung dar, weil 1.) die vier Momente varianzbehaftet sind, und weil 2.) die Zuordnung zu einer bestimmten Verteilungsfamilie eine Näherung ist.

Vom Einsatz des Response Surface-Verfahrens wird eine beträchtliche Steigerung in der Genauigkeit bei der Berechnung der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion erwartet. Die  $n$  Simulationen führen zunächst zu  $n$  Stützstellen auf der Response Surface. Der Informationsgehalt der Response Surface dient zur Approximation des funktionalen Zusammenhangs zwischen statistisch verteilter Antwortgröße (z.B. Peak Cladding-Temperatur, Brennstabversagenswahrscheinlichkeit) und den statistisch verteilten Einflußvariablen. Der rechenzeitintensive Original-Code (SSYST) wird ersetzt durch die Approximationsfunktion. Damit werden Monte Carlo-Simulationen zur Berechnung der gesuchten Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion durchgeführt.

Es ist beabsichtigt, beide probabilistische Verfahren einzusetzen, da der analytische Mehraufwand gering ist. Auf diese Weise wird es möglich, über die mit beiden Verfahren berechneten Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen indirekt die Güte der Response Surface-Approximation zusätzlich zu beurteilen.

Die Ergebnisse der probabilistischen Analysen werden unter dem Aspekt zu betrachten sein, daß Wechselwirkungen von Stab zu Stab nicht berücksichtigt werden können. Insbesondere in Zusammenhang mit der Berechnung von Blockadewahrscheinlichkeiten sind Propagationseffekte aber u.U. nicht zu vernachlässigen. Einblick in Art und Umfang der Schadenspropagation ist nur über Bündelexperimente möglich.

Folgende Arbeiten sind in nächster Zeit geplant:

1. Erstellung eines SSYST-Moduls zur Ermittlung von Hüllrohr-Berstwahrscheinlichkeiten als Funktionen der zeitabhängigen thermischen und mechanischen Hüllrohrbelastung. Grundlage sind Ergebnisse von Hüllrohr-Berstversuchen.
2. Einsatz der Response Surface-Methode für einige kleinere Problembeispiele, um die Methodik der Approximation einer Funktion mit Hilfe der Funktionswerte auf der Response Surface zu untersuchen (Repressionsanalysen).

Statistisch verteilte Einflußvariable

---

A. Blowdown-Phase

1. thermische Anfangsleistung des Cores zu Beginn des Störfalles
2. Nachzerfallsleistung
3. Moody-Faktor für kritische Strömung
4. Leistungsformfaktoren radial axial
5. kritischer Wärmestrom <sup>x</sup>
6. Wü-Koeffizienten nach DNB <sup>x</sup>

B. Flutphase

7. Kondensationswirkungsgrad
8. Abströmwiderstand
9. Wü-Koeffizient oberhalb Quenchfront

C. Materialeigenschaften

10. Koeffizienten des Norton'schen Kriechgesetzes
11. Wärmeleitfähigkeit Zircaloy
12. Spez. Wärme Zircaloy

---

<sup>x</sup> hier werden statistisch verteilte multiplikative Korrekturfaktoren eingeführt

Tab. 4231-2: Statistisch verteilte Einflußvariable für die probabilistische Analyse des Brennstabverhaltens unter LOCA-Bedingungen



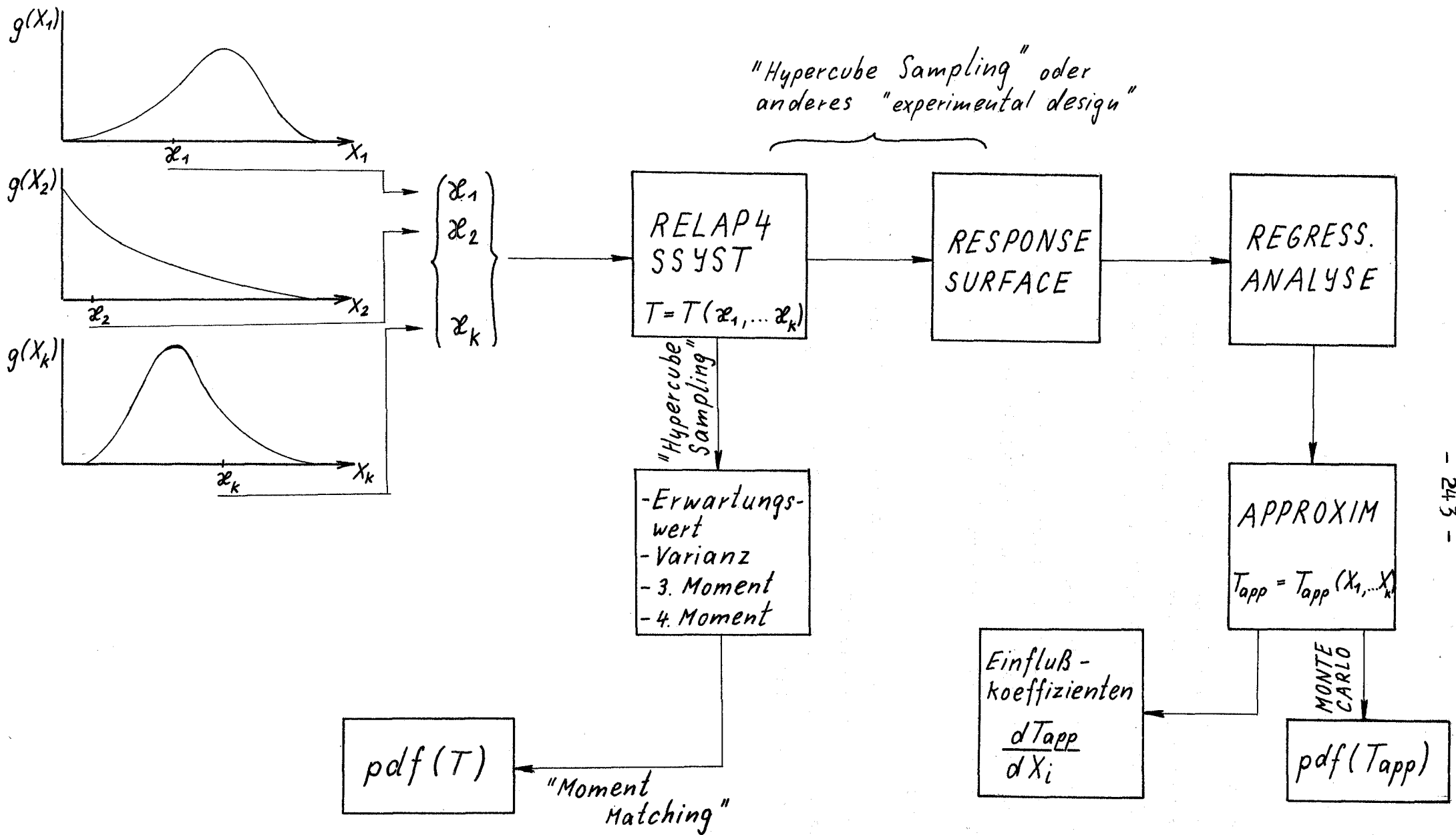


Abb. 4231-5;

Schema für die Berechnung der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion der Peak Cladding-Temperatur eines heißen Stabes (pdf(T) bzw. pdf(T<sub>app</sub>)) mit "Hypercube Samling" und "Moment

Matching" sowie mit dem Response Surface-Verfahren und Monte Carlo-Simulationen

## 8. Veröffentlichungen im Berichtszeitraum

Gulden, W. et.al.

Synopsis of the basic models implemented in the fuel rod behaviour codes FRAP-T and SSYST and some comparative calculations.

CSNI Specialist-Meeting, Spätind, Norway, 13-16.Sept.1976

Meyder, R., Raff, S., Sengpiel, W.

Sensitivity study on some parameters of internal pressure of PWR fuel rods during blowdown of a LOCA using SSYST-Mod1.

CSNI Specialist-Meeting, Spätind, Norway, 13.-16.Sept. 1976

Meyder, R.

Modellrechnungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall mit dem Programmsystem SSYST-Mod1.

Jahreskolloquium 1976 des Projekts Nukleare Sicherheit

(KFK in Vorbereitung)

9. Literaturverzeichnis

- /1/ Gulden, W. et.al.  
Dokumentation SSYST-1. Ein Programmsystem zur  
Beschreibung des LWR-Brennstabverhaltens bei einem Kühl-  
mittelverluststörfall.  
KFK/IKE-Bericht in Vorbereitung
- /2/ Gulden, W.  
Eingabebeschriftung für die Moduln des Programmsystems  
SSYST-1.  
KFK/IKE-Bericht in Vorbereitung
- /3/ Brestrich, I.A., R. Rühle  
Implementierung des Programmsystems RSYST Version 1.2  
auf der IBM 370/168.  
IKE-Bericht 4-46 (Juli 1975).
- /4/ Rühle, R.  
RSYST, ein integriertes Modulsystem mit Datenbasis zur  
automatischen Berechnung von Kernreaktoren.  
Dissertation, Stuttgart 1973. IKE-Bericht 4-12 (Juli 1973).
- /5/ Elbel, H., J.L. Jimenez  
SATURN-L-Rechnungen zum Verhalten von SWR-Brennstäben  
bei positiven Leistungsänderungen.  
unveröffentlicht
- /6/ Unger, H.  
Bericht über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit  
der GfK für den Zeitraum April bis Juni 1976  
unveröffentlicht

- /7/ Raff, S.  
Systematische Anpassung von Diffusionskonstanten an integrale  
Meßwerte des Schichtenwachstums und der Gewichtszunahme mit  
dem Computer-Code OPAL  
Teil I: Programmbeschreibung  
(1976) unveröffentlicht
- /8/ Raff, S.  
wie /7/  
Teil II: Auswertung von Meßergebnissen an Zry-4-Hüllrohrproben  
(1976) unveröffentlicht
- /9/ Boček, M., Petersen, C., Schweiger, W.  
Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohr-  
material beim Kühlmittelverlustunfall.  
PNS-Halbjahres Bericht 1975/I, KFK-Nr. 2195
- /10/ Boček, M., Petersen, C., Schweiger, W.  
Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüll-  
rohrmaterial.  
PNS-Halbjahresbericht 1975/II, KFK-Nr. 2262
- /11/ Wiehr, K., Schmidt, He.  
Out-of-pile Versuche zum Aufblähvorgang von Zircaloy-Hüllen-  
Ergebnisse aus Vorversuchen mit verkürzten Brennstabsimula-  
toren. KFK-Bericht in Vorbereitung
- /12/ McKay, M.D. et.al.  
Report on the Application of Statistical Techniques to the  
Analysis of Computer Codes.  
LA-6479-MS (1976)
- /13/ Cox, N.D. and Cermak, J.O.  
Uncertainty Analysis of the Performance of Complex Systems,  
Energy Sources, 1(4): 339-359 (1974)
- /14/ Steck, G.P. et.al.  
Statistical Analysis of LOCA, FY75 Report,  
SAND-75-0653 (1975)
- /15/ McDonald, P.E., Broughton, J.M., Status and Problems to be solved  
Concerning the Interaction Between Thermohydraulics and Fuel  
Behavior During a Loss-of-Coolant Accident  
Presented on "Specialists Meeting on the Behavior of Water Reactor  
Fuel Elements Under Accident Conditions, Spatind, Norway, Sept. 76

4234 Bestimmung der Nachzerfallswärme von  $^{235}\text{U}$  im Zeitbereich  
10 - 1000 sek

(K. Baumung, INR)

### Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Im Berichtszeitraum wurden bis auf einen Graphitreflektor für den Bestrahlungseinsatz in der thermischen Säule des FR2 die Komponenten der Meßapparatur fertiggestellt.

#### 1. Rohrpostanlage

In Abbildung 4234-1 ist das Blockschaltbild der Rohrpostanlage und der Abluftführung dargestellt. Zum Einfahren der Probe wird diese in das Rohrpostfahrzeug eingeklinkt und darin in die Be-/Entladestation eingesetzt. Durch das Startsignal werden die Ventile V1 und V2 geöffnet und das Kühlgebläse (eine öllose Drehschieberpumpe mit  $20 \text{ m}^3/\text{h}$  und 2 bar max.) läuft an. Das Gebläse treibt das Fahrzeug in die Bestrahlungsposition und kühlt die Proben während der Bestrahlung. Um eine Kontamination der Anlage gering zu halten, wird das Kühlgas in einem Kreislauf umgepumpt. Dabei passiert es ein kombiniertes Schwebstoff-Jod-Filter und zwei Kühler, in denen im wesentlichen die Leistung des Gebläses abgeführt wird.

Die Erwärmung des Gases durch die Proben ist gering, die hohe Pumpleistung von 1 kW wird wegen des schlechten Wärmeübergangs durch die kleinen Probenoberflächen benötigt. Bei Ausfall der Kühlung läuft, wie Messungen an elektrisch heizbaren Modellen gezeigt haben, die Temperatur der Proben bei 10 W Leistung um nur etwa 180 K über die Umgebungstemperatur hinauf, so daß für diesen Fall keine besonderen Vorkehrungen nötig sind.

Zum Ausfahren der Proben werden die Ventile V1 sowie V2 geschlossen und V3 und V4, und damit der geschlossene Kreislauf, geöffnet. Um auch in dieser Phase eine Freisetzung von Spaltprodukten, insbesondere von  $^{131}\text{J}$ , bei einem möglichen Auseinanderbrechen der Proben auszuschließen, wurden in die Abgasleitung ein Ölabschneider, Aktivkohlefilter zur Absorption möglicher Ölreste und nochmals ein Jodfilter eingefügt. Damit bleibt die

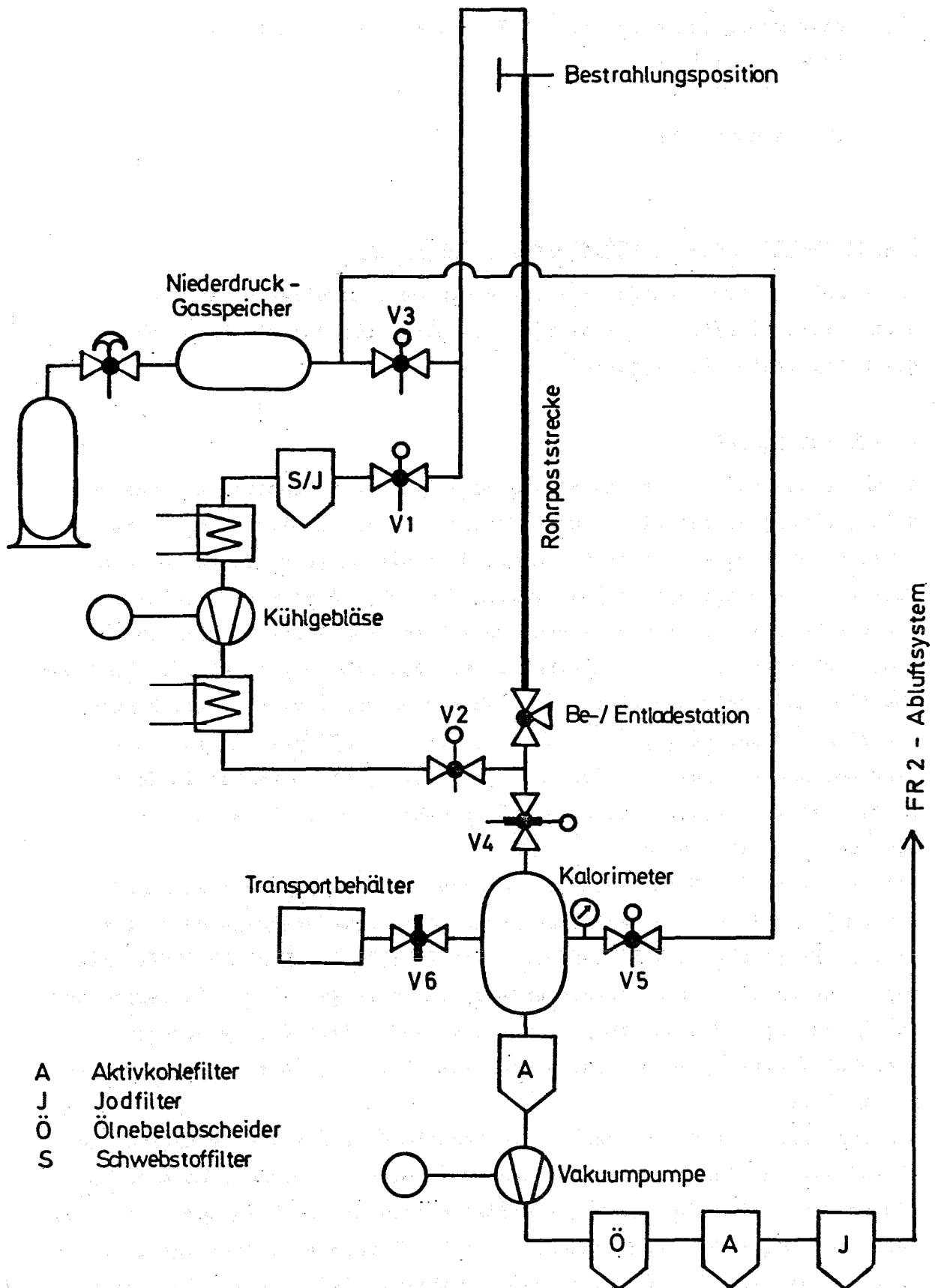


Abb 4234-1: Schema der Rohrpost- u. Abgasanlage

Emission speziell von  $^{131}\text{J}$  selbst bei vollständiger Freisetzung aus der Probe weit unter dem maximal für den FR2 zulässigen Wert von 500  $\mu\text{Ci/d}$ . Die Probe fällt durch das Schieberventil V4 in den Rezipienten und wird dort von einer Transportmechanik in das Kalorimeter gebracht.

Die Steuerung der Rohrpost und dieser Transportmechanik ist inzwischen fertiggestellt und erfolgreich erprobt.

Rechnungen mit vorhandenen Daten der zeitabhängigen Spaltproduktaktivität haben gezeigt, daß in 1 m Entfernung vom Kalorimeter bei kurzen Kühlzeiten (10 sek) eine  $\gamma$ -Dosisleistung von bis zu 20 rem/h und eine Belastung durch verzögerte Neutronen von max. 2 rem/h auftritt. Abschirmungsrechnungen haben folgende Werte für die Dimensionierung der Abschirmung geliefert: 20 cm Blei und 30 cm Bor-Paraffin reduzieren die Gesamtbelastung auf weniger als 1 mrem/h zu Beginn der Messung.

Die oben angeführten Überlegungen, die Lösung des Abtransportproblems der bestrahlten Proben in eigens dafür konstruierten, gasdichten Behältern sowie Aspekte für den Betrieb der Anlage werden im Sicherheitsbericht diskutiert, der zur Erteilung der Betriebsgenehmigung am FR2 eingereicht wurde.

## 2. Meßwerterfassung

Die Steuerung des adiabatischen Kalorimeters sowie die Meßwerterfassung erfolgen über einen Camac-Datenweg durch einen 8K-Kleinrechner HP 2115. Die Temperaturwerte von Probe und adiabatischem Mantel werden abwechselnd im 0.5 sek-Takt als Diagonalspannung einer in Stufen vom Rechner abstimmbaren Wheatstone-Brücke, in deren einen Zweig abwechselnd zwei geeichte Thermistoren geschaltet werden, von einem hochauflösenden Digitalvoltmeter (1  $\mu\text{V}$  Auflösung beim  $\pm$  120 mV-Bereich) erfaßt, im Rechner verarbeitet und über Lochstreifen ausgegeben. Die Steuerprogramme werden zur Zeit zusammen mit der inzwischen bereitgestellten Hardware ausgetestet.

## Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Zunächst soll die Meßanlage komplett im INR aufgebaut und getestet werden, dann beginnen die Bestrahlungsexperimente am FR2.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Störfalltransienten

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial

(M. Boček, C. Petersen, H. Schneider und W. Schweiger, IMF/II)

1. Der Einfluß der ZrO<sub>2</sub>-Schicht auf die Ermittlung der Geschwindigkeits-  
exponenten m im Geschwindigkeitswechselversuch und auf das Formänderungs-  
verhalten von Zugproben

Wir betrachten eine Rundzugprobe der Ausgangslänge  $L_0$  bestehend aus einem duktilen metallischen Kern (Zry-4) und einer darauf festhaftenden absolut spröden Oxidschicht (ZrO<sub>2</sub>). Soll diese Verbundprobe im einfachen Zugversuch plastisch verformt werden, kann dies nur unter Rißbildung in der Oxidschicht erfolgen. Die zur Rißbildung und zum Rißwachstum notwendige Energie wird zum Teil aus inneren Quellen (Deformationsenergie aus Schicht und Substrat) und zum Teil aus der Arbeit von außen angreifender Kräfte geliefert. Die Probe fließt plastisch an den Riß-Stellen; eine Längenzunahme  $dL$  erfolgt durch Neubildung von Rissen und/oder durch Rißaufweitung. Letztere wird beschränkt durch die plastisch nicht dehbare, fest haltende Schicht.

Abb. 4235.1 zeigt schematisch die Verhältnisse an einem Prüfling im Augenblick  $t$  während des Zugversuchs mit konstanter Verformungsgeschwindigkeit  $V_M/L_0$  (mit  $V_M$  = Querhauptgeschwindigkeit).

Im Modell ist angenommen, daß Risse in der Oxidschicht bereits vor Beginn der plastischen Verformung vorhanden sind.

Die "aktive", sich tatsächlich verformende Probenlänge, im Zeitpunkt  $t$  ist

$$l_a(t) = n(t) \cdot l'(t) \quad \text{mit} \quad l' = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n l'_i \quad (1)$$

gemittelt im Augenblick  $t$ .



Ist  $L$  die Probenlänge im Zeitpunkt  $t$ , so ist

$$\beta \equiv \frac{l_a}{L} = \frac{n \cdot l'}{L} = N l' \leq 1 \quad (2)$$

wo  $N = \frac{n}{L}$  (3)

die Zahl der Risse pro Längeneinheit (lineare Rißdichte) im Zeitpunkt  $t$  ist.

Aus dem Modell folgt, daß bei gegebener Verformungsgeschwindigkeit und Temperatur

$$d\beta = 0$$

und aus Gl.(2) folgt, daß unabhängig von der Verformung

$$N l' = N_0 l'_0 = \text{konst.}$$

Die mit dem Index  $0$  versehenen Größen beziehen sich auf den Ausgangszustand  $t = 0$  am Beginn der plastischen Verformung.

Es gelten nachfolgende Beziehungen:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{l_a} &= \ln \frac{l_a}{l_{a,0}} = \ln \frac{n l'}{n_0 l'_0} \\ \dot{\varepsilon}_{l_a} &= \frac{\dot{l}_a}{l_a} = \frac{\dot{n}}{n} + \frac{\dot{l}'}{l'} \end{aligned} \quad (4)$$

Da gilt

$$dl_a = dL$$

ist auch

$$\dot{l}_a = \dot{L} \quad (5)$$

$$\dot{\varepsilon}_L = \frac{\dot{L}}{L} = \frac{\dot{l}_a}{L} \quad (6)$$

und aus Gl.(4) und (6) folgt

$$\dot{\varepsilon}_L = \dot{\varepsilon}_{l_a} \cdot \frac{l_a}{L} \quad (7)$$

Die Definition der Geschwindigkeitsexponenten lautet:

$$m_L = \left( \frac{\partial \log \sigma}{\partial \log \dot{\epsilon}_L} \right)_{\epsilon_L, T, \dots} \quad (8)$$

$$m_{l_a} = \left( \frac{\partial \log \sigma}{\partial \log \dot{\epsilon}_{l_a}} \right)_{\epsilon_{l_a}, T, \dots} \quad (9)$$

Aus Gl.(8), (9) und (7) folgt

$$m_L = m_{l_a} \cdot \left( \frac{\partial \log \dot{\epsilon}_{l_a}}{\partial \log \dot{\epsilon}_L} \right)_{\epsilon_L, \epsilon_{l_a}, T, \dots} = m_{l_a} \cdot \left( 1 + \frac{\partial \log L/l_a}{\partial \log \dot{\epsilon}_L} \right)_{\epsilon_L, \epsilon_{l_a}, T, \dots} \quad (10)$$

Ferner ist für  $\epsilon_L, \epsilon_{l_a}, T, \dots = \text{konst.}$  (während des Geschwindigkeitswechsels)

$$\frac{d \log L/l_a}{d \log \dot{\epsilon}_L} = \dot{\epsilon}_L \cdot \left( \frac{d \log L}{d \dot{\epsilon}_L} - \frac{d \log l_a}{d \dot{\epsilon}_L} \right) \quad (11)$$

Ermittlung der Ausdrücke in Gl.(11)

Mit Hilfe von Gl. (6) ist

$$\frac{d \log \dot{\epsilon}_L}{d \dot{\epsilon}_L} = \frac{1}{\dot{\epsilon}_L} = \frac{d \log l_a}{d \dot{\epsilon}_L} - \frac{d \log L}{d \dot{\epsilon}_L} = \frac{1}{l_a} \cdot \frac{d l_a}{d \dot{\epsilon}_L} - \frac{d \log L}{d \dot{\epsilon}_L} \quad (12)$$

Ferner ist

$$\frac{d l_a}{d \dot{\epsilon}_L} = \frac{L}{1 - \frac{d \log L}{d \log l_a}} \quad (13)$$

Gl. (13) nach (12) liefert

$$\frac{d \log L}{d \dot{\epsilon}_L} = \frac{1}{\dot{\epsilon}_L} \cdot \left( \frac{1}{1 - \frac{d \log L}{d \log l_a}} - 1 \right) \quad (14)$$

Die Kombination der Gl. (14), (11) und (10) ergibt

$$m_L = m_{l_a} \cdot \left( \frac{1}{1 - \frac{d \log L}{d \log \dot{\epsilon}_L}} - \dot{\epsilon}_L \cdot \frac{d \log l_a}{d \dot{\epsilon}_L} \right) \quad (15)$$

wobei in 1. Näherung gilt

$$\frac{d l_a}{d \dot{\epsilon}_L} \doteq L$$

und dies eingesetzt Gl. (12) liefert

$$\dot{\epsilon}_L \cdot \frac{d \log L}{d \log \dot{\epsilon}_L} = 0$$

bzw.

$$\frac{d \log L}{d \log \dot{\epsilon}_L} = 0$$

und somit ist in 1. Näherung

$$m_L = m_{l_a} \cdot \left( 1 - \dot{\epsilon}_L \cdot \frac{d \log l_a}{d \dot{\epsilon}_L} \right) \quad (16)$$

Aus Gl. (1) folgt

$$\frac{d \log l_a}{d \dot{\epsilon}_L} = \frac{1}{n} \cdot \frac{d n}{d \dot{\epsilon}_L} + \frac{1}{l'} \cdot \frac{d l'}{d \dot{\epsilon}_L}$$

Wird die Reißdichte (s. Gl. (3)) eingeführt, so ist

$$\frac{1}{n} \cdot \frac{dn}{d\dot{\epsilon}_L} = \frac{1}{NL} \cdot \frac{d(NL)}{d\dot{\epsilon}_L} \quad (17)$$

und gilt nach vollzogener Geschwindigkeitsänderung, daß

$$L + dL \approx L$$

So lautet Gl. (17)

$$\frac{1}{n} \cdot \frac{dn}{d\dot{\epsilon}_L} = \frac{L}{NL} \cdot \frac{dN}{d\dot{\epsilon}_L} = \frac{1}{N} \cdot \frac{dN}{d\dot{\epsilon}_L} ,$$

diés eingesetzt in Gl. (16) ergibt

$$m_L = m_{1a} \cdot \left[ 1 - \dot{\epsilon}_L \left( \frac{1}{N} \frac{dN}{d\dot{\epsilon}_L} + \frac{1}{1'} \frac{d1'}{d\dot{\epsilon}_L} \right) \right] \quad (18)$$

bzw. ausgedrückt mithilfe der Beziehung Gl. (2)

$$m_L = m_{1a} \cdot \left[ 1 - \left( \frac{\partial \log \beta}{\partial \log \dot{\epsilon}_L} \right)_{\epsilon_L, \epsilon_{1a}, T, \dots} \right] \quad (19)$$

Die Verhältnisse für einige probable Alternativen können aus der Tab. 4235.1 entnommen werden.

Ähnliche Verhältnisse gelten für einen Temperaturwechselfersuch. Soweit N bzw. 1' abhängig sind von  $\dot{\epsilon}_L$  wird durch den am Verbundprüfling gemessenen  $m_L$ -Wert nicht mehr das plastische Verhalten des metallischen Kerns wiedergespiegelt, sondern, wie aus Gl. (18) ersichtlich, wird  $m_L$  auch durch die mechanischen Eigenschaften der Oxidschicht mitbestimmt. Da anzunehmen ist, daß N von der angelegten Spannung  $\sigma$  abhängt, ist auf Grund der Tatsache, daß  $\sigma = \sigma(\dot{\epsilon}_L)$  eine Abhängigkeit  $N(\dot{\epsilon}_L)$  zu erwarten. Möglicherweise kann die

unterschiedliche Verformungsabhängigkeit des  $m$ -Wertes in Versuchen in Luft und Vakuum auf diesen Umstand zurückgeführt werden. Das obige Modell beschreibt die Verhältnisse an Verbundproben mit zeitlich konstanter Zusammensetzung. Im Prinzip wird dieses Modell auch für den Fall einer stationären oxidierenden Atmosphäre im Ansatz zutreffen.

Das Modell ermöglicht ebenfalls Aussagen über das Formänderungsverhalten. Die festhaftende Schicht verhindert das Wachstum lokaler Einschnürungen. Die Probe z.B. im Zugversuch wird zwar mikroskopisch sehr inhomogen gedehnt (an den Reiß-Stellen), die festhaftende Oxidschicht verhindert jedoch das Wachstum dieser lokalen Einschnürungen, so daß die Formänderung makroskopisch homogen verläuft. In stationärer oxidativer Atmosphäre wird dieser stabilisierende Effekt verstärkt. Vergleichende Zugversuche an Luft und im Vakuum haben diese Vermutung klar bestätigt (Abb. 4235.2).

Der formstabilisierende Einfluß der  $ZrO_2$ -Schicht wird ebenfalls im Rohrberstversuch wirksam werden, in dem durch diese Schicht die Rohrwandverjüngung in der aufblähenden Beule behindert wird. Damit sind komplizierte Spannungsverhältnisse in den an die Beule angrenzenden Rohrabschnitten zu erwarten, die u. U. zu inhomogenen radialen und achsialen Distorsionen des Hüllrohrs führen können.

## 2. Der Einfluß von Temperaturexkursionen auf das plastische Verhalten von Zry-4 im $\alpha$ -Bereich

Die Absicht dieser Untersuchung wird durch die Frage begründet, ob Hüllrohre, die die Aufheizphase eines LOCA ohne zu bersten überstanden haben, möglicherweise in der Abkühlphase den mechanischen Beanspruchungen nicht standhalten und z.B. durch Versprödung versagen.

Dazu wurde ein Versuchsprogramm entworfen, das zunächst an nichtoxidierten Zugproben den Einfluß von Temperaturexkursionen im Vakuum mit und ohne gleichzeitige Hochtemperaturverformung auf die plastische Verformbarkeit bei tieferen Temperaturen (im  $\alpha$ -Bereich) untersuchen soll.

Der vorliegende Bericht bringt nur einen sehr kurzen ersten Ausschnitt aus diesem eben anlaufenden Versuchsprogramm.

Zry-4 Flachzugproben sind mit einer Aufheizgeschwindigkeit von  $2^{\circ}\text{C}/\text{sec}$  auf 1000, 1100 und  $1200^{\circ}\text{C}$  erhitzt worden und nach verschiedenen langen Haltezeiten  $t_{\text{H}} = 35 \text{ sec} \div 10 \text{ min}$ , mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten auf die Prüftemperatur (zunächst  $800^{\circ}\text{C}$ ) abgekühlt worden. Die so nur thermisch behandelten Prüflinge sind darauffolgend in der selben Anlage (Instron-Maschine) einem Zugversuch unterworfen worden. Die daraus ermittelten maßgebenden Verformungskenngrößen sind verglichen worden mit jenen aus Versuchen an nicht wärmebehandelten Proben. Festzustellen ist zunächst eine Reduktion der Duktilität nach solchen Temperaturexkursionen (s. Abb. 4235.3), die primär zurückzuführen ist einmal auf das bei hohen Temperaturen erfolgte Kornwachstum und zum anderen auf die verspröde wirkende  $\alpha'$ -Phase.

$\frac{dN}{d\dot{\epsilon}_L}$	$m_L$		Gegenüber dem an der oxidschichtfreien Probe gemessenen m-Wert: m, ist der an der "Verbundprobe" gemessene m-Wert $m_L \lesseqgtr m$ , bzw. $m_L = m$ .
	$\frac{dl'}{d\dot{\epsilon}_L} > 0$	$\frac{dl'}{d\dot{\epsilon}_L} = 0$	
= 0	< $m_{1a}$	= $m_{1a}$	
> 0	< $m_{1a}$	< $m_{1a}$	
< 0	= $m_{1a}$ > $m_{1a}$		Für $-\frac{dN}{d\dot{\epsilon}_L} = \frac{N}{l'} \cdot \frac{dl'}{d\dot{\epsilon}_L}$ Zuwachsen bestehender Risse im Laufe der Verformung Für $-\frac{dN}{d\dot{\epsilon}_L} > \frac{N}{l'} \cdot \frac{dl'}{d\dot{\epsilon}_L}$

Tab.: 4235-1 Verknüpfung der Geschwindigkeitsexponenten bei unterschiedlichen Bedingungen.

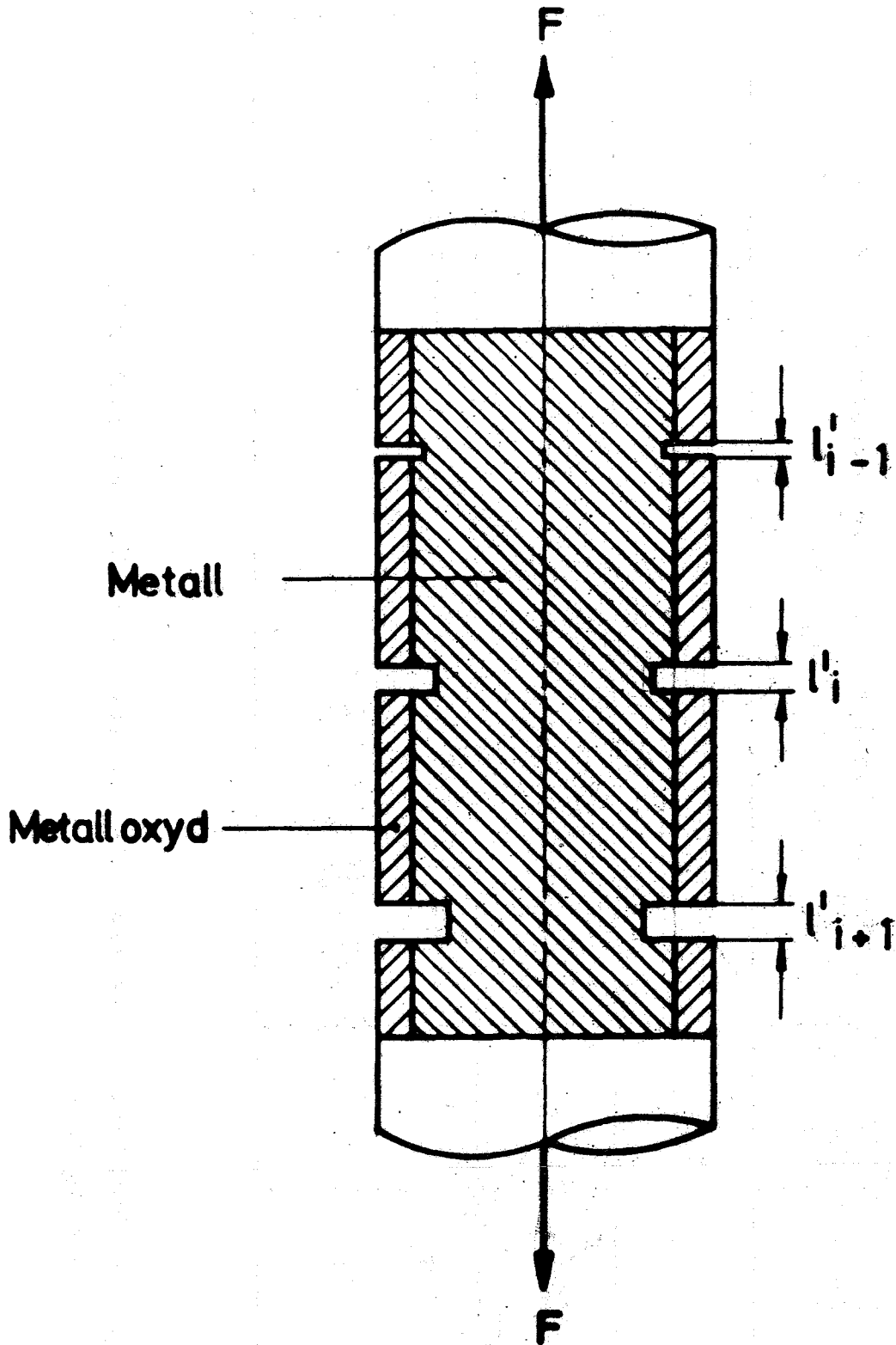


Abb. 4235-1 Schematische Darstellung von Rissen in der Oxidschicht einer Rundprobe während des Zugversuches.



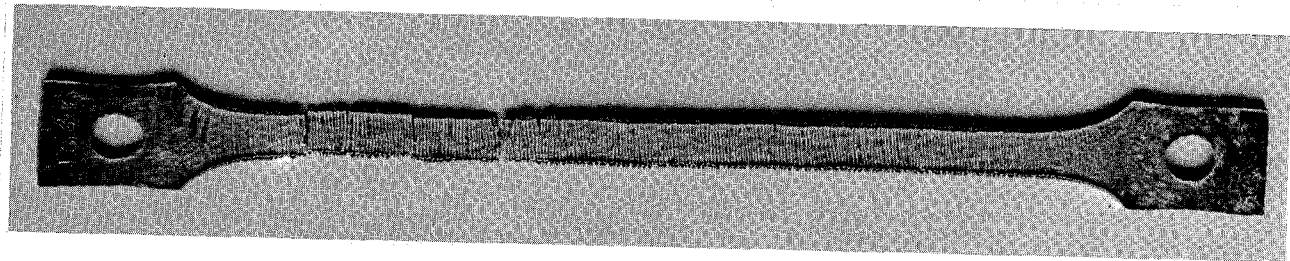
Zircaloy - 4,  $\gamma = 0^\circ$

Verformungstemperatur:  $T_D = 900^\circ\text{C}$

Verformungsgeschwindigkeit:  $\dot{\epsilon}_0 = 6,6 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$

in Luft

$\epsilon_{\text{ges}} = 220\%$



in Vakuum

$\epsilon_{\text{ges}} = 160\%$

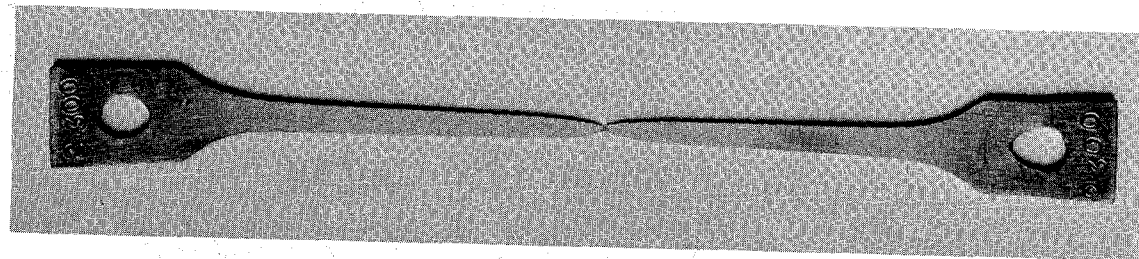


Abb. 4235-2: Makroskopische Aufnahmen von verformten Flachzugproben.

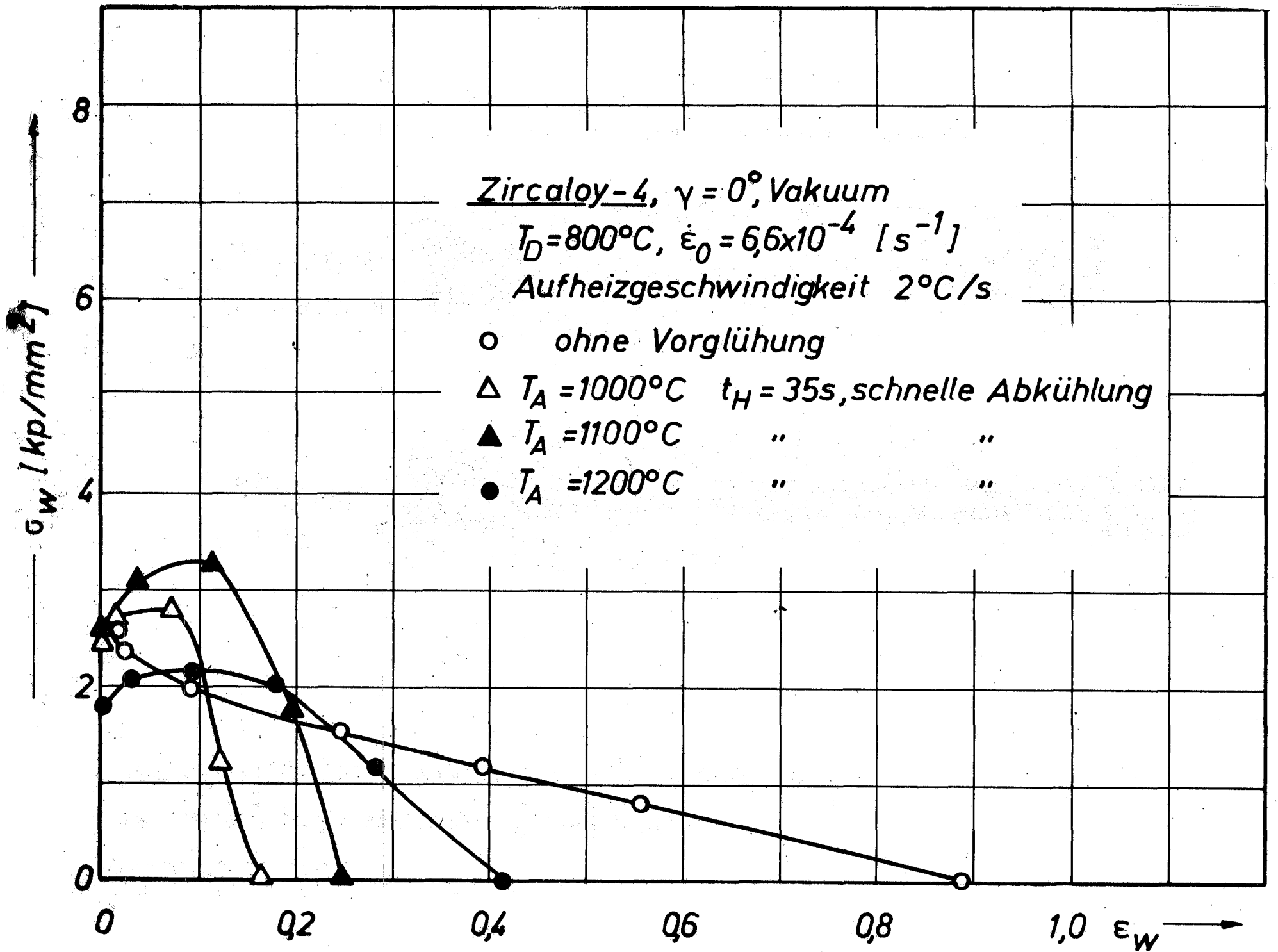


Abb. 4235-3: Spannungs-Dehnungskurven aus Versuchen an Flachversuchen

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation  
von Zircaloy 4-Hüllrohren

(S.Leistikow, H.v.Berg, D.Jennert, R.Kraft, G.Schanz u. R.Weis)

1. Oxidationskinetische Untersuchungen an ungespannten Rohrabschnitten  
in Wasserdampf

1.1 Kinetische Untersuchungen unter isothermen Bedingungen

1.1.1 Zeitgesetze der Hochtemperaturoxidation im Vergleich zu  
Ergebnissen des ORNL

Diese Auswertung betrifft den vollständigen Satz von Oxidationsversuchen, die im Rohrofen unter angenähert isothermen Bedingungen bei 900-1300°C durchgeführt worden sind, und über die bereits berichtet ist (1,2). Es war festgestellt worden, daß sowohl die Sauerstoffaufnahme als auch das Wachstum der sauerstoffreichen Schichten Oxid und  $\alpha$ -Phase in einheitlicher Weise durch eine parabolische Abhängigkeit von der Reaktionszeit und durch eine Arrhenius-Abhängigkeit von der Reaktionstemperatur beschrieben werden können. Die zahlenmäßige Formulierung dieser Gesetze, die noch ausstand, ermöglicht nunmehr den systematischen Vergleich mit Ergebnissen des ORNL (3).

Gilt für eine Größe  $x$  (Sauerstoffaufnahme oder eine Schichtstärke) das parabolische Zeitgesetz, dann ist in der Grundgleichung  $dx/dt = \delta_x^2/2x$  der Faktor  $\delta_x^2/2$  eine zeitunabhängige, aber temperaturabhängige Konstante. Diese hat die Bedeutung einer Reaktionsgeschwindigkeitskonstante, wenn  $x$  die Sauerstoffaufnahme ist. Bedeutet  $x$  eine Schichtstärke, also bei diffusionskontrollierter Reaktion einen Diffusionsweg, so hat der Faktor  $\delta_x^2/2$  die Bedeutung einer Diffusionskonstante, wie aus dem Vergleich der obigen Beziehung nach Integration  $x^2 = x_0^2 + \delta_x^2 t$ , mit der statistischen Grundgleichung der Diffusion nach Einstein,  $x^2 = 2 Dt$ , ersichtlich ist. Die Integrationskonstante  $x_0^2$  kann im vorliegenden Fall der ideal parabolischen Oxidation außer Betracht bleiben.

Als direkte Versuchsergebnisse standen die Sauerstoffaufnahme, sowie für einen Teil der Versuche die metallographisch ermittelten Schichtstärken des Oxids, der  $\alpha$ -Phase und damit auch der Doppelschicht aus beiden Phasen zur Verfügung. Durch eine meist geringfügige Korrektur wurden diese Daten auf idealisierte Versuchsbedingungen von 2, 5 und 15 min Reaktionszeit und exakte Temperaturen von 900, 1000, 1100, 1200 und 1300°C reduziert.

Für jeden Versuch wurden nun die Größen  $\delta_x^2/2$  errechnet, die Streuung der Einzelwerte und der Mittelwerte für jede Temperatur gebildet und in Diagrammen gegen die reziproke absolute Temperatur aufgetragen.

Für die aus der gemessenen Sauerstoffaufnahme  $\tau$  (mg/dm<sup>2</sup>) errechnete parabolische Geschwindigkeitskonstante  $\delta_\tau^2/2$  [(g/cm<sup>2</sup>)<sup>2</sup>/sec] ist aus Abb. 4235-4 ersichtlich, daß zwischen 1000 und 1300°C mit guter Näherung eine Arrhenius-Beziehung gilt. Die Ausgleichsgerade wurde ohne die Ergebnisse bei 900°C aufgestellt, da diese deutlich tiefer liegen. Für den Zusammenhang zwischen der Sauerstoffaufnahme  $\tau$  (g/cm<sup>2</sup>), der Temperatur T(K) und der Reaktionszeit t (sec) ist somit folgende einheitliche Beschreibung gefunden:  $\tau^2 = \delta_\tau^2 \cdot t$  mit  $\delta_\tau^2/2 = 2,62 \cdot 10^{-1} \exp(-41\ 653/RT)$ . In entsprechender Weise ist im ORNL die Geschwindigkeitskonstante im Bereich 1000-1500°C ermittelt worden, in diesem Fall ist die Gewichtszunahme nicht gemessen, sondern näherungsweise aus den gemessenen Schichtstärken von Oxid und  $\alpha$ -Phase errechnet worden. Die Ergebnisse sind zum Vergleich in Abb. 4235-4 eingetragen. Der Verlauf der Arrhenius-Gerade bzw. ihre Formulierung machen mäßige, aber systematische Unterschiede deutlich.

In entsprechender Weise wurde die Geschwindigkeitskonstante  $\delta_\phi^2/2$  (cm<sup>2</sup>/sec) für das Wachstum der Oxidschicht aus metallographisch gemessenen Schichtstärken errechnet, Mittelwert und Streubereich für jede Temperatur gebildet und gegen die reziproke Temperatur aufgetragen (Abb. 4235-4). Die eingezeichnete Ausgleichsgerade für die Daten zwischen 1000 und 1300°C zeigt einen Temperaturverlauf ähnlich dem für die Sauerstoffaufnahme, wie zu erwarten war, da der aufgenommene Sauerstoff hauptsächlich in der Oxidschicht konzentriert ist. Der niedrig liegende Wert bei 900°C sowie die systematisch höher liegenden ORNL-Werte entsprechen ebenfalls dem für die Sauerstoffaufnahme beschriebenen Befund.

In gleicher Weise wurden die Meßwerte für die Schichtstärke der  $\alpha$ -Phase und der Doppelschicht  $\xi$  aus Oxid und  $\alpha$ -Phase auf die parabolischen Geschwindigkeitskonstanten  $\delta_\alpha^2/2$  und  $\delta_\xi^2/2$  ausgewertet. Die bei Versuchen mit hoher Temperatur und langer Reaktionszeit beobachteten Einwachsungen der  $\alpha$ - in die  $\beta$ -Phase wurden hierbei nicht berücksichtigt, da ihr Bildungsmechanismus mit der Abkühlung von der Reaktionstemperatur verknüpft ist, weshalb sie bei der Betrachtung isothermer Kinetik nicht ausgewiesen werden. Die graphische Darstellung und Formulierung gemäß Abb. 4235-5 zeigt, daß die angegebenen Arrhenius-Beziehungen mit guter Näherung zwischen 900 und 1300°C gelten.

Im ORNL wurden etwas kleinere Geschwindigkeitskonstanten gefunden.

Der Vergleich aller beschriebenen Geschwindigkeitskonstanten mit entsprechenden ORNL-Ergebnissen zeigt eine generell recht gute Übereinstimmung in Anbetracht zahlreicher Unterschiede in Probenmaterial [Zusammensetzung, Abmessungen, Oberflächenzustand [gebeizt - ungebeizt (ORNL)], Versuchsaufbau und -führung (Dampfdurchsatz und -geschwindigkeit, Heizeinrichtung, Temperaturmessung, ein- und doppelseitige Oxidation, Reaktionszeitbereiche) sowie Auswertung (Sauerstoffaufnahme und Schichtstärken bzw. nur Schichtstärken (ORNL)). Deutlichere Abweichungen treten vor allem bei 1000°C auf, wobei im ORNL höhere Oxidschichtstärke und Sauerstoffaufnahme, aber geringere  $\alpha$ -Schichtstärke ermittelt wurde.

Die Ursachen der bestehenden Abweichungen sind noch nicht vollständig geklärt. Systematische Temperaturfehlmessung sollte zu Abweichungen führen, die mit der Temperatur zunehmen und sich in Oxid und  $\alpha$ -Schicht gleichsinnig bemerkbar machen, was nicht beobachtet wird. Kinetische Unterschiede zwischen ein- und doppelseitiger Oxidation sind nur bei hoher Temperatur und langer Zeit zu erwarten, erklären daher nicht die Abweichungen bei 1000°C. Als mögliche Ursachen kommen außerdem Dampfangebot und -reinheit infrage. Dampfangel sollte vor allem bei hoher Temperatur und kurzen Zeiten die Sauerstoffaufnahme und das Verhältnis des Oxids zur  $\alpha$ -Phase vermindern. Ein Einfluß von Verunreinigungen im Dampf wurde im ORNL gefunden, wonach von den untersuchten Gasen nur Sauerstoff (10%) in Dampf bei 1100°C das Verhältnis des Oxids zur  $\alpha$ -Phase signifikant erhöhte (4). Der vor allem bei hoher Temperatur die Reaktion beschleunigende Einfluß von Stickstoff resp. Luft, der mit mechanischer Desintegration der Oxidschicht durch die konkurrierend ablaufende Nitridbildung einhergeht, ist bekannt (5,6,7). Einer dieser Mechanismen, die das Wachstum einer Phase beschleunigen und damit das der anderen verzögern, könnte die beobachteten gegenläufigen Abweichungen erklären. Der Einfluß der Zusammensetzung und des Oberflächenzustandes von Zircaloy 4 ist ungeklärt, vermutlich gering. Bei der metallographischen Auswertung sind systematische Meßfehler bei kleinen Schichtstärken möglich.

Tabelle 4235-2 stellt die ermittelten Geschwindigkeitskonstanten denen anderer Autoren gegenüber, zu denen teilweise beträchtliche Unterschiede bestehen.

Tabelle: 4235-2

Empirische Gesetze der Kinetik des Schichtwachstums und der SauerstoffaufnahmeParabolische Abhängigkeit von der Zeit t:  $x^2 = \delta_x^2 \cdot t$ Arrhenius-Abhängigkeit von der Temperatur T:  $\delta_x^2/2 = A_x \exp(-Q_x/RT)$ x = Schichtstärke von Oxid ( $\phi$ ),  $\alpha$ -Phase ( $\alpha$ ), Doppelschicht ( $\xi$ ) bzw. Sauerstoffaufnahme ( $\tau$ ) $A_x$  = Vorfaktor,  $Q_x$  = Aktivierungsenergie

	Gültigkeitsbereich [ °C ]	Sauerstoffaufnahme $A_\tau$ [g/cm <sup>2</sup> ] <sup>2</sup> /sec $Q_\tau$ [cal/mol]	Oxid $A_\phi$ [cm <sup>2</sup> /sec] $Q_\phi$ [cal/mol]	$\alpha$ -Phase $A_\alpha$ [cm <sup>2</sup> /sec] $Q_\alpha$ [cal/mol]	Doppelschicht $A_\xi$ [cm <sup>2</sup> /sec] $Q_\xi$ [cal/mol]
Mittelwerte nach eigenen Daten	1000 - 1300 (näherungsw. ab 700)	$2,62 \cdot 10^{-1}$ 41 653	$3,91 \cdot 10^{-2}$ 40 164	$2,54 \cdot 10^{-1}$ 43 561	$8,30 \cdot 10^{-1}$ 43 885
ORNL-Daten (ORNL/NUREG/TM-41)	1000 - 1500	$1,811 \cdot 10^{-1}$ 39 940	$1,126 \cdot 10^{-2}$ 35 890	$7,615 \cdot 10^{-1}$ 48 140	$3,412 \cdot 10^{-1}$ 41 700
Baker, Just (Zit. in Scatena, NEDO 10674)	RT - Smp.	2,07 45 500			
Hobson, Rittenhouse (ORNL-4758) graph. interpoliert	927 - 1371				$3,3 \cdot 10^{-1}$ 38 800
Klepfer (Zit. in Scatena)	RT-890 (mon. ZrO <sub>2</sub> ) 890-1577 (tetr. ZrO <sub>2</sub> ) 1577-Smp (kub. ZrO <sub>2</sub> )	$3,40 \cdot 10^{-3}$ 29 000 $2,20 \cdot 10^{-2}$ 33 500 $6,40 \cdot 10^3$ 79 800			
Biederman et al., WPI (J.Nucl.Mat. 62 1976, 213-220)	982-1482	$1,91 \cdot 10^{-2}$ 33 370	$9,40 \cdot 10^{-4}$ 29 300		$2,24 \cdot 10^{-2}$ 33 500

### 1.1.2 Kinetische Untersuchungen bei 700-1000°C

Abweichungen von der parabolischen Oxidationskinetik waren in früheren Versuchen bei 900°C erkannt worden. Daher wurde der Temperaturbereich zwischen 700 und 1000°C nunmehr eingehender untersucht.

Gebeizte Rohrabschnitte von 30 mm Länge wurden im Rohrofen strömendem Dampf (1 m/sec) ausgesetzt, nachdem sie unter Argon vorerhitzt worden waren (isotherme Versuchsführung). Das im betrachteten Temperaturbereich geringe Überspringen der Probertemperatur durch das Einsetzen der Reaktion wurde durch kontinuierliches Einschieben ins Zentrum der Heizzone kompensiert, so daß die Versuchsführung nahezu ideal isotherm war. Die Versuchstemperaturen wurden in 50°-Abständen gestaffelt, die Zeiten betragen 2, 5, 10 und 15 min, teilweise 1 und 3 min. Längere Versuche wurden bei 1000°C mit 30, 60 und 90 min gefahren. Mit identischen Versuchsparametern wurden jeweils 2-3 Oxidationsversuche durchgeführt; die meist sehr geringe Streuung der Sauerstoffaufnahme betrug weniger als 5%, in einzelnen Fällen bis 10%. Die Proben wurden zur Messung der Sauerstoffaufnahme rückgewogen und metallographisch untersucht.

Die Auftragung der Sauerstoffaufnahme gegen die Zeit, deren Quadrat- bzw. Kubikwurzel (Abb. 4235-6) macht deutlich, daß mit abnehmender Temperatur ein Übergang von näherungsweise parabolischer zu kubischer Zeitabhängigkeit gefunden wurde. Selbst bei 1000°C wird eine Abweichung vom ideal parabolischen Verhalten beobachtet.

Führt man dennoch die in 1.1.1 beschriebene Auswertung auf parabolische Kinetik formal durch, dann erhält man für 700-1000°C parabolische Geschwindigkeitskonstanten, die ihrerseits etwas zeitabhängig sind und daher für jede Versuchszeit getrennt bestimmt wurden. Ihre Auftragung in Abb. 4235-7 entsprechend Abb. 4235-4 verdeutlicht, daß die Arrhenius-Gerade entsprechend den verschiedenen Versuchszeiten mit abnehmender Temperatur auffächert. Den Geschwindigkeitskonstanten für die einzelnen Zeiten, die sich in systematischer Weise gruppieren, sind dabei Hilfslinien zugeordnet. Dem Vergleich mit den Ergebnissen bisheriger Untersuchungen dienen die eingezeichneten Streubänder sowie die für den Bereich 1000-1300°C aufgestellte und bis 700°C extrapolierte Arrhenius-Gerade. Entsprechend wurde die im ORNL für 1000-1500°C aufgestellte Arrhenius-Gerade extrapoliert und eingetragen.

Der Vergleich der eigenen Ergebnisse zeigt, daß es zur einfachen parabolischen Beschreibung der Kinetik der Sauerstoffaufnahme möglich ist, das für höhere Temperatur ermittelte Zeitgesetz anzuwenden, wenn man eine Einbuße an Genauigkeit der Beschreibung in Kauf nimmt, die durch Abweichungen vom parabolischen Verhalten verursacht wird. Diese Beschreibung hat den Vorteil, daß sie für den gesamten Temperaturbereich von 700-1300°C einheitlich ist und die Abhängigkeit der Gewichtszunahme von Zeit und Temperatur analytisch mit nur zwei empirischen Konstanten darstellt.

Die Abb. 4235-8 und 9 zeigen metallographische Querschliffe von Proben, die bei 1000°C oxidiert worden waren. Die Größe der ehemaligen  $\beta$ -Körner, die sich bei der Abkühlung in Widmanstätten- $\alpha$ -Gefüge umgewandelt haben, wächst nur noch wenig mit der Oxidationszeit. Das Oxid hat bis 30 min jeweils etwa die gleiche Stärke wie die benachbarte Schicht aus sauerstoffstabilisierter  $\alpha$ -Phase, während sie für die Versuchszeiten 60 und 90 min gegenüber der dünner werdenden  $\alpha$ -Schicht vorherrscht. Ab 15 min ist zu erkennen, daß die Phasengrenze Oxid- $\alpha$  wellig wird, nach 60 und 90 min wird welliges Aufbrechen der Oxidschicht deutlich, das sich in einer Vielzahl kurzer Risse äußert, die tangential ausgerichtet sind, sowie einem Aufreißen des Oxids in radialer Rohrrichtung. Bei mittleren Versuchszeiten sind Einwachsungen der  $\alpha$ - in die  $\beta$ -Phase deutlich. Für die tieferen Temperaturen wurde - mit Ausnahme der hier nicht untersuchten Langzeiteffekte - eine ähnliche Morphologie gefunden, wobei das Probeninnere mit abnehmender Temperatur von rücktransformiertem  $\beta$ -Gefüge über  $\alpha$ - $\beta$ -Zweiphasengefüge in  $\alpha$ -Gefüge übergeht.

Die beschriebenen morphologischen Effekte nach langzeitiger Oxidation bei 1000°C sind eindeutig mit einer Änderung der Oxidationskinetik verknüpft. Diese ist für Tieftemperaturoxidation bekannt als beschleunigte Oxidation im sog. Posttransitionsgebiet nach Überschreiten eines Übergangsbereiches (transition point, break-away). Break-away tritt, wie eigene Langzeitversuche zeigen, bei 400°C nach etwa 500-1000 h Oxidationszeit auf, nach etwa 40-50 mg/dm<sup>2</sup> Sauerstoffaufnahme. Mit zunehmender Temperatur wird dieser Übergang erst bei höherem Sauerstoffinventar aber immer kürzerer Zeit erreicht. Abb. 4235-10 zeigt die Gewichtszunahme bei 1000°C linear gegen die Zeit aufgetragen. Man sieht anschaulich, daß sich die Oxidationskinetik nach ca. 30 min drastisch ändert, von parabolischer bis kubischer Zeitabhängigkeit gemäß obiger Ausführung zu angenähert linearer Kinetik. Ursache dieser Änderung ist



der morphologisch erkennbare Übergang von einer diffusionskontrollierten Sauerstoffaufnahme unter Ausbildung einer schützenden Oxidschicht, hin zu einer rascheren Aufnahme des Sauerstoffs, der die porös gewordene Oxidschicht unabhängig von ihrer Stärke durchdringt. Durch das rasche Wachstum der Oxidschicht wird die angrenzende Schicht aus sauerstoffstabilisierter  $\alpha$ -Phase, die ihrerseits diffusionskontrolliert langsam fortschreitet, nahezu aufgezehrt.

### 1.1.3 Oxidation vorhydrierter Proben

Ziel dieser Untersuchung war das Studium des Vorgangs der Wasserstoffaufnahme durch Zircaloy, sowie die Klärung des Einflusses, den der Wasserstoffgehalt auf eine nachfolgende Dampfoxidation ausübt.

Dazu wurden Rohrproben nach üblicher Vorbehandlung in strömendem Wasserstoffgas (0,3 l/min) höchster Reinheit bei 300°C geblüht für Zeiten von 0,5; 1, 2,5 und 4 h.

Die Gefügeuntersuchung der hydrierten Proben (Abb. 4235-11-13) ergab nach 0,5 und 1 h keinen erkennbaren Einfluß auf das feinstkörnige  $\alpha$ -Gefüge, nach 2,5 h einen deutlichen Wasserstoffeinfluß an wenigen Stellen, nach 4 h einen starken Wasserstoffangriff, ausgehend von einem größeren Anteil der Probenoberfläche, während jeweils das übrige Gefüge praktisch unverändert aussieht. Die stark angegriffenen Stellen zeigen in ihren Randbereichen dicht liegende Hydridlamellen. Es kann geschlossen werden, daß der Wasserstoff nach einer gewissen Inkubationszeit von einzelnen Oberflächenstellen aus inhomogen in die Proben eingedrungen ist. Dieser Befund wird gestützt durch chemische Analysen auf Wasserstoff sowie Mikrohärtmessungen. Die Analyse ergab nach 0,5 und 1 h keine meßbare Wasserstoffaufnahme über den ursprünglichen Gehalt von ca. 8-10 ppm hinaus, während nach 2,5 und 4 h unsystematisch sehr hohe Gehalte gefunden wurden, abhängig vom lokalen Angriff des zufällig analysierten Probenstückes. Die Stellen lokalen Angriffs enthalten Wasserstoffanteile, die stöchiometrischem  $ZrH_2$  etwa entsprechen. Stellen mit Wasserstoffangriff zeigen hohe Mikrohärtewerte, während unbeeinflusst aussehende Gefügestellen in der Härte nur wenig über der unhydrierter Proben liegen.

Vorhydrierte Proben wurden unter den normalen Versuchsbedingungen in Dampf bei 1000°C für 15 min nachoxidiert. Wie die Abb. 4235-11-13 zeigen, bringt

der Wasserstoff nur an den stark hydrierten Stellen signifikante Änderungen der Morphologie. An diesen Stellen lokalisiert war die Oxidation verstärkt abgelaufen und hatte zur Bildung dicker, schollig aufgerissener Oxidschichten geführt. In Abhängigkeit von der Hydrierzeit ergab die Nachoxidation eine gegenüber dem hydrierten Zustand leicht verminderte Sauerstoffaufnahme bei 0,5 und 1 h Hydrierzeit, für die beiden anderen Zeiten dagegen stark erhöhte Sauerstoffaufnahme (Abb. 4235-14). Wasserstoff wirkte sich somit in geringerer Konzentration moderierend auf die Nachoxidation aus, während die Sauerstoffaufnahme bei einem mechanisch desintegrierendem Gefüge mit einer der Verbindung  $Zr_2H$  entsprechenden Konzentration stark erhöht wurde.

## 1.2 Kinetische Untersuchungen unter temperatur-transienten Bedingungen

### 1.2.1 Vermehrte Sauerstoffaufnahme und veränderte Gefügestruktur als Funktion der Abkühlungsgeschwindigkeit

Im Zuge der kinetischen Untersuchungen der Zircaloy 4/Wasserdampf-Oxidation in programmgesteuerten, realistischen und hypothetischen Temperatur-Zeit-Verläufen von Reaktorstörfällen wurden systematische Versuche über den Einfluß der Abkühlungsgeschwindigkeit von maximaler Reaktionstemperatur auf die Sauerstoffaufnahme, den Gefügestand und die mechanischen Eigenschaften des Materials begonnen. Die Untersuchungen basierten dabei auf den immer wieder angewandten, rechnerisch ermittelten DWR-Kühlmittelverluststörfall-Funktionen, bei denen über eine Gesamtdauer von drei Minuten die über den Blowdown-Peak angesteuerte Maximaltemperatur zwischen 800 und 1300°C und (nach Durchlaufen der Haltezeit bei dieser Temperatur) die Abkühlungsgeschwindigkeit zwischen 2 und 25°C/s variiert wurde. Die Auswertung der Reaktionsprodukte wurde - im Vergleich zu den bei gleichen Zeiten und Maximaltemperaturen, aber durch scharfe Abkühlung "abgeschreckten" Proben - durch gravimetrische und metallographische Methoden vorgenommen.

Die gravimetrische Prüfung der über die verlängerten Abkühlungszeiten eintretenden, vermehrten Gewichtszunahme ergab einen maximalen Zugewinn von etwa 30% für die langsamste Abkühlung (2°C/s) von der Maximaltemperatur (1300°C), d.h. bei einer auf die Weise um etwa 6 min verlängerten Reaktionszeit (Abb. 4235-15). Markante Unterschiede der Gefügestruktur als Folge unterschiedlicher Abkühlung konnten nur für die 1300°C-Versuche festgestellt werden (Abb. 4235-16). Während durch die kontrolliert schnellste Abkühlung

in 58°C/s die bekannte martensitische  $\alpha$ -Nadelstruktur (Widmannstätten-Struktur) noch erhalten werden konnte, nimmt bei zunehmend verlangsamer Abkühlung die Größe der stab- und plattenähnlichen Kristallite erheblich zu. Unter den Bedingungen verlangsamer Abkühlung kommt es von einer verminderten Zahl von Kristallisationskeimen aus zu einem diffusionsbestimmten Wachstum grober Kristallite. Die vermutlich inhomogene Sauerstoffverteilung eines solchen Gefüges und ihre Konsequenzen auf die mechanischen Eigenschaften des Materials sollten Gegenstand vertiefter Untersuchungen werden.

#### 1.2.2 Vergleich der bisherigen isothermen mit den neuesten temperaturtransienten, störfallähnlichen kinetischen Versuchsergebnissen

Der nunmehr mögliche Vergleich unserer isothermen Versuchsergebnisse mit denen der temperaturtransienten, störfallähnlichen Untersuchungen bei entsprechenden Zeiten (3 min) und Temperaturen (800-1300°C) ergab das folgende Bild (Abb. 4235-17).

Entsprechend der im Störfallverlauf - gegenüber der isothermen Reaktion - verminderten Zeit-bei-Temperatur kommt es jedenfalls für 900-1300°C zu dem bereits quantitativ beschriebenen reduzierten Gesamtumsatz (2, 8). Seine prozentuale Höhe ist ein von der maximalen Reaktionstemperatur unabhängiger Wert von etwa 33%. Das wird aufgrund des zwar mit der Reaktionstemperatur exponentiell steigenden Sauerstoffumsatzes, dem aber bei konstanter Reaktionsdauer die mit zunehmender Maximaltemperatur verkürzte Zeit-bei-Maximaltemperatur entgegenläuft, verständlich. Im Vergleich zu dem nach Baker-Just isotherm berechneten Gesamtumsatz bedeutet das zusammenfassende Ergebnis, daß für den genannten Temperaturbereich in etwa 47% der Sauerstoffaufnahme abzuziehen sind, um auf den in Frage gestellten Störfallumsatz umzurechnen.

#### 1.2.3 Temperaturtransiente Oxidation voroxidierte Rohrabchnitte

Im Zuge weiterer Berücksichtigung praktischer Gegebenheiten bei Reaktorstörfällen wurden - außer den temperaturtransienten Bedingungen der Dampfexposition - auch mögliche maximale Voroxidationszustände des Brennelement-Hüllmaterials erzeugt, um ihren Einfluß auf die während eines Störfalles zu erwartenden reduzierten Reaktionsumsätze zu untersuchen. Dazu wurden Zircaloy-

Rohrabschnitte während 26 Std bei 600°C und 7 Std bei 800°C bis zur Bildung einer Deckschichtstärke von rechnerisch etwa 30 µm ZrO<sub>2</sub> voroxidiert und sodann störfalltypischen Reaktionsverläufen während 3 min bei Maximaltemperaturen von 1000, 1100 und 1200°C unterworfen. Die gemessenen Gewichtszunahmen ergaben das folgende Bild (Abb. 4235-18). Bei 1000 und 1100°C lagen die Umsätze erwartungsgemäß deutlich unter denen des metallischen Oberflächenzustandes. Im Vergleich zu dem abgeschätzten Ergebnis einer nach 500 mg/dm<sup>2</sup> Gewichtszunahme über 3 Minuten ohne Zwischenabkühlung fortgesetzten Hochtemperaturoxidation jedoch ergibt sich eine etwas schlechtere Schutzwirkung als die eines Hochtemperatur-Oxides. Bei 1200°C waren keinerlei Vorteile verminderter Sauerstoffaufnahme, im Gegenteil vermehrte Umsätze, auch gegenüber dem metallischen Zustand in störfalltypischer Reaktionsweise erkennbar.

Damit bestätigen sich die bereits in isothermen Versuchen an verschiedenartig voroxidiertem Material gewonnenen Resultate (2), die auswiesen, daß bei Temperaturen oberhalb 1100°C von der Voroxidation keine Schutzwirkung auf das oxidative Störfallgeschehen erwartet werden kann, und daß bei resp. unterhalb 1100°C jedoch die nach den neuesten Messungen um 33% reduzierten Störfallumsätze des metallischen Materialzustandes noch klar unterboten werden.

## 2. Rohrrinnendruck-Zeitstandversuche in Wasserdampf und Argon

### 2.1 Versuchsdurchführung

Die Versuchsapparatur wurde bereits unlängst abgebildet und ausführlich beschrieben (7). In diesem Bericht sollen daher nur die Verbesserungen an der Apparatur und des Versuchsablaufes aufgezeigt werden.

Die Kapseln wurden bei der alten Versuchsanordnung an ein Titan-Druckzuleitungsrohr angeschweißt. Zeitweilige Schwierigkeiten durch Eutektikumbildung und sehr starke Oxidation des Titans ließen ein Zircaloy-2-Druckzuleitungsrohr zur Anwendung kommen. Ein Führungsrohr zur Vermeidung der Durchbiegung des Druckzuleitungsrohres war somit nicht mehr erforderlich. Die höheren Materialkosten des Zircaloy 2-Rohres konnten durch mehrmaligen Einsatz eines Rohres weitgehend ausgeglichen werden. - Bei der alten Versuchsanordnung wurde im Dampferzeuger ständig frisches Wasser verdampft. Ein Umbau ermöglichte die kontinuierliche Rückführung des Dampfkondensats, so daß ein geschlossener

Dampfkreislauf entstand und die Versuche unter völligem Luftabschluß gefahren werden konnten. - Der während des Aufheizvorganges zum Spülen eingeleitete Argonstrom wurde in einem separaten Ofen bei 1000°C über Zirconspänen als Gettermaterial gereinigt.

Im oben zitierten Bericht wurde auch die temperatur-transiente Versuchsführung in Dampf beschrieben. Bei dieser Versuchsführung erreichen die Kapseln erst nach 3-4 Minuten ihre Endtemperatur, so daß es bei hohen Innendrücken bereits vor Erreichen des gewünschten Druckes zum vorzeitigen Platzen der Kapseln kam. Die weiteren Versuche wurden daher unter sehr streng isothermen und isobaren Bedingungen gefahren.- Durch entsprechende Ventilschaltung war es möglich, nach mehrmaligem Spülen des Kapselinneren und unter Ausschluß des Kapselvolumens den gewünschten Innendruck probenhalber einzustellen. Der Überdruck wurde danach unter Beibehaltung der Ventilstellungen abgelassen. Durch Schließen des Ablassventils ließ sich der gewählte Innendruck innerhalb von 8 Sekunden ohne Korrektur wieder einstellen.

Folgende Vorgehensweise wurde routinemäßig angewandt (4235-19): Die Kapsel wird drucklos unter gereinigtem Argon <sup>in</sup> 4 Minuten auf eine Temperatur gebracht, die je nach notwendigen Endtemperaturen, durch die eintretende exotherme Reaktion von Zircaloy mit Wasserdampf, um 10-80°C unter ihrem Sollwert liegt. Danach wird gleichzeitig das Dampfventil geöffnet und der Argonstrom abgestellt. Nach 8 Sekunden erreicht der Dampf die Kapsel, sogleich tritt die exotherme Reaktion des Zircaloy 4 mit dem Wasserdampf ein und die Kapsel erreicht innerhalb von 8 Sekunden ihre Endtemperatur. Die Temperatureinstellung des Ofenreglers muß sodann auf die neue Temperatur eingestellt werden.

Gleichzeitig mit Beginn der exothermen Reaktion erfolgt der Argoneinlaß in das innere Kapselvolumen. Die Zeit von Beginn der Druckaufgabe respektive beginnenden Metall-Dampfreaktion bis zum Bruch ergibt die Standzeit. Nach Erreichen der gewünschten Versuchszeit resp. nach erfolgtem Bruch wird die Dampfzufuhr abgestellt, der Reaktionsraum mit Argon wasserstofffrei gespült und die Kapsel in den kalten Bereich des Ofens zum Abkühlen gebracht.

## 2.2 Versuchsauswertung

### 2.2.1 Bestimmung der maximalen Umfangsdehnung

Zur Bestimmung der maximalen Umfangsdehnung wurde um die am stärksten ge-

dehnten Stelle der zu vermessenden Kapsel ein etwa 2 mm breiter Tesafilmstreifen gelegt. Der sich etwas überlappende Tesastreifen wurde an der Probe mit einem Rasiermesser aufgeschnitten, vorsichtig abgezogen, auf einer ebenen Unterlage ausgebreitet und mit einer Lupenlampe direkt der Umfang abgemessen. Bei geplatzten Proben wurde die Reißbreite mit einer Schieblehre vermessen und in Abzug gebracht.

### 2.2.2 Photographische Abbildung der Kapseln

Nach Beendigung des Versuchs wurden die Kapseln jeweils in Front- und Seitenansicht zum Bruch fotografiert und in natürlicher Größe wiedergegeben. Kapseln, die nicht geplatzt waren, wurden entsprechend nur einmal fotografiert.

### 2.2.3 Probenvorbereitung zur rasterelektronischen Auswertung

An der zu untersuchenden Stelle der Kapsel - vorwiegend an der am stärksten gedehnten Stelle - wurde ein ca. 5 mm breiter Ring herausgetrennt. Dieser Ring wurde halbiert, mit der Wölbung nach oben auf einen speziellen Probenhalter geklebt und zur Verbesserung der Leitfähigkeit leicht mit Gold bedampft. Von den so vorbereiteten Proben konnten im Rasterelektronenmikroskop zur Untersuchung der Reißzahl und -breite Oberflächenaufnahmen zwischen 65-105.000-facher Vergrößerung angefertigt werden.

## 2.3 Versuchsergebnisse

### 2.3.1 Zeitstandversuch

Die - im Gegensatz zu den im folgenden Abschnitt besprochenen Versuche - bis zum Bersten der Proben durchgeführten Rohrrinnendruck-Kurzzeitstandversuche hatten die in Abb. 4235-20 wiedergegebenen Ergebnisse, die zu Vergleichszwecken den entsprechenden Resultaten in Argon ( 2, 7 ) zugeordnet wurden. Hierbei sind die den angewandten Rohrkapsel-Innendrücken entsprechenden Tangentialspannungswerte auf der Basis der Ausgangsrohrdimension berechnet und als Funktion der Standzeit wiedergegeben. Jedoch wurden auch die wahren Tangentialspannungen - unter Berücksichtigung der maximalen Umfangsdehnung - gemäß der Beziehung berechnet

$$\sigma_{t_w} = \sigma_{t_A} (1 + \epsilon)^2$$

$\sigma_{t_w}$  = wahre Tangentialspannung (N/mm<sup>2</sup>)

$\sigma_t$  = anfängliche Tangentialspannung (N/mm<sup>2</sup>)  
 $\epsilon^A$  = max. Umfangsdehnung

und in Tab. 4235-3 wiedergegeben. Auf diese Weise wurde es möglich, den im  $\alpha/\beta$ -Umwandlungs-Temperaturbereich (900°C) durch hohe Umfangsdehnungen vorge-täuschten Festigkeitsabfall der Proben zu korrigieren und die Funktion da-durch in eine zu den Geraden von 800° und 950°C parallele Neigung zurückzu-führen.

Die besondere Aufmerksamkeit richtete sich auf die festigkeitserhöhenden und duktilitätsmindernden Effekte der Dampfoxidation. Ein leichter Duktilitäts-rückgang wurde bereits bei 800°C nach Expositionszeiten > 200 sec festgestellt, wesentlich stärker trat dieser Effekt bei 900 und 950°C bereits nach sehr kur-zen Reaktionszeiten hervor. Eine oxidationsbedingte Festigkeitszunahme wurde bei den beiden letztgenannten Temperaturen durch verlängerte Standzeiten ge-messen, sie trat jedoch als klare Abweichung von der gewählten Darstellung des Funktionsverlaufs in Argon (Abb. 4235-20) erst ab 150 sec bei 950°C deut-lich hervor und wurde als schraffierte Fläche gekennzeichnet.

Das äußere Erscheinungsbild der dampf-exponierten Kapseln (Abb. 4235-21 bis 23) war bestimmt durch die mit steigender Reaktionstemperatur zu beobach-abnehmenden tendenden/Umfangsdehnungen. Es erwies sich aber auch die Weite der Rißöffnung der Kapseln als eine von den gewählten Versuchsbedingungen stark abhängige Größe. Am weitesten waren die bei 800°C unter hohen Innendrücker, d.h. kür-zesten Standzeiten, geprüften Rohrkapseln aufgerissen. Sie wurden dabei ge-gen die Berstseite bananenartig gekrümmt. Die schwarzen oxidischen Oberflä-chenschichten zeigten eine rissige Struktur, weil die durch die mechanische Belastung auftretende/bruchfestigkeitsüberschreitende Beanspruchung der ZrO<sub>2</sub>-Oberflächenschicht zur Folge hatte. Dadurch wurde außerdem ein am Rißgrund und den Rißflanken verstärkter Oxidationsangriff ermöglicht.

### 2.3.2 Kriechkurven

Ausgehend von der Tatsache, daß in vorausgehenden Innendruckversuchen bei 900°, d.h. im Temperaturbereich der  $\alpha/\beta$ -Umwandlung, sehr hohe kriechgeschwin-digkeitsabhängige Dehnungswerte gemessen wurden, erschien es interessant, Kriechkurven unter verschiedenen Innendrücker durch Versuchsabbruch von Ein-zelmessungen und deren Vermessung auf maximale Umfangsdehnung aufzunehmen. Das wurde zeitgleich für Argon und Wasserdampf bis zum Bruch in jeweils 4-5

Tab. 4235-3: Rohrinndruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4-  
Rohrkapseln in reinem Argon und Dampf  
bei 800 - 900 - 950°C

Argon

Temperatur [°C]	Innendruck [at]	Standzeit [min,s]	Tangential-Spannung		Max. Umfangs- dehnung (Bruch) $\epsilon_B$ [%]
			(Vers.-Beginn) $\sigma_{tA}$ [N/mm <sup>2</sup> ]	(Bruch) $\sigma_{tBw}$ [N/mm <sup>2</sup> ]	
800	70,8	40"	46,0	174,2	94,6
	51,8	2' 30"	33,5	130,8	97,7
	41,2	11' 16"	26,6	97,9	91,7
	32,4	40' 5"	21,0	72,1	85,3
900	40,0	20"	25,9	72,8	67,7
	25,0	1' 44"	16,2	46,2	68,9
	23,0	2' 1"	14,8	40,3	65,2
	16,0	7' 55"	10,1	44,1	108,6
	15,1	7' 52"	9,8	33,6	85,3
	15,0	8' 16"	9,7	39,2	101,0
	13,3	12' 46"	8,5	36,0	106,0
	10,0	28' 27"	6,4	23,8	93,4
	9,0	29' 43"	5,7	34,8	146,6
	9,0	33' 14"	5,8	26,7	113,8
950	19,0	21"	12,4	26,5	46,4
	16,0	48"	10,3	21,9	45,7
	13,1	2' 24"	8,5	22,1	61,2
	10,1	8' 52"	6,5	19,3	71,9
	8,0	17' 14"	5,2	12,7	56,6



Dampf

Temperatur [°C]	Innendruck [at]	Standzeit [min,s]	Tangential- (Vers.-Beginn) $\sigma_{tA}$ [N/mm <sup>2</sup> ]	Spannung (Bruch) $\sigma_{t B w}$ [N/mm <sup>2</sup> ]	Max. Umfangs- dehnung (Bruch) $\epsilon_B$ [%]
800	70,8	38"	45,4	163,3	89,6
	70,8	42"	45,5	169,5	93,1
	51,8	3'	33,1	129,5	97,7
	41,2	9' 34"	26,5	83,8	78,0
	32,3	37' 3"	20,7	61,5	72,3
900	39,8	21"	25,4	51,7	42,7
	29,4	1' 7"	18,7	42,7	51,2
	23,0	2' 15"	14,9	31,5	45,7
	19,9	4' 52"	12,8	31,9	58,0
	16,0	8' 20"	10,2	24,5	54,9
	12,6	16' 26"	8,1	23,1	69,3
	10,0	32' 46"	6,4	16,5	60,4
950	21,1	10"	13,7	19,3	19,0
	18,9	11"	12,1	20,1	28,9
	17,1	13"	11,0	18,2	28,5
	15,6	42"	10,2	13,7	15,6
	15,0	1' 3"	9,6	12,5	13,8
	13,7	1' 17"	8,8	11,2	12,9
	13,0	2' 21"	8,3	10,9	14,3
	12,1	11' 31"	7,8	12,6	27,2
	11,0	7' 32"	7,1	9,0	12,8
	10,3	34' 30"	6,6	12,3	36,6

Messungen bei Innendrücker von 10, 16, 23 at durchgeführt. Die gewonnenen Kriechkurven sind in Abb. 4235-24 wiedergegeben. Man erkennt aus dieser Darstellung, daß

- bei sehr kurzen Standzeiten in Dampf relativ niedrige Bruchdehnungen (40%) beobachtet resp. extrapoliert werden können,
- das Ausmaß der Bruchdehnungen sich umgekehrt proportional zum Kapselinnendruck verhält, also mit abnehmendem Druck ansteigt,
- die überlagerte Dampfoxidation einen festigkeitserhöhenden und duktilitätsvermindernden Einfluß ausübt.

In Abb. 4235-25 ist der zeitliche Verlauf der wahren Tangentialspannung (berechnet auf der Basis der maximalen Umfangsdehnung) aller Versuche wiedergegeben. Sie läßt deren starken Anstieg aufgrund der sich vermindernenden Wandstärke erkennen.

In Einzelabbildungen (Abb. 4235-26 bis 28) sind die für die drei verschiedenen Innendrücker durch Versuchsabbruch gewonnenen sowie die nach Bruch entnommenen, gedehnten Kapselproben wiedergegeben. Jeweils wurden die Versuchs- resp. Standzeiten und gemessenen maximalen Dehnungen hinzugefügt.

Es zeigte sich, daß

- bis zum Ende des sekundären Kriechbereichs die beobachteten Kapseldehnungen unabhängig vom Milieu über deren Länge gleichmäßig und rotationssymmetrisch auftraten,
- erst im tertiären Kriechbereich deutlich einseitige Verformungen d.h. Beulen, auftraten, die schließlich zur Lokalität des Bruches wurden. Die Berechnung der wahren Tangentialspannung einer solchermaßen verformten, geborstenen Kapsel kann aufgrund der über den Umfang unterschiedlichen Wandstärke deshalb nur einen mittleren Näherungswert erbringen;
- schon nach Expositionszeiten von  $>1$  min in Dampf reduzierte Dehnungswerte gemessen werden konnten. Diese lagen vor allem bei Vergleich der geborstenen Proben erheblich unter denen der argonexponierten Proben.
- die gedehnten Kapseln in ihrer Gesamtheit, d.h. schon bei sehr kurzen Zeiten innerer mechanischer und äußerer korrosiver Beanspruchung, Risse in der äußeren  $ZrO_2$ -Deckschicht aufwiesen.

Zu einer genaueren Prüfung ihrer Zahl pro Umfangslänge und ihrer Breite wurden rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen durchgeführt. Einige Aufnahmen sind im Überblick in Abb. 4235-29 wiedergegeben. Durch ihre quantitative Auswertung konnten die folgenden beanspruchungsbedingten Unterschiede von Rißbildung und Rißwachstum für die frei verschiedenen Kapselinnendrucke ermittelt werden:

Bei dem Versuch bei hohem Innendruck (23 at), dem eine Standzeit von 135 sec entsprach, trat sehr schnell eine hohe Rißdichte (200 R/cm) auf, die in Übereinstimmung mit der Tendenz aller übrigen Versuche bis zum Versuchsende konstant blieb; kurz vor dem Ende der Standzeit stieg die mittlere Rißbreite auf das 4,5-fache (18,3  $\mu\text{m}$ ).

Bei dem Versuch bei mittlerem Innendruck (16 at), dem eine Standzeit von 500 sec entsprach, trat schnell eine gegenüber dem erstgenannten Versuch verminderte Rißdichte auf (120 R/cm); die Risse verbreiterten sich im tertiären Kriechbereich auf das 5,3-fache (29  $\mu\text{m}$ ).

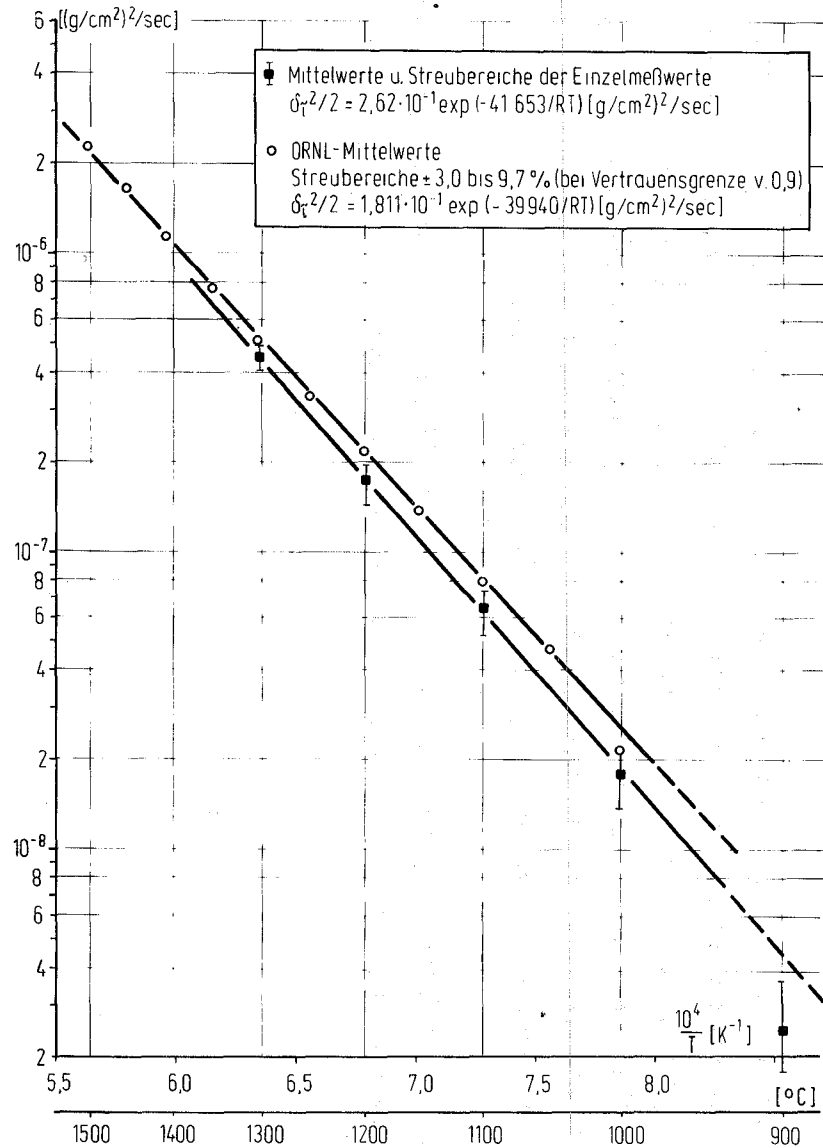
Bei dem Versuch bei niedrigerem Innendruck (10 at), dem eine Standzeit von 1966 sec entsprach, trat bald eine gegenüber den beiden erstgenannten Versuchen weitergehend verminderte Rißdichte auf (90 R/cm); die Risse verbreiterten sich jedoch im tertiären Kriechbereich auf das 7-fache (35  $\mu\text{m}$ ).

Die aus der Rißzahl und der Gesamtdehnung der gebrochenen Kapseln (Abb. 4235-30) berechneten Rißdichten und mittleren Rißbreiten wurden in einer hyperbolischen Funktion (Abb. 4235-31) zusammenfassend dargestellt. An der Probe des 10 at-Versuchs wurde die geringste Rißdichte, aber größte mittlere Rißbreite, an der des 23 at-Versuchs, die höchste Rißdichte und geringste mittlere Breite beobachtet. Der Versuch bei 16 at zeigt dazwischenliegende Werte.

Die quantitative planimetrische Auswertung dieser Versuche auf das Ausmaß der spannungsverstärkten Oxidation ist derzeit im Gange.

# ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

PARABOLISCHE GESCHWINDIGKEITSKONSTANTE  $\delta_T^2/2$  FÜR DIE SAUERSTOFFAUFNAHME IN TEMPERATURABHÄNGIGKEIT



# ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR OXIDATION

PARABOLISCHE GESCHWINDIGKEITSKONSTANTE  $\delta_\phi^2/2$  FÜR DAS WACHSTUM DER OXIDSCHICHT IN TEMPERATURABHÄNGIGKEIT

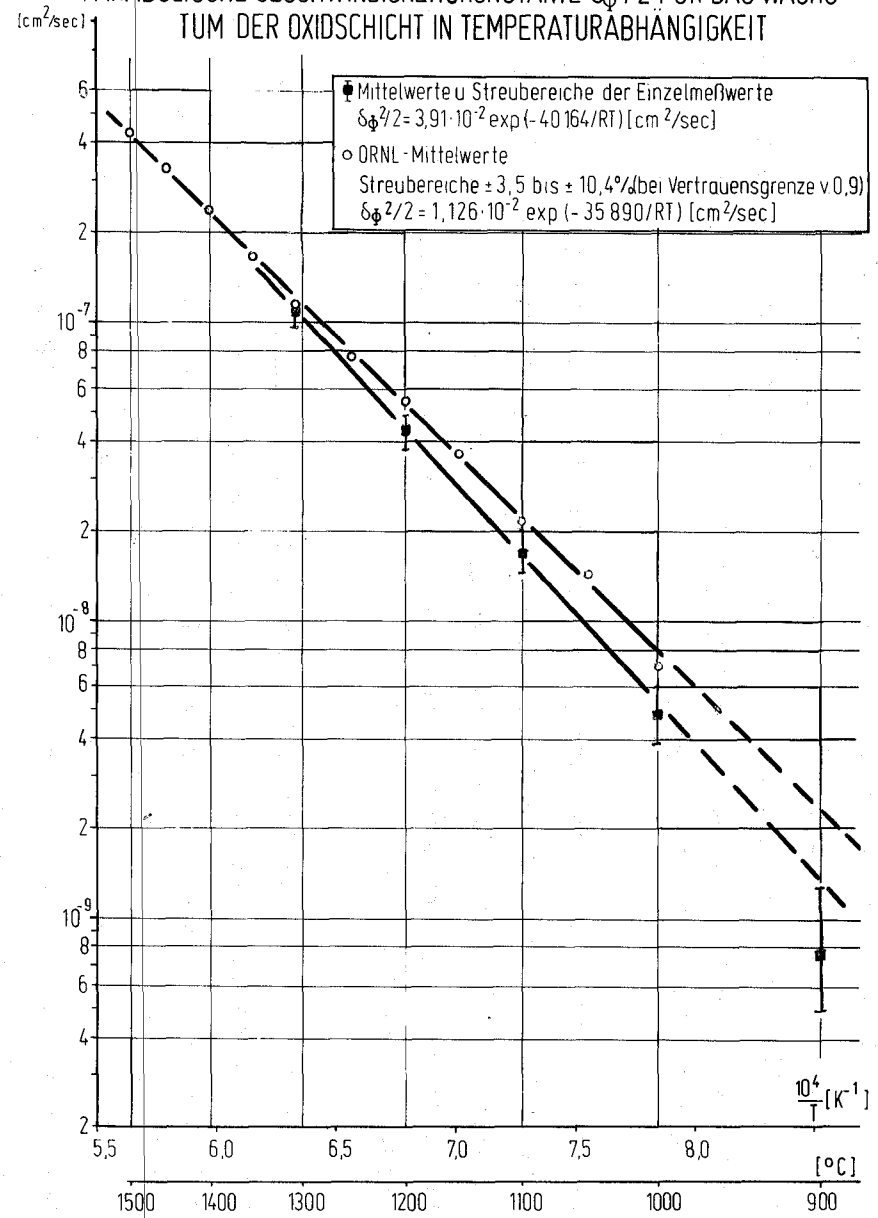
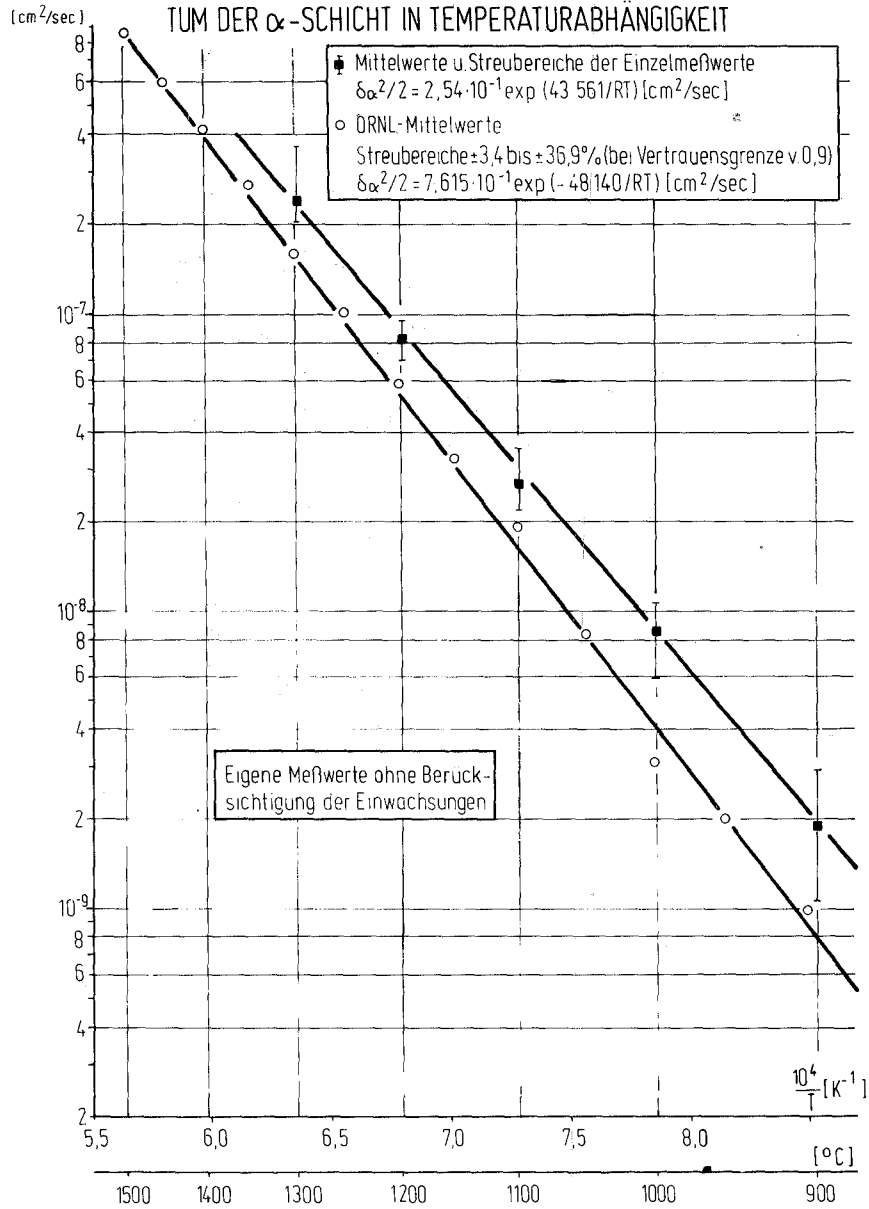


Abb. 4.235-4

# ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR OXIDATION

PARABOLISCHE GESCHWINDIGKEITSKONSTANTE  $\delta_{\alpha^2}/2$  FÜR DAS WACHSTUM DER  $\alpha$ -SCHICHT IN TEMPERATURABHÄNGIGKEIT



# ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR OXIDATION

PARABOLISCHE GESCHWINDIGKEITSKONSTANTE  $\delta_{\xi^2}/2$  FÜR DAS WACHSTUM DER DOPPELSCHICHT AUS OXID UND  $\alpha$ -PHASE IN TEMPERATURABHÄNGIGKEIT

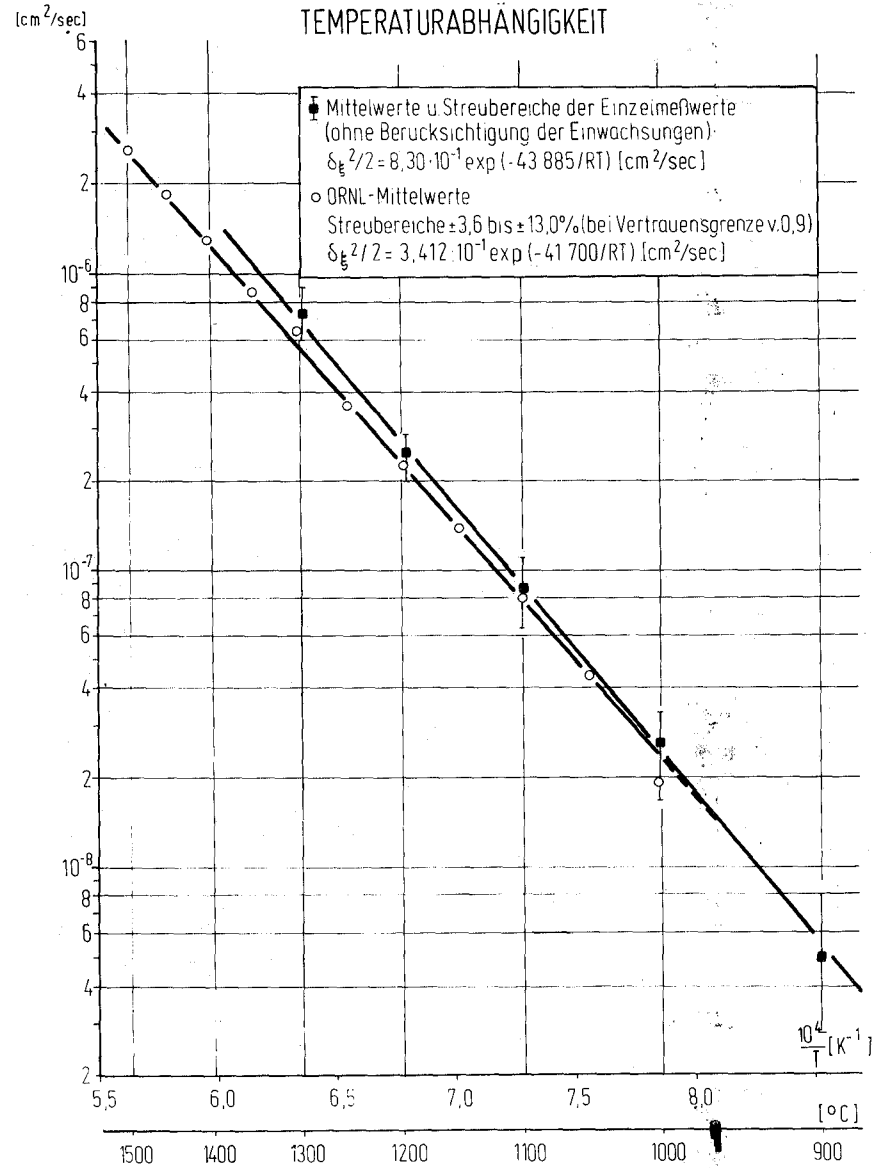
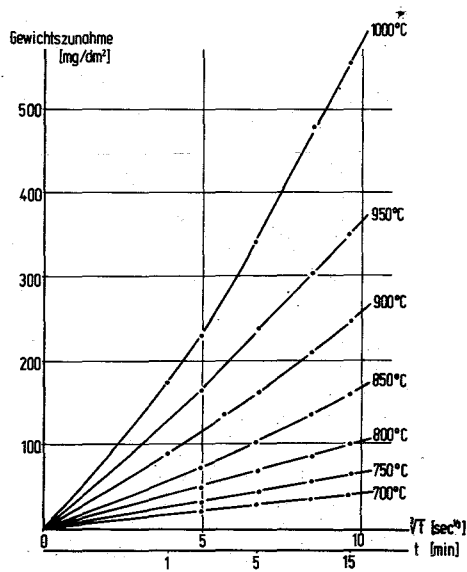
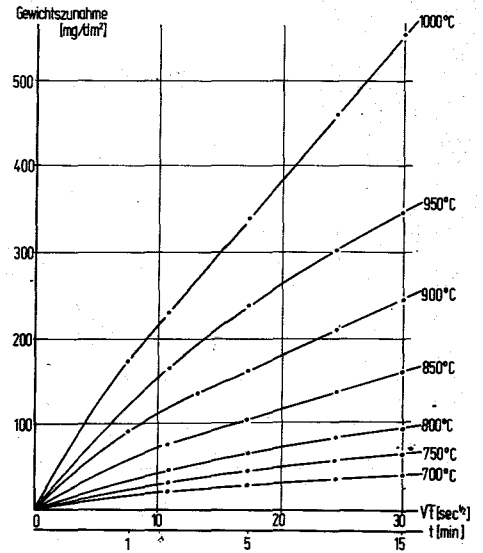
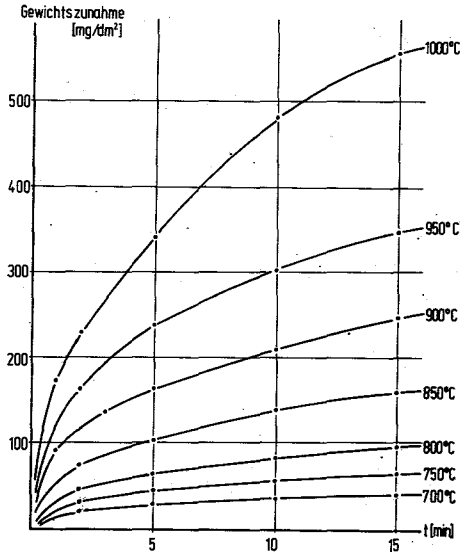


Abb. 4235-5

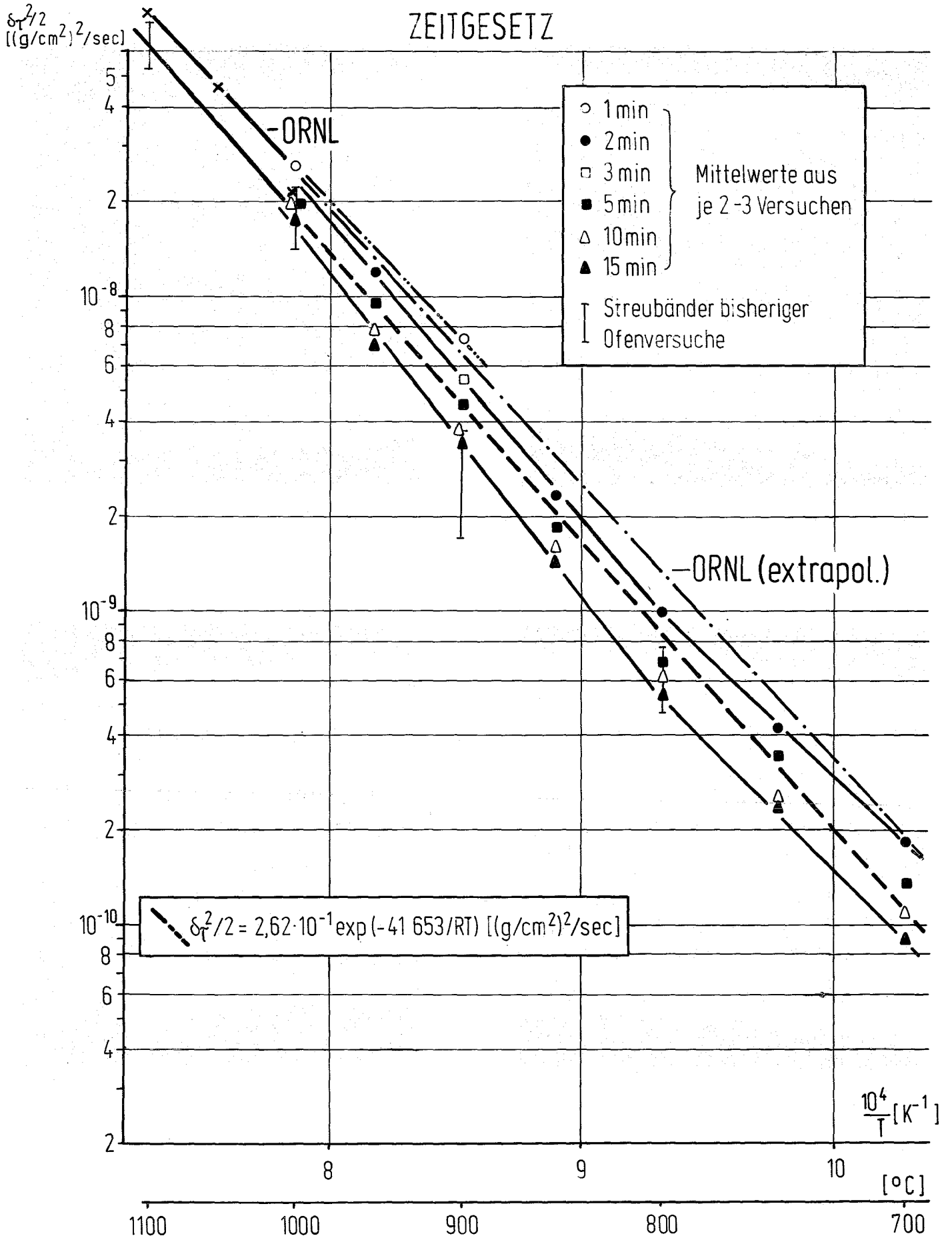
# Abb.4235-6 ZIRCALLOY 4/DAMPF-HT-OXIDATION

GEWICHTSZUNAHME ALS FUNKTION DER REAKTIONS-ZEIT ( $\leq 15$  min, 700-1000°C, IN LINEARER, PARABOLISCHER UND KUBISCHER AUFTRAGUNG



# Abb.4235-7 ZIRCALOY 4 / DAMPF-HOCHTEMPERATUR OXIDATION

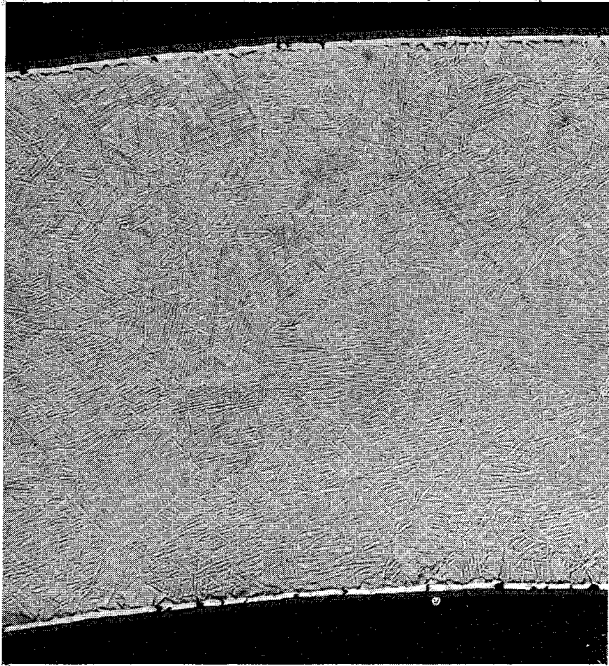
PARABOLISCHE GESCHWINDIGKEITSKONSTANTE  $\delta_T^2/2$  FÜR DIE SAUERSTOFFAUFNAHME IN TEMPERATURABHÄNGIGKEIT. ABWEICHUNG VOM PARABOLISCHEN ZEITGESETZ



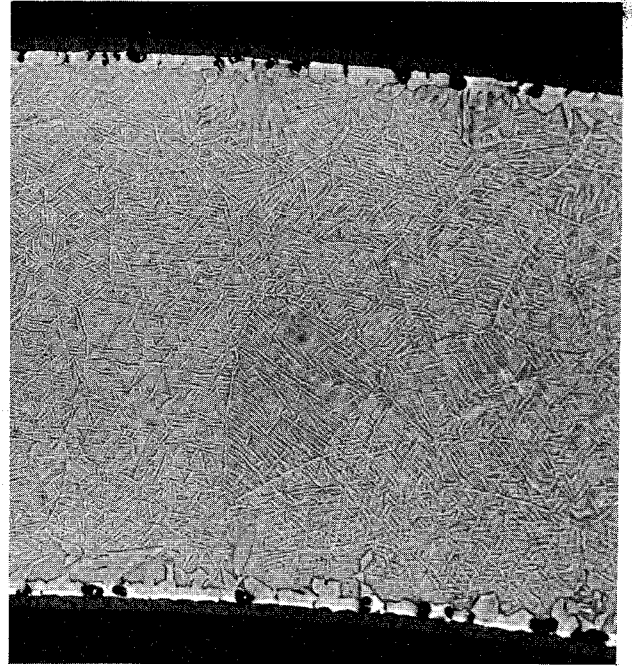
# ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

Abb.4235-8

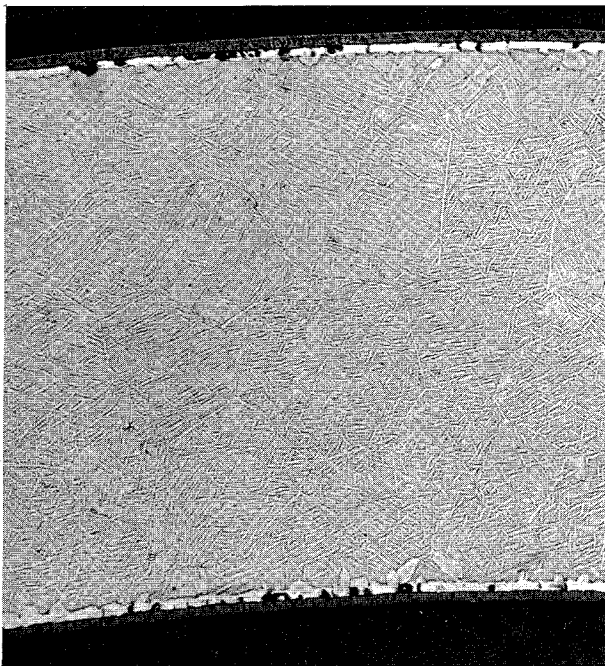
1000°C, 1m/s, isotherm



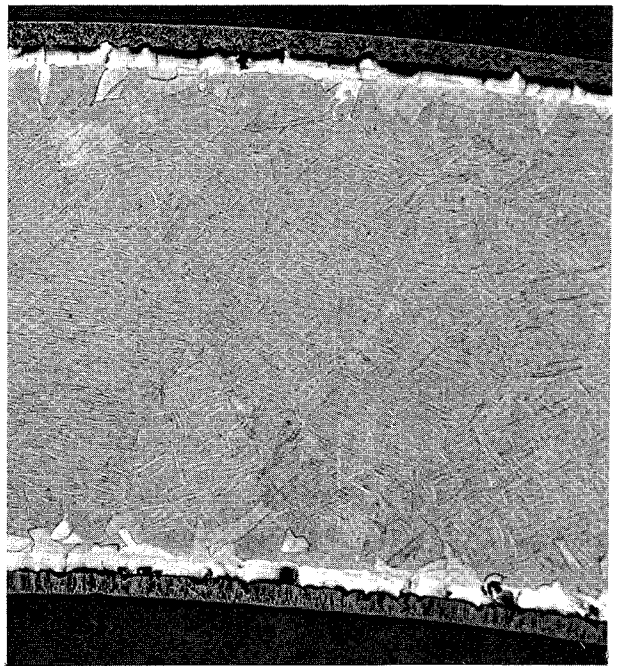
1 min



5 min



2 min



10 min

100X



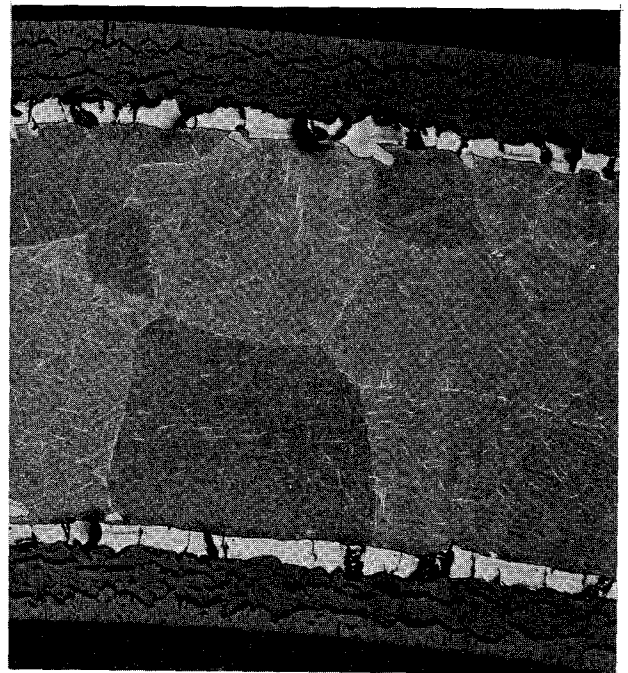
# ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

Abb.4235-9

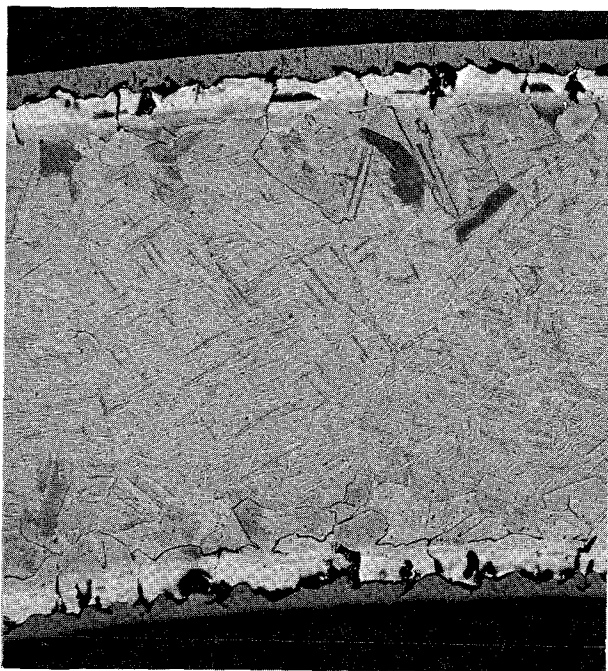
1000°C, 1 m/s, isotherm



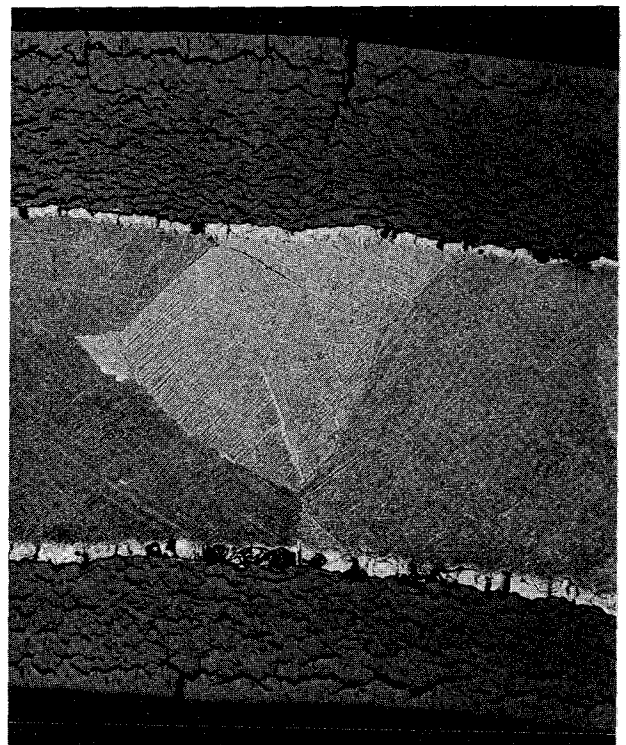
15 min



60 min



30 min



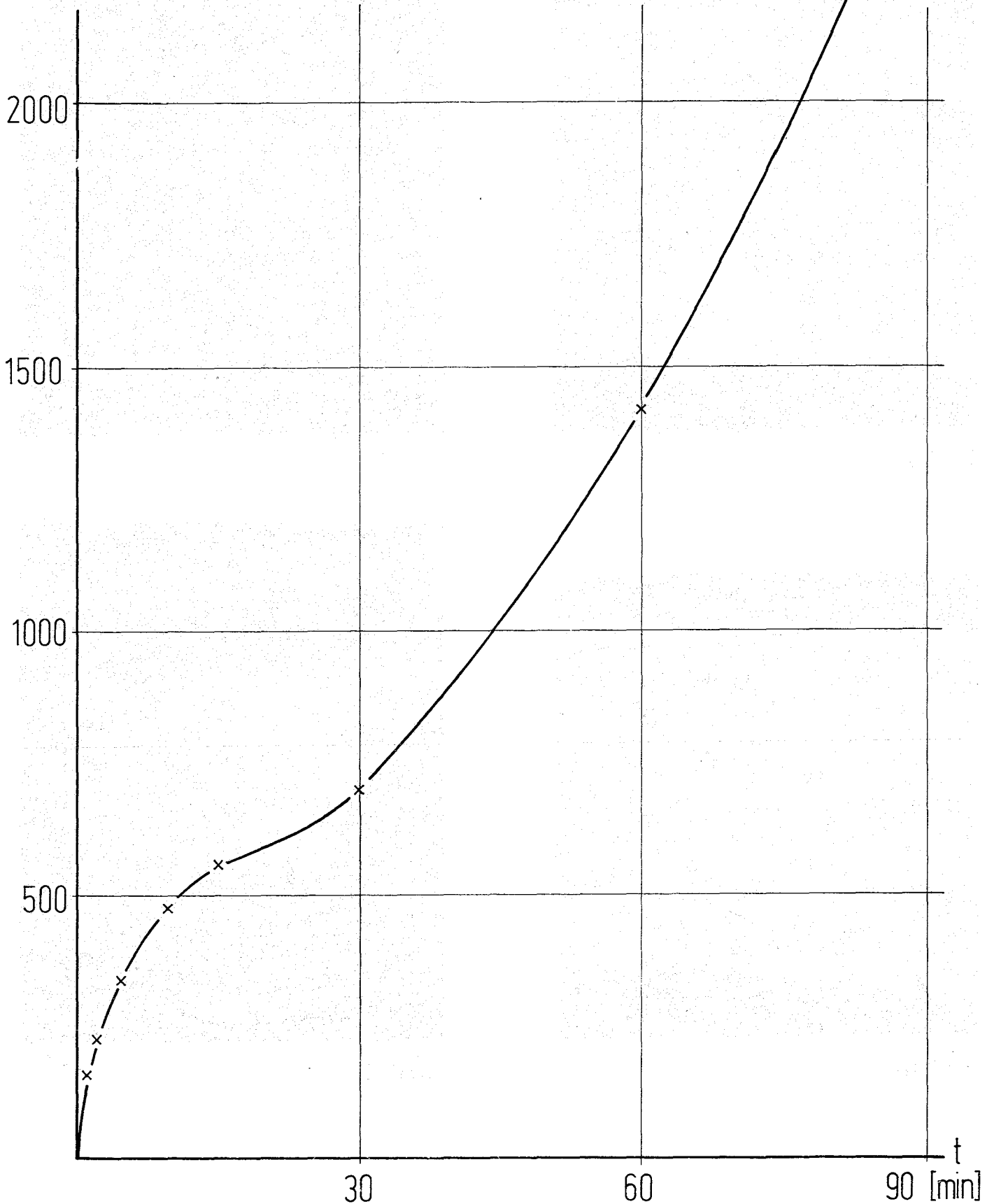
90 min

100 X

# Abb.4235-10 ZIRCALOY 4 / DAMPF-HT-OXIDATION

ABHÄNGIGKEIT DER GEWICHTSZUNAHME VON  
DER REAKTIONSZEIT BEI LANGZEITVER-  
SUCHEN BIS 90 min, 1000° C.

Gewichts-  
zunahme  
[mg/dm<sup>2</sup>]



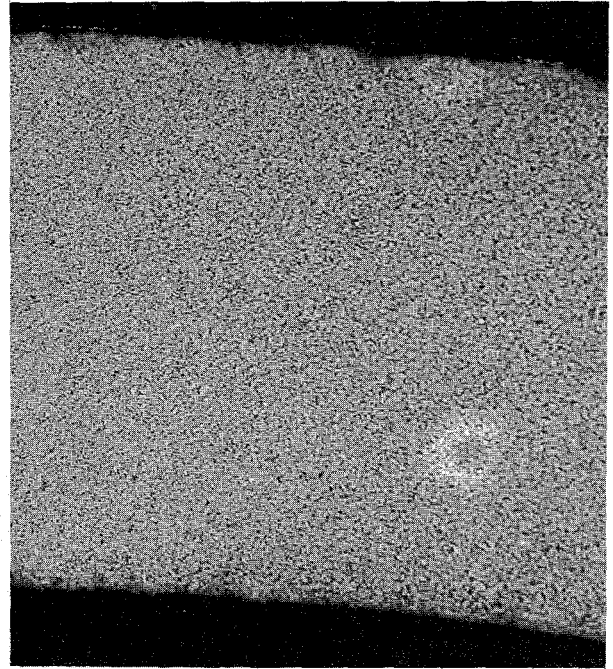
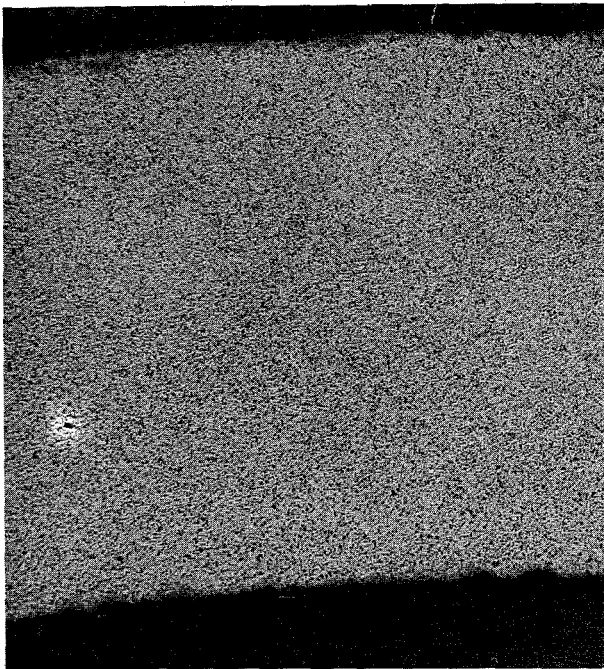
# Abb.4235-11 ZIRCALOY 4/HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

A: durch H<sub>2</sub> [1/2 h; 300°C; 0,3 l/min]

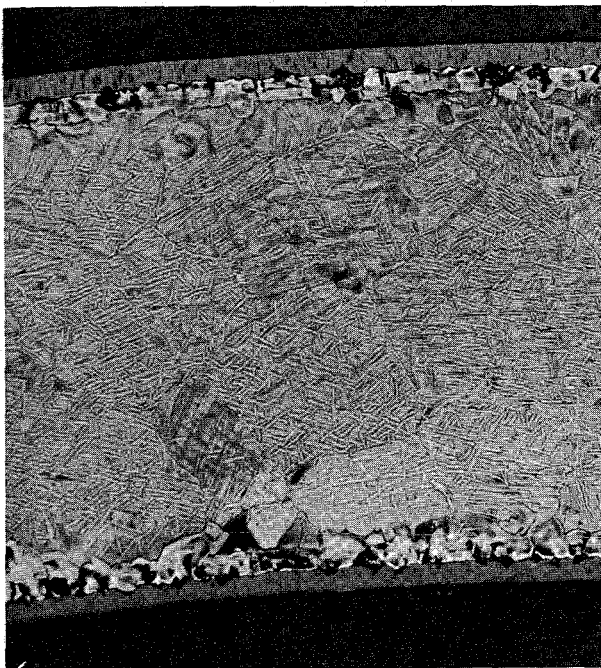
A: durch H<sub>2</sub> [1h; 300°C; 0,3 l/min]

B: Vorbehandlung [H<sub>2</sub>; 1/2 h; 300°C; 0,3 l/min] und Dampfkorrosion [15 min, 1000°C, 1 m/s]

B: Vorbehandlung [H<sub>2</sub>; 1h; 300°C; 0,3 l/min] und Dampfkorrosion [15 min, 1000°C, 1 m/s]



A



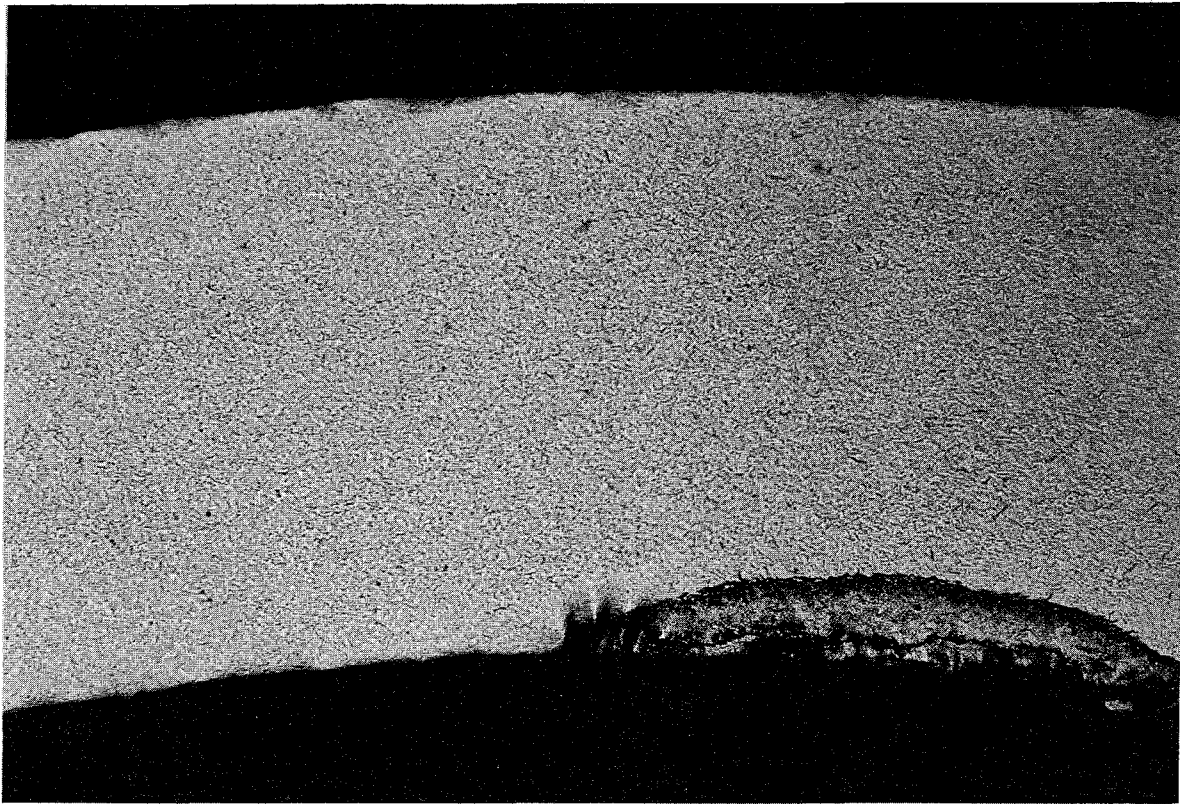
B

100 X

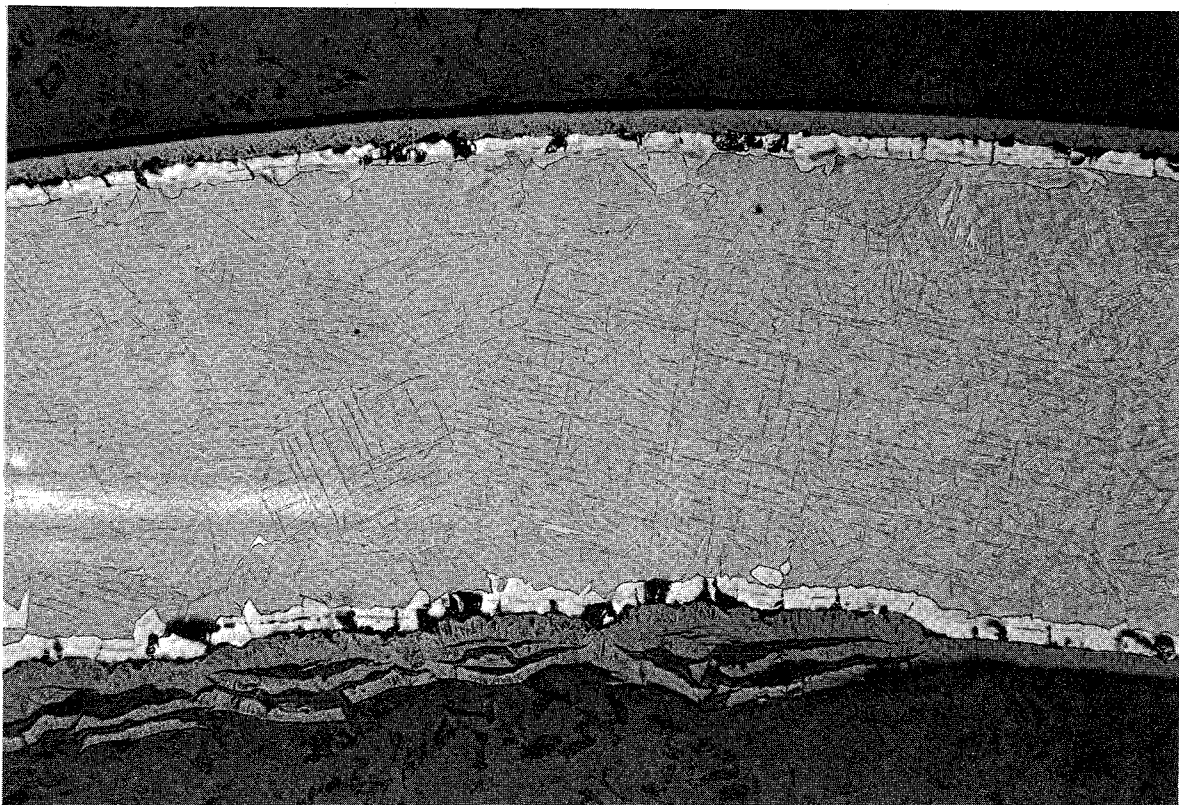
Abb.4235-12 ZIRCALOY 4 / HT-OXIDATION

A: durch H<sub>2</sub> [ 2 1/2 h, 300°C, 0,3 l/min]

B: Vorbehandlung [H<sub>2</sub>, 2 1/2 h, 300°C, 0,3 l/min]  
und Dampfkorrosion [15 min, 1000°C, 1 m/s]



A



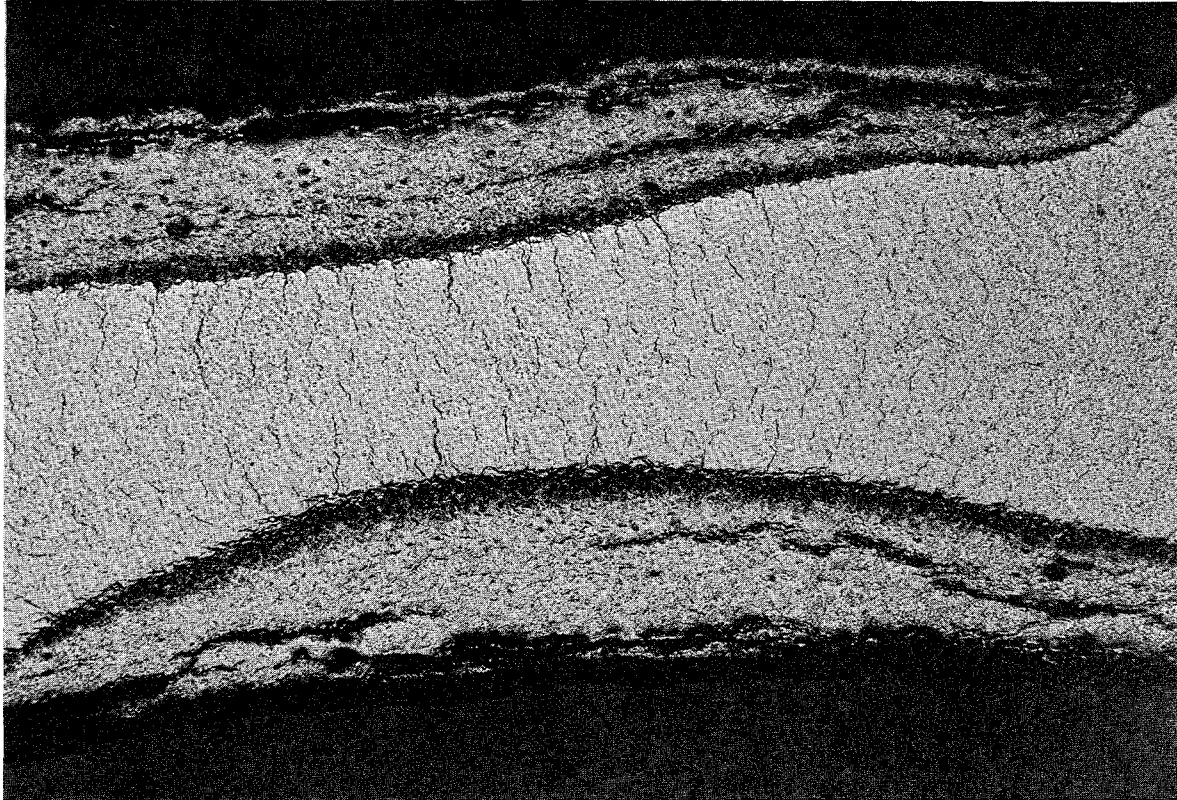
B

100X, geätzt

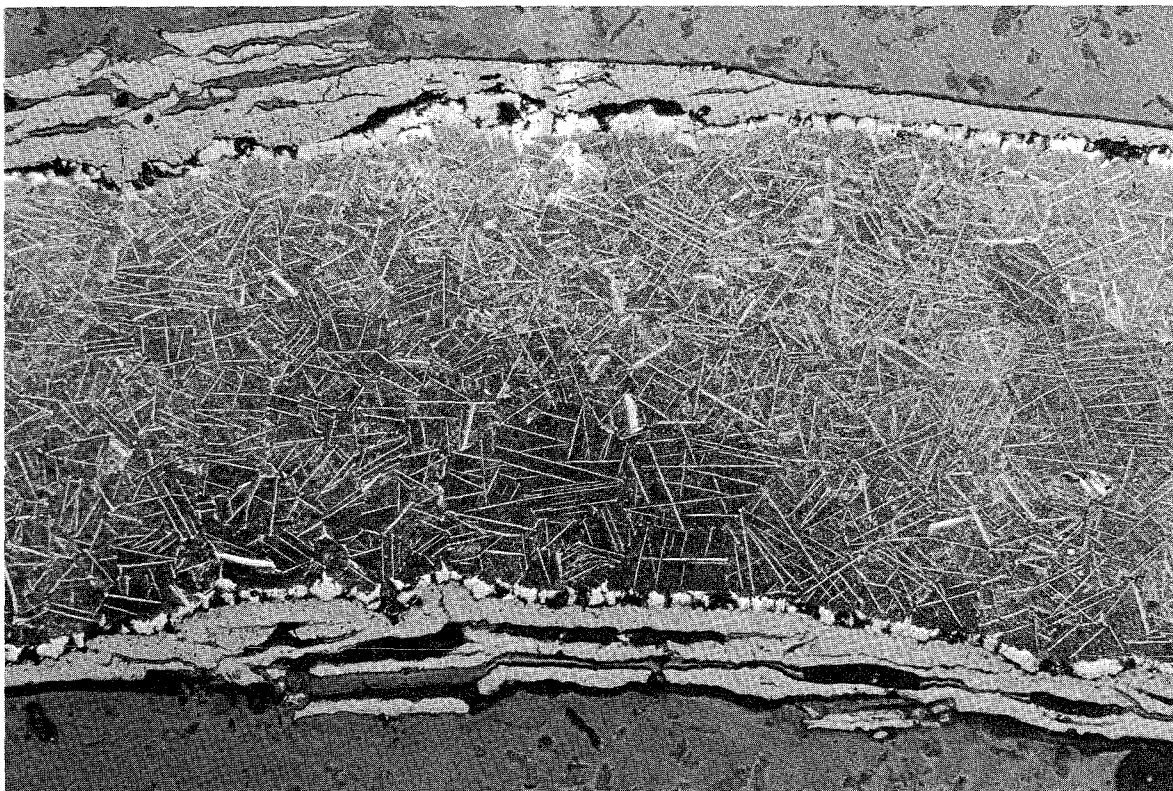
Abb4235-13 ZIRCALOY 4 / HT-OXIDATION

A: durch H<sub>2</sub> [ 4 h, 300°C, 0,3 l/min ]

B: Vorbehandlung [ H<sub>2</sub>, 4 h, 300°C, 0,3 l/min ]  
und Dampfkorrosion [ 15 min, 1000°C, 1 m/s ]



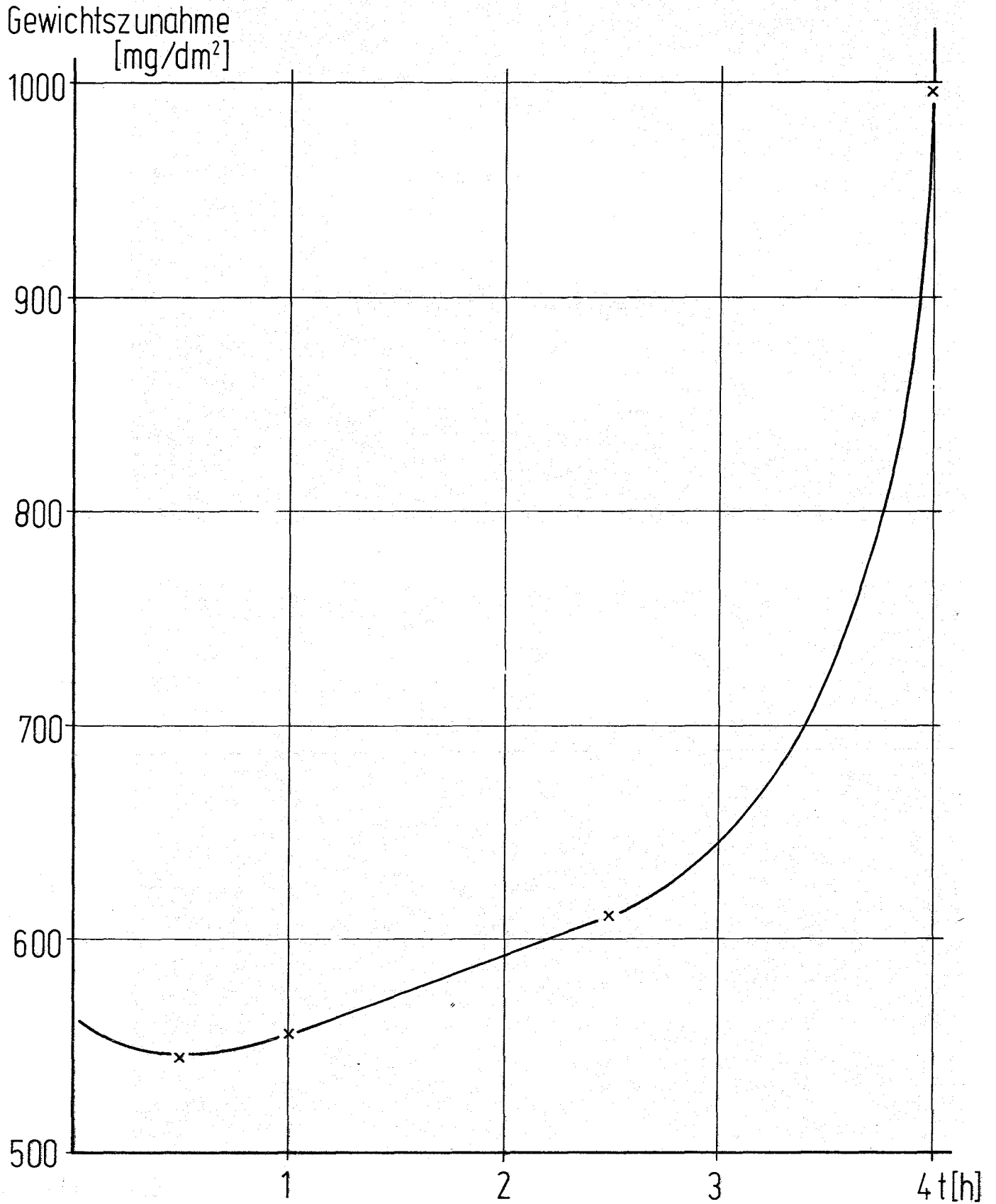
A



B

100 X, geätzt

Abb.4235-14 ZIRCALOY 4 / DAMPF-HT-OXIDATION  
(1000°C, 15min.) IN ABHÄNGIGKEIT DER VORAN-  
GEGANGENEN HYDRIERZEIT



# Abb.4235-15 ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

ISOTHERMER UND TRANSIENTE ZEIT-TEMPERATUR-VERLÄUFE UNTER VARIATION DER ABKÜHLGESCHWINDIGKEIT MIT ANGABE DER GEWICHTSÄNDERUNGEN

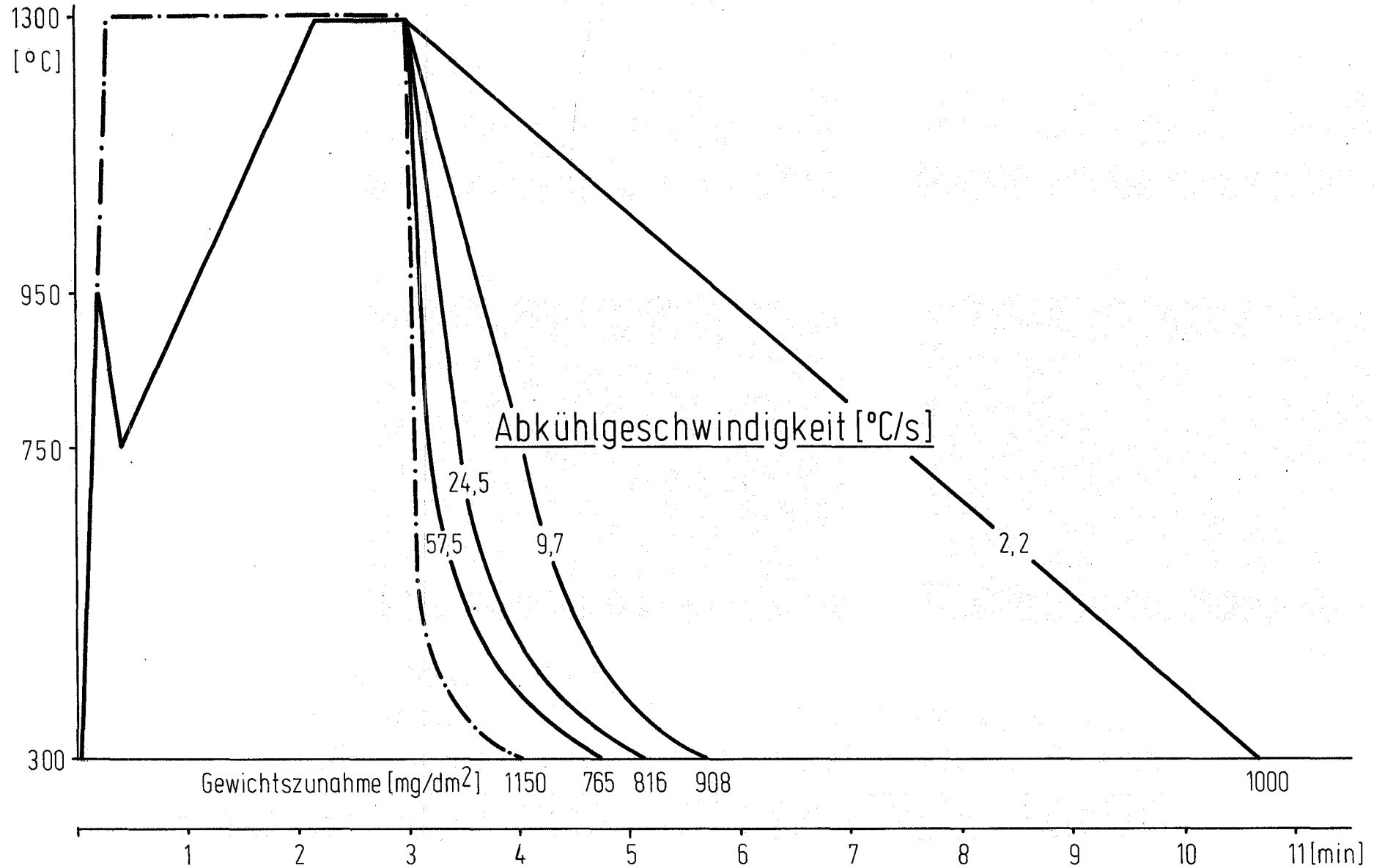
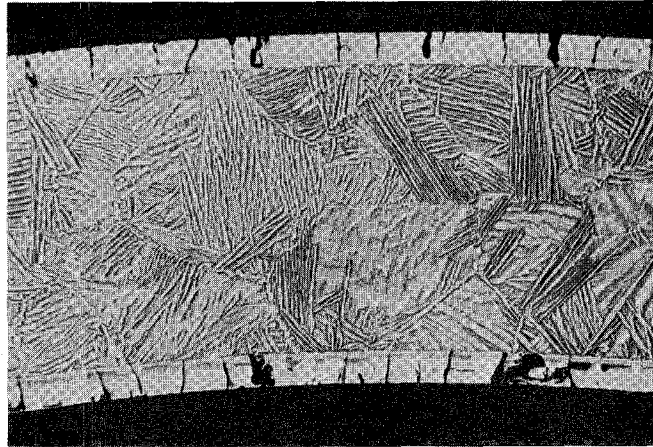


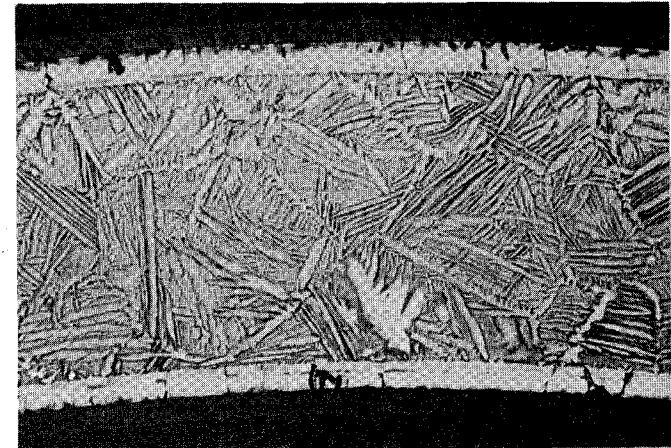
Abb.4 235-16 ZIRCALLOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

QUERSCHLIFFE VON ROHRPROBEN NACH TEMPERATUR-TRANSIENTEN  
VERLÄUFEN (3min, 950-750-1300°C, GEFOLGT VON UNTERSCHIED-  
LICHEN ABKÜHLZEITEN

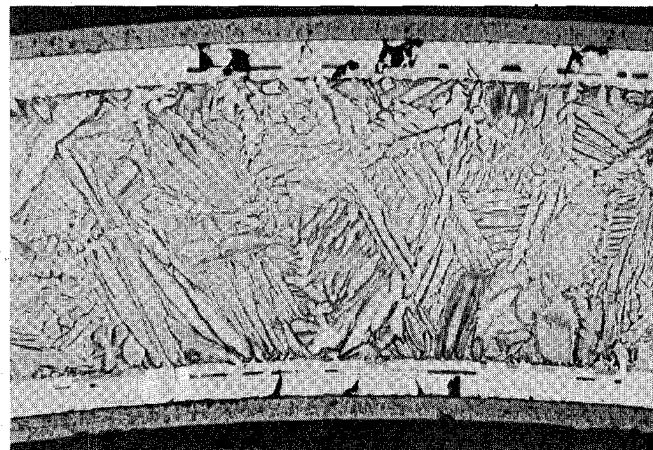
100 μm



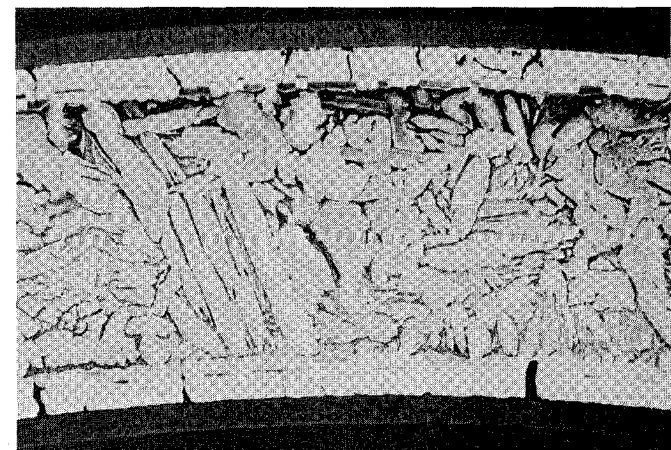
Abkühlgeschw /Ges Versuchsdauer/O<sub>2</sub>-Aufnahme 58 °C/s, 3+1,75 min, 765 mg/dm<sup>2</sup> O<sub>2</sub>



25 °C/s, 3+ 2,15 min, 816 mg/dm<sup>2</sup> O<sub>2</sub>



Abkühlgeschw /Ges Versuchsdauer/O<sub>2</sub>-Aufnahme 10 °C/s, 3 + 2,75 min, 908 mg/dm<sup>2</sup> O<sub>2</sub>

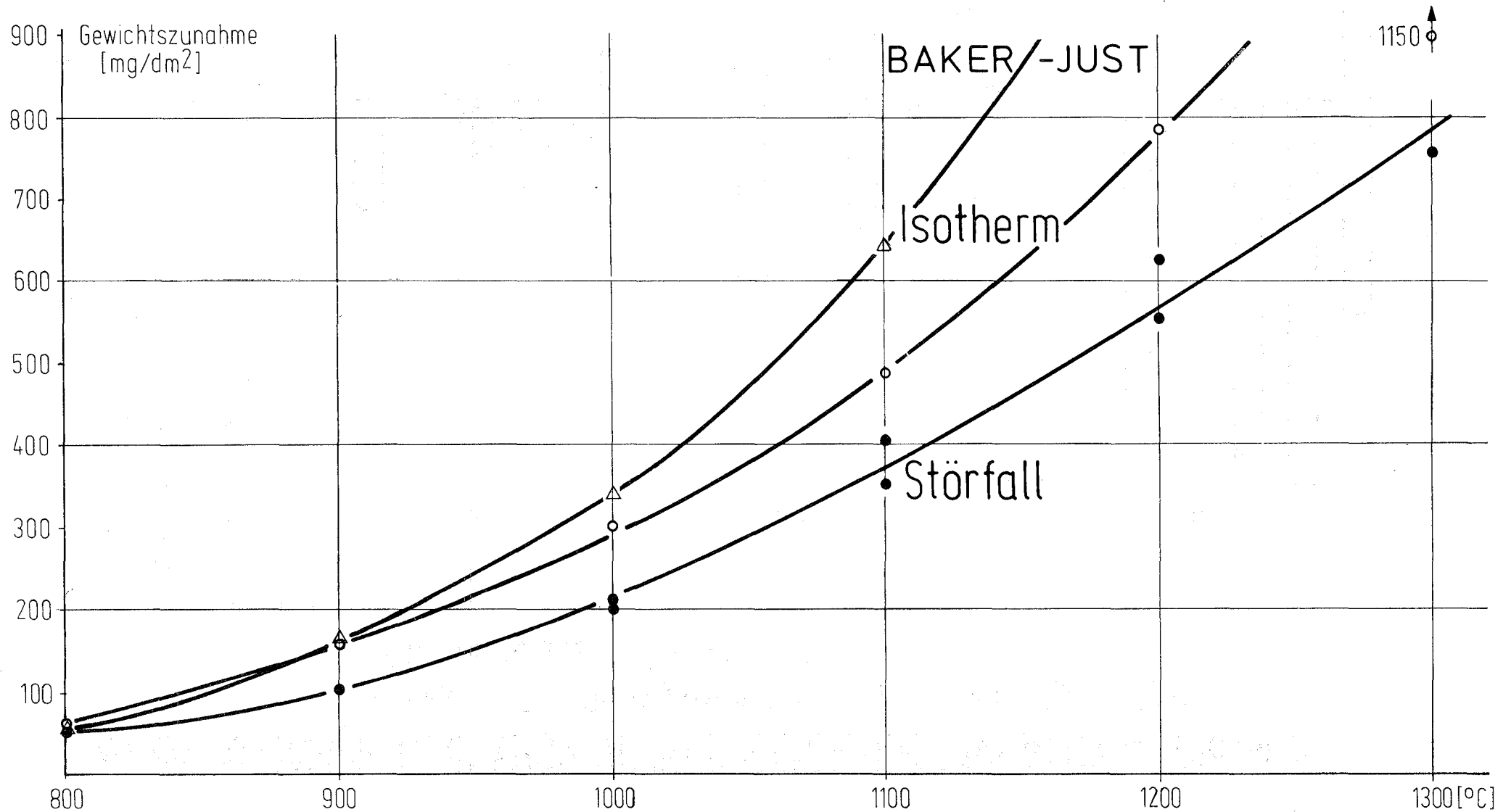


2 °C/s, 3 + 7,7 min, 1000 mg/dm<sup>2</sup> O<sub>2</sub>



# Abb.4235-17 ZIRCALOY 4/DAMPF-HOCHTEMPERATUR-OXIDATION

GEWICHTSZUNAHME NACH 1. ANGENÄHERT ISOTHERMER UND 2. STÖRFALLTYPISCHER REAKTIONSFÜHRUNG MIT HALTEZEIT BEI MAXIMALTEMPERATUREN VON 800-1300°C UND GESAMT-REAKTIONSZEIT VON 3 min (1m/s, 1at)



# Abb. 4235-18 DAMPF-OXIDATION VORKORRODIERTER ZIRCALOY 4-PROBEN

UNTER LOCA-BEDINGUNGEN (1m/s, 1 bar, 3 min, 1000-1200°C)

Mittelwerte aus 2-5 Messungen

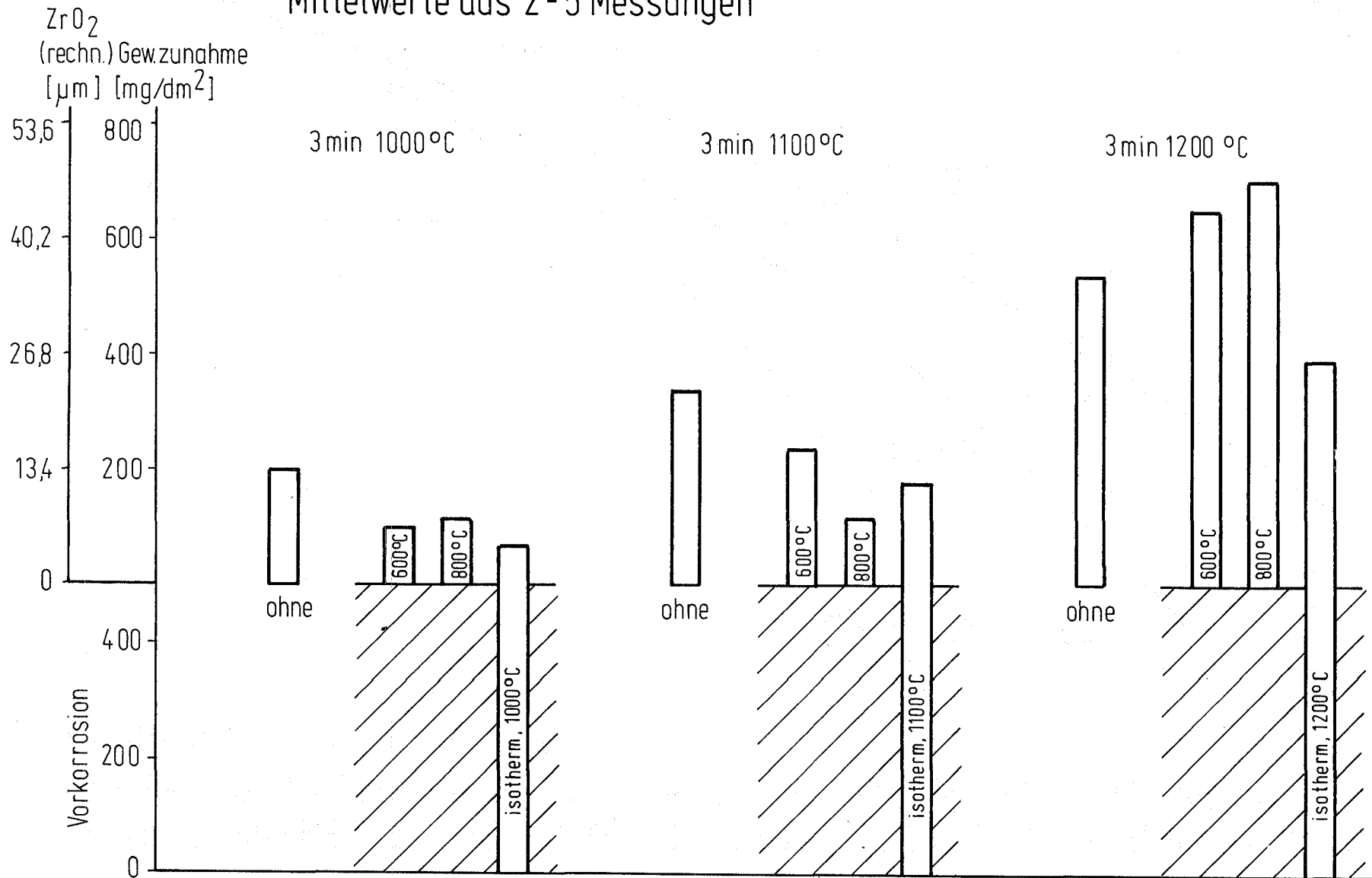
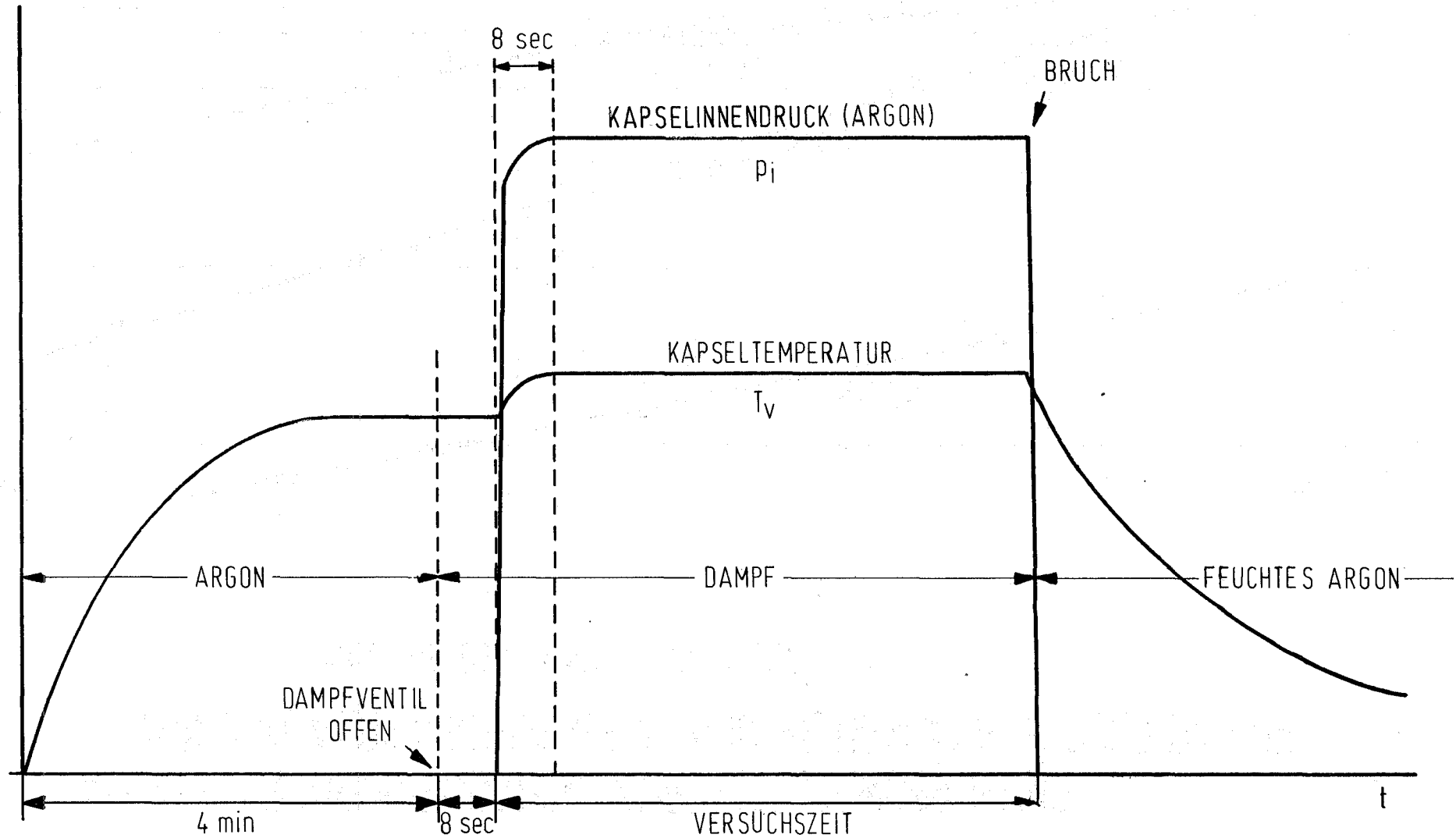
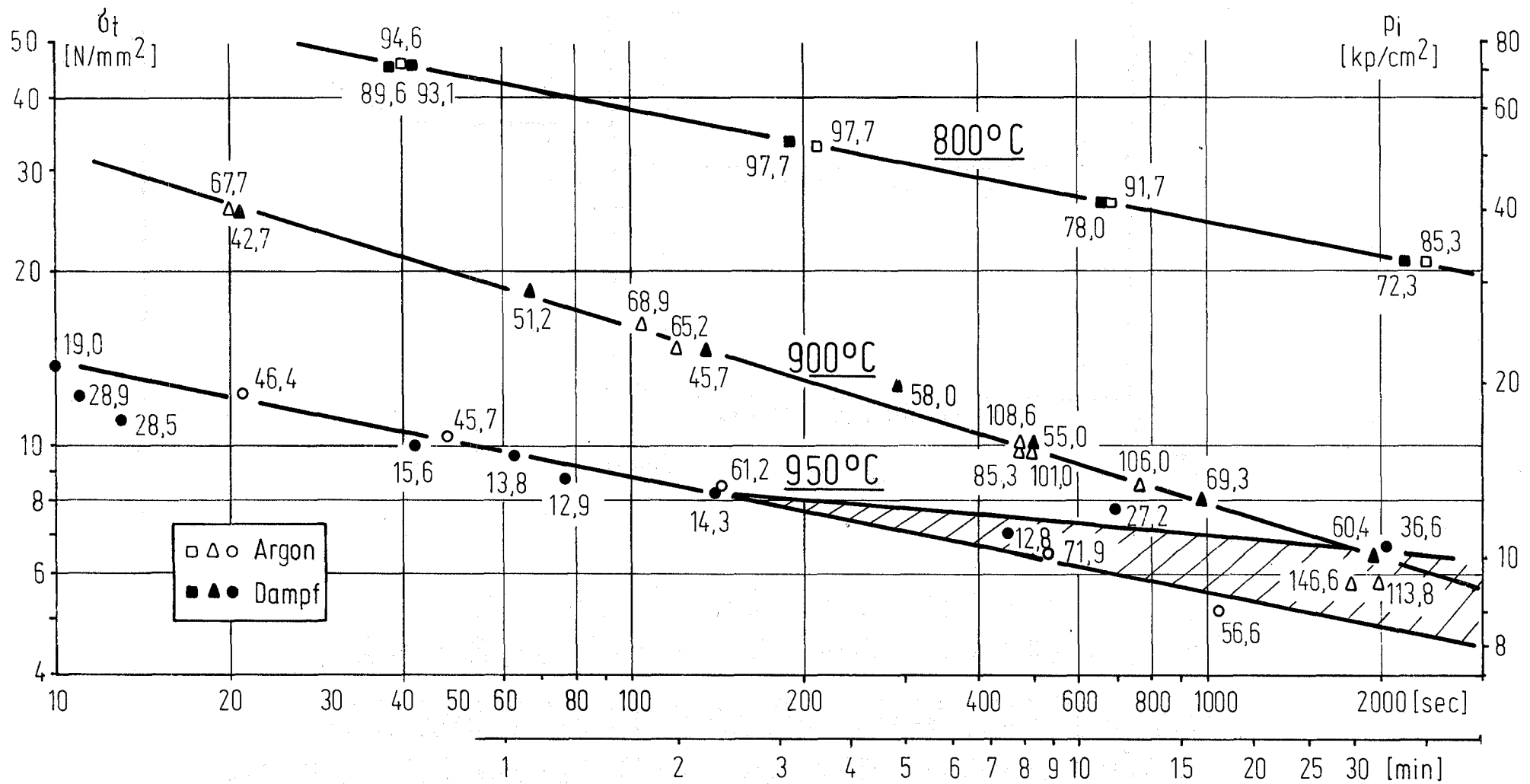


Abb.4235-19 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG  
VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN WASSERDAMPF  
VERFAHRENSWEISE DER ARGON-INNENDRUCKBEAUFSCHLAGUNG  
BEI GLEICHZEITIGER DAMPF-EXPOSITION

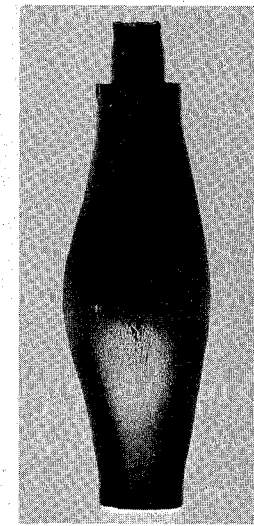
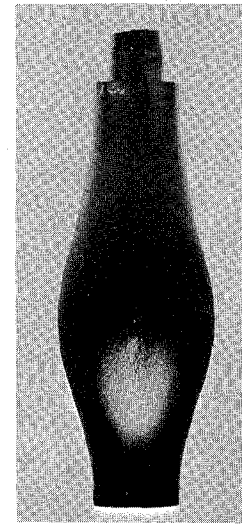
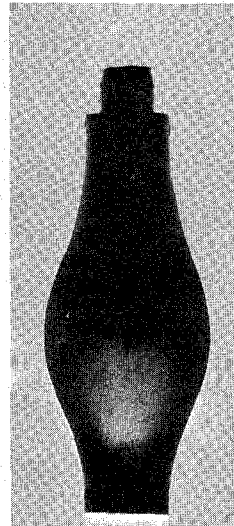


# Abb.4235-20 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON ODER DAMPF MIT ANGABE DER UMFANGSDEHNUNG IN %



# Abb.4235-21 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF BEI 800 °C

Frontansicht



$t$  [min,s];  $p_{jB}$  [at]

38''; 70,8

3'; 51,8

9'34''; 41,2

37'33''; 32,3

$\epsilon_{tA}$  [N/mm<sup>2</sup>];  $\epsilon_B$  [%]

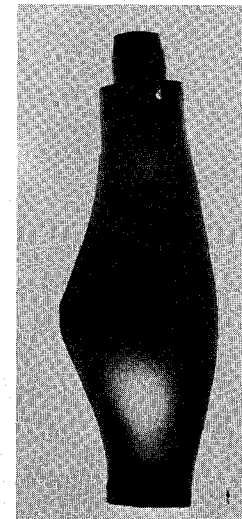
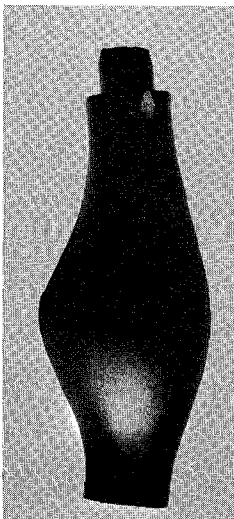
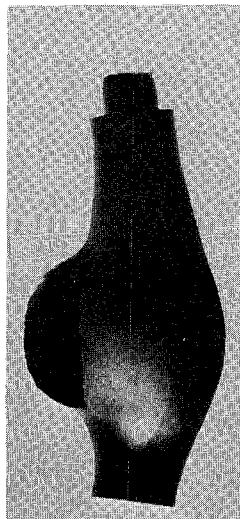
45,4; 89,6

33,1; 97,7

26,5; 78,0

20,7; 72,3

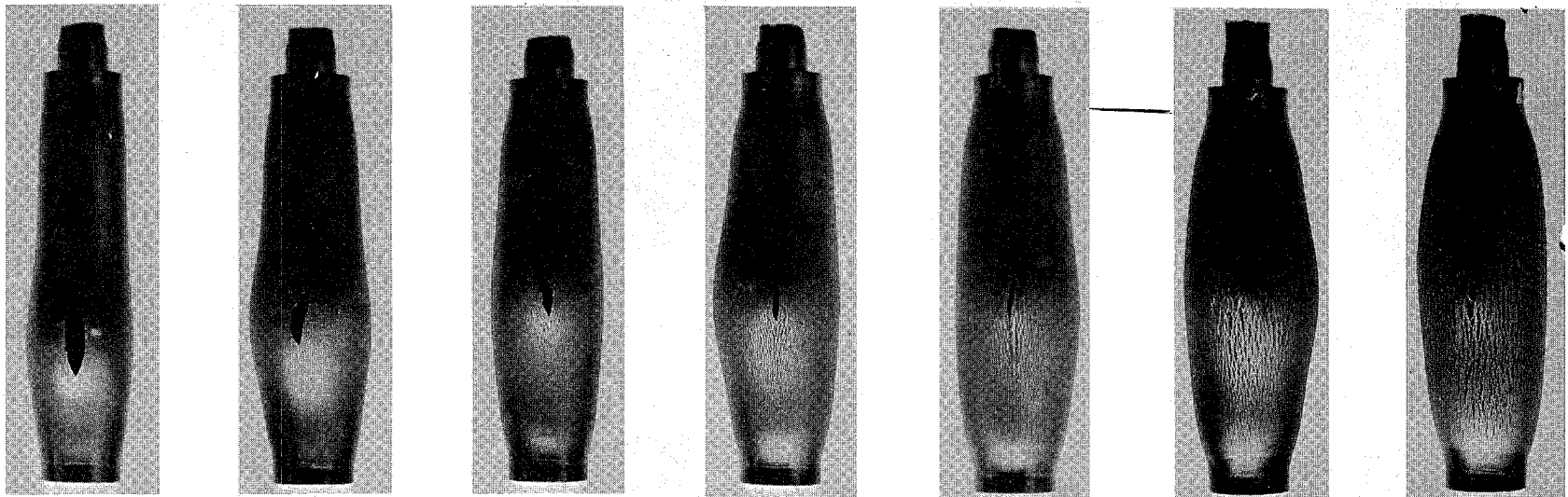
Seitenansicht



# Abb.4235-22 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF BEI 900°C

1:1

Frontansicht



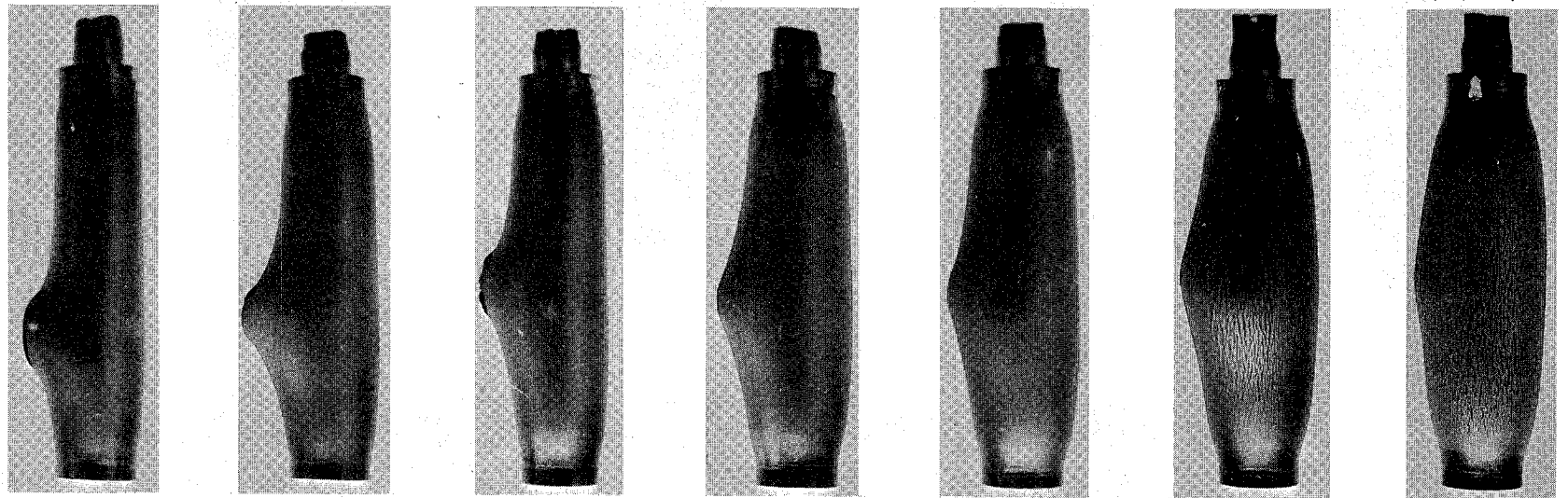
t [min,s]; pi [at]

21"; 39,8      67"; 29,4      2'15"; 23      4'52"; 19,9      8'20"; 16      16'26"; 12,6      32'46"; 10

$\delta_t$  [N/mm<sup>2</sup>];  $\epsilon_B$  [%]

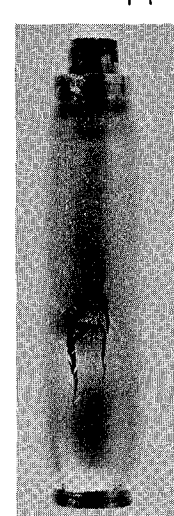
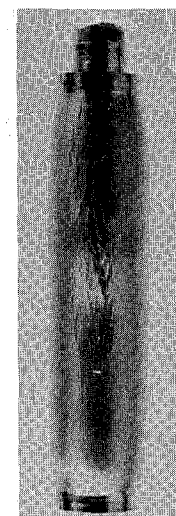
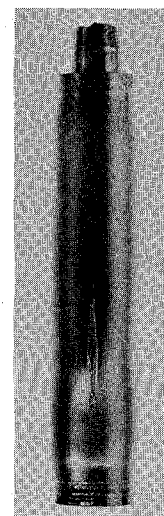
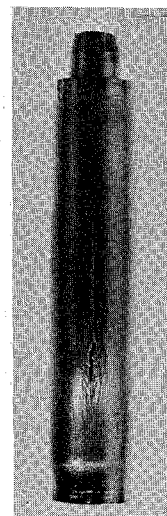
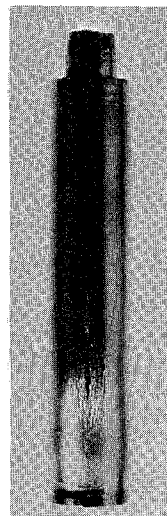
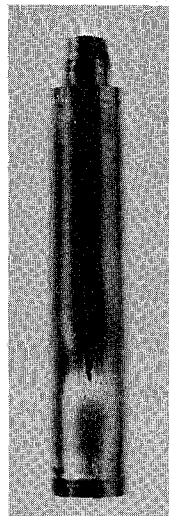
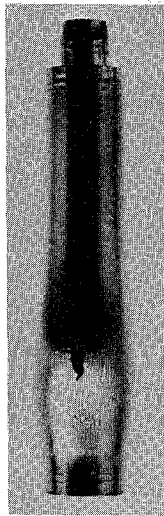
25,4; 42,7      18,7; 51,2      14,9; 45,7      12,8; 58      10,2; 55      8,1; 69,3      6,4; 60,4

Seitenansicht



# Abb.4235-23 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF BEI 950 °C

Frontansicht



1:1

t [min,s]; p<sub>i</sub> [at]

11''; 18,9

42''; 15,8

1'17''; 13,7

2'21''; 13,0

7'32''; 11,0

11'31''; 12,1

34'30''; 10,3

$\sigma_t$  [N/mm<sup>2</sup>];  $\epsilon_p$  [%]

12,10; 28,9

10,2; 15,6

8,8; 12,9

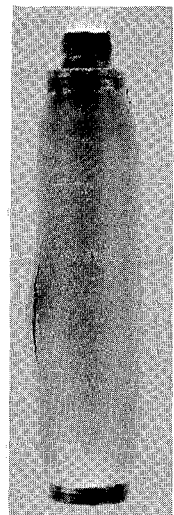
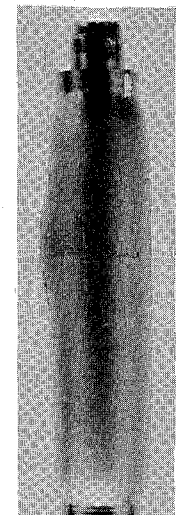
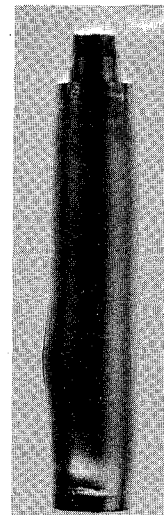
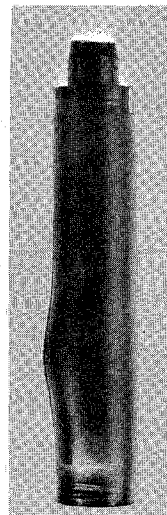
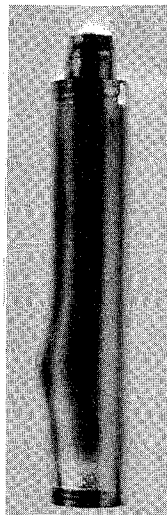
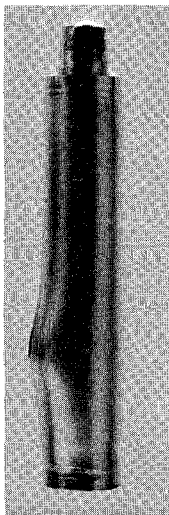
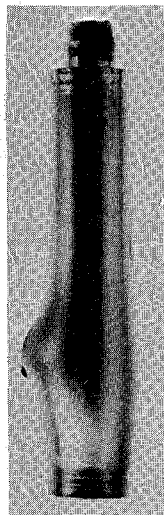
8,3; 14,3

7,1; 12,8

7,8; 27,2

6,6; 36,6

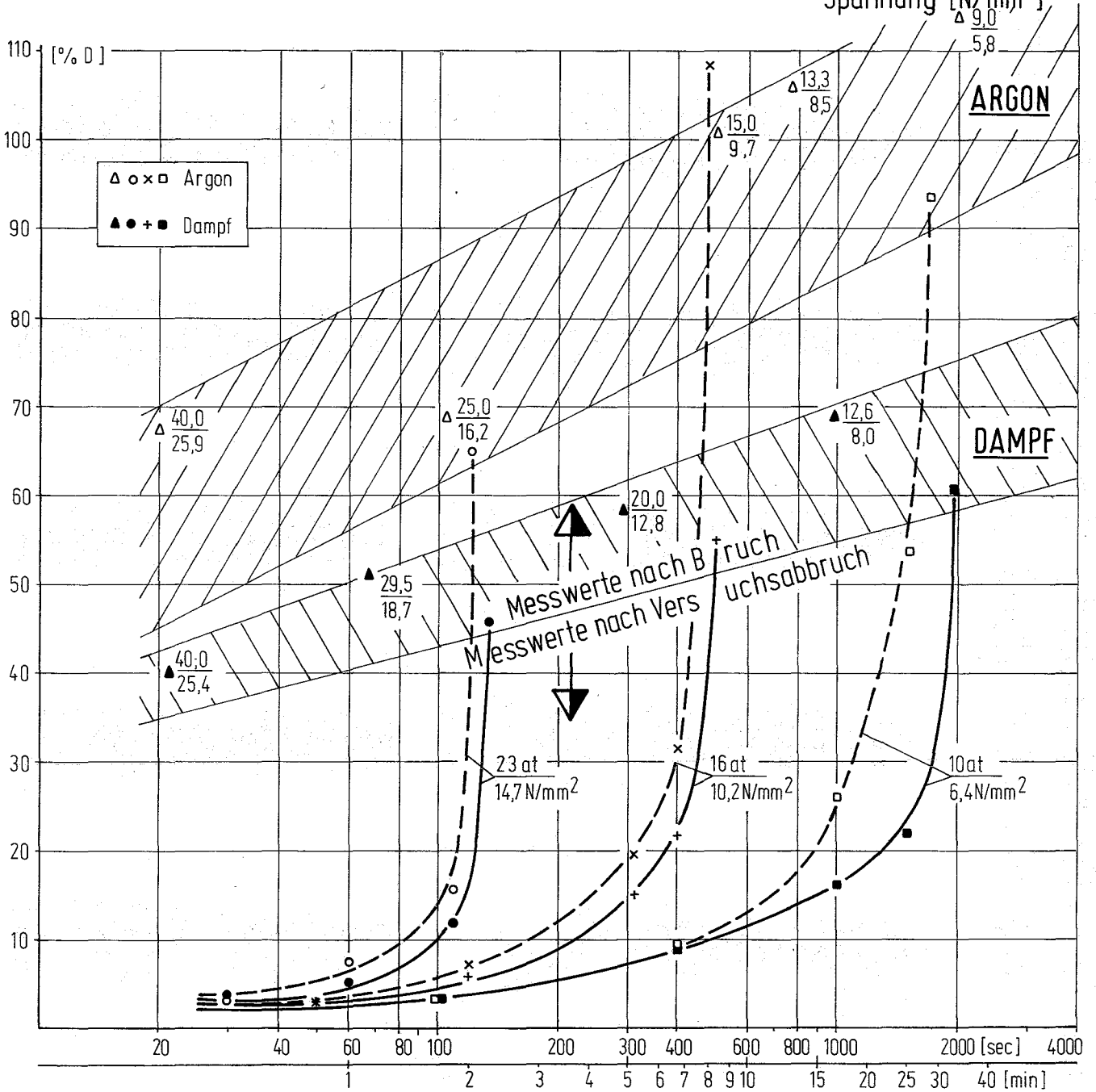
Seitenansicht



# Abb.4235-24 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN ARGON UND DAMPF BEI 900 °C

KRIECHDEHNUNG ALS FUNKTION DER ZEIT

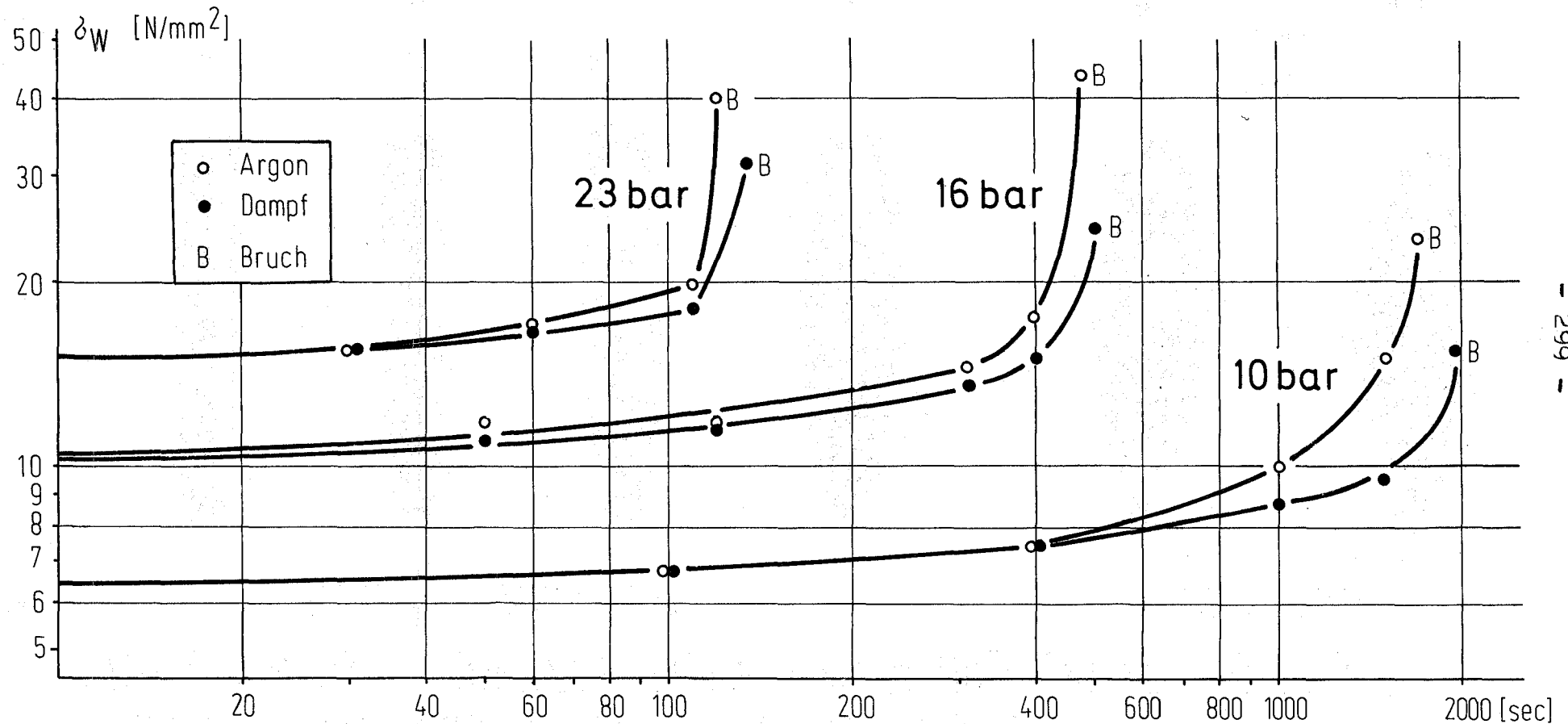
Angabe:  $\frac{\text{Druck [at]}}{\text{Spannung [N/mm}^2\text{]}}$





# Abb.4235-25 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN ARGON UND DAMPF BEI 900°C

ZEITLICHER VERLAUF DER WAHREN SPANNUNG  
(berechnet auf der Basis max. Umfangsdehnung)



# Abb.4235-26 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 - ROHRKAPSELN IN ARGON UND DAMPF BEI 900 °C

Kapseln

nach Versuchsabbruch

nach Bruch

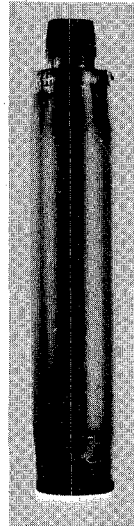
Vorder- und Seitenansicht

Argon

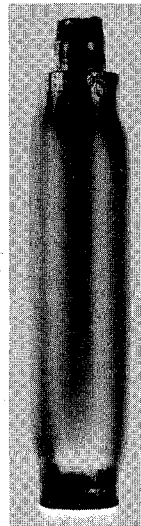
3,3



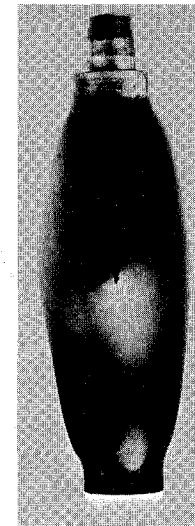
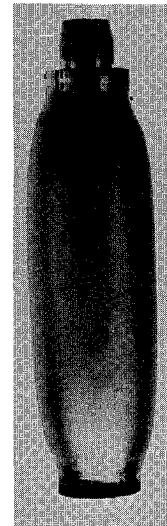
8,9



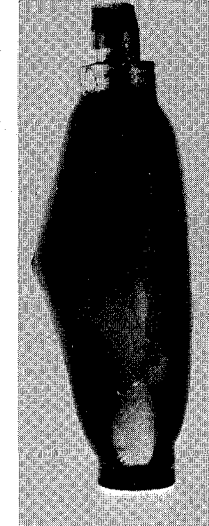
26,1



53,8



93,4



[%]  
max.  
Umfangs-  
dehnung

-  
300  
-

Standzeit bei  
10 at  
6,4 N/mm<sup>2</sup>

1'40''

6'40''

16'40''

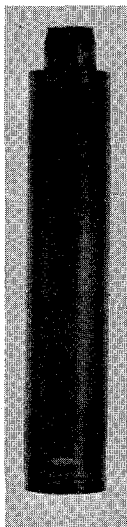
25'

28'27''

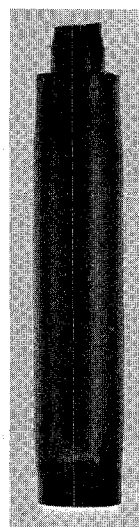
32'46''

Dampf

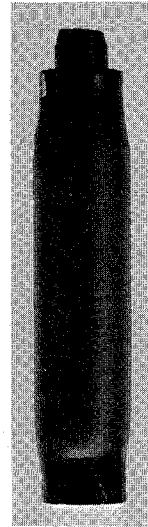
3,3



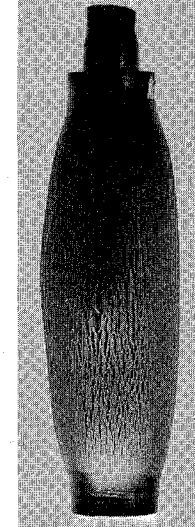
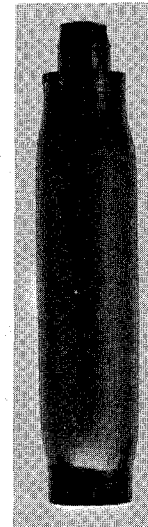
8,8



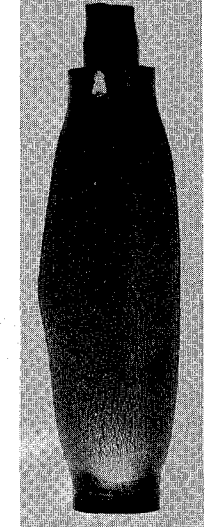
15,9



21,8



60,4



[%]  
max.  
Umfangs-  
dehnung

# Abb.4235-27 ROHRINNENDRUCK - KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 - ROHRKAPSELN IN ARGON UND DAMPF BEI 900 °C

Kapseln

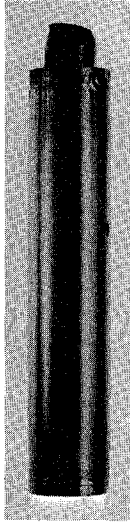
nach Versuchsabbruch

nach Bruch

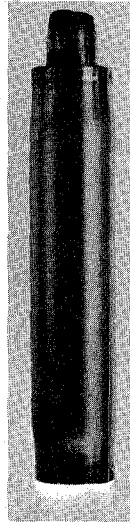
Vorder- und Seitenansicht

Argon

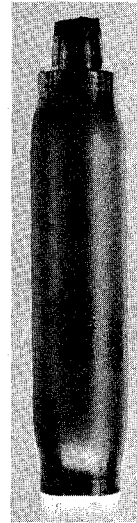
3,4



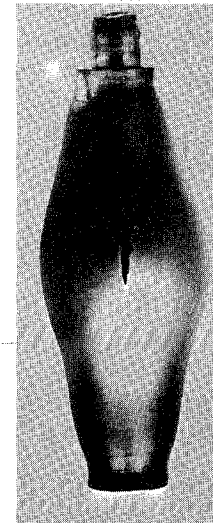
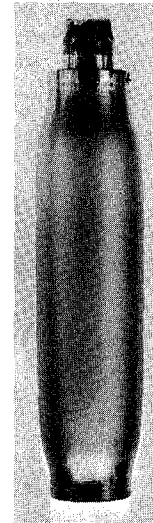
7,4



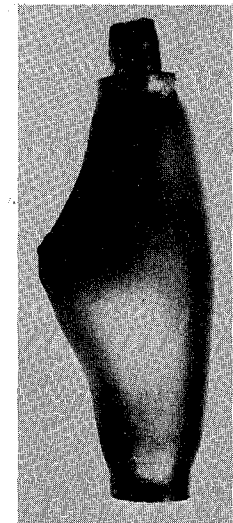
19,5



31,5



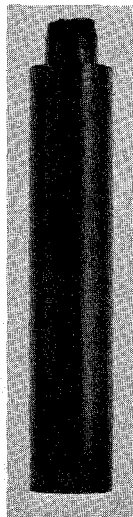
108,5



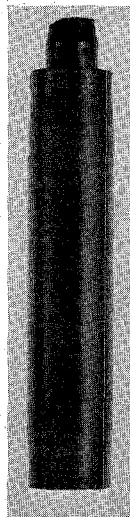
[%]  
max.  
Umfangs-  
dehnung

Standzeit bei  
16 at  
10,2 N/mm<sup>2</sup>

50''



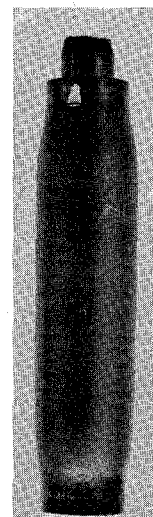
2'



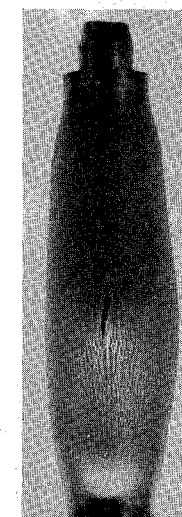
5' 9''



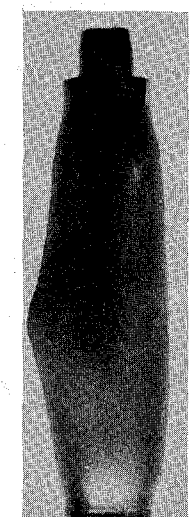
6' 41''



7' 55''



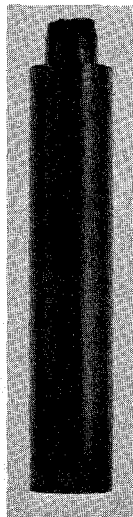
8' 20''



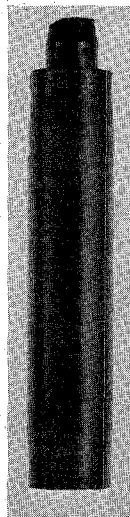
- 301 -

Dampf

3,4



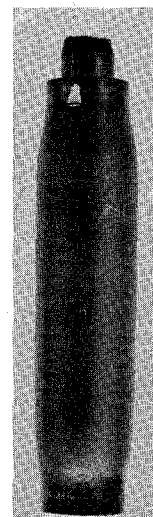
6,0



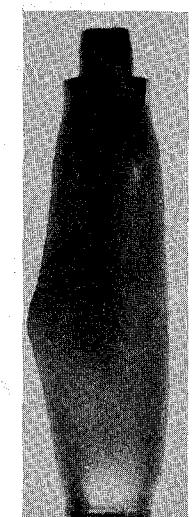
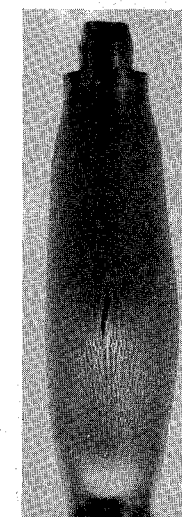
15,0



21,9



55,0



[%]  
max.  
Umfangs-  
dehnung

# Abb4235-28 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALLOY 4-ROHRKAPSELN IN ARGON UND DAMPF BEI 900°C

Kapseln

nach Versuchsabbruch

nach Bruch

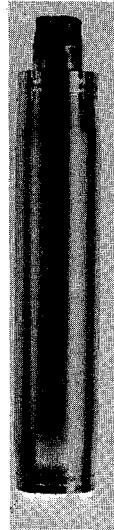
Vorder- und Seitenansicht.

Argon

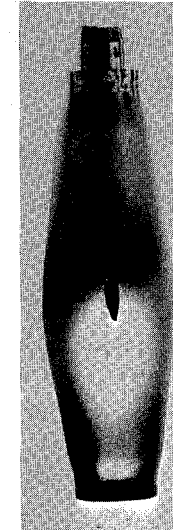
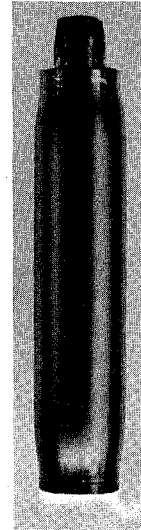
3,3



7,5



15,4



65,2



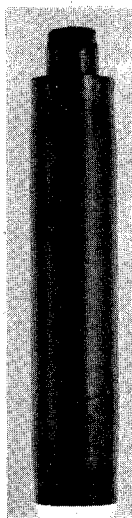
[%]  
max.  
Umfangs-  
dehnung

Standzeit bei  
23 at  
14,7 N/mm<sup>2</sup>

30''



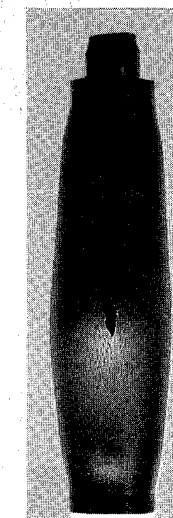
1'



1'51''



2'1''



2'15''



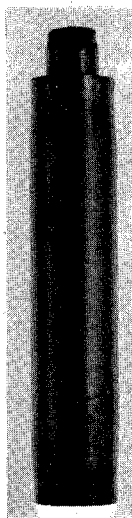
- 302 -

Dampf

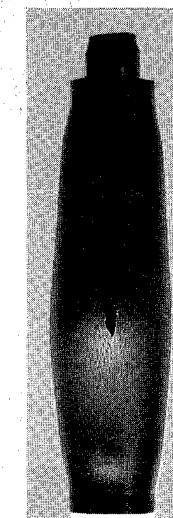
3,7



6,3



11,8



45,7



[%]  
max.  
Umfangs-  
dehnung

# ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF

900 °C, 10 - 23 bar

AUSWERTUNG VON REM-OBERFLÄCHENAUFNAHMEN

Abb.4235-29

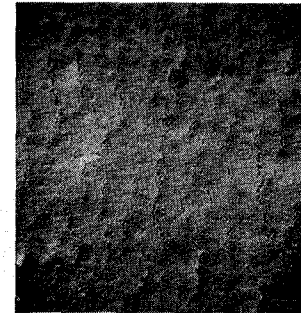
260 X

130 X

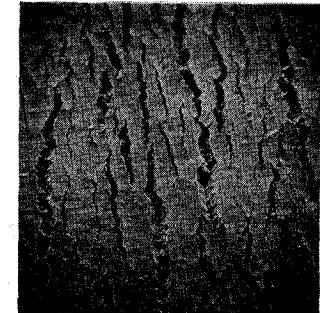
23 bar



$\epsilon = 6,34$ ; 60 sec

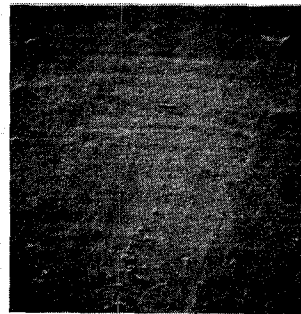


$\epsilon = 11,84$ ; 111 sec

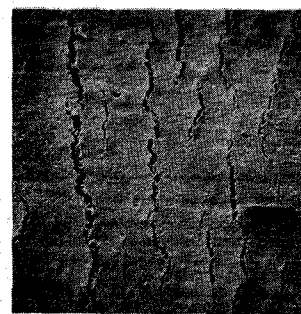


$\epsilon = 45,7$ ; 135 sec = Bruch

16 bar



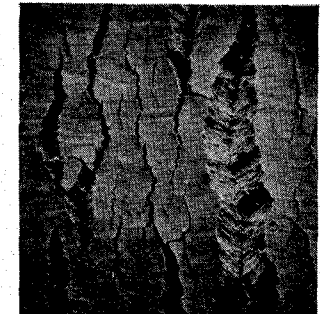
$\epsilon = 6,02$ ; 120 sec



$\epsilon = 15,1$ ; 309 sec

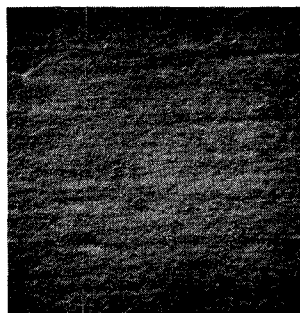


$\epsilon = 21,87$ ; 401 sec

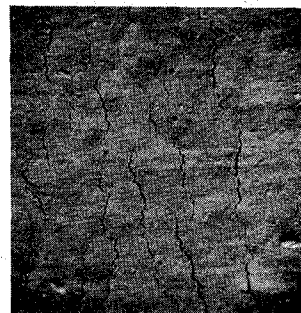


$\epsilon = 54,96$ ; 500 sec = Bruch

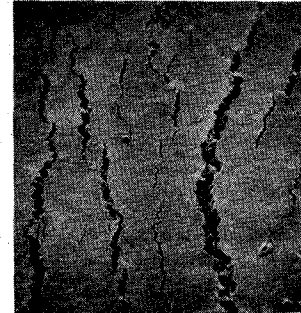
10 bar



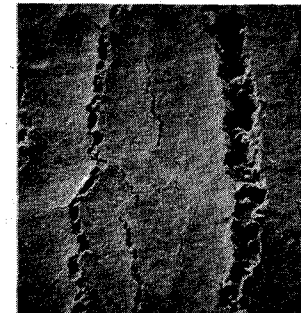
$\epsilon = 3,29$ ; 100 sec



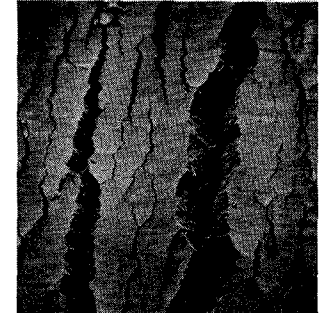
$\epsilon = 8,76$ ; 400 sec



$\epsilon = 15,94$ ; 1000 sec



$\epsilon = 21,84$ ; 1500 sec



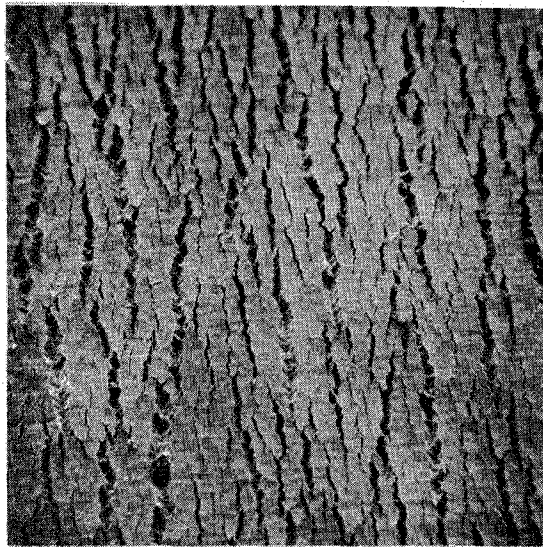
$\epsilon = 60,43$ ; 1966 sec = Bruch

Abb4235-30 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG  
VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF

900°C, 10-23 bar

AUSWERTUNG VON REM-OBERFLÄCHENAUFNAHMEN

154µm



$p = 23 \text{ bar}$   
 $\epsilon = 45,7\%$   
 $t_B = 135 \text{ sec}$



$p = 16 \text{ bar}$   
 $\epsilon = 55,0\%$   
 $t_B = 500 \text{ sec}$



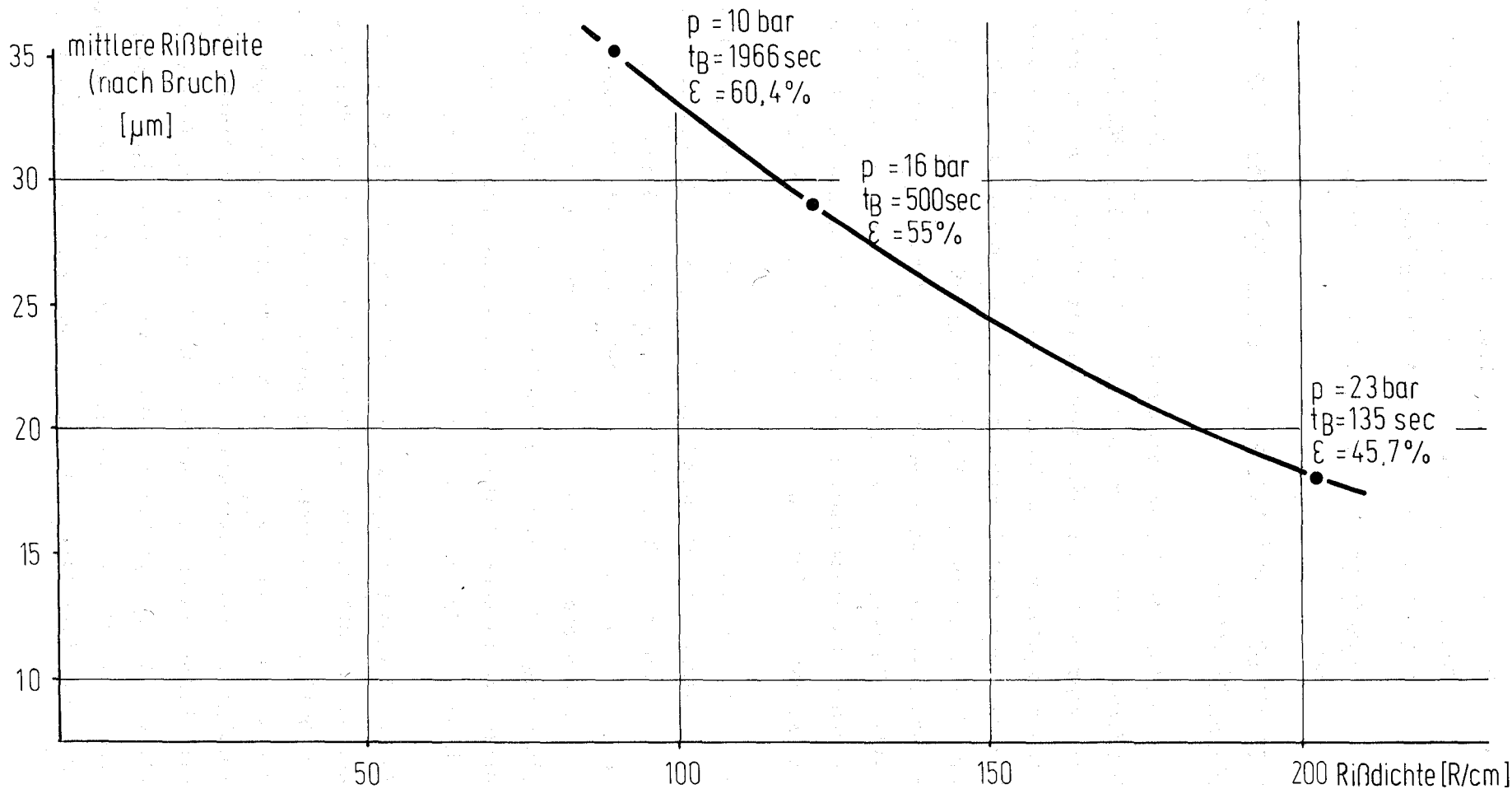
$p = 10 \text{ bar}$   
 $\epsilon = 60,4\%$   
 $t_B = 1966 \text{ sec}$

# ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF

Abb.4235-31

900°C, 10 - 23 bar

## AUSWERTUNG VON REM-OBERFLÄCHENAUFNAHMEN NACH BRUCH



4235.3 Untersuchungen zum Einfluss des Oxidbrennstoffes und von Spaltprodukten auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren bei LWR-Störfalltransienten

(P.Hofmann, C.Politis, K.Kurz, H.Metzger, G.Rejman, B.Scheckel; IMF)

Einfluss der Innenkorrosion auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-4-Hüllrohren

Der Einfluss des Sauerstoffpotentials des  $UO_2$  (O/U-Verhältnis) auf das Verformungs- und Bruchverhalten von kurzen Zry-4-Hüllrohren wurde weiter untersucht. Die Berstversuche mit den  $UO_2$ - und Ar-gefüllten Rohrproben erfolgten unter Schutzgas bei gleichzeitiger Temperatur- und Druckmessung. Der Vorinnendruck in den Rohrproben bei  $20^\circ C$  variierte zwischen 1 und 60 bar. Die Aufheizgeschwindigkeit war nicht konstant; zwischen  $20$  und  $1000^\circ C$  betrug sie im Mittel, je nach Rohrfüllung ( $UO_2$ -Pellets/Pulver, Ar), zwischen 4 und  $6,5^\circ C/s$ . Während der Aufheizperiode kam es zu einem temperaturbedingten Druckanstieg in den Prüflingen; die maximalen Differenzdrücke betragen etwa 110 bar.

Wie die Versuchsergebnisse der Berstexperimente zeigen, geht der Einfluss des Sauerstoffpotentials des  $UO_2$  auf die Berstdaten (Temperatur, Druck) von Zry-4-Hüllrohren bei mittleren und hohen Berstdrücken ( $\Delta p_B > 15$  bar) deutlich zurück (Abb. 4235-32). Die Berstdaten der  $UO_2$ -haltigen Rohrproben und der Ar-gefüllten Vergleichsproben liegen in einem engen Streuband. Der Druckverlauf in den Rohrproben hat unter diesen Bedingungen keinen Einfluss auf die Bersttemperatur; die Berstdehnung der Zry-Rohre wird jedoch z.T. beeinflusst.

Bei niedrigen Berstdrücken ( $\Delta p_B < 10$  bar) wird dagegen, je nach Füllung der Rohre, ein unterschiedliches Verformungs- und Bruchverhalten der Zry-Hüllrohre beobachtet. In Gegenwart von stark überstöchiometrischem Brennstoff ( $UO_{2,05}$ ) kommt es zu einer Verfestigung der Zry-Hülle infolge Sauerstoffaufnahme, d.h. bei gleichem Differenzdruck sind höhere Temperaturen erforderlich, um die Rohre zum Bersten zu bringen, als bei den Rohrproben, die stöchiometrisches  $UO_2$  oder Argon enthalten (Abb. 4235-32). Generell zeigen bei niedrigen Differenzdrücken die  $UO_2$ - bzw. Ar-gefüllten Rohrproben unterschiedliche Berstdaten.



Vergleicht man die Berstdaten der  $UO_2$ - und Ar-gefüllten Zry-Hüllrohre mit denen anderer Experimentatoren, so erkennt man, dass bei Berstdrücken oberhalb 10 bar die Bersttemperaturen zentral im Streufeld der verschiedenen Versuchsergebnisse liegen (Abb. 4235-33). Bei sehr kleinen Berstdrücken und demzufolge hohen Bersttemperaturen sind im Temperaturbereich zwischen 1100 und 1200°C nur diejenigen Rohrproben geborsten, die stöchiometrischen oder schwach überstöchiometrischen Brennstoff ( $O/U \leq 2.005$ ) enthielten (Abb. 4235-33). Die Zeit bis zum Bersten dieser Prüflinge variierte zwischen etwa 10 und max. 54 min (Abb. 4235-34/35). In diesem Zeit- und Temperaturbereich gingen die Ar-gefüllten Rohrproben von isothermen/isobaren Experimenten (GfK-IMF II - Daten, PNS-Vorh. 4235.2) nur bei grösseren Differenzdrücken zu Bruch. Eine Erklärung für das unterschiedliche Berstverhalten der  $UO_{2.00}$ - bzw. Ar-gefüllten Zry-4-Rohre bei sehr kleinen Differenzdrücken kann z.Zt. noch nicht gegeben werden. Anzumerken ist, dass es sich unter diesen Temperatur-/Druckbedingungen jedoch nicht um LOCA-typische Werte handelt. Unter LOCA-typischen Versuchsbedingungen hat das Sauerstoffpotential des  $UO_2$  nach den vorliegenden Versuchsergebnissen praktisch keinen Einfluss auf die Bersttemperatur und den Berstdruck.

Was die Zeit bis zum Bersten der Hüllrohre anbelangt (Abb.4235-34/35), ist zu beachten, dass die Ausgangstemperatur bei den Versuchen 20°C betrug. Berücksichtigt man die Zeit bis zum Erreichen einer Hüllrohrtemperatur von ca. 350°C (ca. 50 - 90 s), so kommt man zu realistischen, d.h. praxisrelevanten Aufheizzeiten (nach D.G.Hardy /9/ hat die Proben-Ausgangstemperatur bei den Berstversuchen keinen Einfluss auf die Berstdaten der Hüllrohre). Bei Zeiten bis zum Bersten  $< 180$  s ( $20^\circ C \rightarrow T_B$ ) sind keine nennenswerten chemische Zry/ $UO_2$ -Wechselwirkungen festzustellen, wie metallographische Untersuchungen der Rohrproben gezeigt haben. Unter diesen Bedingungen ist daher praktisch auch kein Unterschied in den Berstdaten der  $UO_2$  und Ar-haltigen Rohre zu beobachten.

Die Berstdehnungen (Umfangsdehnungen) der Zry-4-Rohre variieren in Argon-Atmosphäre zwischen etwa 10 und 30 % (Abb.4235-36). In Übereinstimmung mit Angaben aus der Literatur existiert im Zweiphasengebiet des Zry bei etwa 930°C ein Minimum in den Berstdehnungen mit Werten  $\leq 60\%$  (Abb. 4235-36/37). Der

Berstdruck beträgt bei dieser Temperatur etwa 30 bar (Abb. 4235-32). Die Berstdehnung der Hüllrohre als Funktion des Berstdruckes zeigt bei diesem Druck ebenfalls ein Minimum (Abb. 4235-38). Ähnliche Ergebnisse wurden von D.O. Hobson und P.L. Rittenhouse /10/, auch für wesentlich größere Aufheizgeschwindigkeiten der Rohrproben, gefunden (Abb. 4235-39). Die Ursachen für die Abnahme der Berstdehnung der Hüllrohre im Zweiphasengebiet sind u. a. in der Phasenumwandlung des Zry zu suchen, bei der Phasen unterschiedlicher mechanischer Eigenschaften das Verformungsverhalten bestimmen. Nach Untersuchungen von H.M. Chung et al. /11/ wurden aber auch im einphasigen  $\beta$ -Gebiet ausgeprägte Bereiche mit minimalen und maximalen Dehnwerten der Zry-Rohre beobachtet.

Vergleicht man die Berstdehnungen der  $UO_2$ - und Ar-gefüllten Rohrproben, so sind bei erster Betrachtung keine markanten Unterschiede im Verformungsverhalten festzustellen. Eine detaillierte Auswertung zeigt allerdings, dass die maximalen Dehnwerte bei den Rohrproben, die stark überstöchiometrischen Brennstoff ( $UO_{2.05}$ ) enthalten, zu beobachten sind (Abb. 4235-36,40). Bei diesen Rohrproben treten zwei deutliche Maxima in den Umfangsdehnungen bei etwa 870 und ca. 1020°C auf. Speziell das erste Maximum an der Phasengrenze  $\alpha+\beta/\alpha$  wird im wesentlichen durch die brennstoffhaltigen Proben verursacht (Abb. 4235-36). Diese Feststellung deutet u. a. auf eine Beeinflussung der Zry-4-Rohrverformung durch das Sauerstoffpotential des  $UO_2$  hin. Im allgemeinen würde man jedoch annehmen, dass es mit steigendem Sauerstoffpotential der Versuchsatmosphäre zu einer Abnahme der Zry-Duktilität kommt, nicht jedoch, wie es hier beobachtet wird, zu einer Zunahme. Weitere Experimente zur Klärung dieses Phänomens sind daher notwendig.

#### Druckmessung bei hohen Temperaturen

Um den Einfluss von Jod und anderen Spaltprodukten auf das Verformungs- und Bruchverhalten von Zry-Hüllrohren zu ermitteln, war die Erprobung von Druckmessverfahren bei hohen Temperaturen erforderlich. Die Temperatur der Messmembrane der Druckmessdosen muss bei diesen Experimenten oberhalb der Kondensationstemperatur der Spaltprodukte liegen, d. h. bei Jod mindestens 200°C betragen. Anderenfalls kondensiert das Jod an kalten Stellen des Systems und steht so nicht mehr für die Reaktionen

in den Zry-4-Rohrproben zur Verfügung. Als optimal für die Versuche hat sich eine Druckmessdose (Fa. Dynisco) erwiesen, bei der der zu messende Druck über eine Membrane und Hg-Kapillarleitung auf eine zweite Membrane mit Dehnungsmessstreifen übertragen wird. Der Vorteil dieses Systems ist, dass die Messmembrane Temperaturen bis zu 400°C standhält, der Dehnungsmessstreifen jedoch sich auf Raumtemperatur befindet und so keine komplizierten Temperaturkorrekturen des Druckes erforderlich sind. Erste Experimente mit Jod-haltigen Zry-4-Rohren wurden bereits durchgeführt.

#### Kinetik der chemischen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hüllmaterial bei hohen Temperaturen

Zum Studium der chemischen Wechselwirkungen zwischen dem  $UO_2$  und Zry-4-Hüllmaterial unter Power Cooling Mismatch (PCM)-Bedingungen, d.h. bei grossen  $UO_2$ /Zry-Kontakt drücken und hohen Temperaturen, wurden erste Glühexperimente durchgeführt.<sup>+)</sup> Zum Vergleich erfolgten Versuche ohne direkten Festkörperkontakt zwischen dem  $UO_2$  und Zry. Die Experimente erfolgten mit kurzen gasdicht verschweissten Zry-4-Hüllrohren in einem Gas-Hochdruckautoklaven unter Argon (Abb. 4235-41). Die Hüllrohre waren mit hochdichten stöchiometrischen  $UO_2$ -Pellets gefüllt, z.T. wurden dem Brennstoff noch simulierte Spaltprodukte (Cs, J, Te) zugegeben; der simulierte Abbrand betrug 10 At.%. Zum Schutz gegen eine Oxidation der Zry-Hülle von aussen durch Verunreinigungen des Schutzgases (Druckmedium), wurden die Prüflinge mit einer Tantal-Folie umwickelt. Die Glühtemperaturen variierten zwischen 1100 und 1400°C, die max. Glühzeit betrug 30 min. Die  $UO_2$ /Zry-Reaktionsexperimente erfolgten bei einem Aussendruck von 1, 10 und 70 bar; der Innendruck in den Rohrproben betrug 1 bar bei 20°C.

Wie die Versuchsergebnisse zeigen, hängt der Umfang der chemischen Wechselwirkungen zwischen dem  $UO_2$  und Zry entscheidend davon ab, ob ein Festkörperkontakt zwischen dem  $UO_2$  und Zry existiert oder nicht. Ohne direkten  $UO_2$ /Zry-Kontakt erfolgt ein Sauerstofftransport vom  $UO_2$  zum Zry nur über die Gasphase der u.a. von dem O/U-Verhältnis des  $UO_2$  abhängt. Bei niedrigen Temperaturen kommt es dadurch z.T. schon zur Ausbildung einer  $\alpha$ -Zr(O)-Phase und  $ZrO_2$ , bei hohen Zry-Temperaturen konnte dagegen diese Phasenbildung nicht beobachtet werden. Bei bestehendem Festkörperkon-

<sup>+) Diese Untersuchungen werden im Rahmen der deutsch-amerikanischen Zusammenarbeit als out-of-pile-Referenzversuche zu den in-pile-PCM-Tests in der PBF (Power Burst Facility) durchgeführt.</sup>

takt hat die Grösse des Kontaktdruckes auf die  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Reaktionen offenbar keinen Einfluss. Das Ausmass des Hüllangriffes ist bei den untersuchten Kontaktdrücken (10, 70 bar) praktisch gleich gross.

Je nach Differenzdruck kommt es zum teilweisen bzw. vollständigen Kollabieren des Zry-Hüllrohres auf die  $\text{UO}_2$ -Pellets. Bei einem Aussendruck von 10 bar bilden sich bei  $1200^\circ\text{C}$  zwei Hüllrohrfalten, d.h. Stellen, wo kein  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Festkörperkontakt existiert (Abb. 4235-42). Die Schliffbildaufnahmen zeigen sehr deutlich den Unterschied im Reaktionsverhalten des  $\text{UO}_2/\text{Zr}$ -Systems bei den unterschiedlichen Kontaktverhältnissen. Die Mechanismen und Randbedingungen, die zum Aufkriechen der Zry-Hülle auf den Brennstoff unter Faltenbildung führen, werden von D.O.Hobson systematisch untersucht /12/. Bei höheren Gasdrücken (70 bar) kommt es dagegen bei den untersuchten Temperaturen zum vollständigen Aufschrumpfen der Zry-Hülle auf den Brennstoff (Abb. 4235-43/44). Das äussere der Rohrproben zeigt eine sogenannte Bambusstruktur (Abb. 4235-43). Der Längsschliff der Rohrprobe lässt erkennen, dass sich das Zry-Rohr an den Pelletstossstellen - aufgrund der grossen Plastizität des Zry - einschnürt. Die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem  $\text{UO}_2$  und Zry verlaufen sehr gleichmässig am Umfang der Rohrprobe. Das  $\text{UO}_2$  wird durch das Zr unter Bildung einer  $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase, Uran und einer (U,Zr)-Legierung reduziert.<sup>+) Die (U,Zr)-Legierung besteht, wie Mikrosondenuntersuchungen ergaben (Abb. 4235-45), zum überwiegenden Teil aus Uran. Die Reihenfolge der verschiedenen Phasen vom  $\text{UO}_2$  zum Zry stellt sich wie folgt dar:</sup>

$$\text{UO}_2 \longrightarrow \alpha\text{-Zr(O)} \longrightarrow \text{Uran bzw. (U,Zr)-Legierung} \longrightarrow \alpha\text{-Zr(O)} \longrightarrow \text{Zry.}$$

Dem  $\text{UO}_2$  zugefügte simulierte Spaltprodukte (Cs, J, Te) haben offenbar keinen wesentlichen Einfluss auf das  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Reaktionsverhalten. Die Tiefe der Reaktionszonen hängt von der Temperatur und Glühzeit ab; die Anzahl der Phasen ist bei  $1400^\circ\text{C}$  die gleiche wie bei  $1200^\circ\text{C}$  (vgl. Abb. 4235-43/44). Bei  $1400^\circ\text{C}/30$  min erstreckt sich jedoch die  $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase über den gesamten Hüllrohrquerschnitt, und es kommt daher zu einer totalen Versprödung des Zry-4 (Abb. 4235-44). Beim Abkühlen der Rohrproben reisst das Zry-Hüllmaterial daher an vielen Stellen auf, da es keine Duktilität mehr besitzt, auch nicht bei höheren Temperaturen, um den mechanischen Belastungen standzuhalten. Die Ursache für das mechanische Versagen des total versprödeten Zry-Hüllrohres ist in der thermi-

<sup>+) Ähnliche Versuchsergebnisse wurden bei den in-pile-Experimenten mit LWR-Brennstäben unter PCM-Bedingungen in der PBF beobachtet /15/.</sup>

schen Differenzdehnung zwischen dem Hüllmaterial und Brennstoff sowie der Entstehung eines Temperaturgradienten während der Abkühlung der Proben zu sehen, bei gleichzeitig guter Bindung zwischen dem Zry und  $\text{UO}_2$ , die keine Relativbewegung zulässt. Die Risse im Hüllmaterial liegen vorzugsweise in der Verlängerung der radialen Risse in den  $\text{UO}_2$ -Pellets (Abb. 4235-44). Bei 1100 und 1200°C/30 min ist das Hüllmaterial dagegen noch nicht vollständig infolge Sauerstoffaufnahme und der Bildung von  $\alpha\text{-Zr(O)}$  versprödet; die Tiefe der  $\alpha\text{-Zr(O)}$ -Phase beträgt max. 200  $\mu\text{m}$ . Der übrige Hüllrohrquerschnitt besitzt ausreichende Duktilität, um die beim Abkühlen der Proben auftretende thermische Differenzdehnung durch plastische Verformung anzugleichen (Abb. 4235-43).

Neben den  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Reaktionsexperimenten erfolgten umfangreiche Gleichgewichtsuntersuchungen in dem Dreistoffsystem U-Zr-O sowie Schmelzpunktbestimmungen der entstehenden Phasen /13, 14/. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen zeigen, dass der Schnitt  $\text{UO}_2\text{-Zr}$  nicht quasibinär ist, sondern dass bei 1400°C die Gleichgewichtsphasen  $\text{UO}_2$ ,  $\alpha\text{-Zr(O)}$  ein ( $\gamma\text{-U}$ ,  $\beta\text{-Zr}$ )-Mischkristall und eine uranreiche Schmelze auftreten (Abb. 4235-46). Die Schmelzpunktbestimmungen ergeben, dass die uranreichen Phasen (Uran das geringe Mengen Zr und Sauerstoff enthält) bereits unterhalb 1300°C flüssig sind (Abb. 4235-47). In der Tat wurde bei den  $\text{UO}_2/\text{Zry}$ -Reaktionsexperimenten bei 1400°C das Auftreten von flüssigen Phasen in grösseren Mengen beobachtet. Die Schliffbildaufnahme der Rohrprobe zeigt deutlich, dass die Dishing-Hohlräume der  $\text{UO}_2$ -Pellets voll mit Reaktionsprodukten gefüllt sind (Abb. 4235-44). Röntgenfeinstrukturuntersuchungen an diesen Stellen ergaben, dass das Reaktionsprodukt hauptsächlich aus  $\alpha\text{-Uran}$  besteht (Abb. 4235-48), das bei 1400°C flüssig war. Daneben wurde noch ein (U,Zr)-Mischkristall festgestellt; freies Zr konnte nicht nachgewiesen werden (Abb. 4235-48).

Dem isothermen Schnitt des Systems U-Zr-O bei 1400°C (Abb. 4235-46) kann man entnehmen, dass, wie bereits erwähnt, sauerstoffarmes Zr nicht im Gleichgewicht mit  $\text{UO}_2$  steht, dagegen aber sauerstoffgesättigtes  $\alpha\text{-Zr(O)}$  mit ca. 30 At.% Sauerstoff. Das hat zur Folge, dass die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem  $\text{UO}_2$  und Zry zum Stillstand kommen sollten, wenn das Zry vollständig mit Sauerstoff gesättigt ist. Der

Reaktionsumfang zwischen dem  $UO_2$  und Zry strebt daher einem Grenzwert zu, der unter inerten Glühbedingungen kleiner ist als unter oxidierenden. Entsprechende Untersuchungen zur Bestimmung des max. möglichen Reaktionsumfanges zwischen dem  $UO_2$  und Zry sind im Gange.

#### Chemische Wechselwirkungen zwischen Spaltprodukten und Zircaloy-2

Während der Kernspaltung entstehen im Brennstoff ca. 30 verschiedene Spaltproduktelemente, von denen ein Teil, aufgrund thermodynamischer Abschätzungen, als aggressiv gegenüber dem Zry-Hüllmaterial zu betrachten ist. Mit diesen Spaltprodukten bzw. Spaltproduktverbindungen wurden daher zunächst Verträglichkeitsuntersuchungen unter nicht LOCA-typischen Versuchsbedingungen durchgeführt, mit dem Ziel, die Reaktionsmechanismen kennenzulernen. Danach soll auch der Einfluß der Spaltproduktreaktionen auf die mechanischen Eigenschaften des Zry während eines LOCA untersucht werden.

Die Spaltproduktelemente Cs, J und Te sowie die Spaltproduktverbindungen  $CsOH$ ,  $CsJ$  und  $Cs_2CO_3$  wurden, ohne Gegenwart von  $UO_2$ , in Nöpfchen aus Zry eingebracht, gasdicht verschweißt und anschließend in einem Hochfrequenz-Induktionsofen bei 1000, 1100 und 1200 °C unter Vakuum geglüht. Die Glühzeit betrug einheitlich 30 min.

Von den untersuchten Substanzen reagierten lediglich Jod, Tellur und Cäsiumkarbonat in  $Cs_2O$  und  $CO_2$ , und es kommt daher zu einer Oxidation des Zry-Hüllmaterials sowie möglicherweise zur Bildung von Cs-Zirkonaten (Abb. 4235-49). Die Oxidation hat eine starke Härtesteigerung der Hülle an der Phasengrenze Zry/ $Cs_2CO_3$  infolge der Bildung von  $\alpha-Zr(O)$  zur Folge (Abb. 4235-50). Mikrosondenuntersuchungen zum Nachweis evtl. vorhandener Cs-Zr-O-Verbindungen müssen noch durchgeführt werden.

In Gegenwart von Jod und Tellur wird das Zry gleichmäßig abgetragen. Abb. 4235-51 zeigt die Zry-2/Te-Phasengrenze nach der Glühung bei 1000 bis 1100 °C. Im Hüllmaterial selbst sind keine Reaktionszonen bzw. Reaktionsprodukte zu erkennen. Mikrohärtemessungen zeigen aber, daß es zumindest bei 1100 °C zu einer geringen Versprödung des Zry-2 kommt (Abb. 4235-50). Bei 1200 °C sind die Tellur/Zry-Reaktionen sehr stark und es kommt innerhalb weniger Minuten zu einer nahezu vollständigen Auflösung der Zry-2-Nöpfchen (2 mm Wandstärke) (Abb. 4235-52).

Röntgenfeinstrukturuntersuchungen der Te/Zry-Proben ergaben, dass die bei 1000 und 1100°C gebildeten Reaktionsprodukte identisch sind; bei 1200°C entstehen dagegen z.T. andere Phasen. Das System Zr-Te ist bisher nicht bekannt. Als einziges Reaktionsprodukt konnte nur  $Zr_4Te_3$  (tetragonal) eindeutig identifiziert werden. Darüber hinaus bildet sich eine monokline Phase; vermutlich handelt es sich um  $ZrTe_3$ . Weitere Untersuchungen, insbesondere Mikrosondenuntersuchungen, zur Klärung der ablaufenden chemischen Wechselwirkungen sind geplant.

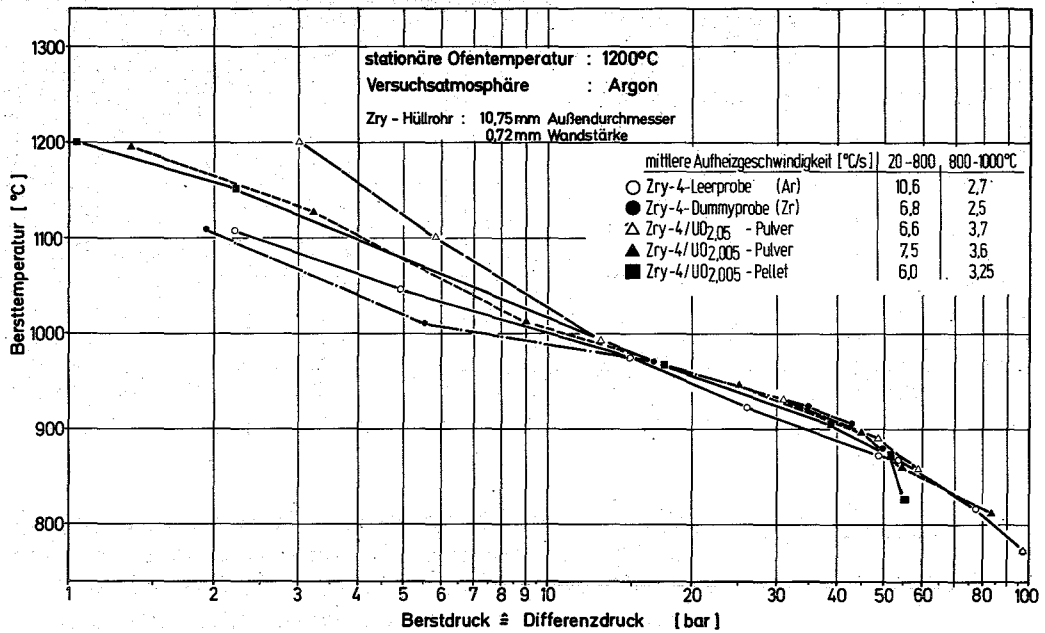
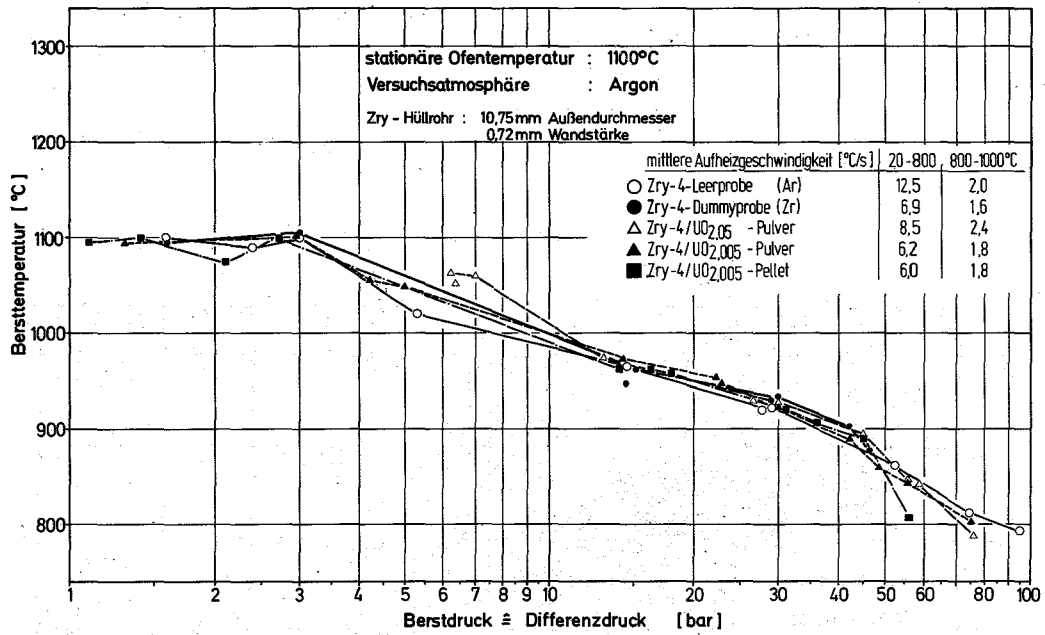
Im abgebrannten Brennstoff liegen Cs und Te gemeinsam vor, und das Te sollte daher durch das Cs abgebunden werden, da Cäsiumtelluride thermodynamisch sehr stabile Verbindungen sind. Die Reaktionen des Te mit dem Zry-Hüllmaterial sollten dadurch reduziert oder sogar verhindert werden. Die Stabilität der Cs-Telluride hängt aber andererseits wieder vom Sauerstoffpotential der Umgebung, d.h. vom O/U-Verhältnis des Brennstoffes ab. In Gegenwart von stöchiometrischem  $UO_2$  ist Cs-Tellurid stabil, bei überstöchiometrischem  $UO_2$  zersetzt sich das Cs-Tellurid jedoch in Cs-Oxid und Tellur, und daher Te/Zry-Wechselwirkungen wieder möglich sind. Ähnliche Betrachtungen gelten auch für das Jod bzw. CsJ.

#### Literatur

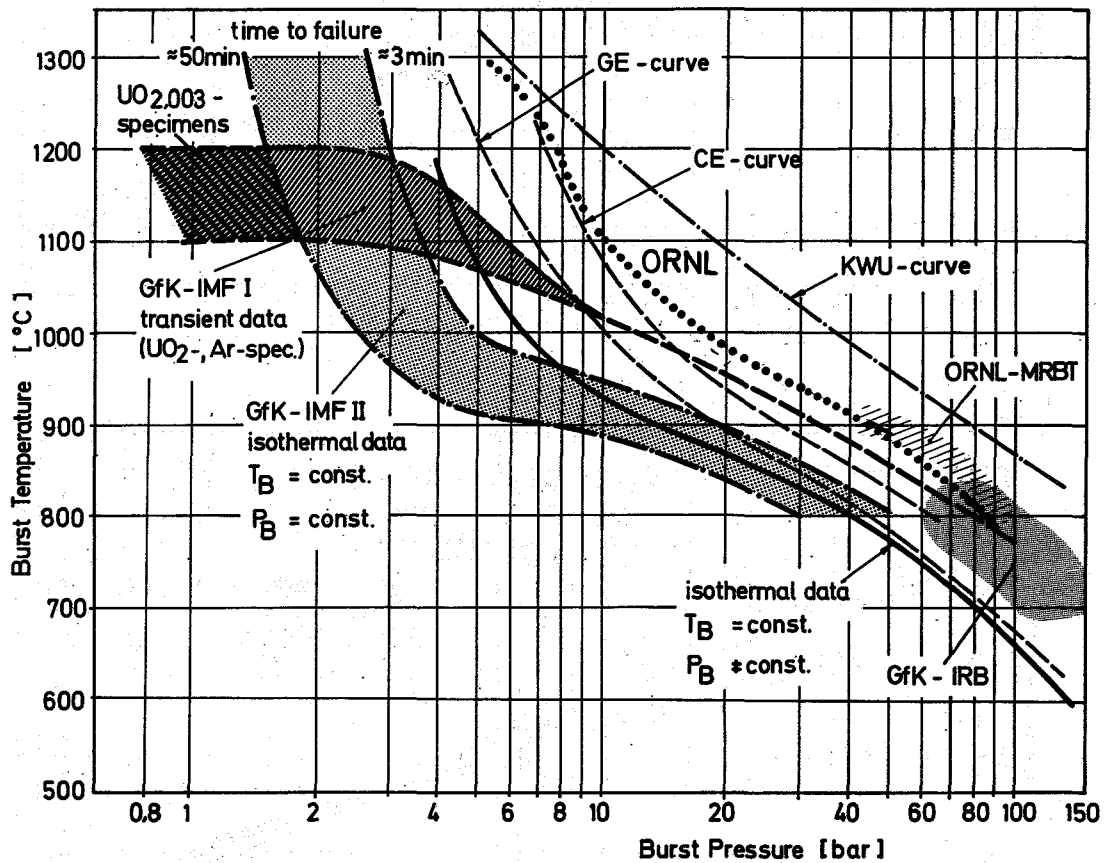
- /1/ S.Leistikow et al.  
KFK 2195 (1975) 219-238
- /2/ S.Leistikow et al.  
KFK 2375 (1976) 283-314
- /3/ J.V.Cathcart  
ORNL/NUREG/TM-41, Aug. 1976
- /4/ J.V.Cathcart  
ORNL/NUREG/TM-62, Okt. 1976
- /5/ E.B. Evans et al.  
"Critical role of nitrogen during high temperature scaling of Zirconium"  
"High-Temperature Gas-Metal Reactions in Mixed Environments"  
Met. Soc. AIME, Boston, Mass. 1972, S.248
- /6/ J. Bénard  
"L'Oxydation des Métaux"  
Gauthier-Villars, Paris 1964, S.323-327

- /7/ S. Leistikow et al.  
KFK 2262 (1975) 233-260
- /8/ S.Leistikow, H.v.Berg u. D.Jennert  
"Comparative Studies of Zircaloy 4 high temperature-steam  
oxidation under isothermal and temperature-transient conditions"  
OECD-CSNJ Spec.Meeting Spätind (Norway) 13.-16.9.1976
- /9/ D.G. Hardy  
"High Temperatures Expansion and Rupture Behaviour of Zry-Tubing"  
Water Reactor Safety Meeting (1973), Salt Lake City
- /10/ D.O.Hobson, P.L.Rittenhouse  
ORNL-4727 (1971)
- /11/ H.M.Chung, A.M.Garde, T.F.Kassner  
Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry (1976),  
Quebec City
- /12/ D.O.Hobson  
Zircaloy Fuel Cladding Collapse  
ORNL/NUREG/TM-45 (1976)
- /13/ C.Politis  
KFK 2167 (1975)
- /14/ P.Hofmann et al.  
KFK 2242 (1976)
- /15/ W.J.Quapp, R.K.McCardell  
Behaviour of Zry clad UO<sub>2</sub> fuel rods during film boiling in  
a PWR enviroment  
OECD-CSNJ Spec.Meeting Spätind (Norway) Sept.1976

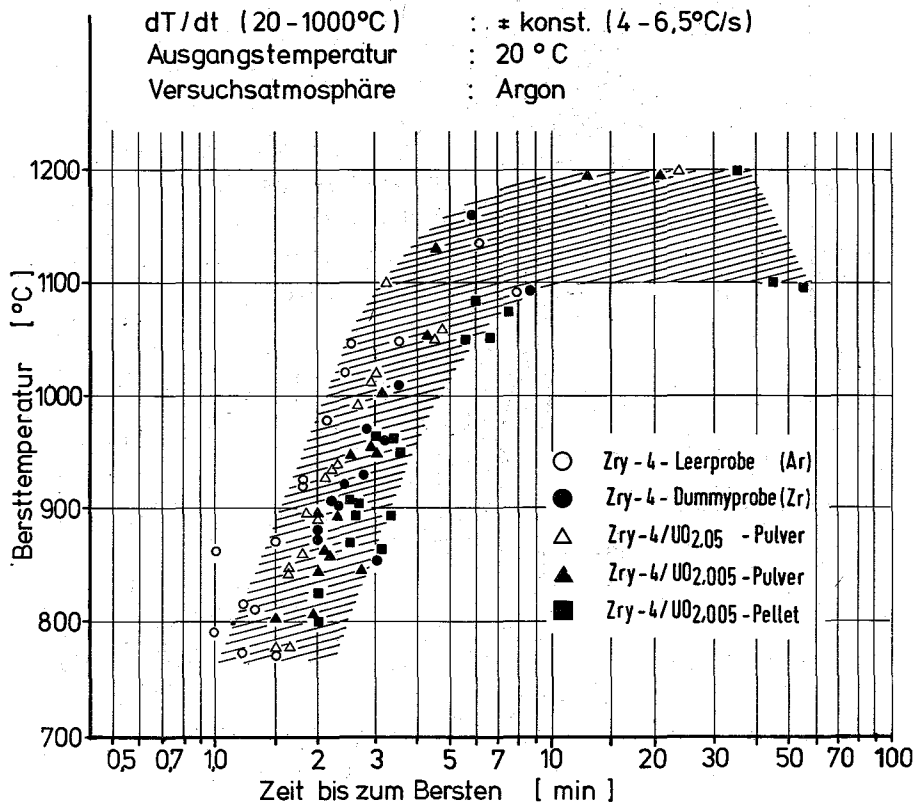




**Abb. 4235-32:** Bersttemperatur von Zry-4-Hüllrohren unter Schutzgas in Abhängigkeit vom Berstdruck. Die Hüllrohre waren mit UO<sub>2</sub> unterschiedlicher O/U-Verhältnisse bzw. Argon gefüllt. Die Prüflinge wurden in einen auf stationärer Temperatur gehaltenen Rohrofen (oben: 1100°C; unten: 1200°C) geschoben; der Druck und die Temperatur wurden kontinuierlich gemessen.



**Abb. 4235-33:** Vergleich der Berstdaten (Temperatur, Druck) von Zry-Hüllrohren für unterschiedliche Versuchsführungen (isotherm, transient). Z.T. wurden die Experimente unter oxidierenden Versuchsbedingungen durchgeführt (KWU, ORNL-MRBT, GfK-IRB)



**Abb. 4235-34:** Zeit bis zum Bersten von Zry-4-Rohren in Abhängigkeit von der Bersttemperatur. Die Ausgangstemperatur der Prüflinge betrug 20°C. Die Aufheizgeschwindigkeit variiert zwischen 20 und 1000°C, je nach Probenfüllung (UO<sub>2</sub>, Ar), im Mittel zwischen 4 und 6,5°C/s (genauere Angaben über die Aufheizgeschwindigkeit sind der Abb.4235-32 zu entnehmen).

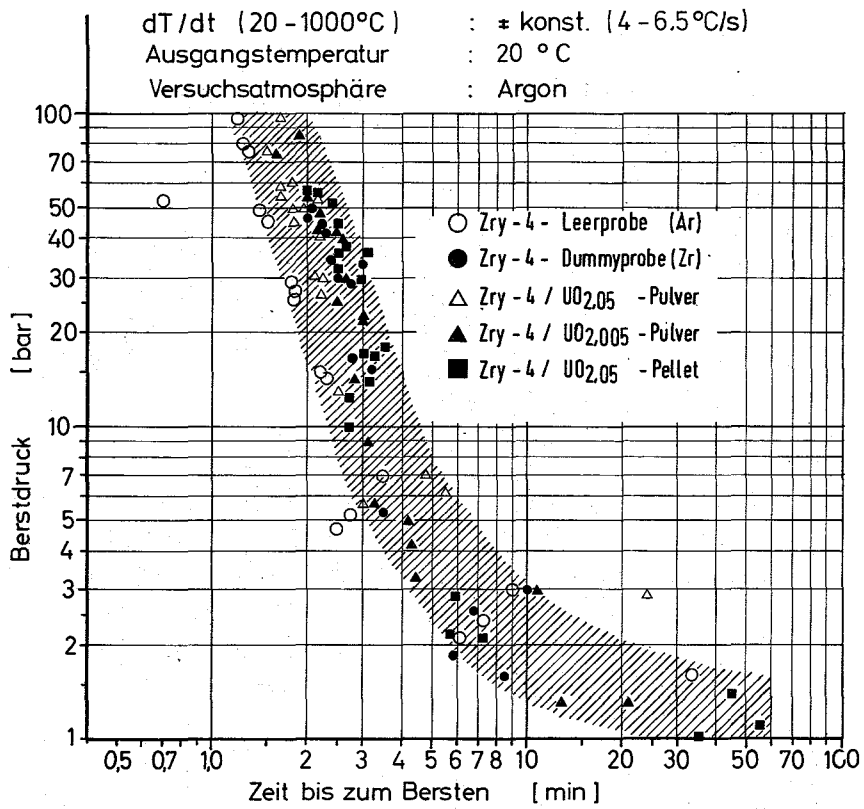


Abb. 4235-35: Zeit bis zum Bersten von Zry-4-Rohren in Abhängigkeit vom Differenzdruck bzw. Berstdruck. Die Ausgangstemperatur der Prüflinge betrug 20°C.

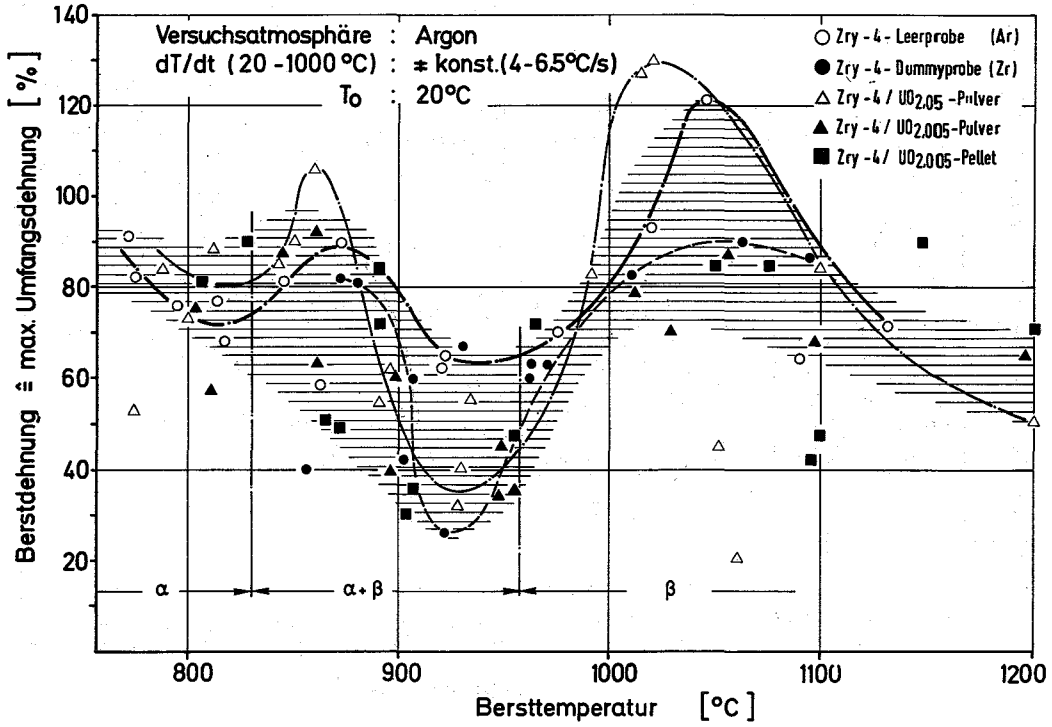


Abb. 4235-36: Berstdehnung von Zry-4-Rohren unter Schutzgas in Abhängigkeit von der Bersttemperatur.

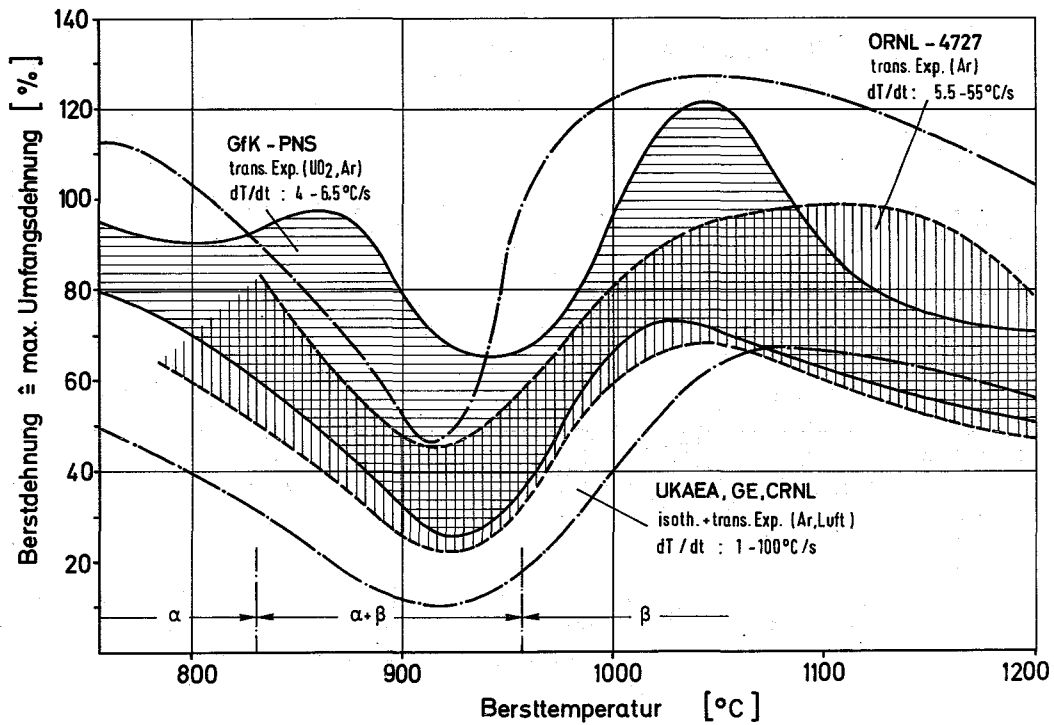


Abb. 4235-37: Berstdehnung von Zry-Rohren als Funktion der Bersttemperatur. Vergleich der Versuchsergebnisse mit denen anderer Labors.

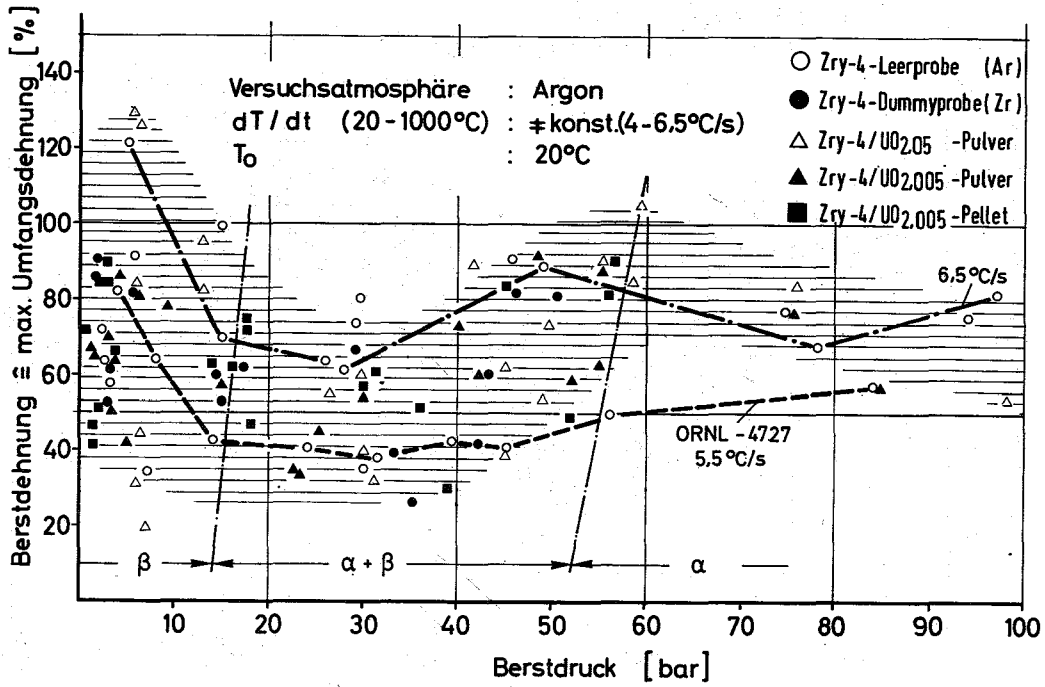


Abb. 4235-38: Berstdehnung von Zry-4-Rohren unter Schutzgas in Abhängigkeit vom Berstdruck.

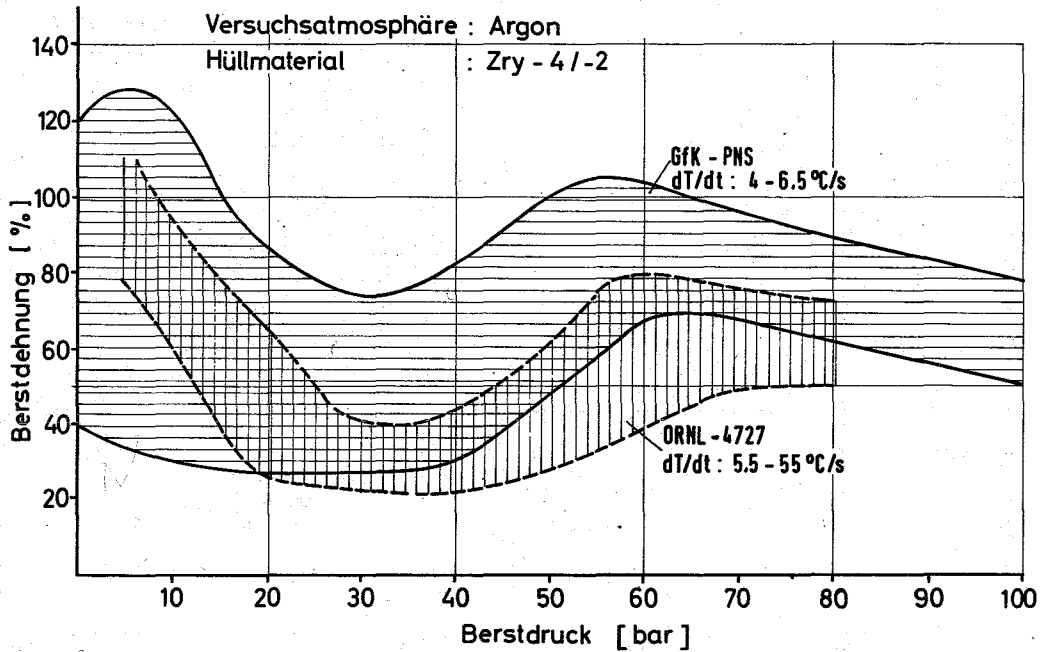
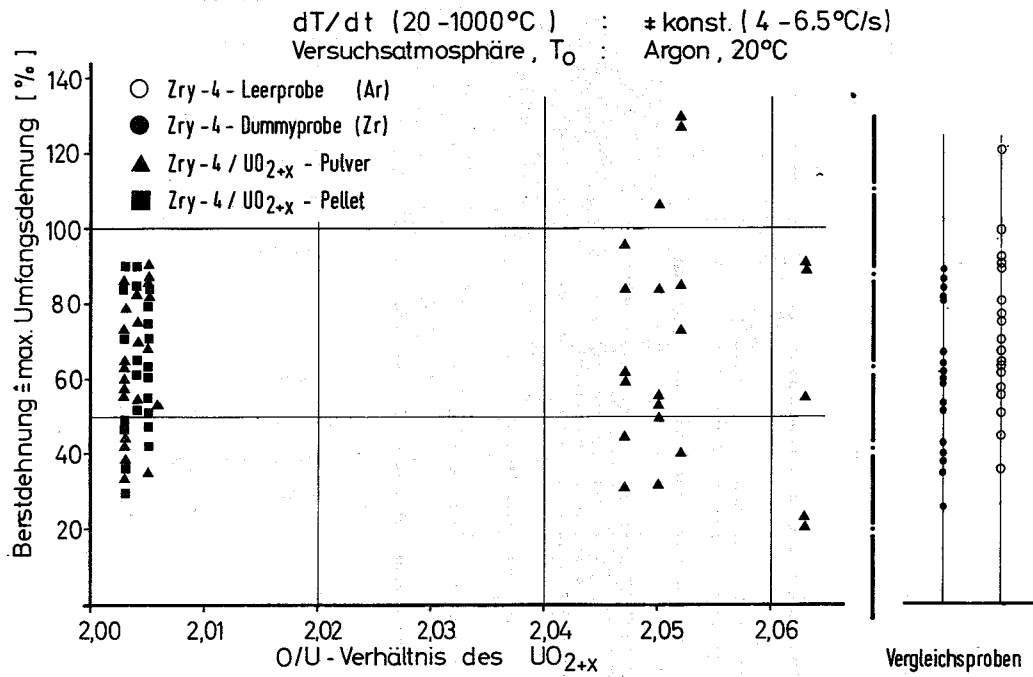


Abb. 4235-39: Berstdehnung von Zry-Rohren als Funktion vom Berstdruck. Vergleich der Versuchsergebnisse mit denen von D.O.Hobson und P.L.Rittenhouse /10/.



**Abb. 4235-40:** Berstdehnung von Zry-4-Rohren, die mit UO<sub>2</sub> (Pulver, Pellet) unterschiedlicher O/U-Verhältnisse bzw. mit Schutzgas (Vergleichsproben) gefüllt waren. Die maximalen Umfangsdehnungen wurden bei den Rohrproben, die mit stark überstöchiometrischem UO<sub>2</sub> (O/U  $\approx$  2.05) gefüllt waren, beobachtet.

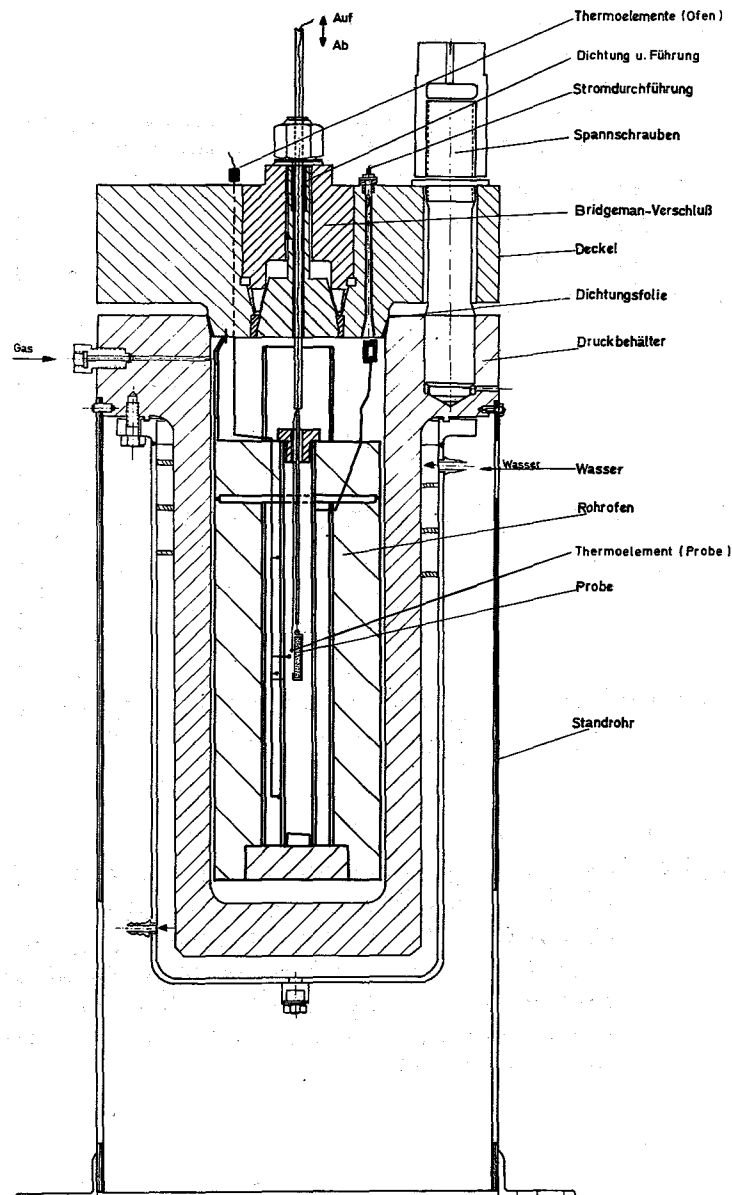


Abb. 4235-41: Hochdruckautoklav zur Durchführung von  $UO_2/Zry$ -Reaktionsexperimenten unter PCM-Bedingungen. Die max. Betriebstemperatur des Autoklaven beträgt ca.  $1550^{\circ}C$ , der max. Druck etwa 1000 bar. Als Druckmedium kann Schutzgas oder Luft benutzt werden. Die Glühprobe wird in den auf einer stationären Temperatur gehaltenen Rohrofen geschoben.



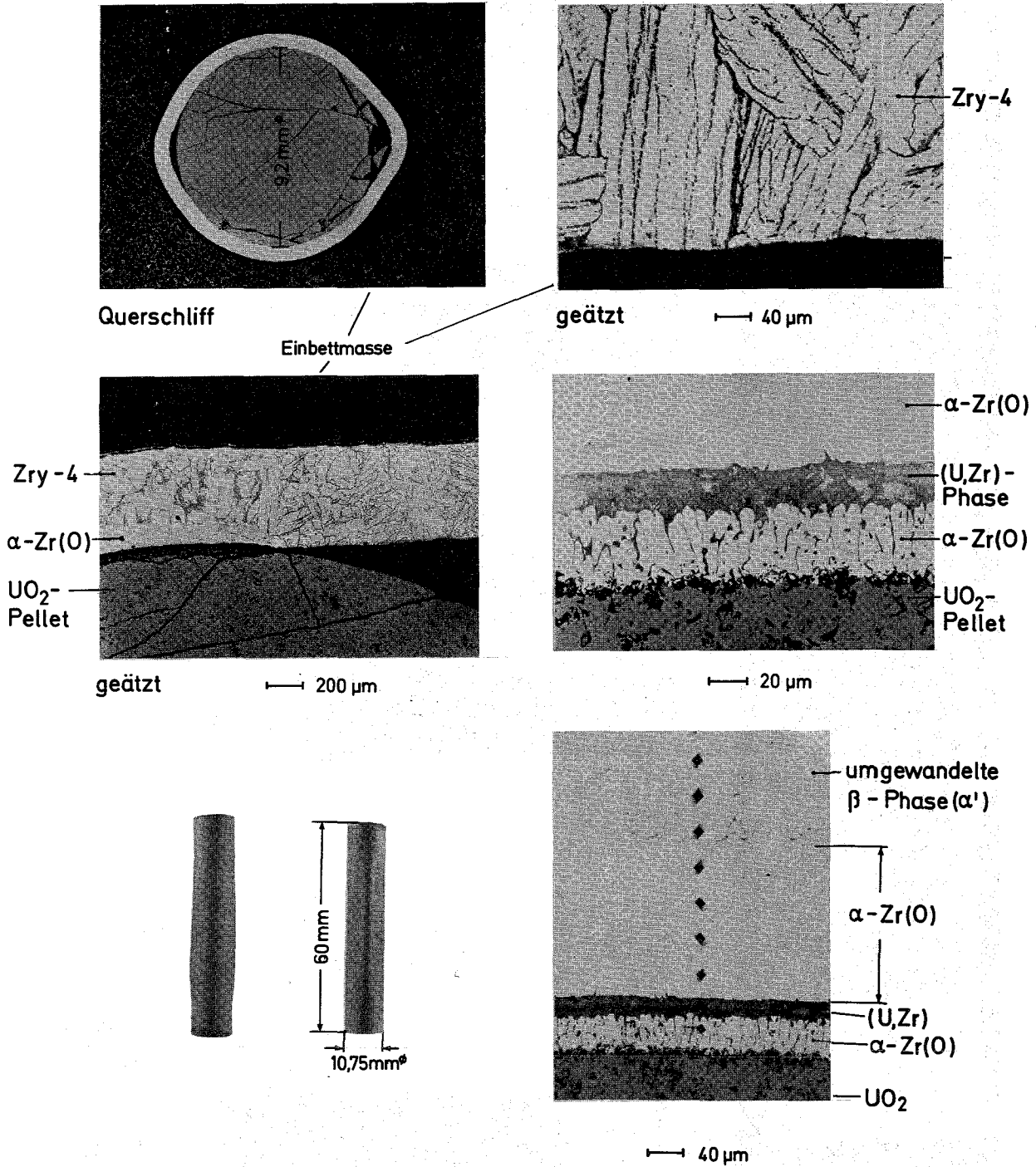


Abb. 4235-42: Zry-4/UO<sub>2</sub>-Wechselwirkungen nach Glühung bei 1200°C/30 min. Der Aussendruck betrug 10 bar. Das Hüllrohr kollabiert nicht vollständig auf die UO<sub>2</sub>-Pellets (Faltenbildung).

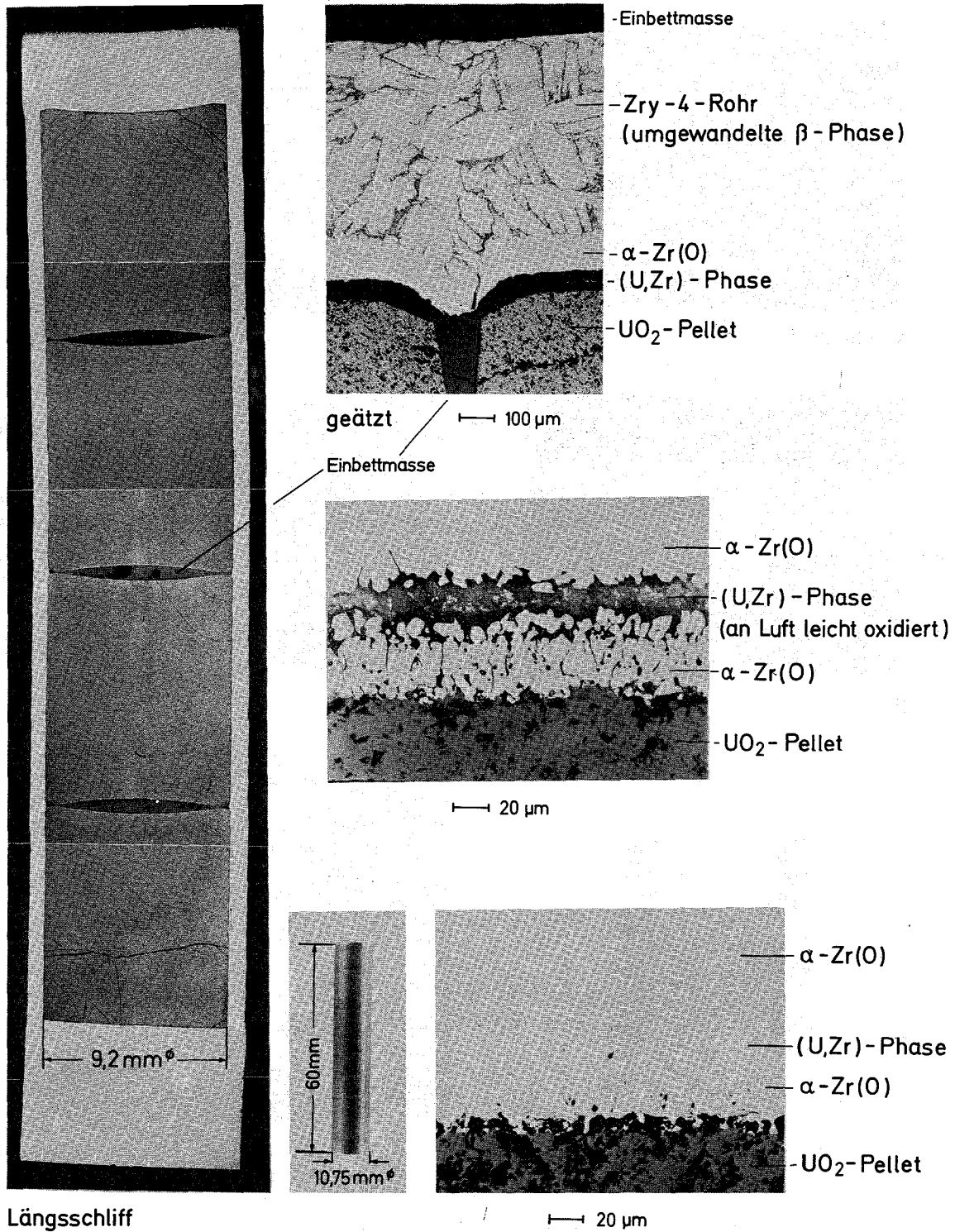
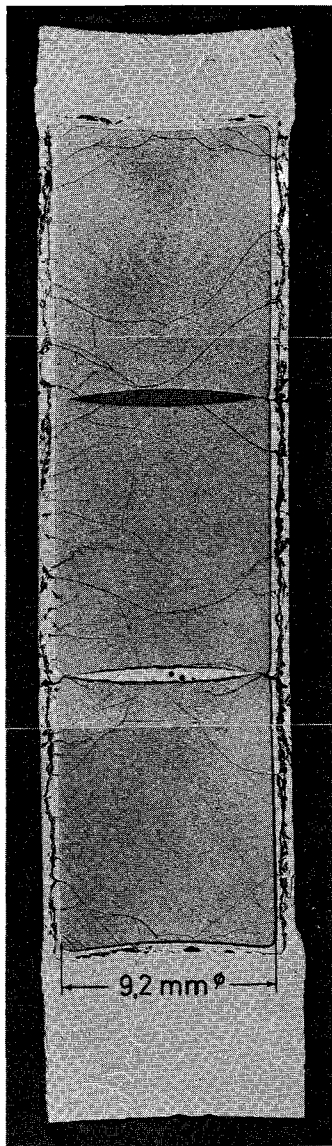
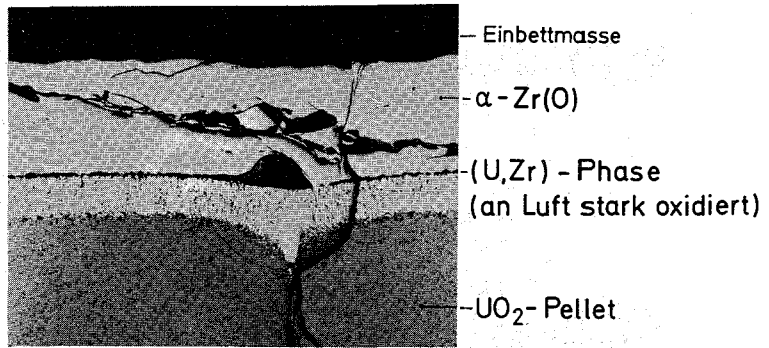


Abb. 4235-43: Zry-4/UO<sub>2</sub>-Wechselwirkungen nach Glühung bei 1200°C/30 min. Der Aussendruck betrug 70 bar. Die Probe zeigt eine sogenannte "Bambusstruktur".

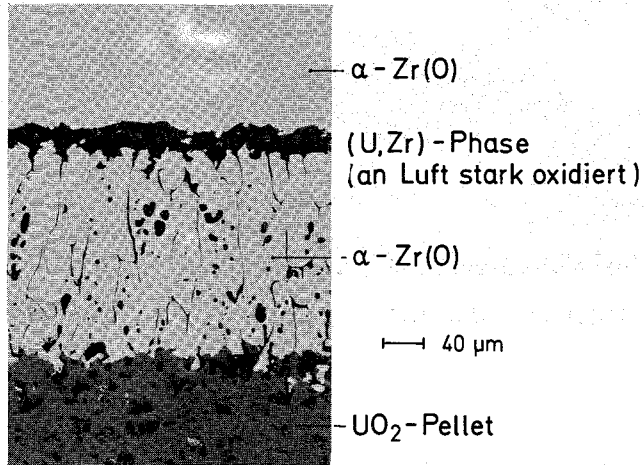


Längsschliff

UO<sub>2</sub>-Pellet -



200 μm



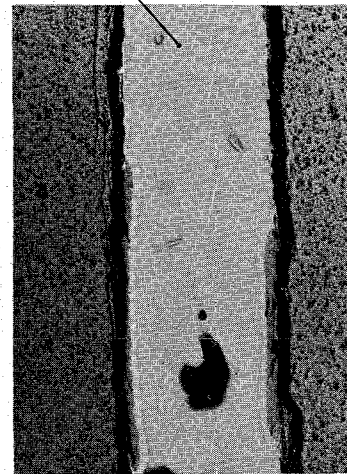
40 μm

(U,Zr)-Phase

(U,Zr)-Phase  
(an Luft oxidiert)



100 μm

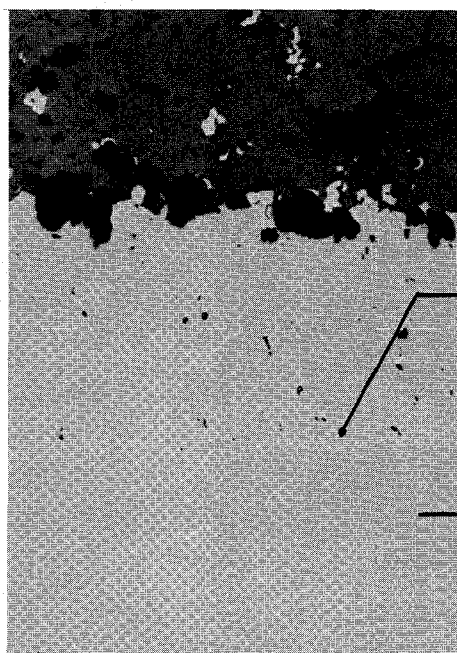


200 μm

Abb. 4235-44: Zry-4/UO<sub>2</sub>-Wechselwirkungen nach Glühung bei 1400°C/30 min. Der Aussendruck betrug 70 bar. Es bildet sich in grossen Mengen eine flüssige Phase (Uran), die in den Brennstoff eindringt.



Elektronenrückstreubild



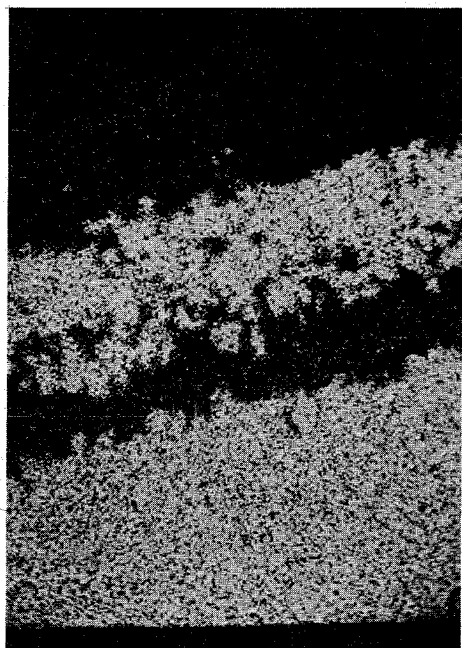
UO<sub>2</sub>

(U,Zr)-  
Legierung

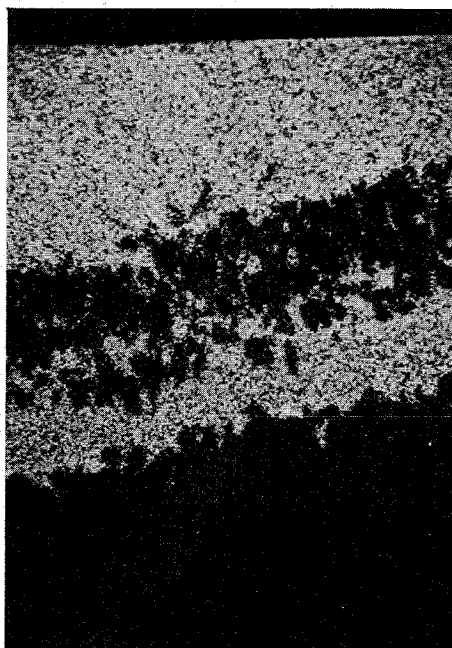
α-Zr(O)

Schliffbild

50 μm



Zircon



Uran

Abb. 4235-45: Mikrosonden-Aufnahmen der Zry-4/UO<sub>2</sub>-Reaktionsprobe (1200°C/30 min.).

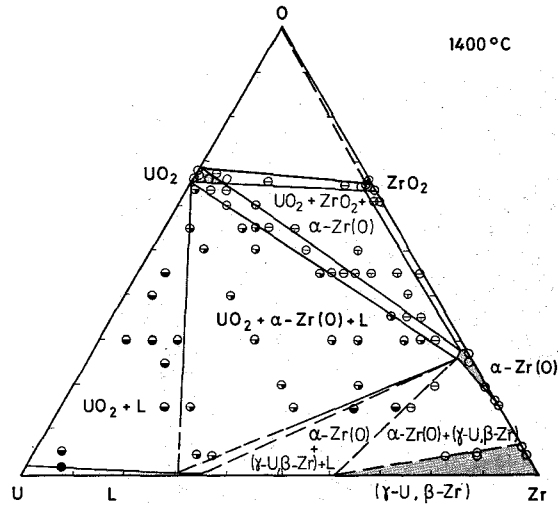


Abb. 4235-46: Isothermer Schnitt im System U-Zr-O bei 1400°C; Gleichgewichtseinstellung nach ca. 66 h. UO<sub>2</sub> und Zr stehen nicht miteinander im Gleichgewicht, dagegen aber UO<sub>2</sub> und alpha-Zr(O) mit ca. 30 At.% Sauerstoff.

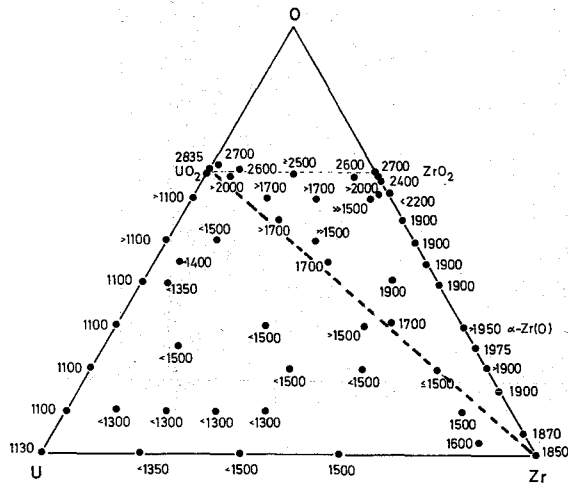


Abb. 4235-47: Schmelzbeginn im System U-Zr-O. Flüssige Phasen (stark uranhaltig) treten bereits unterhalb 1300°C auf.

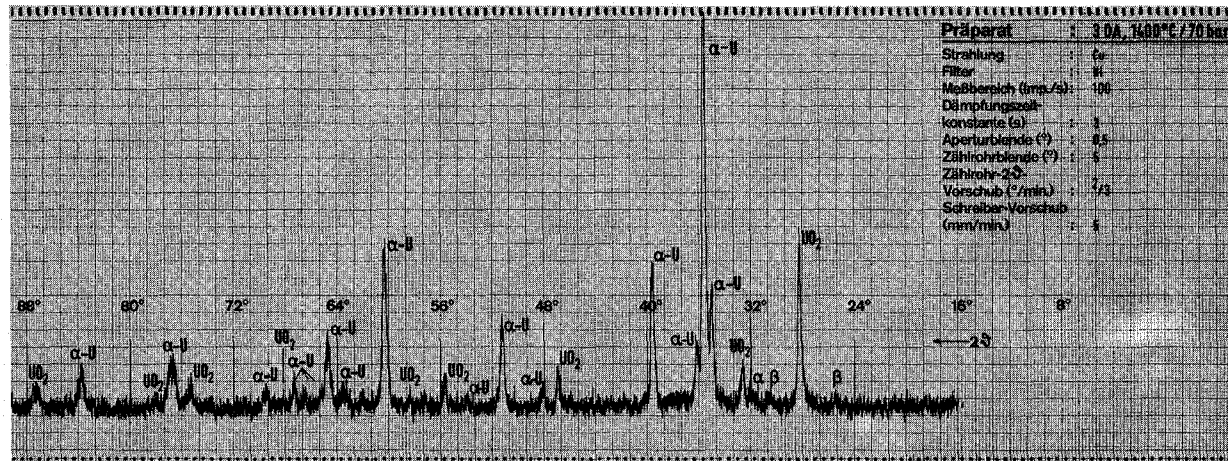


Abb. 4235-48: Röntgen-Diffraktometeraufnahme der Reaktionsprodukte in den Dishing-Hohlräumen der  $\text{UO}_2$ -Pellets der  $1400^\circ\text{C}$ -Probe (siehe Abb. 4235-44). Neben dem  $\text{UO}_2$  ist eindeutig  $\alpha$ -Uran in grossen Mengen nachzuweisen.

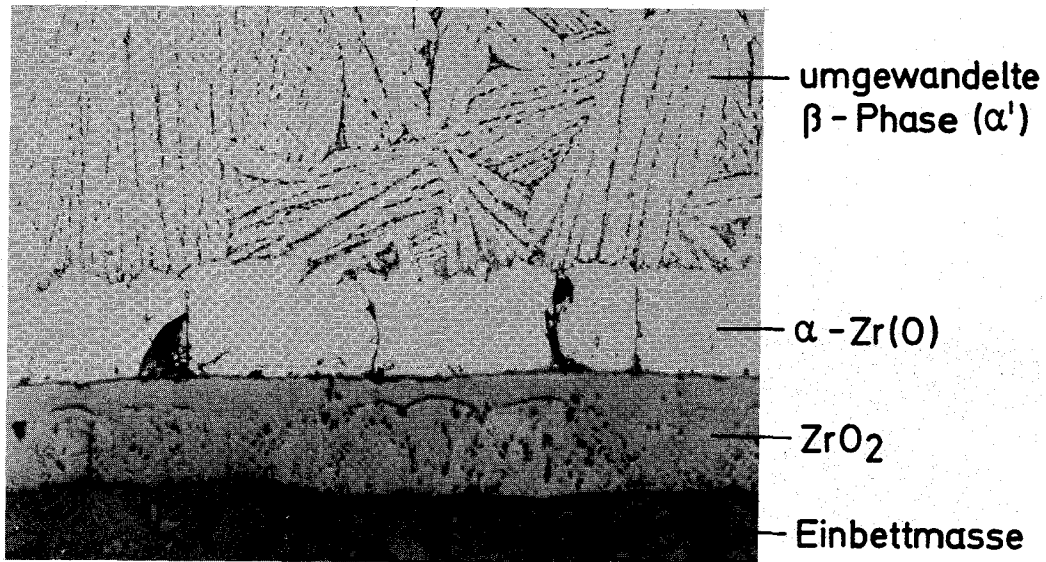


Abb. 4235-49: Chemische Wechselwirkungen zwischen Zry-2 und Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> nach Glühung bei 1100°C/30 min.

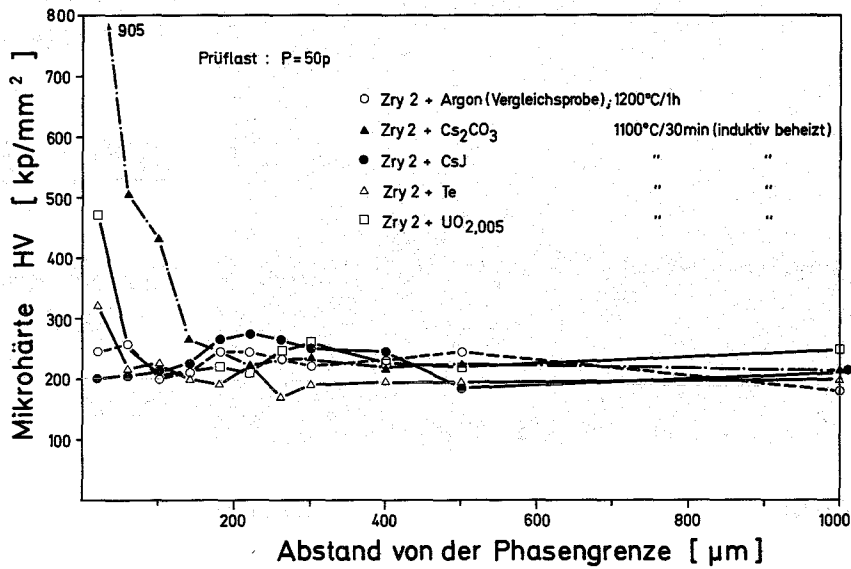
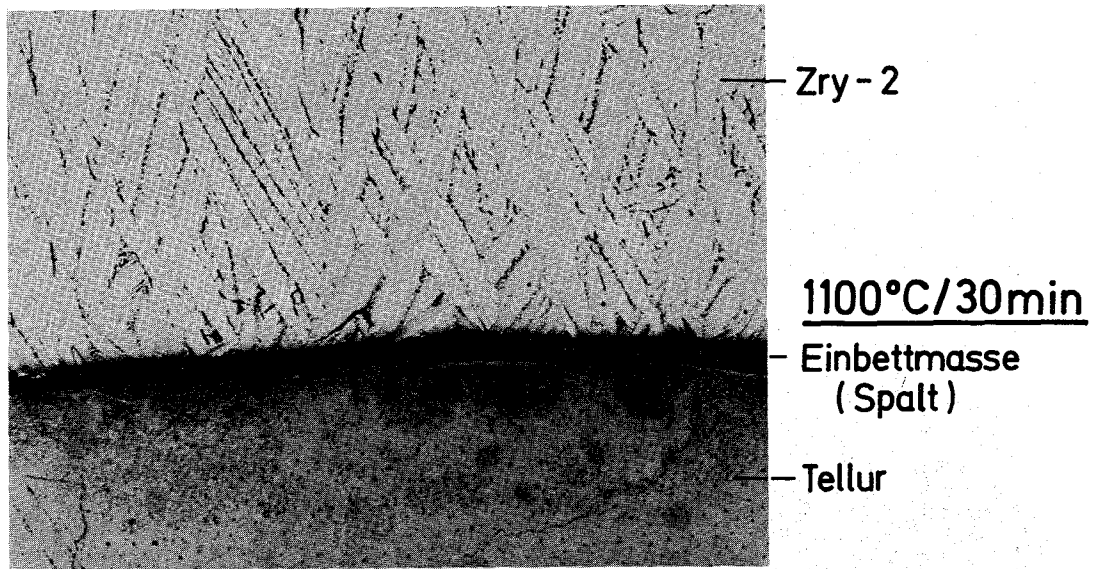
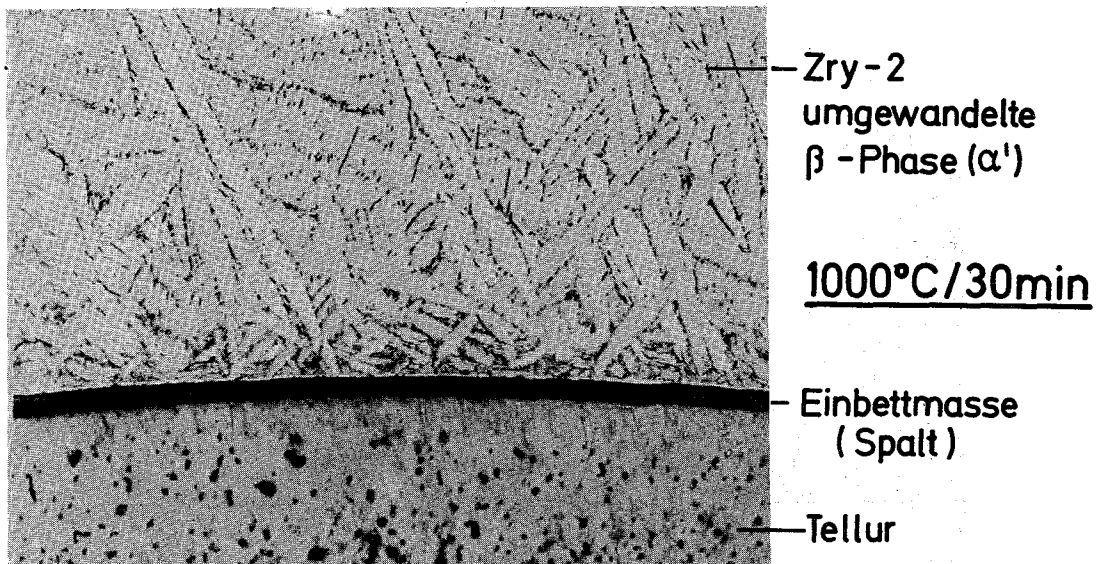


Abb. 4235-50: Mikrohärteverlauf des Zry-2 nach Glühung bei 1100°C/30 min in Gegenwart von Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, CsJ, Te und UO<sub>2,005</sub>.



40 μm

geätzt

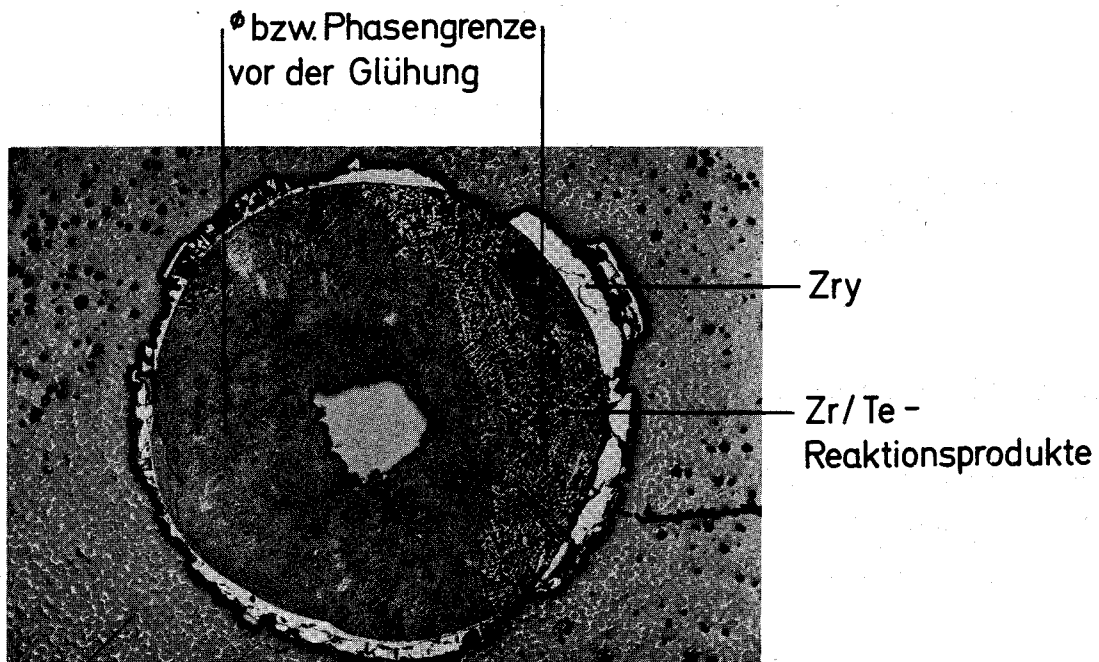


40 μm

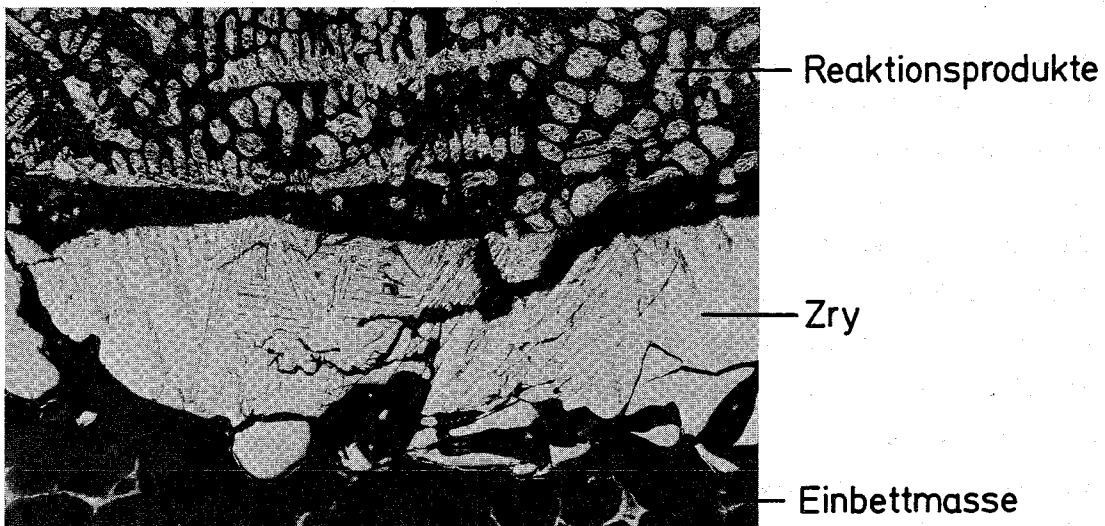
geätzt

Abb. 4235-51: Zry-2/Te-Wechselwirkungen nach Glühung bei 1000 und 1100°C. Das Zry wird durch das Te aufgelöst.





Einbettmasse



— 200 µm

geätzt

Abb. 4235-52: Zry-2/Te-Wechselwirkungen nach Glühung bei 1200°C/30 min. Das Zry wird nahezu vollständig durch das Te aufgelöst.

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, N. Paroth, T. Vollmer, K. Wagner)

### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Nach dem Einbau der Wandheizstäbe in der Teststrecke, wobei insgesamt 8 in Höhe der optischen Fenster geteilte Heizstäbe den zentralen Teststab in reaktoranaloger Geometrie umgeben, wurde die Endmontage des Kreislaufes durchgeführt.

Nach der Endabnahme durch den TÜV wurden am 18. Oktober erstmals die Sollbetriebswerte 160 bar und 300°C erreicht und konstant gefahren. Die endgültige Betriebserlaubnis für die Kesselanlage wurde durch die Genehmigungsbehörde erteilt. Bei den anschließenden Betriebsphasen des Kreislaufes wurde das Betriebsverhalten einzelner Komponentengruppen getestet. Dazu zählen auch erste Heizversuche mit dem Simulationsbrennstab, der bei einer mehrmaligen Belastung von etwa 30 % der Höchstlast (750 W/cm) ein zufriedenstellendes Verhalten zeigte. Versuche mit höheren Stableistungen können erst durchgeführt werden, wenn die für diese Versuchsanlage entwickelte elektronische Fehlstromdetektionseinheit zur Verfügung steht, die in Verbindung mit einer Thyristorschnellabschalteinrichtung die Stromzufuhr innerhalb einer Halbwelle zu unterbrechen vermag. Beim Vorliegen von lokalen Störungen in der elektrischen Isolation innerhalb des Simulationsbrennstabes, die z.B. durch kleine eingeschleppte Verunreinigungen des  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Ringpellets bewirkt sein können, kann sich ein nach Zerstörung des Stabes auf seine Umgebung übergreifender elektrischer Kurzschluß mit Lichtbogenbildung ausbilden. Die erwähnte Schnellabschalteinrichtung dient dazu, ein Übergreifen der Zerstörung auf die Stabumgebung zu unterbinden.

Der eigentliche Experimentierbetrieb konnte infolge von Verzögerungen im Aufbau der Meßwerterfassung und Komponentensteuerung in Verbindung mit dem System CALAS sowie wegen der nicht termingerechten Bereitstellung des True-Mass-Flow-Meter (TMFM) noch nicht aufgenommen werden. Die Fertigung der für

die vorgesehenen Druck - und Temperaturtransienten geeigneten Prototypausführung des TMFM erforderte einen größeren Aufwand als vorhergesehen. Insbesondere bereitete die Fertigung der Schaufelräder des TMFM hinsichtlich der erforderlichen Oberflächenqualität erhebliche Schwierigkeiten. Die ersten Versuche in einem eigens erstellten Prüfstand können mit den inzwischen fertig montierten TMFM in Kürze beginnen.

Im Rahmen der theoretischen Arbeiten wurden weitere Untersuchungen mit dem Rechenprogramm RELAP4 zur Ermittlung und Simulation von Core-Massenstromverläufen für 2F-Brüche im kalten und heißen Strang durchgeführt. Dabei zeigte sich bezüglich der Simulationsqualität (Ventilsteuerprogramm der Versuchsanlage) ein starker Einfluß der Annahmen über die Ausströmcharakteristik der Steuerventile. Daraus ist zu schließen, daß die endgültigen Ventilsteuerprogramme erst im Versuchsbetrieb erstellbar sind. Andererseits kann aus den Rechenergebnissen der Schluß gezogen werden, daß die Simulation von Brüchen im kalten Strang besser gelingt als von Brüchen im heißen Strang. Die Bruchlage im kalten Strang eines DWR verdient jedoch ohnehin die höhere Beachtung wegen der höheren thermischen Belastung der Brennstäbe im Vergleich zu anderen Bruchlagen.

Die Arbeiten zur Erstellung des Auswerteprogrammes wurden fortgeführt. Das Auswerterechenprogramm dient zunächst der Erstellung von IBM-kompatiblen Datenbändern, sodann der Datenkonversion einschließlich der Berechnung von Wärmeübergangszahlen und schließlich der Durchführung von thermohydraulischen Interpolationsrechnungen auf der Basis einer RELAP4-Version. Nach der Aufbereitung der Daten erfolgt eine Überprüfung hinsichtlich ihrer inneren Konsistenz; so können die Meßergebnisse der TMFM und der Gamma-Dichtemeßeinrichtungen mittels einer Massenbilanz in Zusammenhang gebracht werden.

Die Rechenprogrammteile zur Ermittlung von Wärmeübergangszahlen und zur thermohydraulischen Interpolation (Code-Version RELAP4.PNS4236) wurden auf Sensitivität hinsichtlich stets anzunehmender Störungen der auszuwertenden Meßsignale (eingekoppelte Störungen, verringerte Datenfrequenz) geprüft. Es zeigt sich bei den Temperatursignalen, daß aufgrund der thermischen Trägheit der den Thermoelementen zugeordneten Strukturmaterialmaschen eine höhere zeitliche Auflösung der in der Auswertung erhaltenen Wärmeübergangszahlen als etwa 5 bis 6 Hz prinzipiell nicht sinnvoll ist. Durch entsprech-

ende Filterung der Signale können dann höherfrequente Störungen leicht eliminiert werden (vgl. Abb. 4236.1). Die thermohydraulische Interpolation auf den Massenstrom in der Teststrecke gelingt mit der auf 100 Hz verringerten Datenfrequenz für die Massenströme in befriedigender Weise (vgl. Abb. 4236.2).

#### Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Nach der Montage der TMFM in den Kreislauf und nach dem Einbau der Meßwertübertragungs- und Komponentensteuereinheit und deren Erprobung kann der Experimentierbetrieb mit dem Simulationsbrennstab aufgenommen werden. Zwischenzeitlich kann voraussichtlich auch das Auswertungsrechenprogramm soweit fertiggestellt werden, daß eine sofortige Auswertung der ersten mit CALAS aufgezeichneten Versuche erfolgen kann. Auf der Basis des dann anfallenden Erfahrungsmaterials kann dann eine Spezifizierung des Versuchsprogramms und eine laufende Verbesserung des Auswertungsrechenprogramms vorgenommen werden.

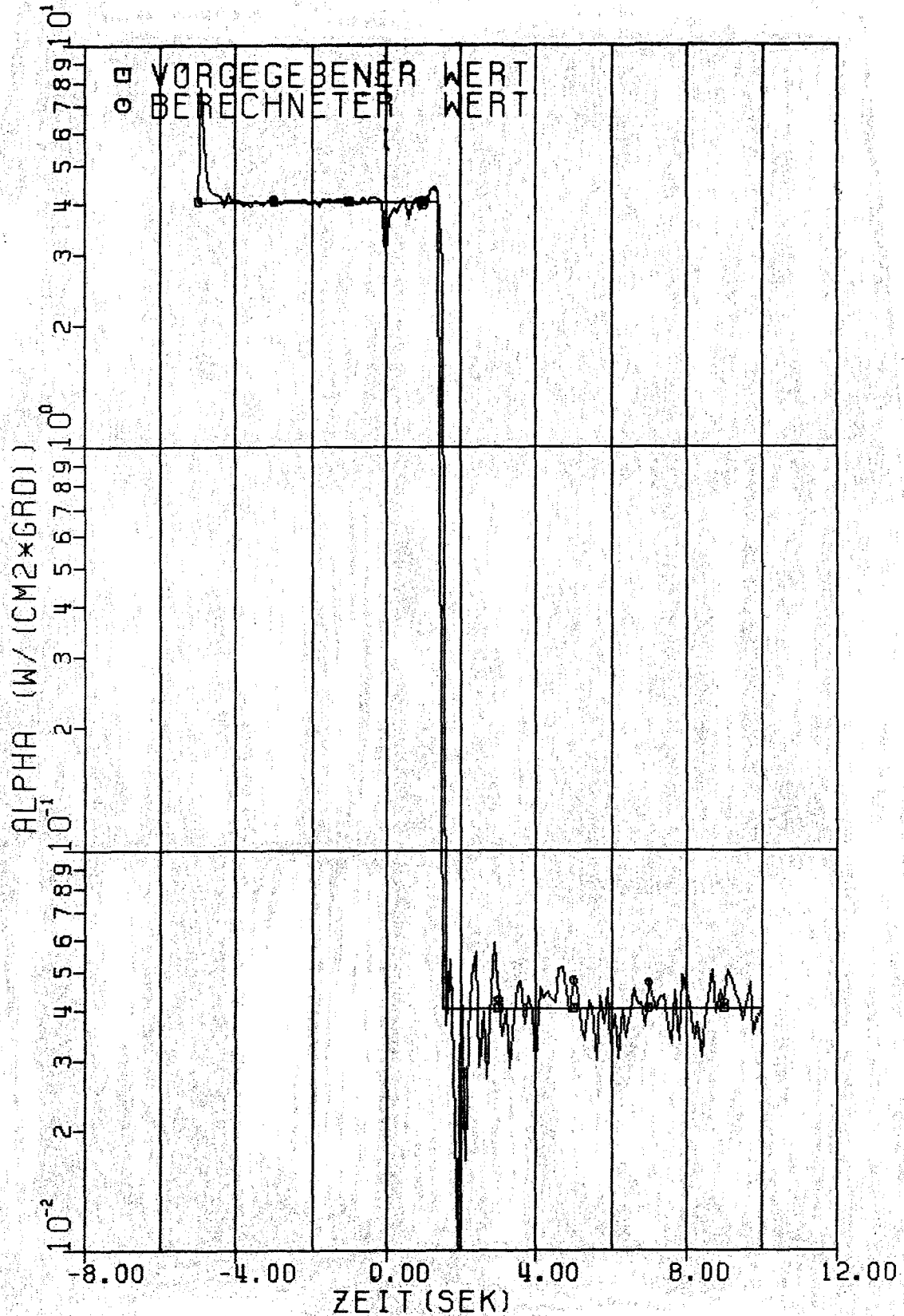
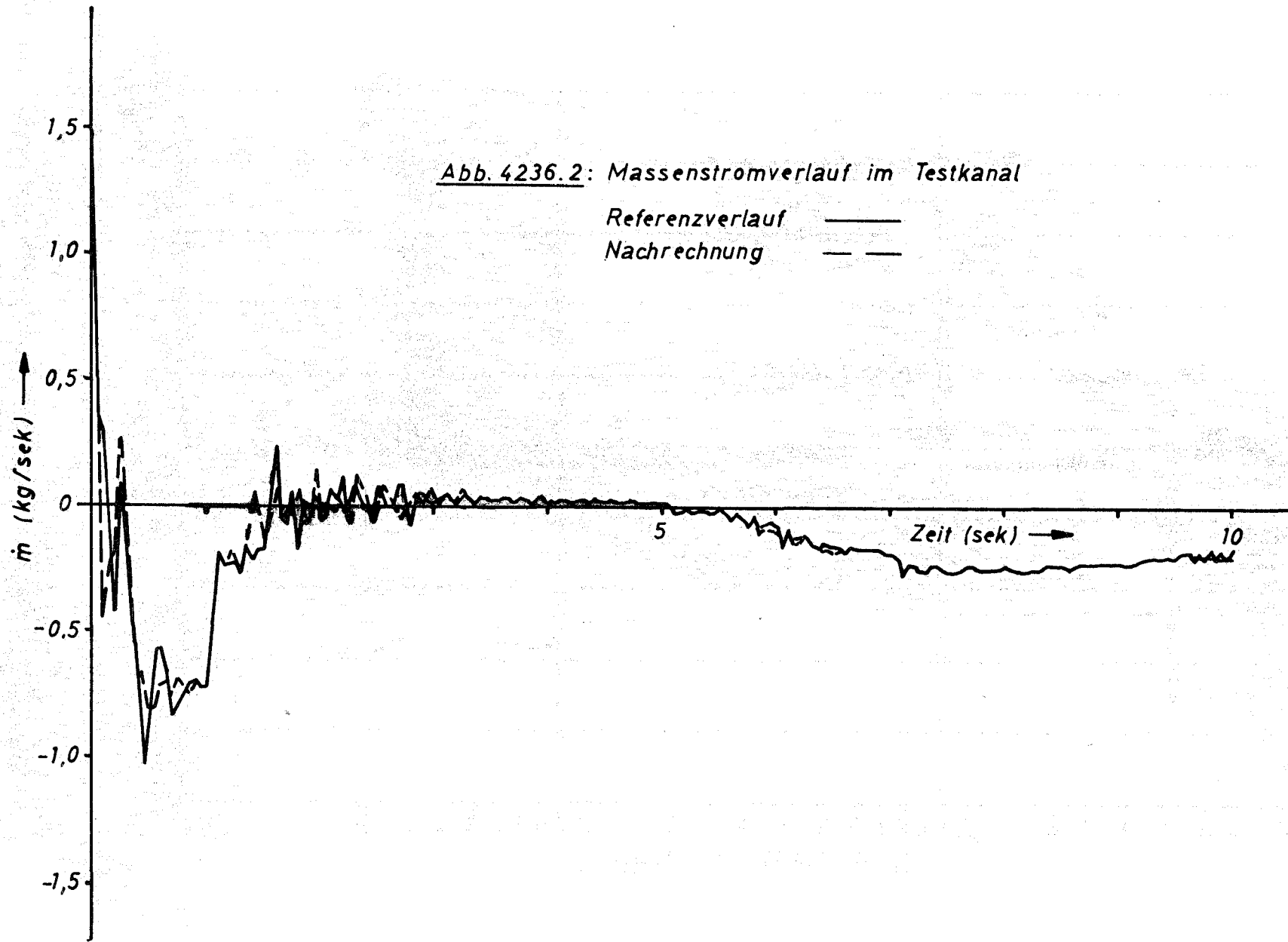


Abb. 4236-1:  $\alpha$ -Zahlenverlauf aus stochastisch gestörten  
( $\Delta T_{\max} = \pm 3 \text{ K}$ ,  $\overline{\Delta T} = 0.55 \text{ K}$ ) Temperaturver-  
läufen, nach Frequenzfilterung mit  $f_g = 5 \text{ Hz}$   
vor Auswertung



- 4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der  
2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles.  
In-pile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2.  
(E. Karb, RBT)
- 4237.1 Versuche mit Nuklearstäben  
(L. Sepold, G.Harbauer, H.Junker, W.Legner, W.Leiling,  
H.Lukitsch, RBT)
- 4237.2 Versuche mit elektrischen Brennstabsimulatoren  
(B. Räßple, K.Baumgärtner, M.Hespeler, W.Knappschneider,  
M.Prüßmann, K.Wagner, RBT)

### 1. Nuklearstabversuche

Die Nuklearstabversuche hatten im 2. Halbjahr 1976 Vorrang vor den BSS-Versuchen. Es wurden insgesamt 5 Nuklearstabversuche durchgeführt. 3 Versuche bildeten den Abschluß der Scoping-Testreihe. In dieser Testreihe wurden der Innendruck und das axiale Leistungsprofil variiert. Der Innendruckbereich (45 bis 100 bar) wurden so gewählt, daß die Auslegungsdaten moderner DWR erfaßt werden. Bei einem Versuch wurde der Innendruck auf 25 bar eingestellt, der - außerhalb der konservativen Annahmen - bei realistischer Betrachtung als untere Grenze gelten kann.

Die axialen Leistungsverteilungen werden durch die Flußprofile des Reaktors vorgegeben. Am Anfang einer Betriebsphase des Reaktors stellt sich im Prüflingsbereich ein relativ steiles, im weiteren Reaktorbetrieb bis zum Ende der Phase ein flacheres Flußprofil ein. Mit einer Reihe von Trimmstäben, die um den Prüfling gruppiert sind, kann das am Prüfling wirksame Flußprofil in Grenzen beeinflusst werden. Durch das Vertrimmen konnte ein axialer Formfaktor  $\phi_{P_{\max}} / \bar{\phi}_P$  von 1,01 bis 1,42 erreicht werden. Ein Vergleich mit den DWR-Auslegungen ergibt im mittleren Stabbereich von 50 cm Länge einen Formfaktor von ca. 1,01.

Da das Leistungsprofil des Prüflings nicht direkt gemessen werden kann, wird das Flußprofil in drei dem Prüfling benachbarten Vertikalkanälen aufgenommen (Kobaltdetektor) und daraus ein mittlerer Flußverlauf gebildet. In Abb. 4237-1 sind 2 gemittelte Flußprofile gegenübergestellt, aus denen der Einfluß des Vertrimmens hervorgeht. Dieses gemittelte Profil wird als Maß für den relativen Leistungsverlauf des Prüflings akzeptiert.

Während der Aufheizphase im Versuch folgt aufgrund der fehlenden Kühlung das Temperaturprofil dem Leistungsprofil. Dadurch wird die Form und die Lage der Beule am Versuchsstab wesentlich mitbestimmt.

Die Nachuntersuchungen der ersten beiden Versuchsstäbe vom Oktober 1975 in den Heißen Zellen wurden inzwischen abgeschlossen, weitere Stäbe aus 1976 werden z.Z. untersucht. Erste Teilergebnisse des ersten Prüflings dieses Jahres (A 2.1) liegen vor. Auf den Fotografien der Beulstelle sind ein großer Aufriß der Hülle und stark zersprungene Pellets zu erkennen (Abb. 4237-2). Die Beule selbst ist schwächer ausgeprägt als in dem früher beschriebenen Fall.

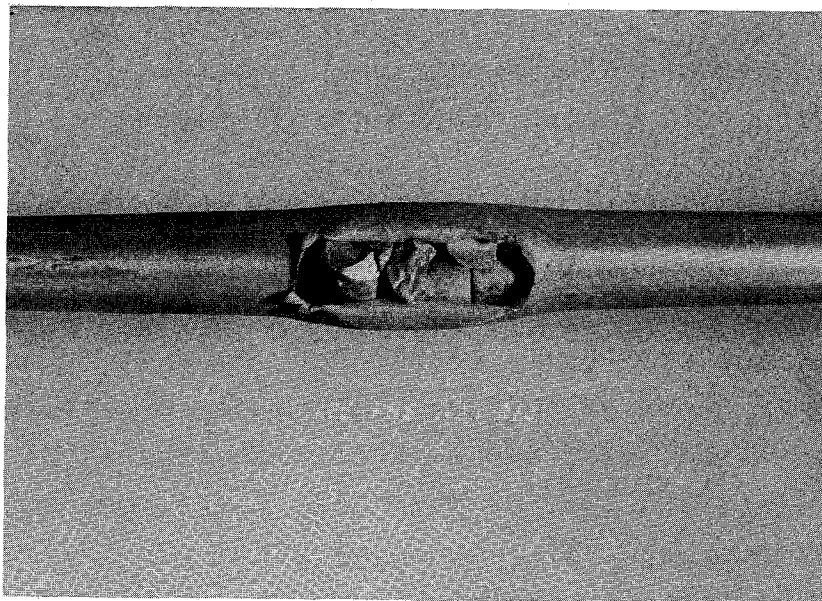


Abb.4237-2: Beulstelle des Versuchs A 2.1



Da die übrigen Auswertungsdaten des Versuchs A 2.1 - wie auch die Ergebnisse der weiteren Prüflinge - erst zu einem relativ späten Zeitpunkt zu erwarten sind, werden die während des Versuchs aufgenommenen Daten schnellstmöglich dokumentiert. Dazu wurde ein Formblatt aufgestellt, wie es für Versuch A 2.1 in Abb. 4237-3 wiedergegeben ist. Wichtige Größen in diesem Datenblatt sind vor allem Berstdruck und Bersttemperatur. Es ist notwendig, die Definition für diese beiden Größen anzugeben. Hierzu dient das Schema in Abb. 4237-4. Danach wird der Berstzeitpunkt vom Innendruckverlauf des Stabes abgeleitet. Die zuzuordnenden axialen Hüllrohrtemperaturen ergeben auch die Temperatur an der Beulstelle. Liegt die Beule außerhalb der Meßstellen, wird extrapoliert. Die verwendeten gemessenen Temperaturen werden vor der Extrapolation korrigiert, wie in Abschnitt 2. beschrieben. Die so gewonnenen Berstdaten aus den Versuchen A 1.1, A 2.1, A 2.2, A 2.3 und B 1.1 sind in Abb. 4237-5 verschiedenen Out-of-pile-Werten gegenübergestellt. Es zeigt sich, daß die In-pile-Daten im Bereich der Out-of-pile-Ergebnisse liegen.

Für die Montage und Instrumentierung von vorbestrahlten Prüflingen ist eine Koppel- und Schweißvorrichtung beschafft worden, die in der Abschirmzelle des FR2 eingesetzt werden soll. Mit der kalten Erprobung wurde begonnen.

## 2. BSS-Versuche

In den Versuchsreihen mit BSS 05 bzw. BSS 06 (Kalorimeter) wurden folgende Probleme untersucht:

- a) BSS 05:
  - "wahre" Hüllrohrtemperatur
  - Leistungsvergleich thermisch/elektrisch
  - Einfluß der Reaktorleistung ( $\gamma$ -Wärme)
  
- b) BSS 06:
  - Leistungsvergleich thermisch/elektrisch

## 2.1 Leistungsvergleich thermisch/elektrisch

Wegen der bisher aufgetretenen Abweichungen zwischen der thermisch bestimmten und der gemessenen elektrischen Leistung von bis zu 30% (s. 1. Halbjahresbericht 1976) wurden mit BSS 05 weitere gezielte Untersuchungen vorgenommen. Dazu wurde zur Vermeidung von Leckströmen die Dichtkraft am Kopfteil des Reaktoreinsatzes durch Einbau von Tellerfedern erhöht, ferner die Genauigkeit der elektrischen Leistung überprüft und die Leistungskonstanthaltung in Betrieb genommen.

Trotz dieser Maßnahmen konnte mit BSS 05 keine bessere Übereinstimmung der Leistungsdaten erzielt werden. Nach der Überprüfung der elektrischen Anlage muß die elektrische Leistungsmessung als fehlerfrei angesehen werden. Außer einem noch nicht ganz auszuschließenden Leckstrom verbleiben nach der Bestimmungsformel für die thermische Leistung als Fehlerquellen noch die Meßgrößen  $\dot{m}$ ,  $c_p$  und  $\Delta T$ .

Die Meßeinrichtungen für  $\dot{m}$  und  $c_p$  sind nachgeprüft und für in Ordnung befunden worden. Damit müßten die Fehler bei der  $\Delta T$ -Messung auftreten.

Die Genauigkeit der  $\Delta T$ -Thermoelemente, die in Differenz geschaltet sind, muß bei einer maximalen Abweichung von 0,6 K als gut angesehen werden. Als Fehlerursache verbleibt der Einfluß der TE-Anordnung. Bei der Montage der TE wird zwar sichergestellt, daß die Meßspitzen des Eintritts- und Austrittselementes in Mitte des Dampfkanals liegen. Jedoch ist nicht auszuschließen, daß sich als Folge mangelhafter Durchmischung Stromfäden unterschiedlicher Temperaturen ausbilden. Dies könnte vorzugsweise beim Austritts-TE auftreten.

Zur Prüfung, inwieweit die Fehlerquellen innerhalb des Reaktoreinsatzes zu suchen sind, wurde anstelle des Versuchseinsatzes ein Kalorimeter (BSS 06) angeschlossen. Mit dieser Anordnung sind die in Abb. 4237-6 aufgeführten Ergebnisse erzielt worden: Bei 40 bis 50 W/cm beträgt der Unterschied thermisch/elektrisch maximal 2,5 W/cm. Diese Abweichung kann toleriert werden. Der Hauptanteil der bisherigen Abweichungen kann damit eindeutig dem Versuchseinsatz zugeschrieben werden. Wichtig erscheint die Untersuchung und ggfs. Vermeidung der erwähnten Stromfäden. Der Nachweis dieses Effekts in der In-pile-Strecke ist schwierig. Zur weiteren Untersuchung ist ein spezieller BSS in Vorbereitung.

## 2.2 "Wahre" Hüllrohrtemperatur

Wie in früheren Berichten erwähnt wurde, werden die Hüllrohrtemperaturen mit gemantelten Ni/CrNi-Thermoelementen 1 mm  $\emptyset$  gemessen. An den Meßspitzen wurden Pt-Hülsen aufgehämmert, deren überstehender Teil flachgedrückt und auf das Zry-Rohr aufgepunktet wird. Die Anbringungsart auf der Hülle führt zwangsläufig zu Meßwerten, die von der tatsächlichen Hüllwandtemperatur abweichen. Zur Erarbeitung möglicher Korrekturwerte wurde BSS 05 folgendermaßen instrumentiert:

Im heißesten Bereich der Heizzone wurden im Abstand von 5 cm 3 TE-Paare angebracht. Jedes Paar bestand aus einem außen aufgebrauchten, Pt-gehülsten und einem in die Hüllwand eingelassenen TE von 0,5 mm  $\varnothing$ . Mit dieser Bestückung wurden stationäre und transiente Daten bei Leistungen von 20 bis 50 W/cm aufgenommen. Es ergibt sich eine geringe Abhängigkeit des Temperaturunterschiedes vom Temperaturniveau, dagegen eine deutliche Abhängigkeit von der Prüflingsleistung. Azimutale Abweichungen konnten nicht festgestellt werden. In Abb. 4237-7 sind die Meßwerte bei 600 bis 900 °C dargestellt. Für eine Leistung von 50 W/cm elektrisch läßt sich hieraus ein Korrekturwert von  $75 \pm 35$  K angeben. Der Streubereich von  $\pm 35$  K geht zu Lasten der außen angebrachten TE, die am Hüllrohr unterschiedlich stark anliegen.

### 2.3 Einfluß der Reaktorleistung auf den Aufheizvorgang

Eine Bedingung für die Referenzversuche zu den nuklearen In-pile-Versuchen ist die thermohydraulische Ähnlichkeit der Versuchsstrecke. Die Durchführung beider Experimente in der gleichen Teststrecke erfüllt diese Bedingung ideal. Aus diesem Grund werden die Referenzversuche ebenfalls im In-pile-Loop des FR2 durchgeführt. Für die Referenzversuche war zu prüfen, inwieweit die thermischen Randbedingungen von der Reaktorleistung beeinflusst werden und ob diese Versuche ohne Reaktorbetrieb durchgeführt werden können.

Zu diesem Zweck wurden mit BSS 05 Versuchsreihen mit und ohne Reaktor bei gleicher elektrischer Leistung gefahren. Die Ergebnisse sind in den Abb. 4237-8 und 9 zusammengefaßt. Abb. 4237-8 zeigt die Unterschiede mit/ohne Reaktorleistung im Stationärbetrieb. Aufgetragen ist die Temperaturdifferenz Wand/Dampf bei verschiedenen Prüflingsleistungen. Der Temperaturunterschied zwischen Hüllrohr und Dampf ist bei Reaktorbetrieb mit 30 MW um ca. 10 K größer als ohne Reaktorleistung. Ähnlich verhält sich die Differenz am inneren Dampf-

führungsröhr (iDFR:  $\sim 3$  K). Die Prüflingsleistung beeinflusst diese Unterschiede kaum. Dieses Ergebnis bedeutet, daß die Starttemperaturen für die Transiente bei Verzicht auf Reaktorleistung um wenige Grade niedriger liegen.

Der Einfluß auf die transiente Aufheizung ist noch geringer, wie aus Abb. 4237-9 ersichtlich ist. Dies bestätigt die Ergebnisse der früheren BSS-Versuche und der angestellten Berechnungen: Eine Abschätzung auf der Grundlage gemessener Temperaturwerte ergab einen Leistungsanteil durch den Reaktorbetrieb von ca. 0,5 W/cm.

Es ist offensichtlich, daß die Referenzversuche nicht mit Reaktorleistung gefahren werden müssen.

### 3. Erhöhung des O<sub>2</sub>-Angebots in der Teststrecke

Die Rechnungen zur Kühlwirkung eines geringen Dampfstromes haben bei den im letzten Bericht angegebenen 2 kg/h eine zu starke Temperaturabsenkung während der Transiente ergeben. Daraufhin wurde geprüft, inwieweit der Dampfstrom reduziert werden kann. Dabei war abzuwägen, welcher kleinste Mengenstrom

- sich technisch verwirklichen läßt
- ein noch ausreichendes O<sub>2</sub>-Angebot gewährleistet.

Ergebnis:

Eine Verringerung des Dampfstromes auf 10% des ursprünglichen Wertes ist möglich.

Mit einer Kapillaranordnung kann der Mengenstrom auf 0,2 kg/h begrenzt werden. Die rechnerische Kapillarweite beträgt dabei 0,5 mm, die Länge 12,5 m. Der Mengenstrom ist rechnerisch proportional  $L_{\text{Kap}}$  und  $D_{\text{Kap}}^4$ . Das bedeutet, daß der Kapillardurchmesser eng toleriert werden muß.

Die Kühlwirkung bei 0,2 kg/h ist in Abb. 4237-10 den Rechenwerten ohne Dampfströmung bzw. mit 2 kg/h gegenübergestellt.

Eine LOCA-Rechnung für den DWR-Stab mithilfe des WAK-Programms liefert für die Dampfgeschwindigkeit in der Wiederauffüllphase vergleichbare Werte, wogegen Reynolds-Zahl und Mengenstrom abweichen:

Tab. 4237-1:

	Versuchskreislauf (0,12 bar)	DWR LOCA-Rechnung (3,5 bar)
Mengenstrom pro Einzelstab	0,2 kg/h	18 kg/h
Reynoldszahl	87	9000
Dampfgeschwindigkeit	10 m/s	15 m/s

#### 4. Einfluß des $c_p$ -Wertes der Zry-Hülle

Bei den bisherigen Nachrechnungen zu den Versuchen ergaben sich besonders ab ca. 800°C deutliche Unterschiede im Temperaturanstieg. Abb. 4237-11 zeigt, daß im oberen Temperaturbereich die Versuchskurve wesentlich stärker abbiegt (kleinerer Temperaturanstieg) als die Rechenkurven. Eine mögliche Ursache hierfür liegt im  $c_p$ -Verhalten des Zircaloy-4. Neuere MATPRO-Daten zeigen, wie in Abb. 4237-12 dargestellt, in der  $\alpha+\beta$ -Phase einen sprunghaften Anstieg der spezifischen Wärme auf das 2,3fache des Grundwertes. Werden diese Daten in der Berechnung des Aufheizverlaufs berücksichtigt, ergibt sich eine bessere Annäherung an die Versuchskurve (s. Abb. 4237-13).

Für die Nachrechnung wurde der Versuch A 1.2 zugrundegelegt, da dabei der Stab nicht beulte und die Hülltemperatur (durch Abheben der Hülle) nicht erniedrigt wurde. Durch die gemessene Hülltemperatur TX 2 und die zugehörige Temperatur TX 4 des iDFR konnte die Wärmeabgabe durch Strahlung und Leitung und daraus die Stabaufheizung zuverlässig berechnet werden.

## 5. Gasströmung im Brennstab

Die experimentellen und theoretischen Untersuchungen zur Gasströmung im Brennstab wurden abgeschlossen, die Ergebnisse im KFK-Bericht 2411 (s. unter 6.) dokumentiert:

Ziel dieser Untersuchungen war es, Modelle für die Berechnung des Gasstromes zwischen Plenum und Beule zu finden und durch Versuche zu verifizieren. Die Arbeiten wurden ursprünglich im Rahmen der Auslegung des Gasplenums der im Vergleich mit dem Reaktorstab kurzen Versuchsstäbe begonnen.

Für den mehr oder minder exzentrischen Ringspalt zwischen Brennstofftabletten und Hülle wurde durch Versuche mit stationärer Strömung gezeigt, daß die üblichen Formeln für den Ringspalt anwendbar sind. Dabei muß im Bereich laminarer Strömung der Exzentrizitätsfaktor  $\mathcal{Y}$ , im Übergangs- und im turbulenten Gebiet die mittlere relative Rauigkeit des Systems,  $k/d_h$ , bekannt sein. Das Übergangsgebiet beginnt z.T. schon bei  $Re \approx 600$ . Abb. 4237-14 zeigt den Vergleich zwischen Rechen- und Meßwerten für die Widerstandsziffer  $\lambda$  als Funktion der Re-Zahl.

Da die zylindrische Geometrie beim Betrieb eines Reaktors durch Ribbildung bald verlorengelht, wurden die Untersuchungen auch auf den Fall des aus Bruchstücken bestehenden Brennstoffs ausgedehnt. Durch Versuche konnte gezeigt werden, daß sich der Gasmassenstrom mit Modellen für Schüttungen von Teilchen recht gut abschätzen läßt. Dabei müssen z.T. allerdings mehr Geometrieparameter als beim Ringspalt bekannt sein bzw. nach Annahme eines "Ribmusters" berechnet werden. Bei gleichem freien Querschnitt ist der Strömungswiderstand der Bruchstückschüttung im allgemeinen höher als der des Ringspalts. Abb. 4237-15 zeigt den nach verschiedenen Modellen berechneten Massenstrom im Vergleich zu den entsprechenden Meßwerten ( $P_0$  = Anfangs-,  $P_1$  = Enddruck an der Meßstrecke). Die Übereinstimmung der Modelle A, B und D mit der Messung ist für derartige Abschätzungen gut und für die vorliegende Zielsetzung ausreichend. Modell C wurde ausgeschieden.

## 6. Veröffentlichungen

**E. Karb, G. Harbauer, W. Legner, L. Sepold, K. Wagner:**  
**Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Gas-**  
**strömung in LWR-Brennstäben bei Kühlmittelverluststörfällen,**  
**KFK-Bericht 2411, Dez. 1976**



$$\frac{\phi_{Pr \max}}{\phi_{Pr}}$$

Formfaktoren im Prüflingsbereich

— · — 1,01

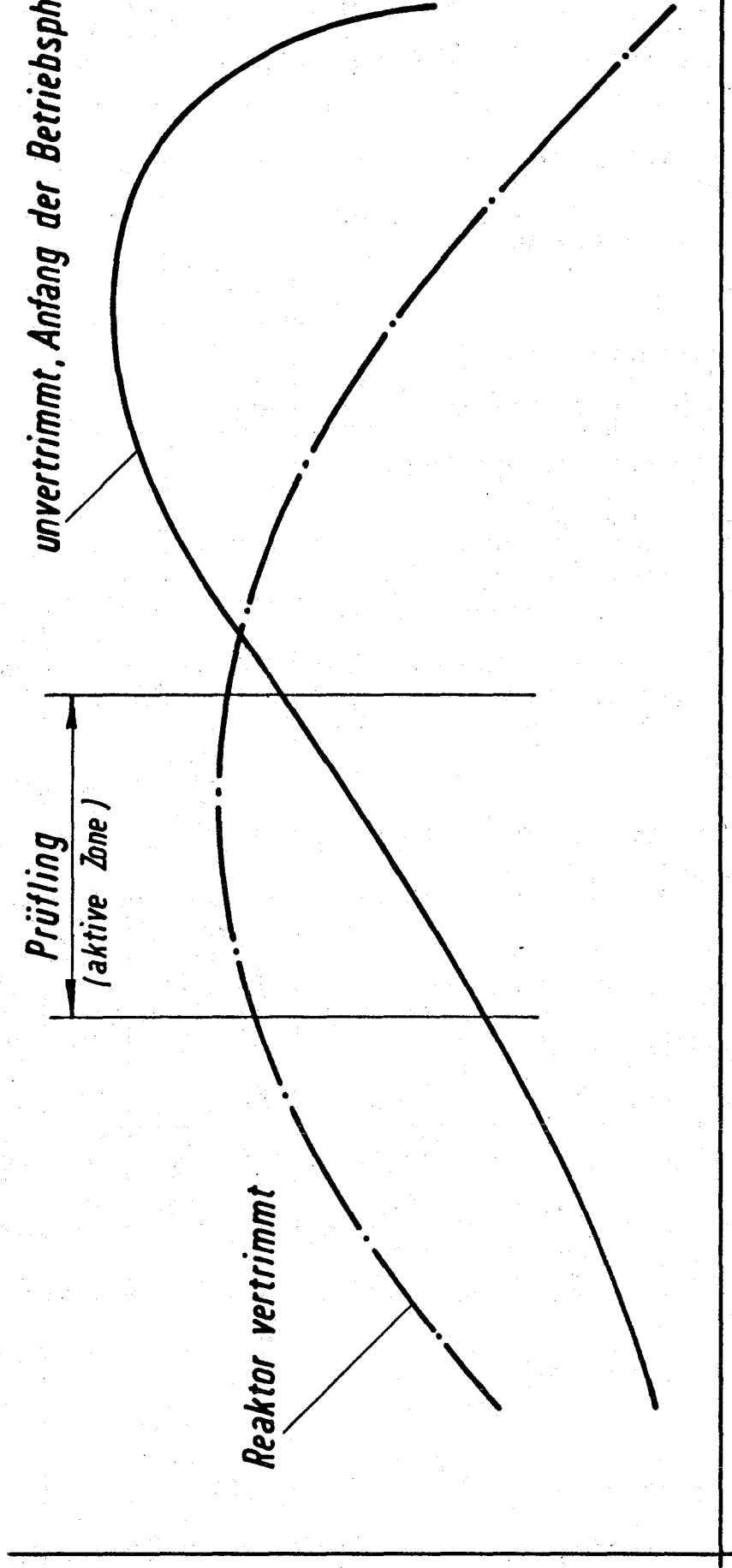
— 1,42

Fluidichte

Prüfling  
(aktive Zone)

unvertrimmt, Anfang der Betriebsphase

Reaktor vertrimmt



- 347 -

Abstand von Oberkante Reaktorkern

GfK - RBT  
4237-48

Gemittelte Fluidichte - Profile für die Versuchsposition  
der In-pile-Versuche

Abb. 4237-1  
PNS 1976

## IN-PILE-VERSUCHE ZUM BRENNSTABVERSAGEN - PNS 4237.1

Daten des Versuchs A 2.1 vom 6.7.1976, Abbrand — Mwd/t

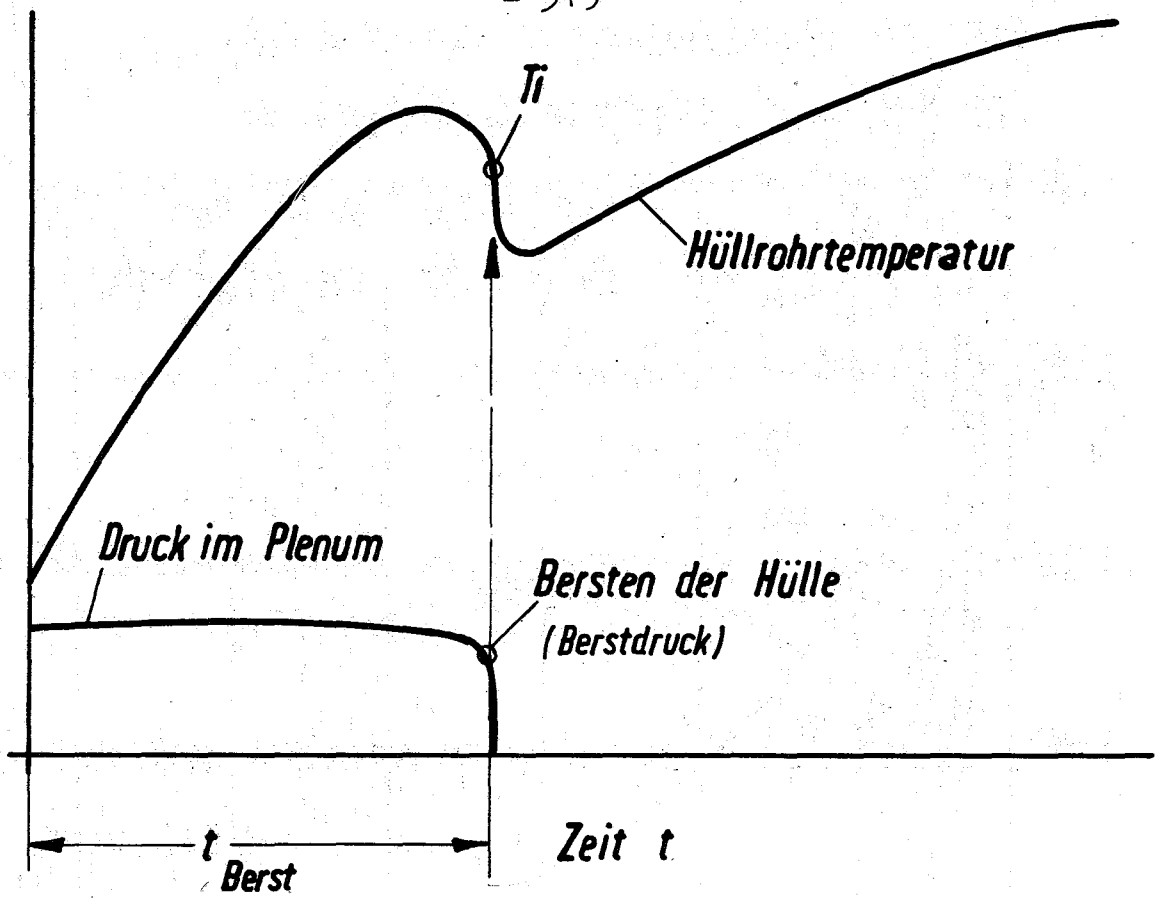
LEISTUNG		
Reaktorleistung	NR	12,0 MW
spezifische Prüflingsleistung		
mittlere thermische	NTH	55,0 W/cm
mittlere reaktorphysikalische	NKPM	46,7 W/cm
maximale reaktorphysikalische	NKP	47,3 W/cm
aus Temperaturanstieg bei 650 °C		60 ÷ 67 W/cm
aus Aufheizung um 300 °C		60 ÷ 65 W/cm
Flußdichteformfaktor $\phi_{Pr \max} / \phi_{Pr}$		1,012

INNENDRUCK P74	Laufzeit (s)	Druck (bar)
bei Beginn der Transiente	0	98,97
Maximum	11,6	99,57
BERSTDRUCK	19,7	87,98 bar

HÜLLROHRTEMPERATUR in °C						
Meßstelle	T 131	T 132	T 133	T 134	T 135	T
Meßebene in cm von OK Brennstoff	25	20	15	10	5	
Temp. bei Transientenbeginn 0 sec	367	388	406	386	387	
bei max. Innendruck 11,6 sec	594	615	625	604	614	
beim Bersten 19,7 sec	722	731	745	738	756	
Temperaturmaximum 48 bis 56 sec	807	859	905	918	952	
BERSTTEMPERATUR (korrigiert und extrapoliert)						820 °C

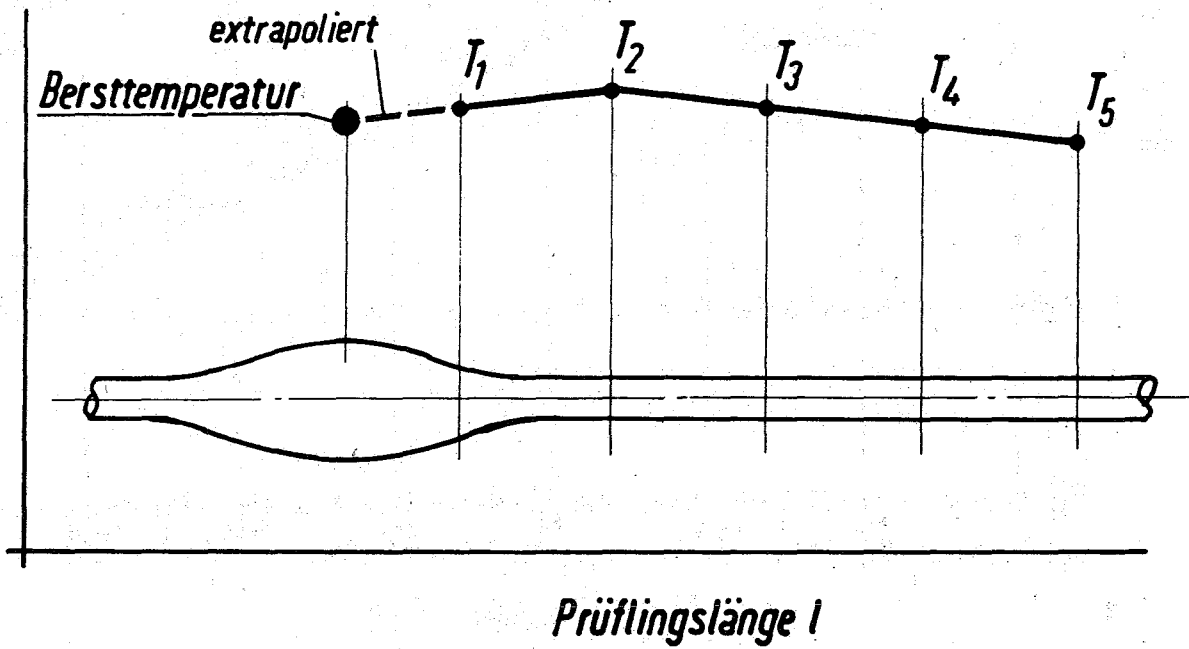
TEMPERATURANSTIEG		
Maximum T 135 bei 512 °C nach 8,5 s		30,4 K/s
bei 650 °C T 131 bis T 135		18 bis 20,8 K/s
Dauer der Aufheizung um 300 °C T 131 bis T 135		15,1 bis 16,5 s
Dauer der Aufheizphase bis 650 °C T 131 bis T 135		13,0 bis 14,5 s
Dauer der Aufheizphase bis 920 °C bei T 135		41,8 s

$T_H$   
 $P$



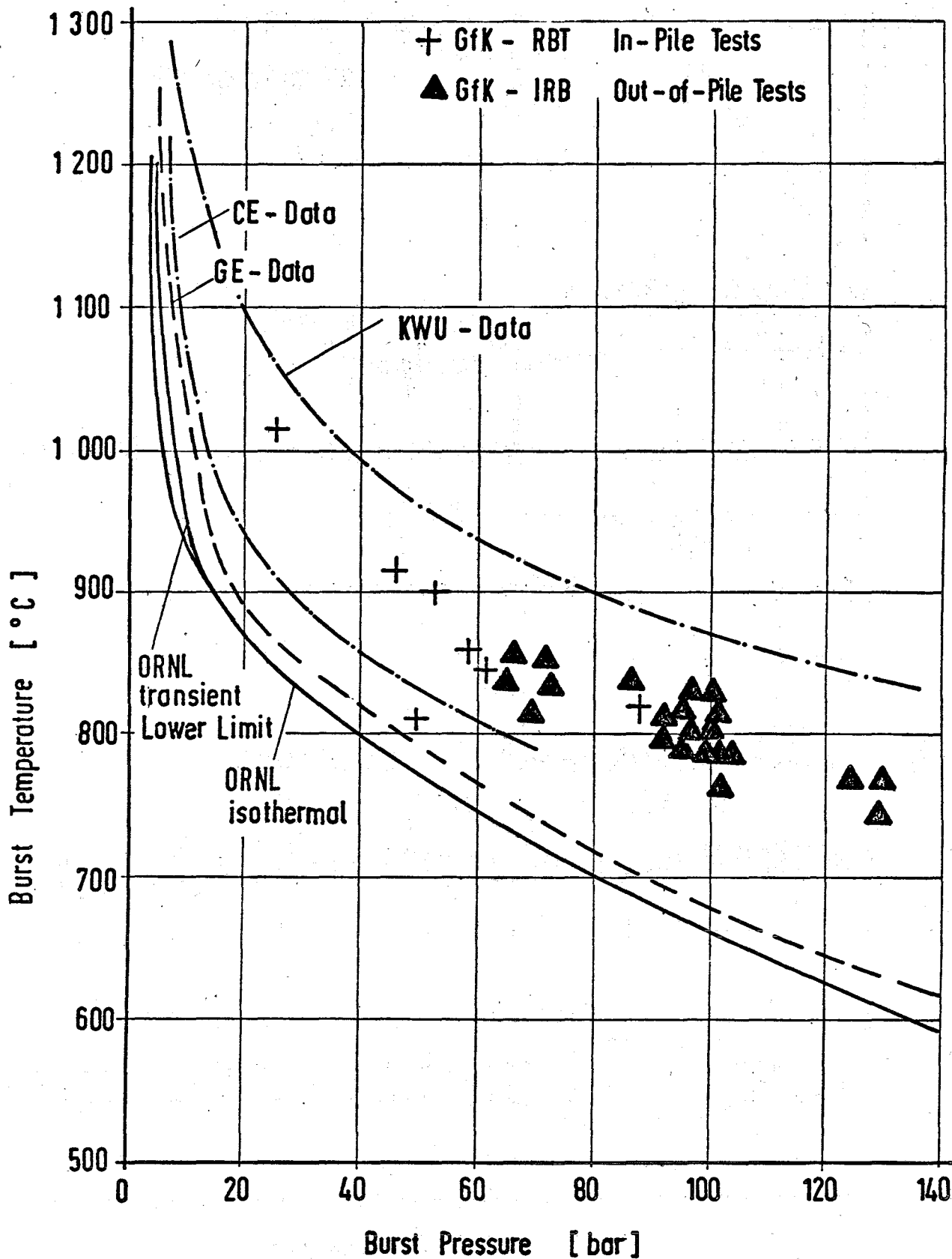
$T_H$

Axialer Temperaturverlauf zum Berstzeitpunkt.



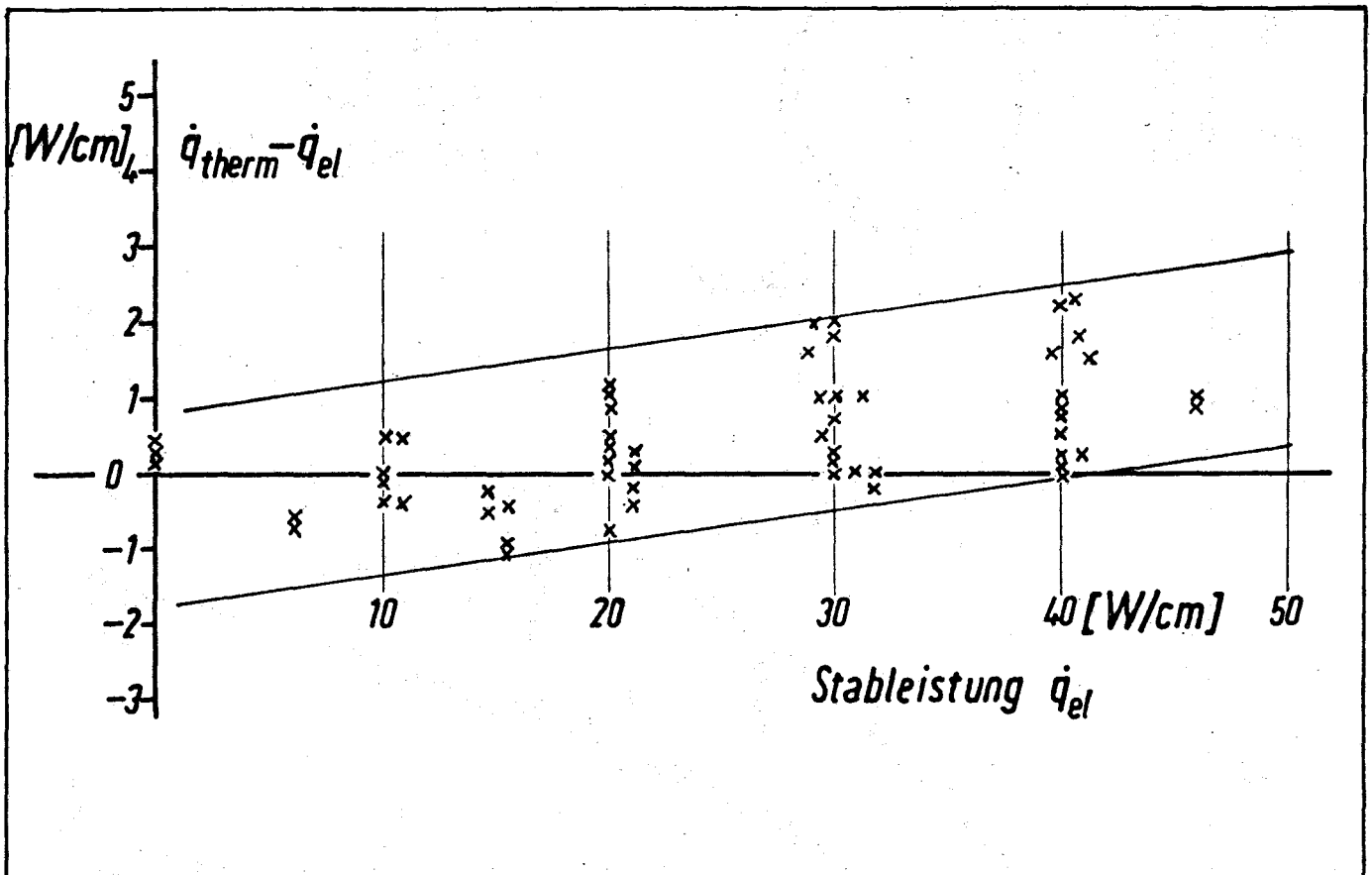
*GfK-IRB: Brennstabsimulator indirekt beheizt.*

*GfK-RBT: In-pile-Versuche im FR2-Reaktor.*

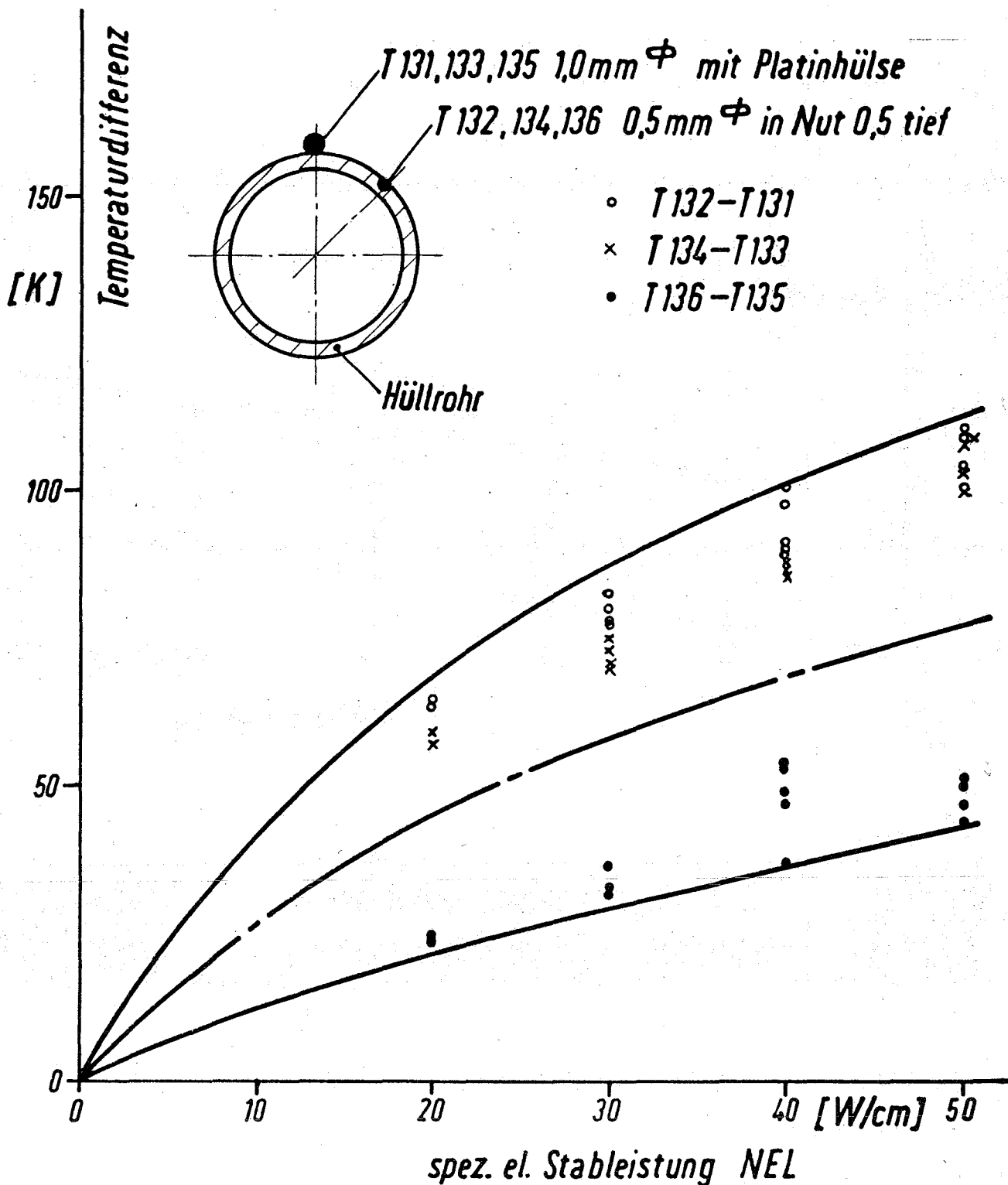


[z.T. aus: J.R.Weir, ORNL-CF-72-11-1, Nov. 72]

<b>GfK-RBT</b>	<b>Bersttemperatur von Zry.-Hüllrohren</b>	<b>Abb.4237-5</b>
<b>4237-50</b>	<b>in Abhängigkeit vom Differenzdruck</b>	<b>PNS 1976</b>



GfK-RBT	Leistungsvergleich thermisch— elektrisch BSS 06 (Kalorimeter)	Abb.4237-6	
4237-51		PNS	1976



GfK-RBT

Temperaturdifferenzen bei 600 bis 900°C

Abb.4237-7

4237-52

an T 131,133 135 (Transiente) BSS 05

PNS

1976

$\Delta T$  Dampftemperatur - Wandtemperatur  
 [K]

100

50

T134-T115

T115 Dampfeintrittstemperatur  
 T134 „wahre“ Hüllrohrtemperatur  
 T133 Hüllrohrtemperatur  
 TX9 iDFR-Temperatur

○ — Reaktorleistung 0 MW  
 + — " 30 MW

T133-T115

TX9-T115

20

30

40

50

[W/cm]

spez. el. Stableistung NEL

GfK-RBT

Einfluß der Reaktorleistung auf die Temperatur

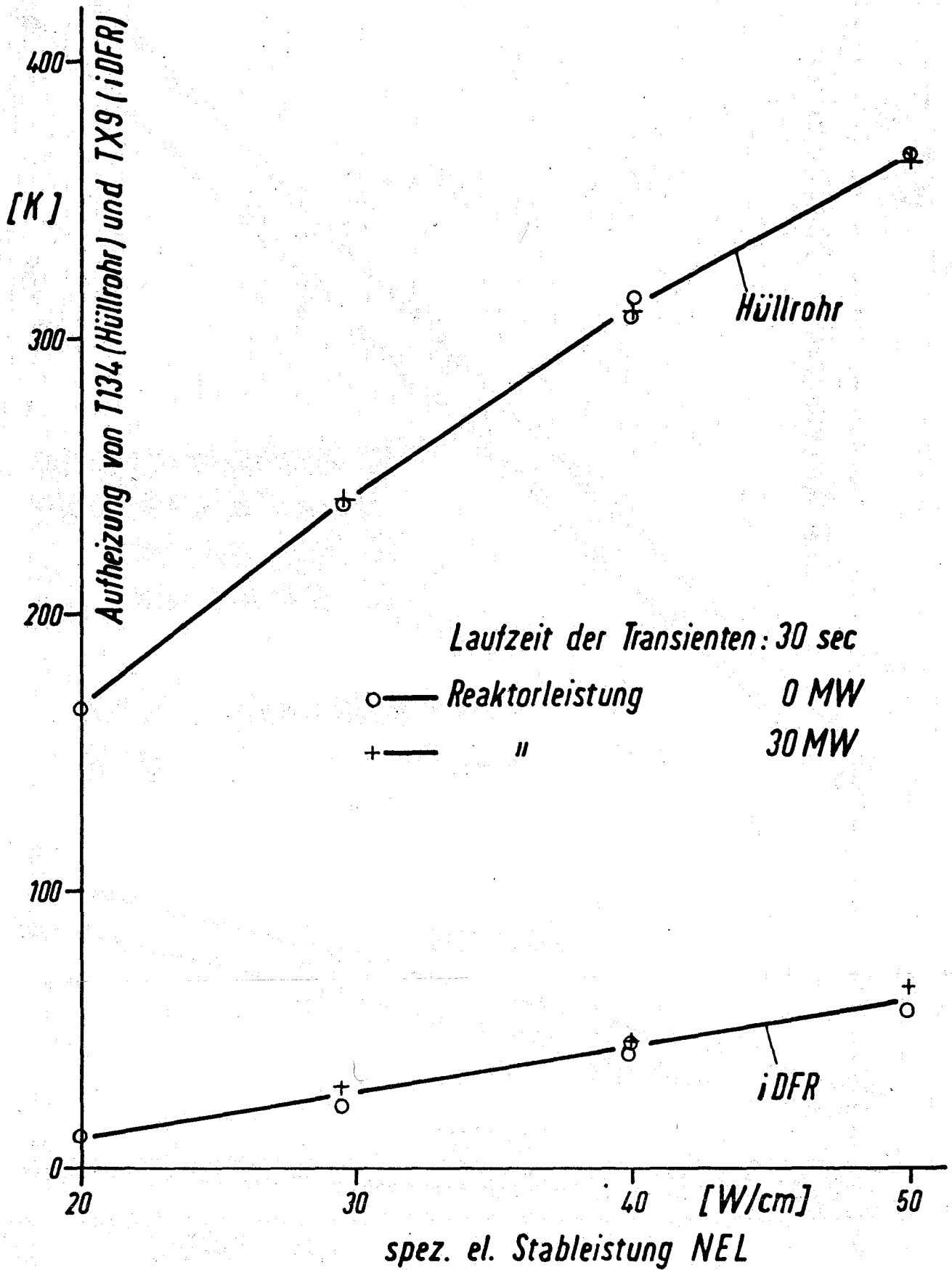
Abb.4237-8

4237-53

von Hülle und iDFR beim BSS 05 (stationär)

PNS

1976



GfK-RBT

Einfluß der Reaktorleistung auf die trans. Temp.

Abb.4237-9

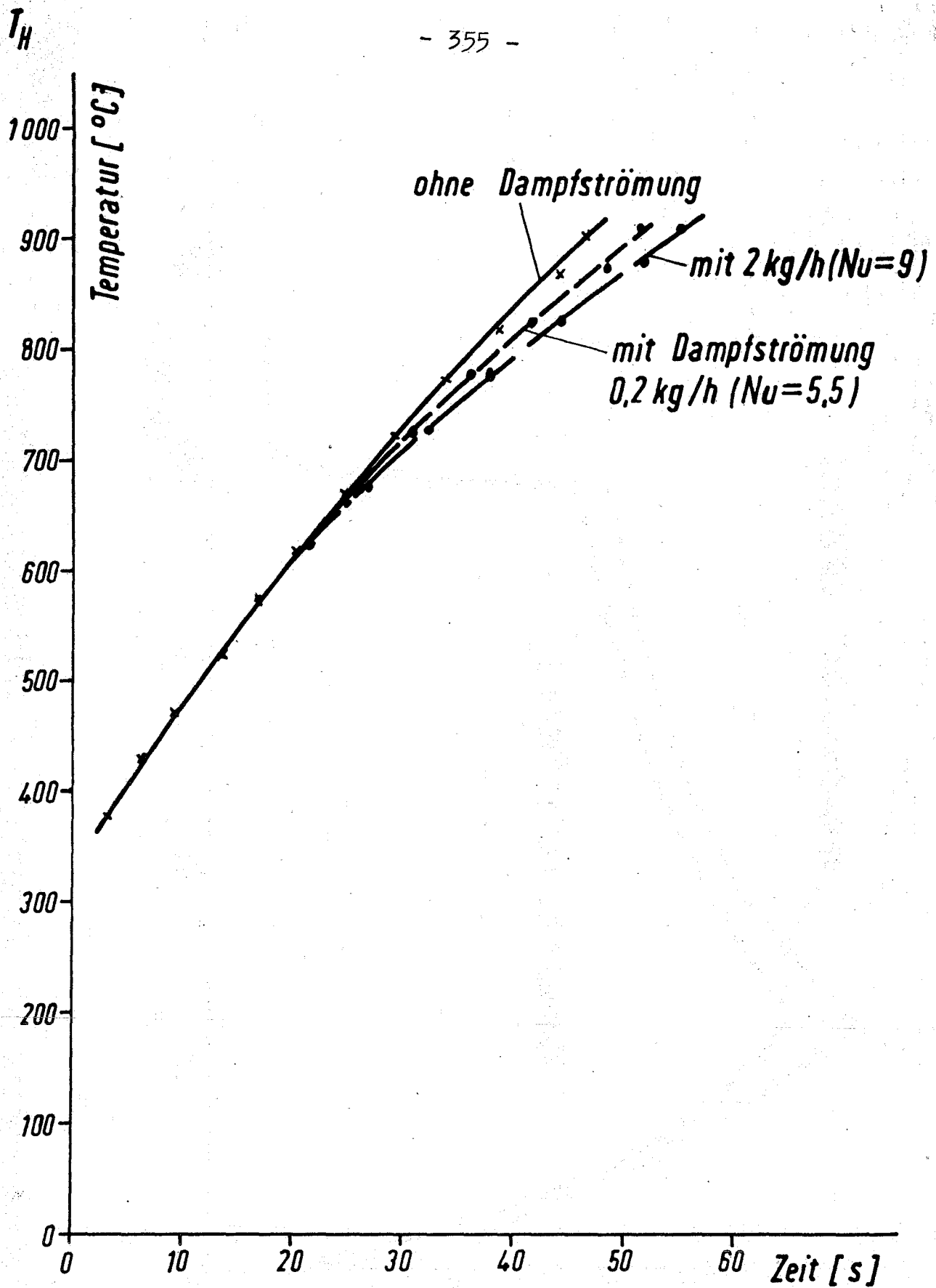
4237-54

von Hülle und iDFR beim BSS 05

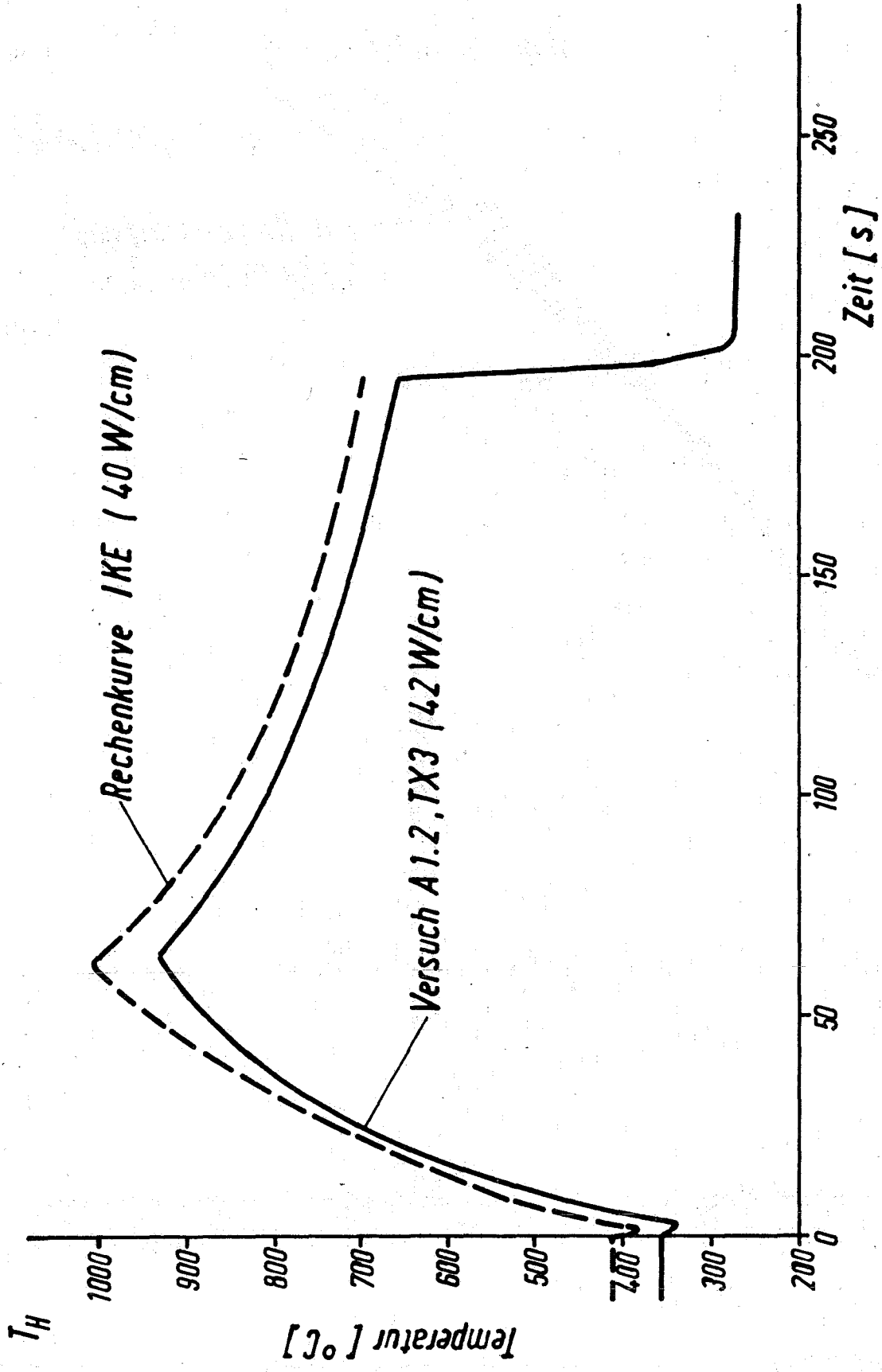
PNS

1976

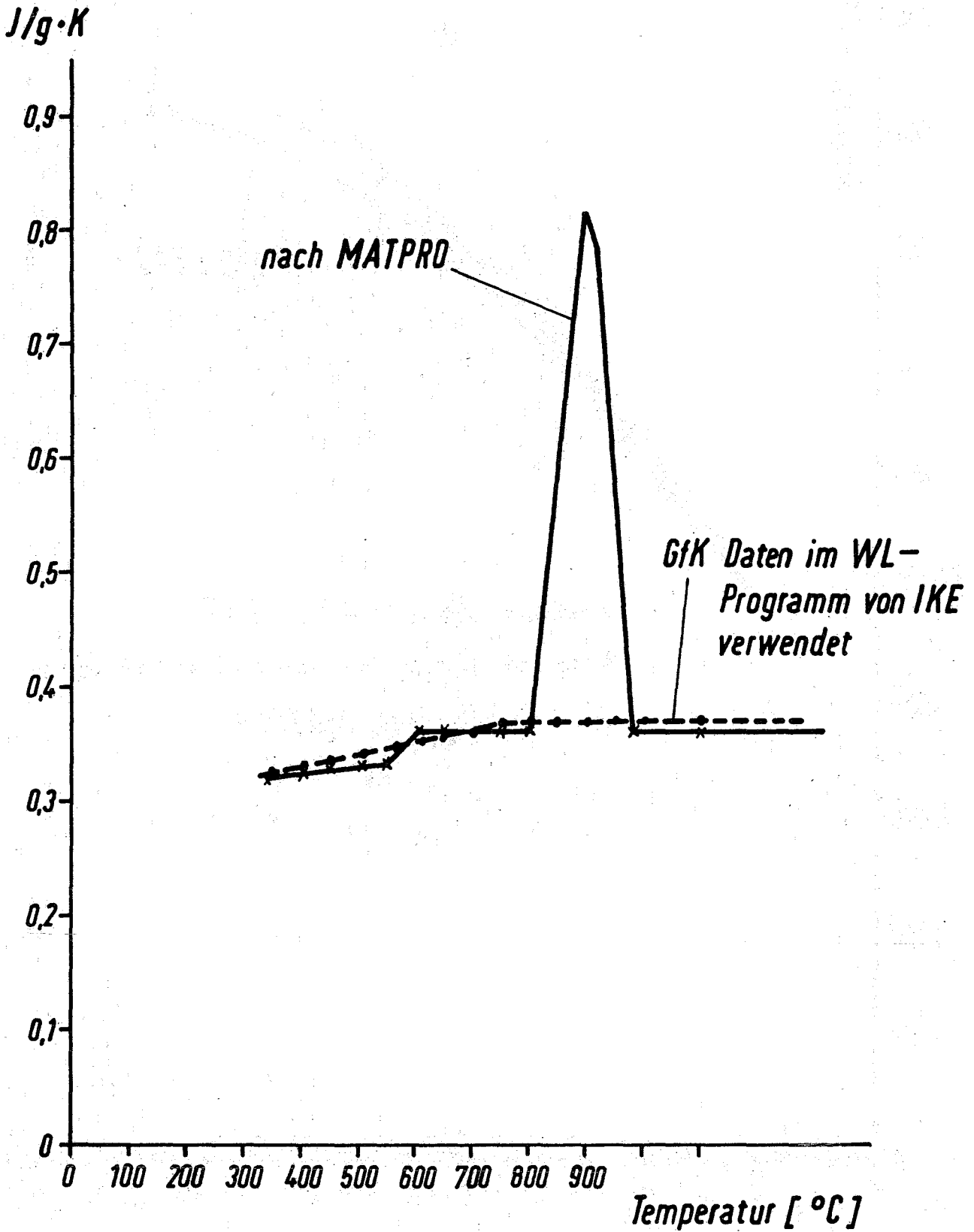




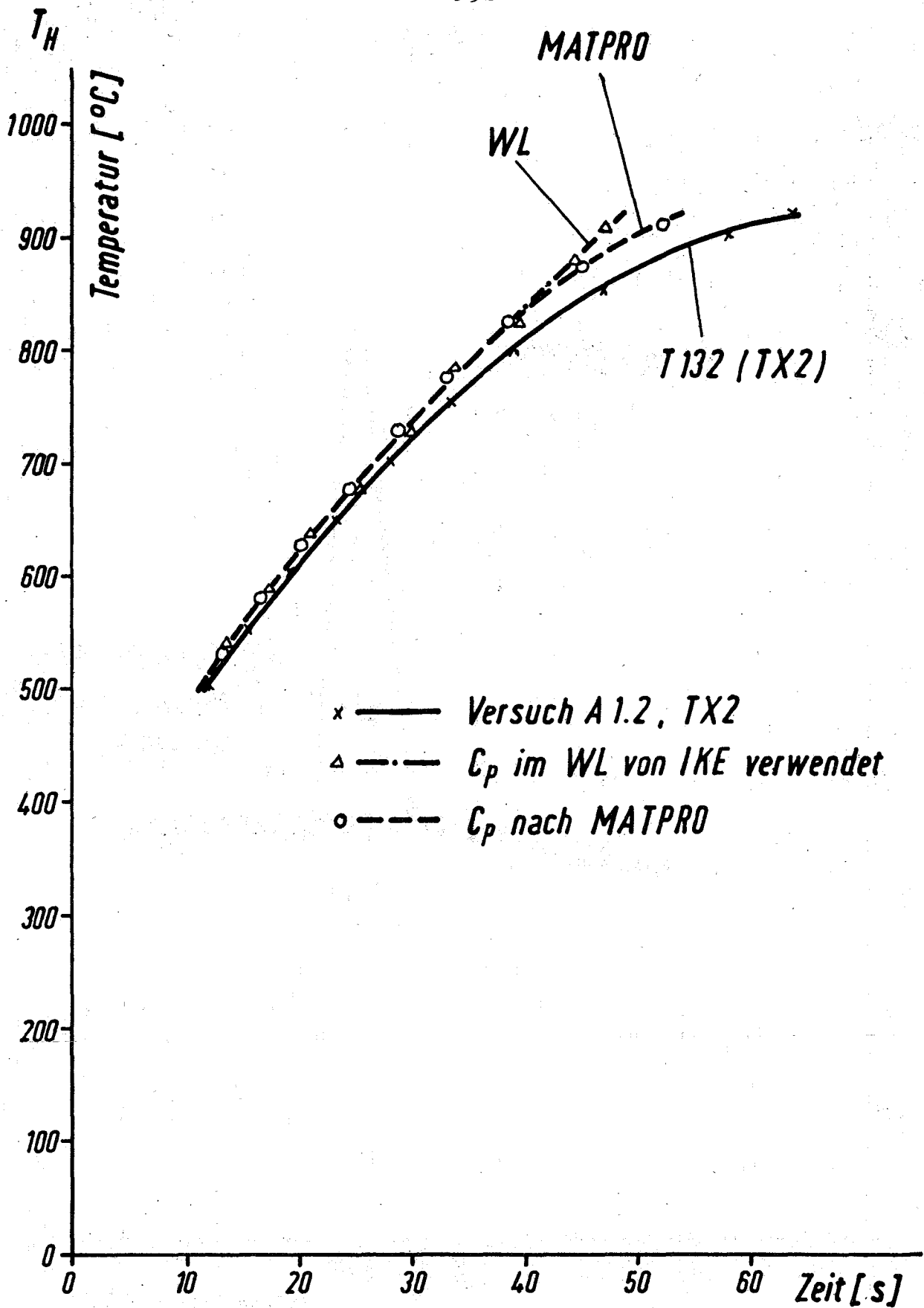
GfK-RBT	Einfluß eines Dampfstromes auf den Aufheizvorgang	Abb.4237-10	
4237-55		PNS	1976

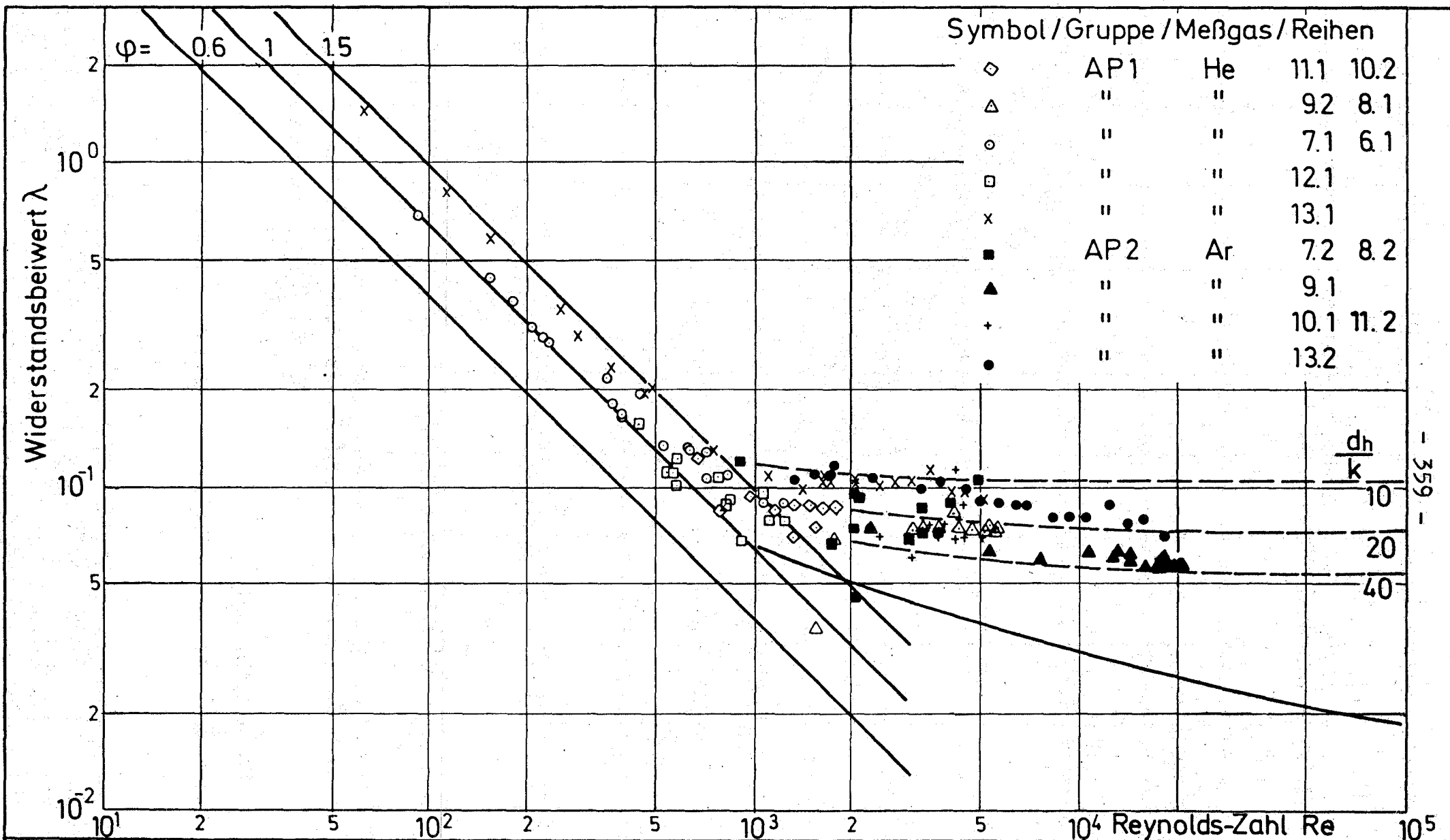


GfK-RBT 4237-56	Nachrechnung des Versuchs A 1.2 (Hüllrohrtemperatur)		Abb. 4237-11
			PNS 1976



GfK-RBT	Spezifische Wärme von Zircaloy-4 Vergleich der Daten	Abb.4237-12	
4237-57		PNS	1976





GfK-RBT

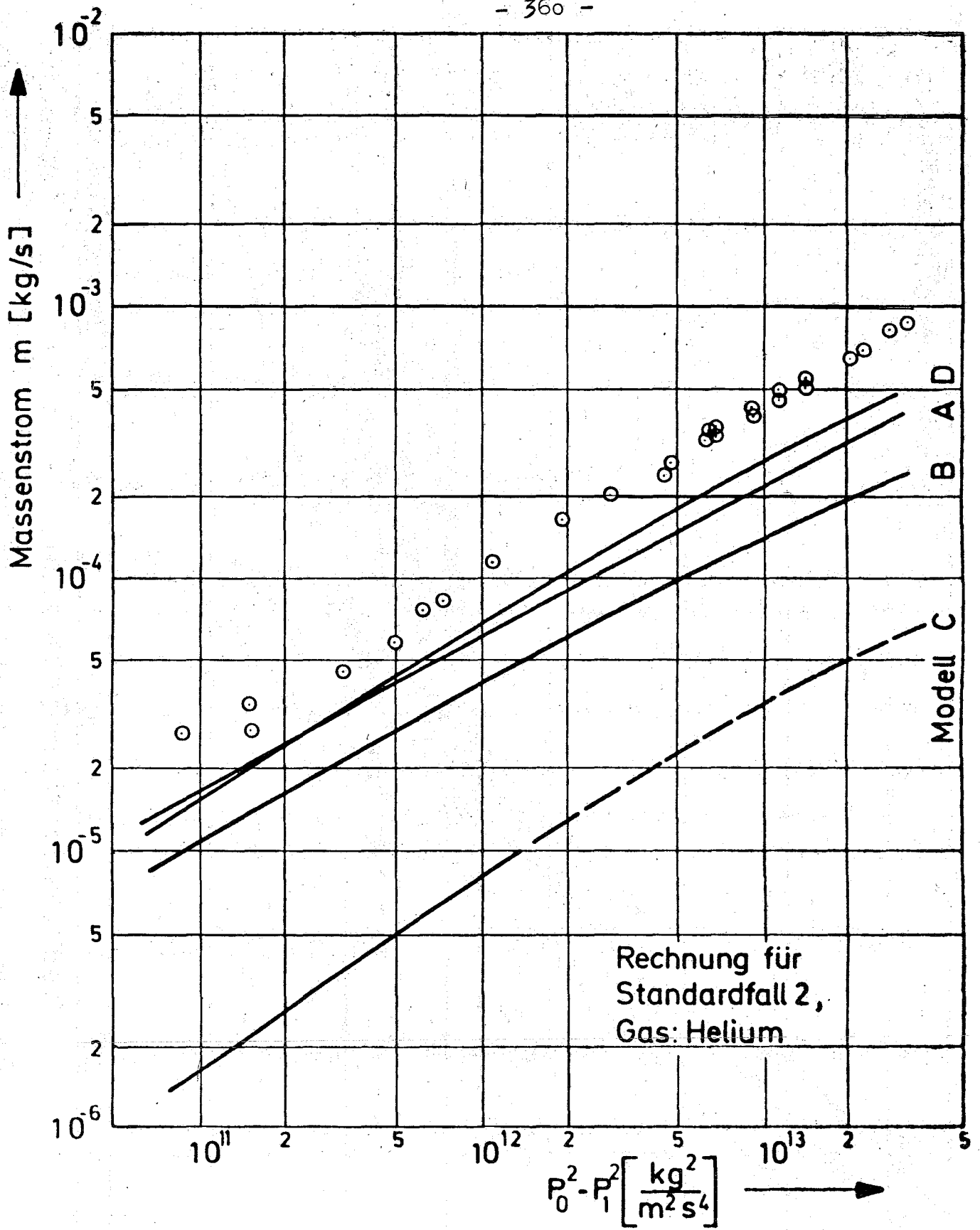
Gasströmung im Brennstab:

Abb.4237-14

4237-27

Ergebnisse der Messungen mit  $Al_2O_3$ -Pellets

PNS 1976



Meßergebnisse:

○ Helium

GfK-RBT

4237-42

Gasströmung im Brennstab:

Schüttung von Pelletbruchstücken  
Vergleich Messung-Rechnung

Abb. 4237-15

PNS

1976

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:

- Charakterisierung der Brennstabsimulatoren hinsichtlich Temperaturverteilung mittels Photo-Scanning.
- Aufbau von Prüfeinrichtungen für das Quotientenpyrometer und das Kapillardruckmeßsystem.
- Theoretische Betrachtungen zum Übertragungsverhalten des Kapillardrucksystems.
- Theoretische Untersuchungen zur Verbiegung von Zircaloy-Hüllrohren beim Aufblähvorgang.
- Versuche an verkürzten Brennstabsimulatoren zur Klärung von Einzeleffekten beim Aufblähvorgang von Zircaloy-Hüllen.
- Erster Berstversuch an einem Brennstabsimulator voller beheizter Länge von 3,90 m und axialem Leistungsprofil.

#### 1. ENTWICKLUNGSARBEITEN

Die Entwicklung der Brennstabsimulatoren wurde weitgehend abgeschlossen.

Zur Beurteilung der elektrischen Heizstäbe und der Brennstabsimulatoren muß deren Leistungsdichteverteilung nicht nur rechnerisch sondern auch experimentell ermittelt werden. Abweichungen gegenüber der errechneten Leistungsdichte durch Material- und Fertigungstoleranzen, möglicherweise

auch durch Mängel in der Herstellung können nur experimentell festgestellt werden. Als geeignete Methode hat sich die photographische Erfassung eines instationär mit möglichst hoher Leistung aufgeheizten Stabes bewährt. Unterschiedlich hohe Leistungen verursachen unterschiedlich hohe Hüllrohrtemperaturen und diese wiederum unterschiedliche Schwärzungsgrade auf dem Filmmaterial. Zusammen mit der Eichung, der Zuordnung von Schwärzungsgraden zu stationären bekannten Temperaturen, läßt sich das Temperaturfeld der instationären Aufheizung mit Hilfe einer densitographischen Auswertung bestimmen.

Mit Hilfe dieses Verfahrens konnten Mängel in der Fertigung erkannt und die entsprechenden Verbesserungen bei der Fertigung der Heizstäbe für Brennstabsimulatoren durchgeführt werden:

- zu große Durchmesserreduktionen bei noch unverdichtetem MgO bzw. BN bewirken axiale Verschiebungen des Leistungsprofils
- Hämmern nur von einer Seite ergibt unsymmetrische Profile
- Leistungsdichteunterschiede durch axiale Wandstärkentangenzen wurden erkannt und beseitigt durch zusätzliches Ausreiben der Rohre mit anschließendem Glätten durch Hämmern über einen gehärteten Dorn.

Die nach der verbesserten Fertigungsmethode hergestellten Heizstäbe zeigten größtenteils eine gute axiale Temperaturverteilung mit geringen lokalen Temperaturabweichungen.

Die Arbeiten zur Instrumentierung der Heizstäbe im Innern der Brennstabsimulatoren konnten weitgehend abgeschlossen werden. Die Abb. 4238-1 zeigt den Querschliff eines instrumentierten Heizstabes von 6 mm Außendurchmesser mit den in Nuten eingelöteten Mantelthermoelementen und der Druckmeßkapillare von je 0,36 mm Außendurchmesser.

Es wurden außerdem axiale Temperaturprofile des Heizleiters, des Heizstabes, des Heizstabes mit Pellets sowie des Brennstabsimulators aufgenommen und verglichen. Dabei zeigte sich, daß lokale Temperaturunterschiede auf dem Heizstab bis zur Brennstabsimulatorhülle hin auf etwa die Hälfte gedämpft werden.

Zur Messung der Oberflächentemperatur der Zircaloy-Hüllrohre während der Versuche wird im aufblähenden und berstenden Bereich ein berührungsloses Temperaturmessverfahren mittels eines Quotientenpyrometers eingesetzt. Die Entwicklung dieses Gerätes konnte weitgehend abgeschlossen werden.



Erste Temperaturmessungen mit dem Quotientenpyrometer wurden an metallisch blanken sowie verschieden stark oxidierten Zircaloy-Hüllen durchgeführt. Hierbei wurden die Kanäle einzeln sowie der daraus vom Gerät gebildete Quotient gemessen. Es zeigten sich dabei noch Mängel am Chopper-Verstärker sowie am Divisor-Baustein. Diese wurden behoben und die Testmessungen fortgesetzt.

Zur getrennten Untersuchung des Einflusses von Emission von Hüllrohroberfläche und Absorption durch die Atmosphäre wurden spezielle Prüfeinrichtungen errichtet.

## 2. THEORETISCHE ARBEITEN

Die theoretischen Arbeiten befaßten sich mit Untersuchungen zur Verbiegung von Zircaloy-Hüllen beim Aufblähvorgang sowie mit dem Übertragungsverhalten eines Druckmeßsystems zur Bestimmung des lokalen Beulendruckes.

### 2.1 Verbiegung von Zircaloy-Hüllen beim Aufblähvorgang

Bei Aufblähexperimenten mit verkürzten Brennstabsimulatoren wurde folgendes festgestellt: Beim Aufheizen der Simulatoren ergaben sich, abgesehen von wenigen rotationssymmetrisch ablaufenden Fällen, immer stärker werdende azimutale Temperaturverteilungen auf der Hülle. Beim Erreichen höherer Temperaturen blähte die Zircaloy-Hülle auf der azimutal kälteren Seite zunehmend auf. Auf der wärmeren Seite blieb die Hülle axial gerade, sie wurde z.T. auch schwach konkav. Schließlich riß die Zircaloy-Hülle auf der wärmeren Seite auf.

Zur Zeit gibt es noch keine ausreichend abgesicherte Erklärung für diese Vorgänge. Hierfür kann die anisotrope Struktur des Zircaloy-Materials verantwortlich sein. Ohne dies auszuschließen wurde nachgewiesen, daß infolge der azimutalen Temperaturverteilungen, hervorgerufen durch eine statistisch begründete Exzentrizität zwischen Ringpellet-Säule und Zircaloy-Hüllrohr im Ausgangszustand thermisch-mechanische Verspannungen auftreten, welche auch zu den beobachteten unsymmetrischen Aufblähungen

führen oder beitragen können.

Für den elastischen Bereich ist die Bestimmung von Belastung und Verformung des Systems leicht zugänglich und erlaubt qualitative Schlüsse für die Vorgänge im plastischen Bereich.

In Abb. 4238-2 ist der prinzipielle Aufbau des verkürzten Brennstabsimulators dargestellt. Die für den hier zu untersuchenden Vorgang maßgebenden Teile sind die Zircaloy-Hülle H und der Heizstab einschließlich der aufgefädelten Ringpellets S. Diese Teilsysteme sind am Ende A durch eine Verschraubung fest verbunden und am Ende B gleitend gelagert. Zur Vereinfachung wird angenommen, daß B ein ideales Gleitlager ist. Da sich das System axial kräftefrei dehnen kann, können sowohl bei A als auch bei B nur Querkräfte und Momente übertragen werden. Das Lager A kann demzufolge ebenfalls als ideales Gleitlager aufgefaßt werden.

Durch eine Kräfte- und Momentenbilanz an den Teilsystemen H und S kann bei dem von äußeren Belastungen freien Gesamtsystem nachgewiesen werden, daß aus Symmetriegründen auch die Übertragung einer Querkraft bei A und B auszuschließen ist. Es können bei A und B lediglich Momente zwischen H und S übertragen werden, welche entgegengesetzt gleich groß sind.

Durch Überlagerung von freier Wärmeverformung der Teilsysteme H und S infolge von azimuthalen Temperaturdifferenzen und elastischer Biegeverformung infolge der Lagermomente können nunmehr Lagermomente und Gesamtverformung berechnet werden.

Die durchgeführten Rechnungen zeigten, daß bei inverser azimuthaler Temperaturverteilung, wie sie wegen des unsymmetrischen Wärmetransportes bei ungleichmäßigem Spalt über dem Umfang auftritt, die Druckseite des an der Hülle angreifenden Momentenpaares auf der wärmeren und die Zugseite auf der kälteren Hüllrohrseite liegen.

Wegen des im realistischen Fall vorliegenden Temperaturmaximums in der axialen Mitte wird die Hülle dort früher plastisch als im Bereich der axialen Enden. Wenn nun aber ein Biegestab, der an seinen Enden mit einem Momentenpaar belastet ist, in seiner axialen Mitte "weich" wird, gibt dieser in der Weise nach, daß die noch "festen" Enden in Richtung der Momente drehen.

Im vorliegenden Fall bedeutet dies, daß das Momentenpaar auf der wärmeren Seite des Hüllrohres einer vom inneren Überdruck hervorgerufenen Aufblähung entgegenwirkt und auf der kälteren Seite eine Aufblähung unterstützt. Das Momentenpaar infolge der Wärmeverspannung führt demnach zu dem beobachteten Anlegen mit der wärmeren Seite der Hülle an die Pelletsäule und dem Abheben mit der kälteren Seite der Hülle.

In Vorbereitung befindliche experimentelle und theoretische Arbeiten sollen klären, inwieweit die anisotrope Struktur des Zircaloy-Materials bzw. thermisch-mechanische Verspannungen der beschriebenen Art Ursache für die spezifische Deformationsform der Zircaloy-Hüllrohre sind.

## 2.2. Übertragungsverhalten eines Druckmeßsystems zur Bestimmung des lokalen Beulendruckes

Zur detaillierten Untersuchung des Aufblähvorganges der Zircaloy-Hüllen der Brennstabsimulatoren ist die Messung des lokalen Beulendruckes notwendig. Dies soll mittels einer Meßkapillare von 0,36 mm Außendurchmesser und 0,155 mm Innendurchmesser durchgeführt werden, welche im Innern des Simulators axial über eine Länge von 2 m bis zur Beulstelle hingeführt wird. Die Druckanzeige erfolgt über einen angeschlossenen Mikro-DMS-Druckaufnehmer.

Um bei einer solch langen und feinen Kapillare eine akzeptable Ansprechzeit zu erhalten, mußte das Meßkammervolumen möglichst klein gemacht werden. Durch Auswahl des Druckaufnehmers und entsprechende Gestaltung des Gehäuses wurde ein Meßkammervolumen von 15 mm<sup>3</sup> verwirklicht, so daß eine Ansprechzeit von einigen Zehntel Sekunden erreicht wurde.

Für raschere Druckänderungen muß eine rechnerische Korrektur durchgeführt werden. Nach einer theoretischen Untersuchung der Strömungsvorgänge in der Kapillare kann dazu folgende Beziehung verwendet werden:

$$p_k = \sqrt{p_M^2 + C \cdot p_M},$$

wobei  $p_M$  der zeitliche Verlauf der Druckanzeige und  $p_k$  der letztlich interessierende Druckverlauf sind. Der Parameter C ist

$$C = \frac{256 \cdot V_M \cdot \int_0^L \eta \cdot T \cdot dx}{\pi \cdot D^4 \cdot T_M}$$

wobei  $V_M$  das Meßkammervolumen,  $T_M$  die Meßkammertemperatur,  $D$  der Innendurchmesser der Kapillare,  $L$  die Länge der Kapillare,  $\eta$  die dynamische Zähigkeit des Füllgases,  $T$  die Temperatur des Füllgases und  $x$  die axiale Koordinate längs der Kapillare sind. Die Beziehungen basieren auf der Annahme, daß bei einer Änderung von  $p_k$  am offenen Ende der Kapillare im Innern der Kapillare eine quasistationäre und quasiinkompressible laminare Strömung erzeugt wird, welche wiederum eine Änderung der Gasmenge und des Druckes in der Meßkammer zur Folge hat.

Experimente mit der Kapillare haben gezeigt, daß die oben angegebene Beziehung verwendet werden kann, daß jedoch der Parameter  $C$  wegen der Unsicherheit in der Ausmessung des Meßkammervolumens  $V_M$  und des Kapillar-Innendurchmessers  $D$  aus Eichexperimenten ermittelt werden muß. Dies wird mit Hilfe des Prozeßrechnersystems PDP 11/40 durch Vorgabe und Messung von sprungartigen Druckverläufen  $p_k$  sowie Messung- und numerische Differentiation des Verlaufes von  $p_M$  durchgeführt. Das dazu notwendige Rechenprogramm wurde erstellt.

Beim Einsatz des geeichten Druckmeßsystems ist zu beachten, daß der Parameter  $C$  vom zeitlichen und örtlichen Temperaturverlauf des Füllgases abhängt. Dazu hat eine Empfindlichkeits-Studie ergeben, daß die Abhängigkeit des Übertragungsverhaltens vom Temperaturverlauf unproblematisch ist. Es genügt, wenn der zeitliche Temperaturverlauf in der Nähe der blähenden Stelle durch Messung bekannt ist und der jeweils zu einem Zeitpunkt gehörige örtliche Temperaturverlauf über die Erstreckung der Kapillare bis zur Meßkammer hin stufenförmig angenähert entsprechend den Heizleistungsstufen berechnet wird.

### 3. VERSUCHE

Die Berstversuche an verkürzten Brennstabsimulatoren in Luft wurden fortgesetzt. Die Abb. 4238-3 zeigt eine Auftragung der zum Berstzeitpunkt gemessenen Hüllrohrtemperaturen in Abhängigkeit vom Berstdruck. Die

"Streuung" der Messwerte innerhalb einer Bandbreite von etwa 100 K ergibt sich aufgrund der Tatsache, daß die Thermolemente nur relativ selten an der Berststelle selbst lagen und sich Umfangstemperaturverteilungen bis zu etwa 100 K ergeben können [ 1 ]. Die jeweils höchsten Temperaturen wurden nahe an der Berststelle gemessen. Korrigiert man die übrigen Temperaturen im Hinblick auf die azimutale Position der Thermolemente relativ zur Berststelle, so lassen sich alle Messwerte sehr gut durch die in der Abbildung eingezeichnete Kurve der im ORNL ermittelten Beziehung für die Bersttemperatur beschreiben [ 2 ].

Die bei den Versuchen ermittelten Umfangsdehnungen an der Berststelle sind in Abb. 4238-4 in Abhängigkeit von der Temperatur und im Vergleich mit anderen aus der Literatur bekannten Daten aufgetragen. Hierbei wurden die zum Berstzeitpunkt gemessenen Temperaturen auf die Temperatur an der Berststelle hin korrigiert. Die gemessenen Umfangsdehnungen liegen im allgemeinen gut im Streubereich anderer vergleichbarer experimenteller Daten. Es ist deutlich, daß die mit indirekter Beheizung der Hüllrohre erzielten Umfangsdehnungen erheblich unter den Werten direkt beheizter Rohre liegen.

Alle bisherigen Experimente zum Aufblähvorgang von Zircaloyhüllen mit elektrisch indirekt beheizten Brennstabsimulatoren zeigten im wesentlichen das gleiche Verformungs- und Berstbild, gekennzeichnet durch eine gerade, bzw. schwach konkave Mantellinie, auf der die Berststelle liegt. Zur Klärung der Frage, ob dieses Erscheinungsbild Brennstabsimulator-spezifisch oder Zircaloy-spezifisch ist, wurden einige Versuche mit direkter Beheizung durchgeführt. Die Versuche hatten folgende Merkmale:

- leeres Zircaloy-4-Hüllrohr, also keine Verspannungs- und Beeinflussungsmöglichkeit von inneren Strukturen
- Freihängendes Rohr, unten mit Zircaloystopfen zugeschweißt
- Unterer elektrischer Anschluß in Flüssigmetallbad, d.h. keine Verspannungsmöglichkeit durch Anschlüsse.
- Abgeschlossenes Gasvolumen mit Druckmessung mittels Mikro-DMS-Druckaufnehmer.
- Fünf Thermolemente auf dem Umfang verteilt zur Messung der azimutalen Temperaturverteilung. (nackte Thermodrähte 0,1 mm  $\emptyset$  Pt/PtRh).

Die Hüllrohrwandstärke war besonders genau über den Umfang vermessen, um azimutale Temperaturverteilung, Wandstärkenänderung durch Umfangsdehnung und Berststelle der Ausgangswandstärke zuordnen zu können.

Zwei Typen von direkt beheizten Versuchen wurden durchgeführt:

- a) mit sich natürlich auf Grund des elektrischen Widerstandes des Zircaloy einstellenden azimutalen Temperaturunterschieden
- b) mit durch Anbringung eines einseitigen Spiegels erzwungener azimutaler Temperaturverteilung.

Bei den bisherigen Versuchen dieser Art traten deutliche Verkürzungen der Zircaloy-Hüllen und Umfangsdehnungen bis über 100 % auf, wie sie von direkt beheizten Proben bekannt sind.

Die Frage, warum bei den bisherigen Aufblähversuchen an verkürzten Brennstabsimulatoren bei Verformungen in der  $\alpha$ -Phase des Zircaloy nur selten Verkürzungen des Hüllrohres gefunden wurden, konnte geklärt werden.

Von der Auslegung her schließt sich der innere Spalt zwischen Heizstab und Ringpellet bei ca. 800 - 900°C auf Grund unterschiedlich großer Ausdehnungskoeffizienten der Materialien, sowie unterschiedlich hoher mittlerer Temperaturen. Ist der Innendurchmesser eines Pellets aber irgendwo etwas enger, kommt es zu einem Kraftschluß zwischen Pellet und Heizstab und zwar auf Grund größerer Temperaturunterschiede zwischen Heizstab und Pellet bevorzugt im Bereich des unteren Kaltendes. Dies geschieht dann bei Temperaturen von ca. 600-700°C, so daß bei beginnender plastischer Verformung eine Verkürzung der Hülle nicht möglich ist, da Verspannungen auftreten und folglich das Dehnungsausgleichssystem in diesem Temperaturbereich nicht arbeiten kann.

Zur Vermeidung derartiger Verspannungen wurden am unteren Kaltende des Brennstabsimulators zwei Pellets durch eine schwache Spiralfeder ersetzt. Bei zwei weiteren indirekt beheizten Aufblähversuchen mit einem derart modifizierten Brennstabsimulator wurden bei Umfangsdehnungen von maximal ca. 30 % Verkürzungen von ca. 1,5 mm gefunden. Diese Umfangsdehnungen passen sich in das untere Feld der aus gleichartigen bisherigen Versuchen vermessenen Umfangsdehnungen ein.

Der Prüfstand für Bündeltests voller Länge (3900 mm elektrisch beheizt) wurde in Betrieb genommen und seine Funktionstüchtigkeit für Versuche in stagnierender Dampfatosphäre nachgewiesen.

Der erste Brennstabsimulator voller Länge mit stufenförmigem Leistungsprofil wurde einem Bersttest in Luft mit anschließendem Fluten in geborstenem Zustand unterzogen. Die zugeführte Leistung entsprach der auf den Profilstufen der Abb. 4238-5 angegebenen Nachwärmeleistung. Da in diesem Versuch die Umgebung nicht mit aufgeheizt wurde, führte diese Leistung zu einem mittleren Temperaturanstieg von ca.  $4,4^{\circ}\text{C/s}$ . Der Anfangsinnendruck betrug  $63,5\text{kp/cm}^2$ , der Maximaldruck  $92,9\text{kp/cm}^2$  und der Berstdruck schließlich  $76\text{kp/cm}^2$ . Die Hüllrohrtemperatur in der Mitte der beheizten Länge wurde mit  $808^{\circ}\text{C}$  gemessen. Von einer Gesamtversuchsdauer von 186 sec betrug die Zeit der plastischen Verformung 47 sec. Unmittelbar nach dem Bersten des Hüllrohres wurde geflutet ( $20^{\circ}\text{C}$  Flutwassertemperatur - 20 cm/s kalte Flutgeschwindigkeit), die elektrische Leistung jedoch nicht abgestellt. Nach ca. 11 sec war die Stabmitte benetzt. Die bei diesem Versuch gemessenen Endumfangsdehnungen sind in Abb. 4238-5 über der gesamten beheizten Stablänge aufgetragen. Die Abb. 4238-6 zeigt die Umfangsdehnung und das geborstene Hüllrohr im Bereich der Berststelle. Der Brennstabsimulator wurde von vier Abstandshaltern gehalten und das 0,5 mm starke Mantelthermoelement war mit kleinen Zircaloylaschen auf der Zircaloy-Hülle befestigt. Die axialen Positionen sind in der Abbildung angegeben. Das Bild zeigt deutlich die Empfindlichkeit der Zircaloy-Hülle gegen thermische und mechanische Einflüsse. Die Außenstufen mit  $14,2\text{W/cm}$  zeigen noch keine bleibende Verformung, die nächsten Stufen mit  $17,6\text{W/cm}$  jedoch bereits meßbare Verformungen von 0,1 - 0,2 %. Die Stufen mit  $21,6\text{W/cm}$  weisen Umfangsdehnungen von 1,2 - 1,3 % auf. Die Mittelstufe mit der größten Umfangsdehnung ist geprägt von dem extrem starken mechanischen und thermischen Einfluß der Abstandshalter. Selbst der thermische Einfluß des relativ dünnen Thermoelementes mit den kleinen Laschen ist deutlich an den geringeren Umfangsdehnungen an den entsprechenden axialen Positionen feststellbar.

Bemerkenswert an diesem Versuch sind folgende Tatsachen:

- die maximale Umfangsdehnung betrug 27 % bei einer Verformungszeit von 47 sec
- das Rohrstück mit der Berststelle zeigt genau das bereits von den Versuchen mit verkürzten Brennstabsimulatoren her bekannte Erscheinungsbild:

gerade Berstmantellinie, gewölbte von den Pellets abgehobene gegenüberliegende Seite.

- die stark ausgeprägte Empfindlichkeit des Zircalloys gegenüber der Temperatur, sichtbar an den Übergängen von einer Leistungsstufe zur nächsten durch deutliche Änderungen in der Dehnung, sowie an den starken Einflüssen von Instrumentierung und Abstandshaltern.

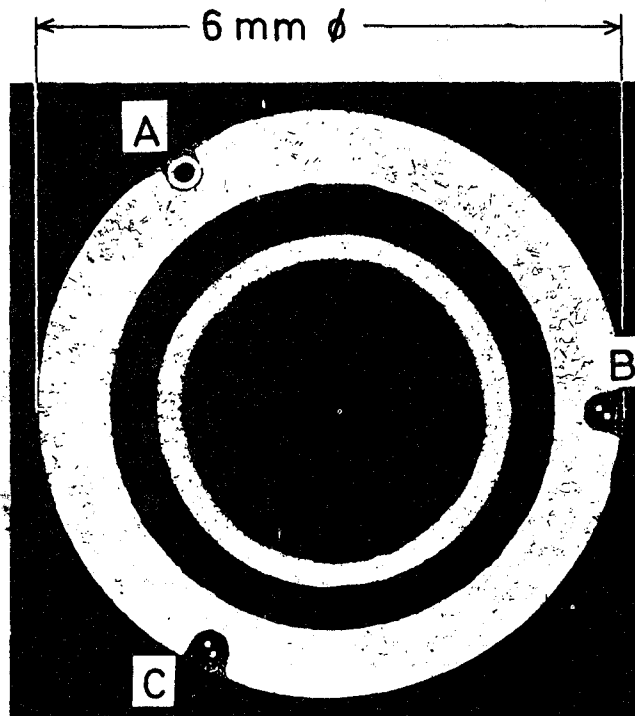
#### Literatur

- [1] K. Wiehr, F. Erbacher et al.  
PNS-Halbjahresbericht 1976/1  
KFK-2375, S. 338 - 378
- [2] Multirod Bürst Test Program Quarterly Progress Report for  
Jan.-March 1976, ORNL/NUREG/TM - 36 (Sept. 76)

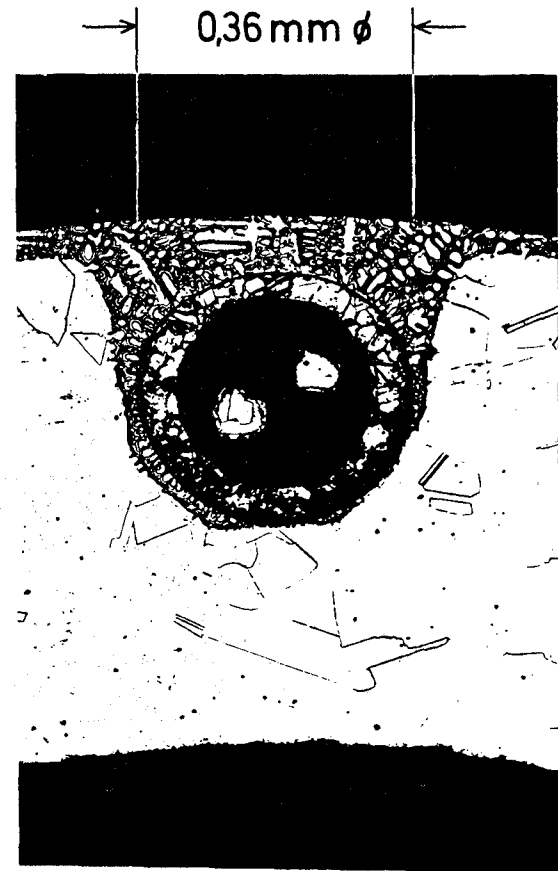




Detail A: Druckmesskapillare



Heizstab



Detail B,C: Mantelthermoelement

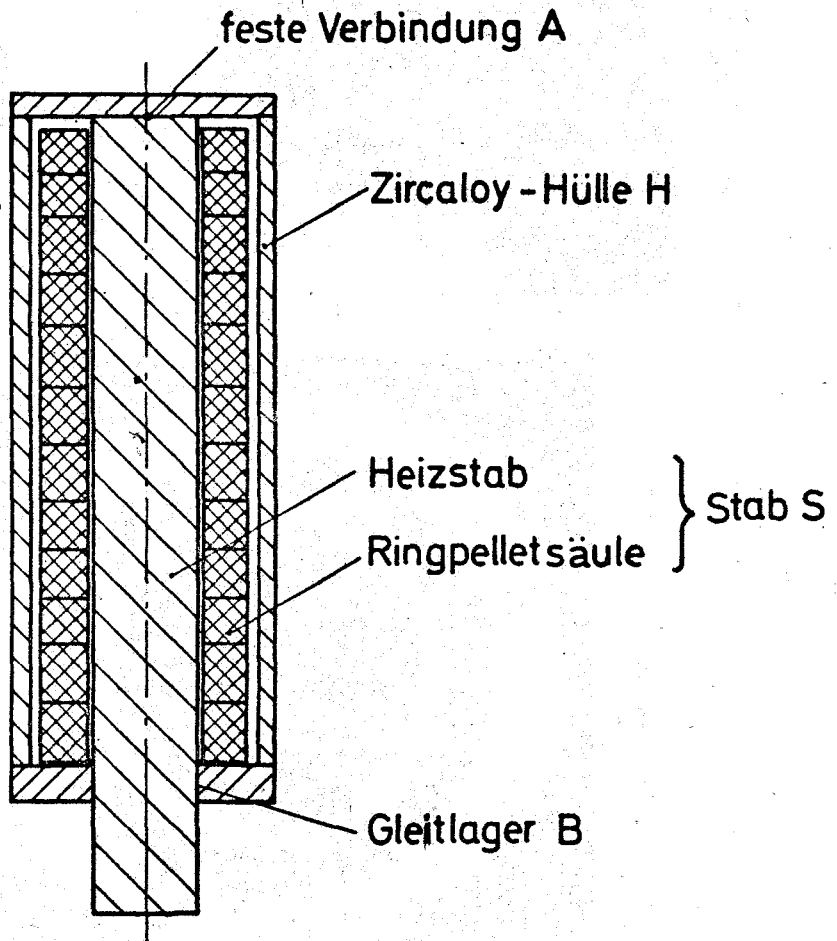
GfK-IRB

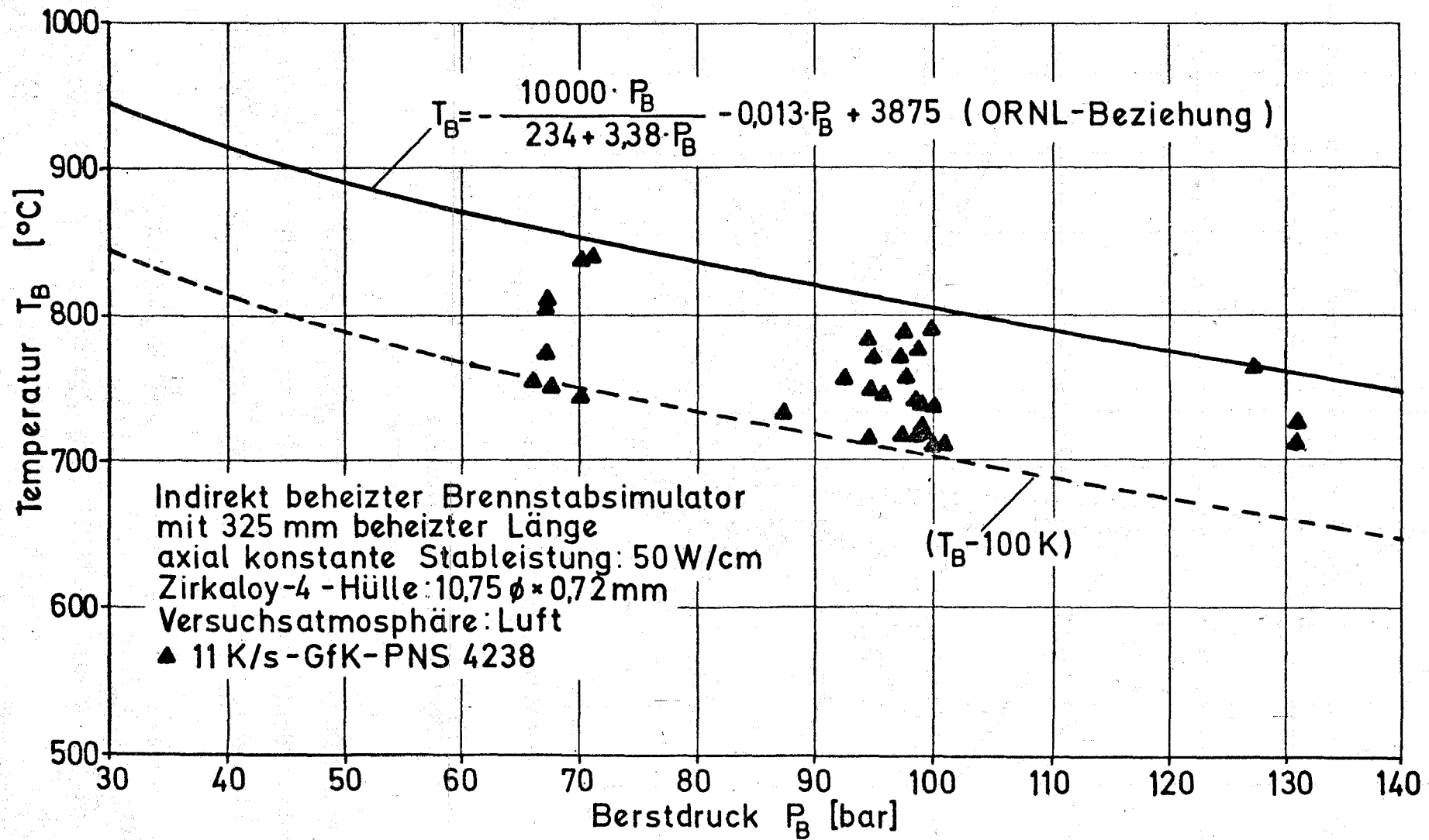
1977

Instrumentierung des Heizstabes

Abb.4238-1

PNS-4238





- 375 -

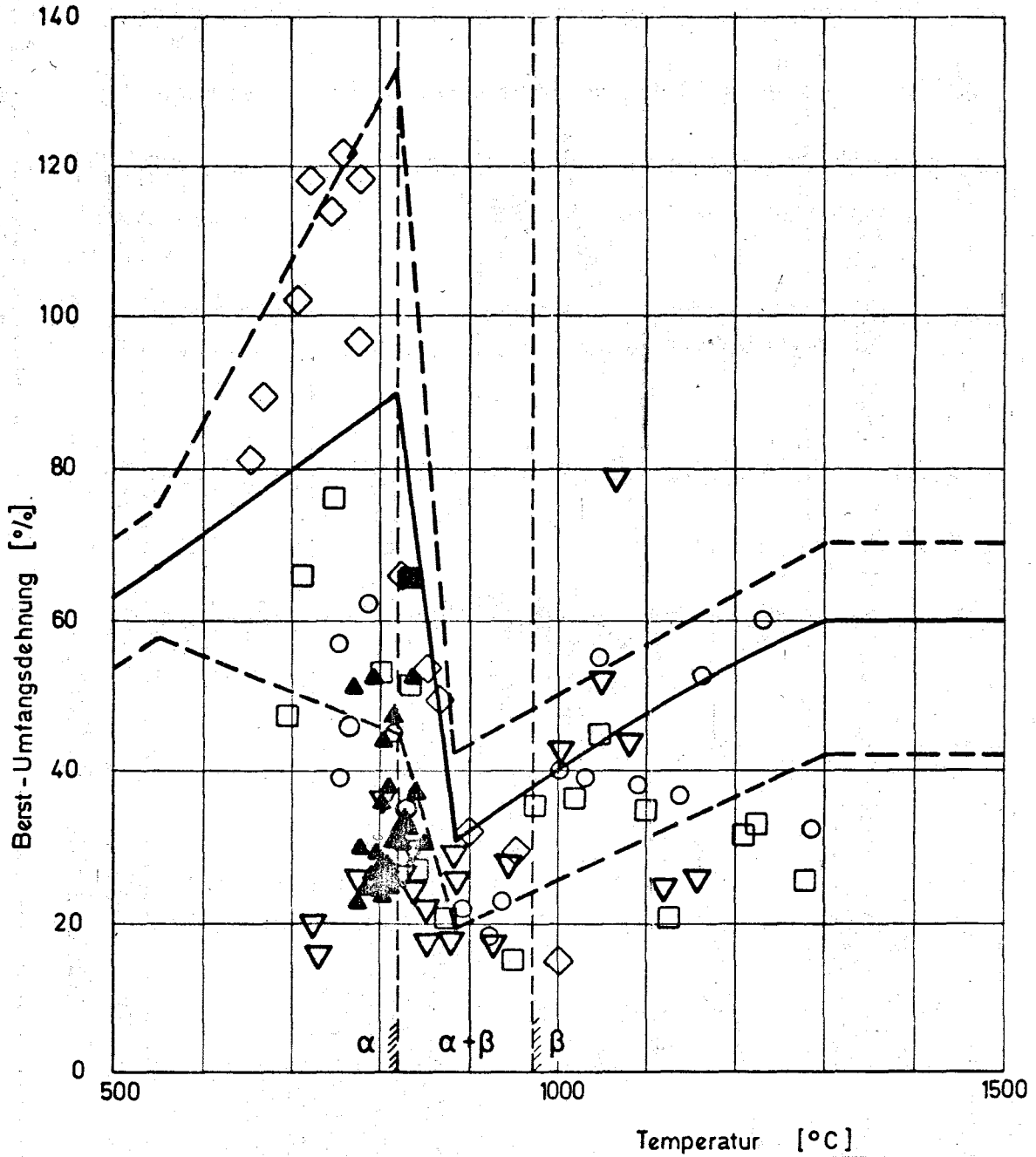
GfK-IRB

1977

Hüllrohrtemperatur in Abhängigkeit vom Berstdruck

Abb. 4238-3

PNS-4238



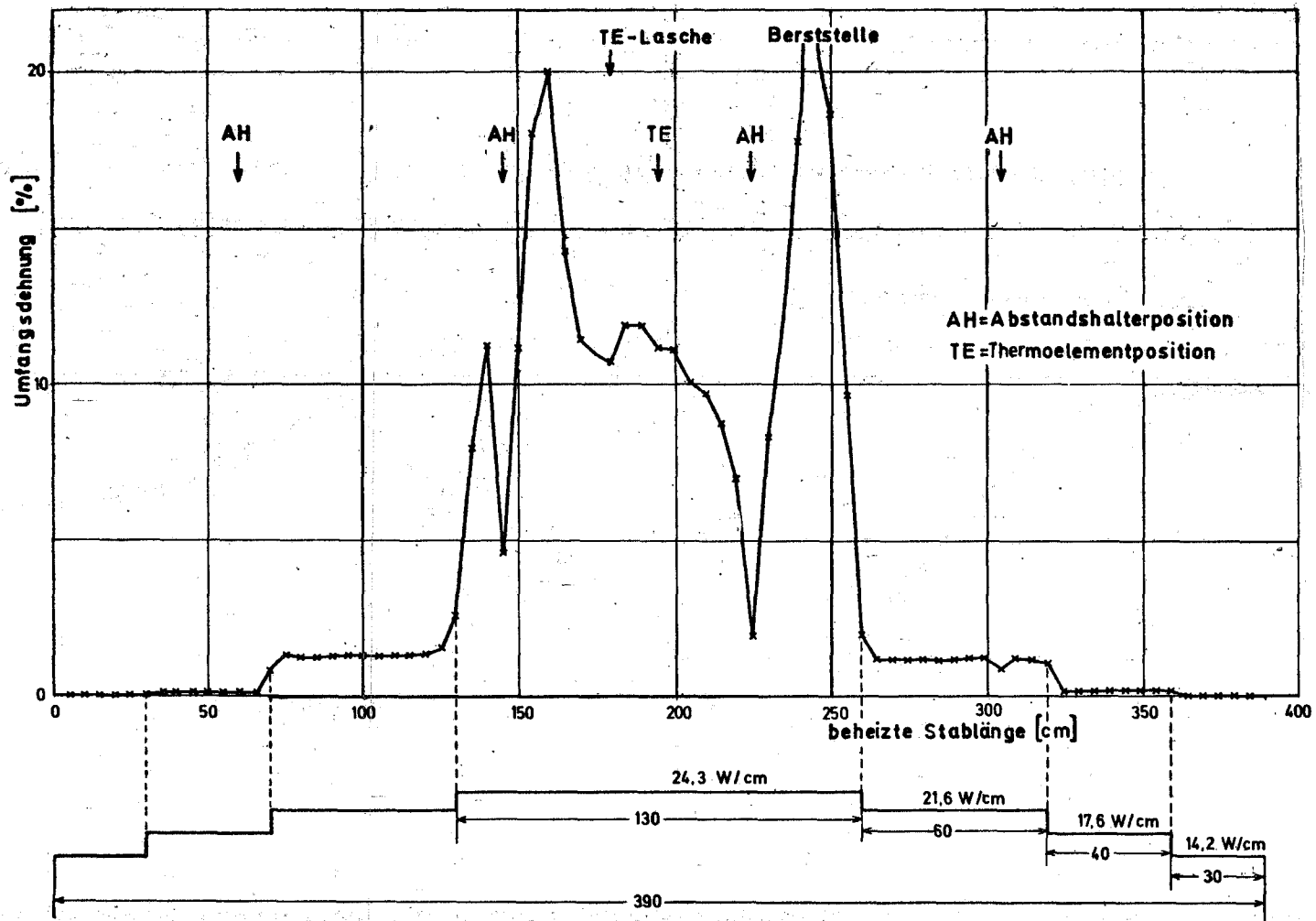
FRAP - T3 Rechnungen: ——— Durchschnittswert  
 - - - Standard - Abweichung

- $\diamond$  5K/s, direkt beheizt, Dampf (ANL)
- $\square$  55 K/s, direkt beheizt, Dampf (ANL)
- $\circ$  115 K/s, direkt beheizt, Dampf (ANL)
- $\nabla$  28 K/s, innen beheizt, Dampf (ORNL)
- $\blacktriangle$  11 K/s, innen beheizt, Luft (GfK-PNS 4238)
- $\blacksquare$  10K/s, in-pile, Dampf (GfK-PNS 4237)

[aus: P. E. Mac Donald, J.M. Broughton: Specialists' meeting Spätind  
 September 1976, paper SNI 8/17]

GfK - IRB	Berst - Umfangsdehnung von	Abb.4238-4
1977	Zirkaloy - Hüllrohren	PNS - 4238

Indirekt beheizter Brennstabsimulator , Heizstab Nr.63 , Zirkaloy-4-Hülle Nr.1 , Versuchs-atmosphäre: Luft-1 bar ,  
 Berstdruck: 76 kp/cm<sup>2</sup> , Bersttemperatur : 808 °C , Berstumfangsdehnung : 27 % , mittlere Aufheizgeschwindigkeit: 4,4 °/s



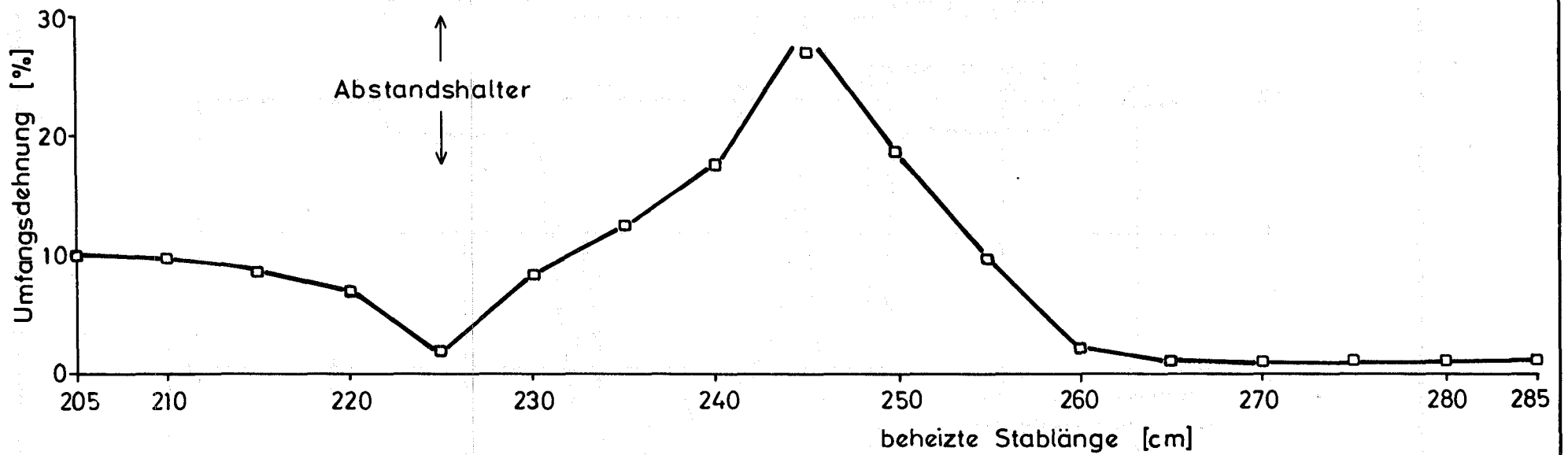
GfK-IRB

1977

Umfangsdehnung eines aufgeblähten und geborstenen  
 Zirkaloy - Hüllrohres

Abb.4238-5

PNS 4238



Indirekt beheizter Brennstabsimulator (beheizte Länge 3900 mm), Heizstab Nr.63, Zirkaloy-4-Hülle Nr.1,  
 Versuchsatmosphäre: Luft 1 bar, Berstdruck 76 kp/cm<sup>2</sup>, Bersttemperatur 808 °C

GfK - IRB

1977

Teil eines aufgeblähten und geborstenen Zirkaloy-Hüllrohres

Abb.4238 - 6

PNS - 4238

4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles

(S. Malang, S. Barth, W. Götzmann, U. Harten, K. Hitzig, P. Ihle, H. Kreuzinger, K. Rust, 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.

#### Arbeiten im Berichtszeitraum

Abgeschlossen wurden:

- Verbesserungen am Flutkreislauf
- Fertigungsverfahren zur Thermoelement-Nut-Herstellung
- Spezifizierung und Bestellung von Heizstäben mit 3,90 m beheizter Länge für 5 x 5 Stabbündel
- Referenzversuche an einer Stabreihe, bestehend aus 5 Stäben ohne Kühlkanalblockaden

Begonnen wurden:

- Versuchsserie mit der 5-Stab-Reihe mit Kühlkanalblockaden  
zunächst mit einer Lochplatte, durch welche 62 % der Kühlkanalquerschnitte versperrt sind
- Darstellung der Meßwerte
- Versuchsauswertung

## 1. Versuchsprogramme für die 5-Stab-Reihe und bisherige Ergebnisse

### 1.1 Parameter

#### konstante Werte

Anzahl der Stäbe	5 in Reihe
Stabdurchmesser	10,75 mm
Stabteilung	14,3 mm
beheizte Länge	290 cm
axiales Leistungsprofil	Cosinus-Profil in 7 Stufen angenähert
Nachwärmeleistung	ANS-Standard

#### Variierte Werte

Flutrate (konstant in jedem Versuch)	1,5 - 10 cm/s
Stabtemperatur bei Flutbeginn	600 - 800°C
Systemdruck (konstant in jedem Versuch)	1,0 - 4,5 bar
Niveau der Nachwärmeleistung	100 - 120 %
Flutwassertemperatur (konstant in jedem Versuch)	40 - 80°C
Blockadetypen (s. Abb. 4239-1)	a) Lochplatte b) Hülsen von verschiedener Form und Größe
Blockadefaktor	0, 62, 75, 90 %

### 1.2 Meßwerte

Bis zum Jahreswechsel wurden 45 Versuche in ungestörter Kanalgeometrie und 27 Versuche mit einer Lochplatte durchgeführt.

Die Versuche in ungestörter Kanalgeometrie dienen als Referenzversuche für die Versuche mit blockierten Kühlkanälen in dieser Testanordnung. Die Stabreihe wurde als erste Anordnung gewählt, um eine gute optische Beobachtung zu ermöglichen unter Inkaufnahme eines größeren Wandeinflusses. Es wurden jedoch keine qualitativen Unterschiede zu bekannten Experimenten mit größeren Bündeln festgestellt. Die Benetzungsfront wandert von unten nach oben. Ihre Geschwindigkeit ist im wesentlichen abhängig von der Flutrate. Lediglich bei hohen Flutraten entsteht auch



am oberen Stabende eine Benetzungsfront, die über den Bereich kleiner Stableistung langsam abwärts wandert, so daß die zuletzt benetzte Stelle im oberen Drittel der Stäbe zu finden ist.

In der folgenden Tabelle sind die Daten eines typischen Versuches mit blockierten Kühlkanälen dargestellt, der im folgenden näher beschrieben wird:

Laufende Versuchsnummer	LN 77
Flutrate	6,6 cm/s
Stabanfangstemperatur	750 °C
Systemdruck abs.	4,6 bar
max. Stableistung zu Flutbeginn	27,5 W/cm
Flutwassertemperatur	60 °C
Blockadetyp	Lochpl.
Blockadefaktor	62 %

Die Temperaturen in der Heizstabhülle wurden auf folgende axialen Positionen gemessen:

- 50 mm (50 mm vor der Blockade)
- + 35, + 85, + 135, + 235, + 335, + 870 und + 1120 mm nach der Blockade.

Die Blockade liegt in der Mittenebene der beheizten Zone.

Abb. 4239-2 zeigt den Temperaturverlauf auf Pos. -50 (K9), + 35 (K.10), + 85 (K.11) und + 135 (K.12). Die Temperatur vor der Blockade verläuft in etwa wie in der ungestörten Stabreihe. Nach der Blockade fallen die Temperaturen jedoch im allgemeinen sofort mit Beginn der Flutphase und es tritt eine zweite nach oben wandernde Benetzungsfront auf. Ihr Einfluß auf die Benetzungszeit nimmt ab mit zunehmendem Abstand von der Blockade. Abb. 4239-3 zeigt den Temperaturverlauf in den Pos. + 35 (K.13), + 335 (K.14), + 870 (K.15) und + 1120 (K.16). Bei kleineren Flutraten steigt die Hülltemperatur nach der Blockade zwar über den Anfangswert an, fällt aber eher ab und erreicht nicht die Maximalwerte der Temperaturen in unblockierter Anordnung. Nach der Blockade werden die Stäbe immer früher benetzt als bei vergleichbaren Bedingungen in der nicht blockierten Stabreihe. In den noch folgenden Versuchen wird des-

halb der Bereich vor der Blockade intensiver untersucht als es bisher geplant war, da im allgemeinen hier die höchsten Temperaturen auftreten.

### 1.3 Optische Beobachtung

Zu Beginn des Flutvorgangs entwickelt sich sofort eine hohe Dampfgeschwindigkeit. Tropfen in sehr unregelmäßiger Form mit einem mittleren Durchmesser von ca. 1 mm werden vom Dampf mitgerissen und benetzen die Abstandshalter sofort. Trotz eines großvolumigen Puffers und eines Druckregelventils wurden Druckpulsationen am Bündelaustritt gemessen. Die gleichen Pulsationen wurden am Bündeleintritt gemessen und an den Sichtfenstern als Durchsatzpulsationen des Zweiphasen-Gemischs beobachtet. Ein Vergleich des Druckverlaufs im oberen und unteren Plenum zeigt, daß beide Drücke etwa phasen- und amplitudengleich verlaufen. Der Differenzdruck steigt von Null auf einen Wert an, der der Höhe der Wassersäule im Bündel entspricht (s. Abb. 4239-4). Die hier beschriebenen Vorgänge verlaufen im unblockierten und im blockierten Bündel in etwa gleich ab.

Im blockierten Bündel werden nach der Blockade zu Beginn des Flutvorgangs zwei verschiedene Strömungsmechanismen beobachtet:

- 1) Beim Einsetzen des Dampfstoßes zu Beginn des Flutvorganges wirken die plötzlichen Erweiterungen beim Austritt aus der Lochplatte als Tropfenzerstäuber, wobei die Stelle der intensivsten Kühlung einige Zentimeter hinter der Blockade liegt.
- 2) Nach kurzer Zeit sammelt sich im Totraum hinter der Blockade Wasser, das durch den Freistrahle des Zweiphasen-Gemisches stark in Bewegung gehalten wird. Hierdurch wird dieser Bereich besser gekühlt als der Bereich vor der Blockade. Zu diesem Zeitpunkt gibt es außer den Abstandshaltern noch keine benetzten Flächen in der Anordnung mit Ausnahme des unteren Teils. Es ist weiter anzumerken, daß die in früheren Halbjahresberichten beschriebene Teststrecke im oberen Plenum so ausgebildet ist, daß das aus dem Bündel ausgetragene Wasser über einen Wasserabscheider in einen Meßbehälter abgeleitet wird. Das in den Totraum hinter der Blockade gelangte Wasser stammt folglich aus der Bündelströmung selbst. Es wurden große, regelmäßige Tropfen be-

obachtet, die im Dampfgegenstrom abwärts fallen.

## 2. Versuchsauswertung

### 2.1 Auswertungsmethode

Die von dem digitalen Datenerfassungssystem aufgezeichneten Meßwerte werden mittels eines speziellen Rechenprogramms in physikalische Größen umgewandelt und in IBM-kompatibler Form auf ein Magnetband geschrieben. Zur Verarbeitung dieses Magnetbandes wurde ein Rechenprogramm entwickelt, mit dem entweder alle oder einige, beliebig ausgesuchte Meßkanäle in Form von Tabellen und/oder Diagrammen ausgegeben werden können. Das Programm enthält mehrere Glättungsroutinen sowie ein Unterprogramm, welches die Zeitskala so verschiebt, daß der Flutbeginn bei  $t = 0$  sec liegt.

Mit diesem Programm gekoppelt wurde das modifizierte HETRAP-Programm zur Berechnung der Wärmeübergangszahlen aus den Meßwerten. Eingangsgrößen für das HETRAP-Programm sind neben dem Heizstab-Aufbau die zeitabhängigen Größen:

- Hüllrohrtemperatur (TE-Anzeige),
- Stabileistung,
- Kühlmitteltemperatur.

Aus diesen Größen berechnet das Programm die folgenden Werte als Funktion der Zeit:

- Wärmeübergangszahl,
- Wärmestrom
- Oberflächentemperatur,
- Heizleitertemperatur,
- gespeicherte Wärme.

Benötigt wird die Kühlmitteltemperatur in jenen axialen Ebenen, in denen Thermoelemente im Hüllrohr angeordnet sind und Wärmeübergangszahlen berechnet werden sollen. Die direkte Messung der örtlichen Temperaturen in der zweiphasigen Strömung ist schwierig und nicht sehr zuverlässig. Andererseits können aber sowohl der instationäre

Wärmestrom an der Staboberfläche als auch die instationäre Temperatur an der Staboberfläche ohne Kenntnis der Kühlmitteltemperatur berechnet werden, da beide Größen nicht von der Definition der Kühlmitteltemperatur abhängen. Für die Berechnung des Wärmeübergangs ist es daher wichtiger, eine klar definierte Kühlmitteltemperatur anzunehmen, wodurch es möglich ist, für eine anders definierte Kühlmitteltemperatur den Wärmestrom als Funktion der Zeit umzurechnen, als irgend eine unsichere örtliche Kühlmitteltemperatur der Versuchsauswertung zugrunde zu legen. Bei Blowdown-Experimenten wird häufig die aus dem gemessenen Kühlmitteldruck berechnete Sättigungstemperatur verwendet. Ein solches Vorgehen würde jedoch bei einem Flutversuch zu teilweise negativen Wärmeübergangszahlen führen, da hier die Stabtemperatur infolge der niederen Flutwassertemperatur unterhalb der Sättigungstemperatur liegen kann. Um dies zu vermeiden, wird im folgenden einheitlich die Temperatur des Flutwassers am Bündeleintritt als Kühlmitteltemperatur definiert und der Berechnung der Wärmeübergangszahlen zugrunde gelegt. Die so erhaltenen Wärmeübergangszahlen lassen sich leicht auf anders definierte Kühlmitteltemperaturen umrechnen:

Es gilt

$$\alpha = \alpha^* \frac{T_\sigma - T_k^*}{T_\sigma - T_k}$$

mit	$T_\sigma$	=	Temperatur der Staboberfläche
	$T_k^*$	=	Flutwassertemperatur am Bündeleintritt
	$\alpha^*$	=	zu $T_k^*$ gehörende Wärmeübergangszahl
	$T_k$	=	anders definierte Kühlmitteltemperatur
	$\alpha$	=	zu $T_k$ gehörende Wärmeübergangszahl

Das Hauptproblem der Versuchsanalyse ist die Bestimmung des Wärmestromes als Funktion der Zeit. Infolge der im Stab gespeicherten Wärme wird dieser Wärmestrom zeitlich zurückbleiben gegenüber der Stableistung während einer Transienten und wird sich ändern in Abhängigkeit von den Kühlmittelbedingungen. Daher reichen die Angaben über die entsprechende Hüllrohrtemperatur und die zugehörige lineare Stableistung nicht aus, um für den gewünschten Zeitpunkt die Wärmeübergangszahl zu ermitteln; vielmehr muß das thermische Verhalten des betrachteten Stababschnittes vom Beginn der Transienten an in die Be-

trachtungen miteinbezogen werden, wobei die Temperaturabhängigkeit der Stoffdaten zu berücksichtigen ist /1/. Diese Auswertung erfolgt mit einer modifizierten Version des HETRAP-Programmes /2/.

Die wichtigste Option dieses Rechenprogrammes löst das inverse Wärmeleitproblem für eine eindimensionale Geometrie, wobei die Temperatur und der Wärmestrom an der Staboberfläche sowie die Wärmeübergangszahl als Funktion der Zeit aus den Temperaturen berechnet wurden, die in der Hüllrohrwand während des Flutvorganges gemessen wurden. Das Ergebnis der Auswertung eines typischen Flutversuches einer Reihe aus 5 Heizstäben ohne Blockade ist in Abb. 4239-5 dargestellt. Aufgetragen sind als Funktion der Zeit die Temperatur an der Staboberfläche, die Wärmeübergangszahl in logarithmischem Maßstab und die im Heizstab gespeicherte Wärme. Aus der Darstellung geht hervor, daß die Schwankungen in der Wärmeübergangszahl und dem Wärmestrom wesentlich stärker sind als die Temperaturschwankungen. Dies ist ein inhärentes Problem bei der Auswertung von instationären Wärmeübergangs-Untersuchungen, das umso schwerwiegender wird, je tiefer die Thermolemente unter der Staboberfläche angeordnet sind. Abb. 4239-6 zeigt die Verbesserung durch die Anwendung der im vorigen Halbjahresbericht beschriebenen modifizierten Beck'schen Methode /3/, /4/ der "advanced time steps". Zusätzlich wurden die Ergebnisse für den Wärmeübergang und Wärmestrom an der Staboberfläche geglättet, indem für jeden Punkt das arithmetische Mittel gebildet wurde aus jeweils 19 Werten, wobei 9 Werte vor und 9 Werte hinter dem betrachteten Punkt in die Mittelwertbildung einbezogen wurden.

Ein anderes Problem bei der Analyse von Experimenten, die unter Anwendung von elektrisch beheizten Stäben durchgeführt werden, ist der Unterschied im thermischen Verhalten zwischen dem Brennstab und dem Heizstab, bedingt durch ihren unterschiedlichen Aufbau und die unterschiedlichen Materialien. Diese beiden Stäbe weisen bei gleicher transienter Stabileistung in der Regel unterschiedliche Temperaturen an der Staboberfläche auf, auch wenn identische Transienten für den Wärmeübergangskoeffizienten als Randbedingungen vorausgesetzt werden. Daher wurde eine weitere Option des Rechenprogrammes entwickelt, um das Temperaturprofil in beiden Stäben parallel berechnen zu können,

wodurch auf die Qualität der Simulation geschlossen werden kann. Ein derartiger Vergleich zwischen einem Heizstab und einem Brennstab ist in der Abb. 4239-7 bezüglich der Temperaturen an den Oberflächen der Stäbe und in Abb. 4239-8 bezüglich der gespeicherten Wärme dargestellt. Die Schlußfolgerung aus Abb. 4239-7 ist, daß der Brennstab in diesem Falle etwas eher benetzt würde als der Heizstab. Es muß jedoch darauf hingewiesen werden, daß das thermische Verhalten des Brennstabes stark von den vorgegebenen Parametern beeinflusst wird, was vor allem für den Kontaktkoeffizienten zwischen dem Brennstoff und dem Hüllrohr gilt.

### 3. Schlußfolgerungen und Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Im Fall der unblockierten Kühlkanäle steigt der Wärmeübergang zu Beginn der Flutphase sehr schnell an und bleibt dann bis zum Benetzen in etwa konstant. Im Augenblick des Benetzens der Staboberfläche nimmt er kurzzeitig einen sehr hohen Wert an (s. Abb. 4239-6). Wie zuvor erwähnt, wird in allen hier gezeigten Fällen die Wärmeübergangszahl auf die Flutwassertemperatur bezogen und ist deshalb kleiner als beim üblichen Bezug auf die Sättigungstemperatur. In der bisher untersuchten Anordnung mit blockierten Kühlkanälen in Form einer Lochplatte, die 62 % der Kühlkanalquerschnitte versperrt, steigt der Wärmeübergang hinter der Blockade auf höhere Werte als in der unblockierten Anordnung. Zum Zeitpunkt der Benetzung weist er eine ähnliche Spitze auf wie in der unblockierten Anordnung. Vor der Blockade zeigt der Wärmeübergang in etwa gleiche Größe und ähnlichen Verlauf wie in der unblockierten Anordnung (s. Abb. 4239-9). Der Wärmestrom an der Staboberfläche verhält sich analog zum Wärmeübergang (s. Abb. 4239-10).

Die bisher beobachtete, verbesserte Kühlwirkung hinter der Blockade ist auf eine starke Tropfenzerstäubung durch die Blockade zurückzuführen. Außerdem wurde deutlich, daß auch ohne Umströmung einer Blockade oder Heißeinspeisung Wasser gegen den aufsteigenden Dampfstrom in nicht vernachlässigbarer Menge zurückfallen kann.

Die verbesserte Kühlwirkung hinter der Blockade kann jedoch nicht ohne weiteres auf andere Blockadeformen und bestimmt nicht auf ein Bündel,

in dem nur ein Teil der Kühlkanäle blockiert ist, übertragen werden. Durch die Umströmung einer solchen Teilblockade kommt es nämlich im blockierten Bereich infolge des höheren Druckverlustes zu einer Durchsatzverminderung. In weiteren Versuchen soll geklärt werden, welcher der beiden gegenläufigen Effekte überwiegt:

- verbesserte Kühlung durch Zerstäubung und Wasseransammlung hinter der Blockade oder
- verschlechtere Kühlung durch Durchsatzverminderung.

In den folgenden Monaten werden die Versuche an der 5 Stabreihe mit den in Abb. 4239-1 gezeigten Blockaden fortgesetzt.

Untersuchungen in 5 x 5-Bündeln werden vorbereitet, sie sollen Ende 1976 beginnen und haben zum Ziel:

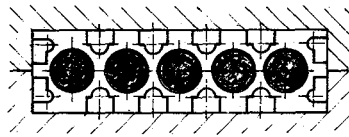
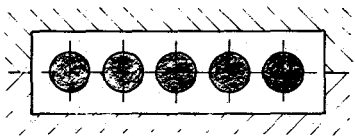
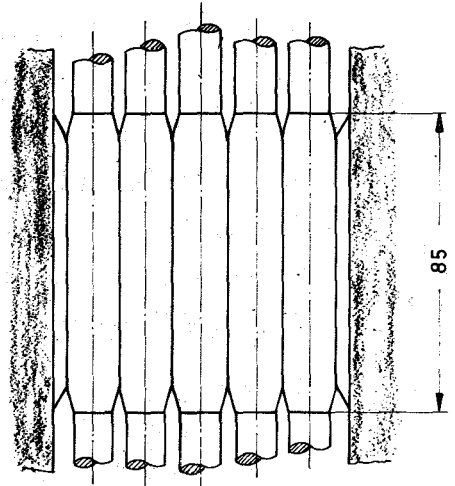
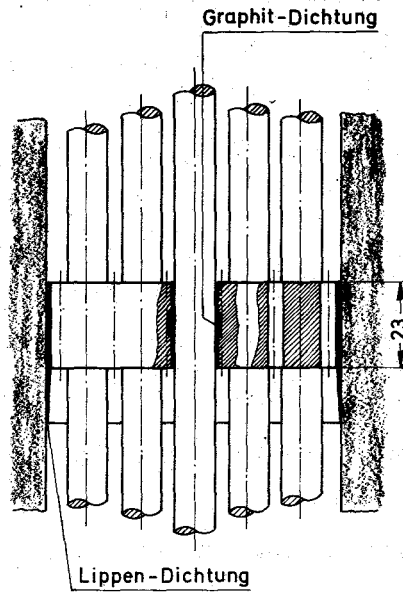
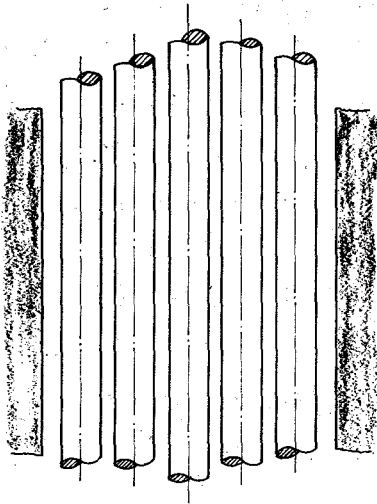
- 1) den Fehler durch den Wandeinfluß in bezug auf Reaktorähnlichkeit zu vermindern,
- 2) das Problem der Blockadenumstörung anzugehen.

#### Literatur:

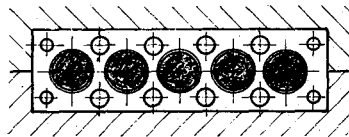
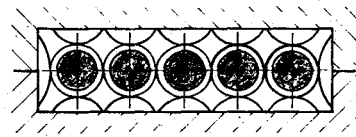
- /1/ K. Rust, S. Malang, W. Götzmann  
"PEW - Ein FORTRAN IV-Rechenprogramm zur Bereitstellung physikalischer Eigenschaften von Werkstoffen für LWR-Brennstäbe und deren Simulatoren"  
KFK-Ext. 7/76-1, Dezember 1976
- /2/ S. Malang  
"HETRAP - A Heat Transfer Analysis Program"  
ORNL-TM-4555, September 1974
- /3/ S. Malang et. al.  
PNS-Halbjahresbericht 1976/1  
Seite 379-392  
KFK-2375, Nov. 1976
- /4/ J.V. Beck  
"Nonlinear Estimation Applied to the Nonlinear Inverse Heat Conduction Problem"  
Int. J. Heat Mass Transfer, 1970, Vol. 12, pp. 703-717

ungestörte -

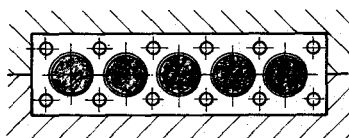
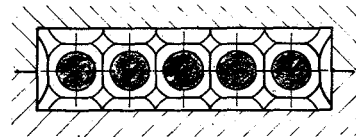
gestörte Geometrie



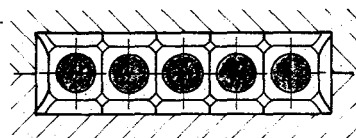
62 %



75 %



90 %



Blockadefaktor

ABB.4239-1: BLOCKADETYPEN



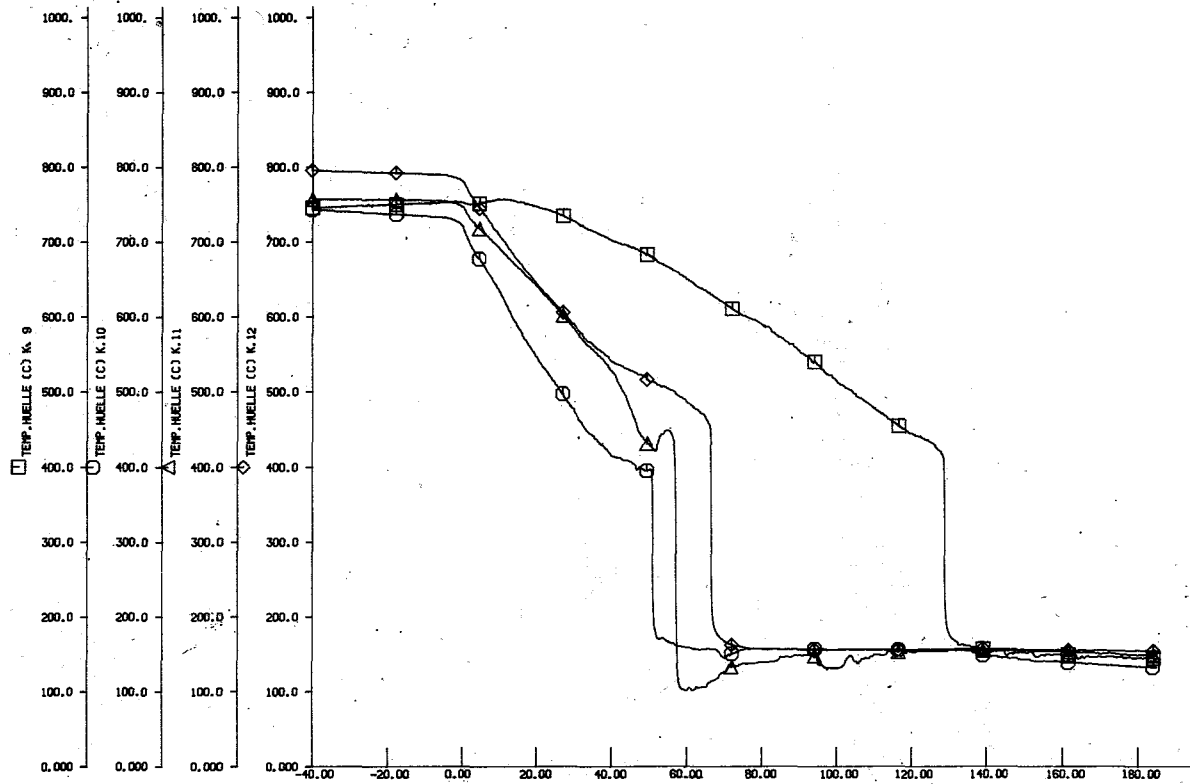


ABB. 4239-2: HÜLLTEMPERATUREN IN VERSCH. STABPOS.

S

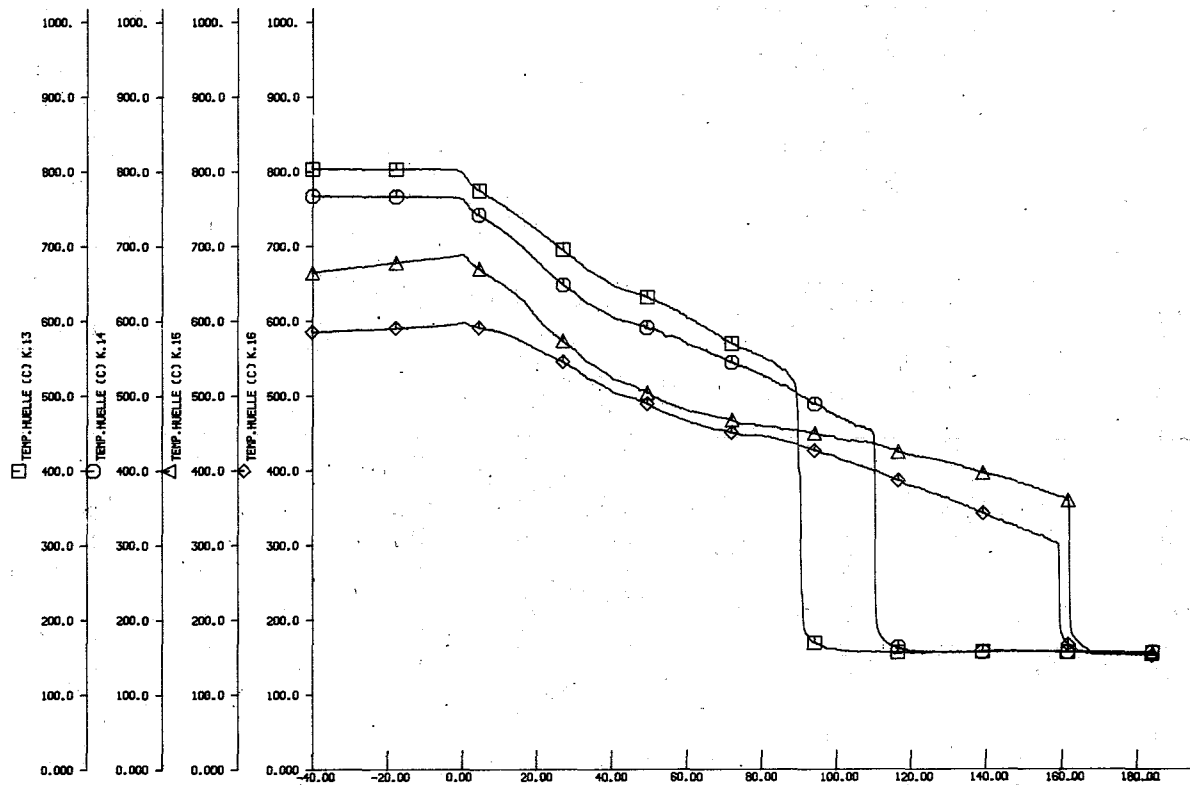


ABB. 4239-3: HÜLLTEMPERATUREN IN VERSCH. STABPOS.

S

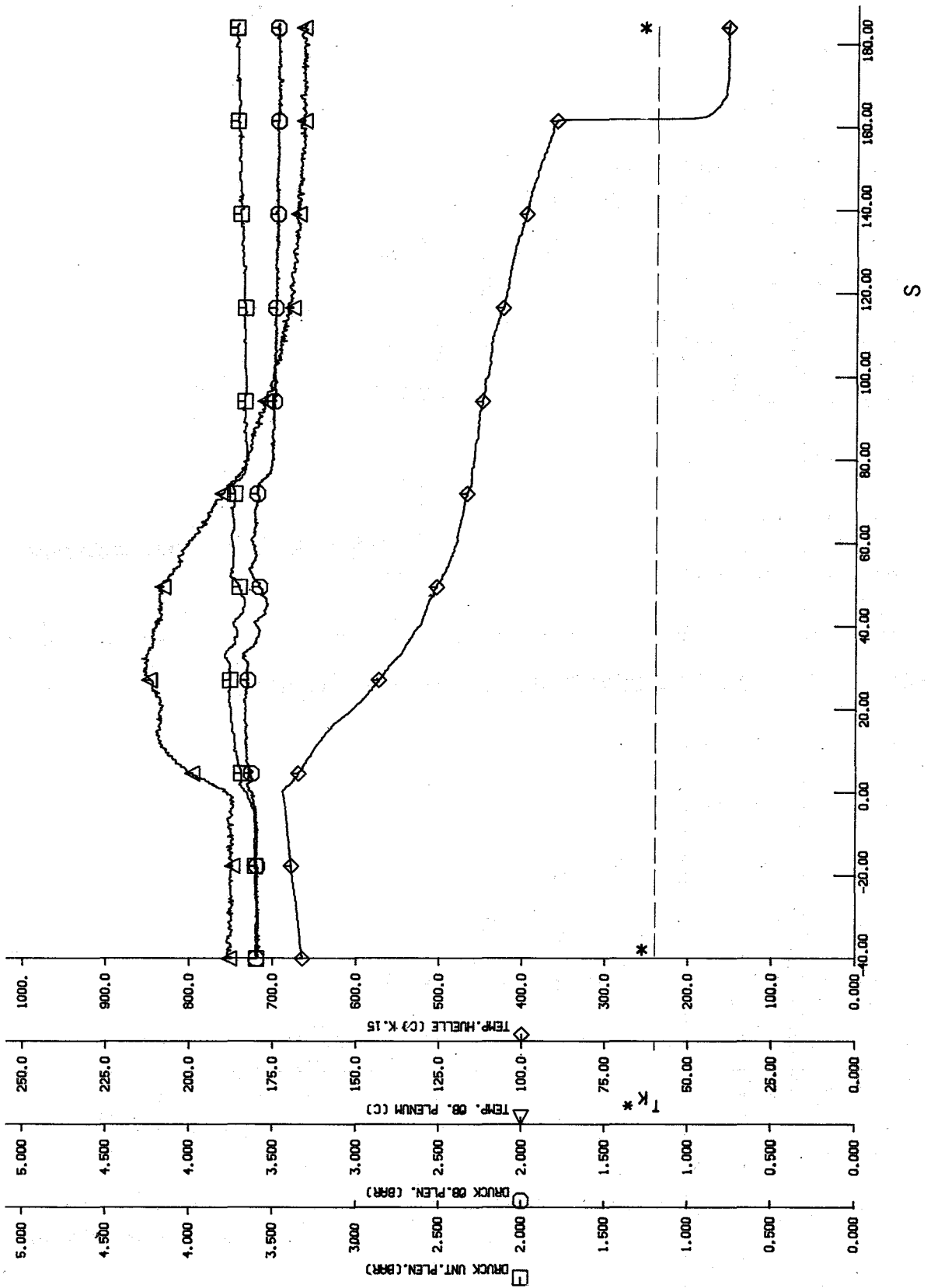


Abb. 4239-4: FLUIDDATEN IM UNTEREN UND OBEREN PLENUM

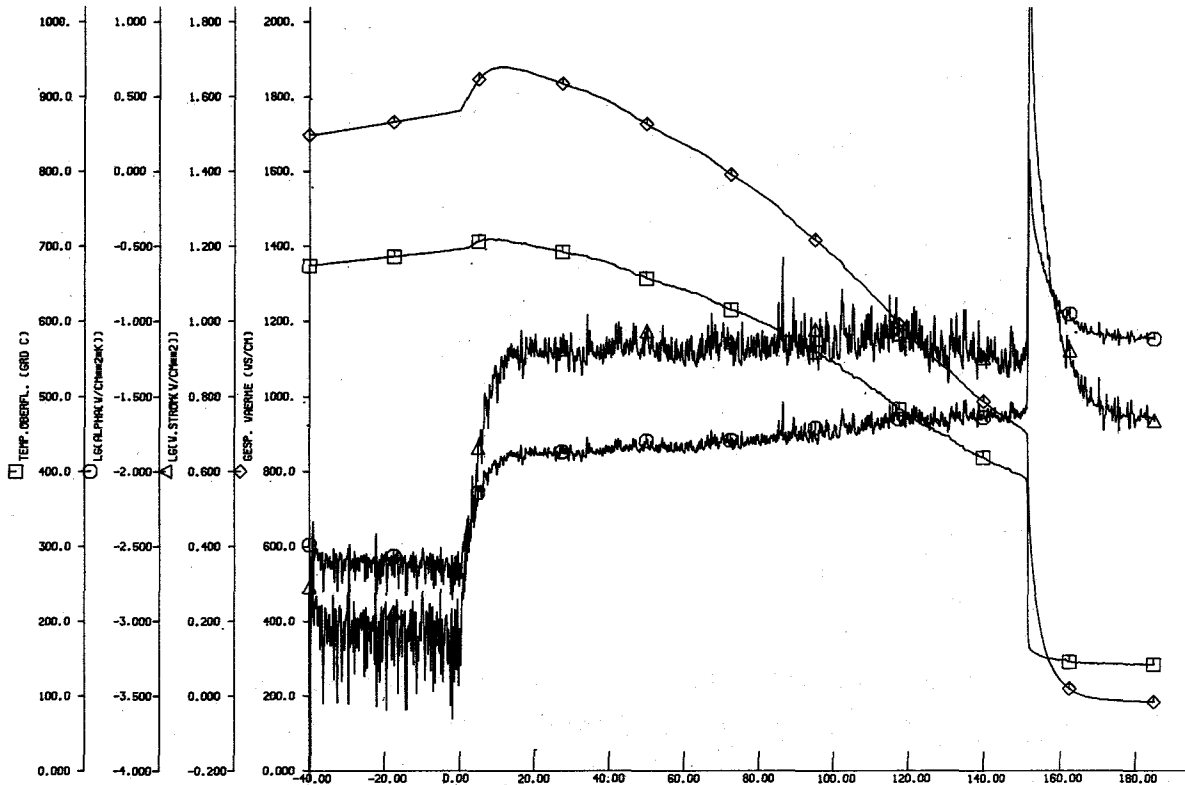


ABB.4239-5: HEIZSTAB, NADVAN=0

S

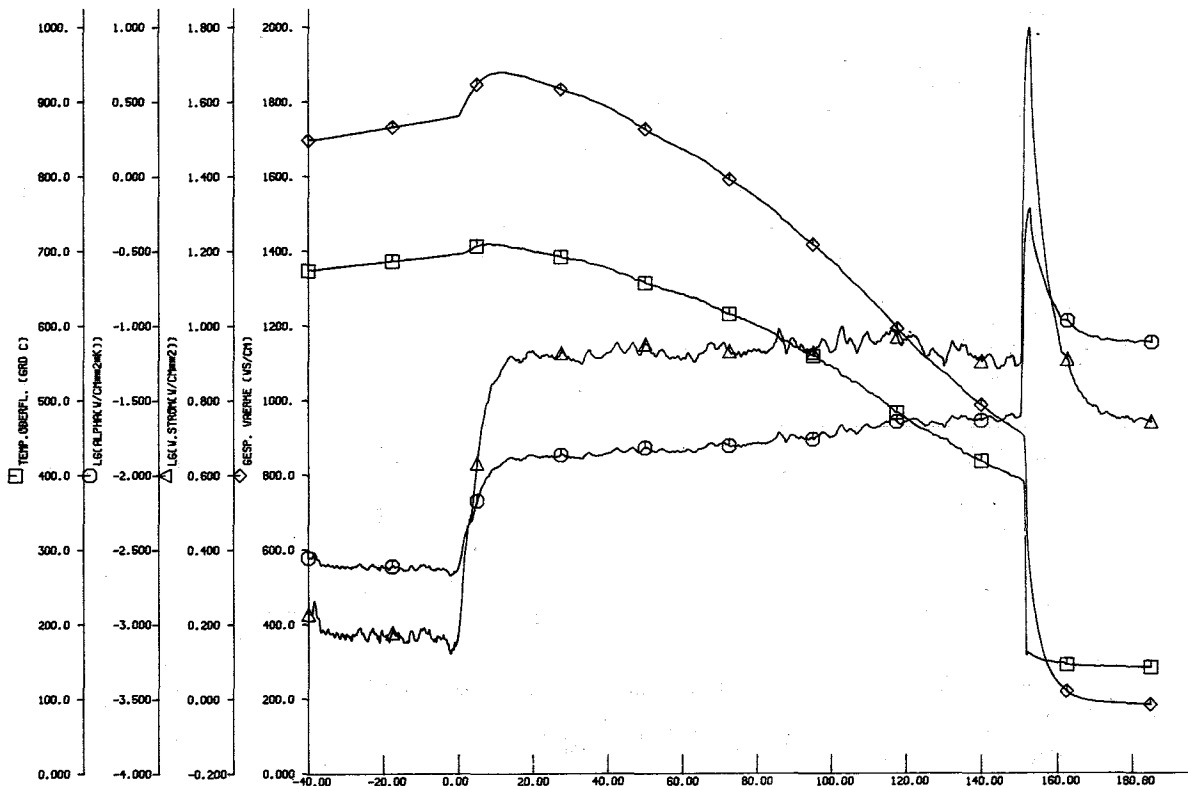


ABB.4239-6: HEIZSTAB, NADVAN=3, DATEN GEGLÄTTET

S

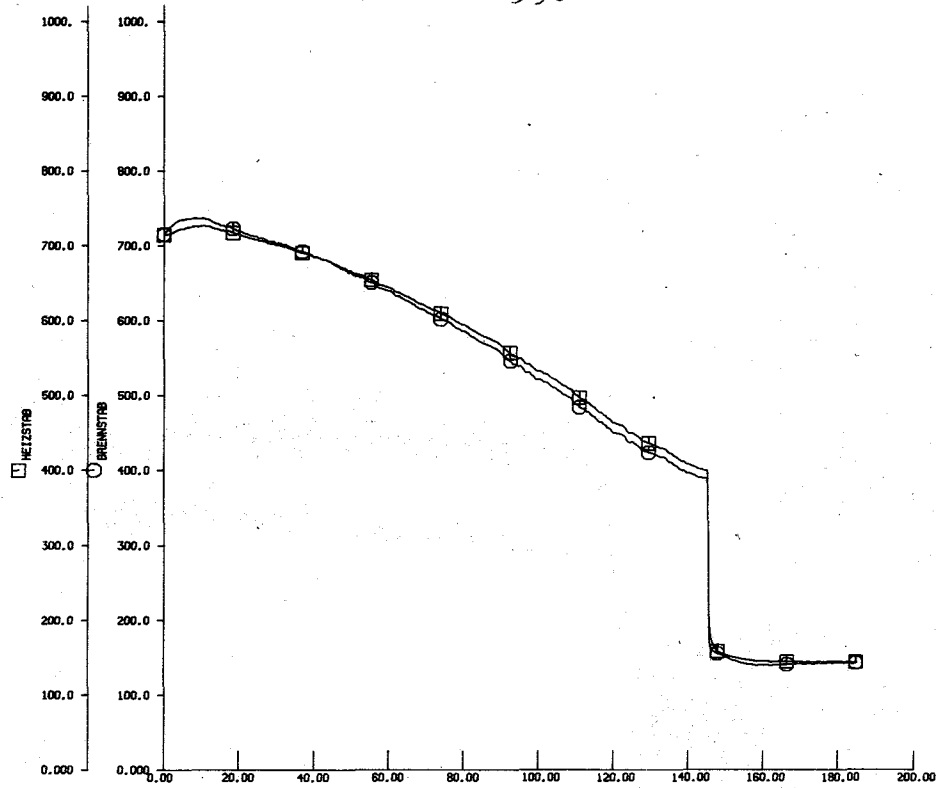


ABB.4239-7: OBERFLÄCHENTEMPERATUR

S

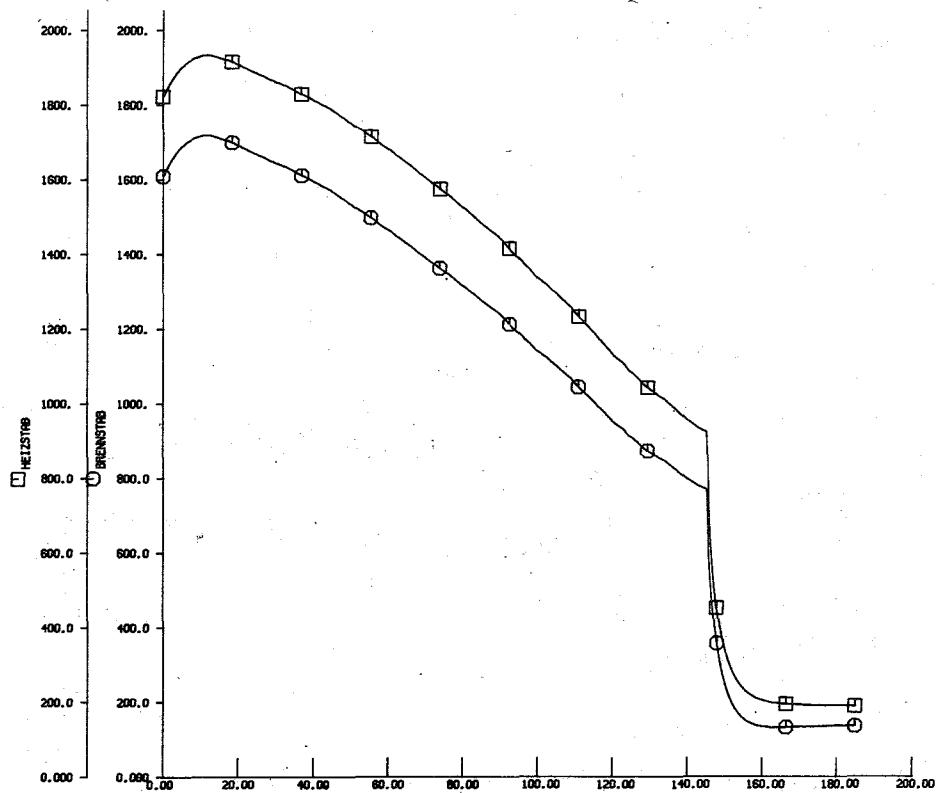


ABB.4239-8: GESPEICHERTE WÄRME

S

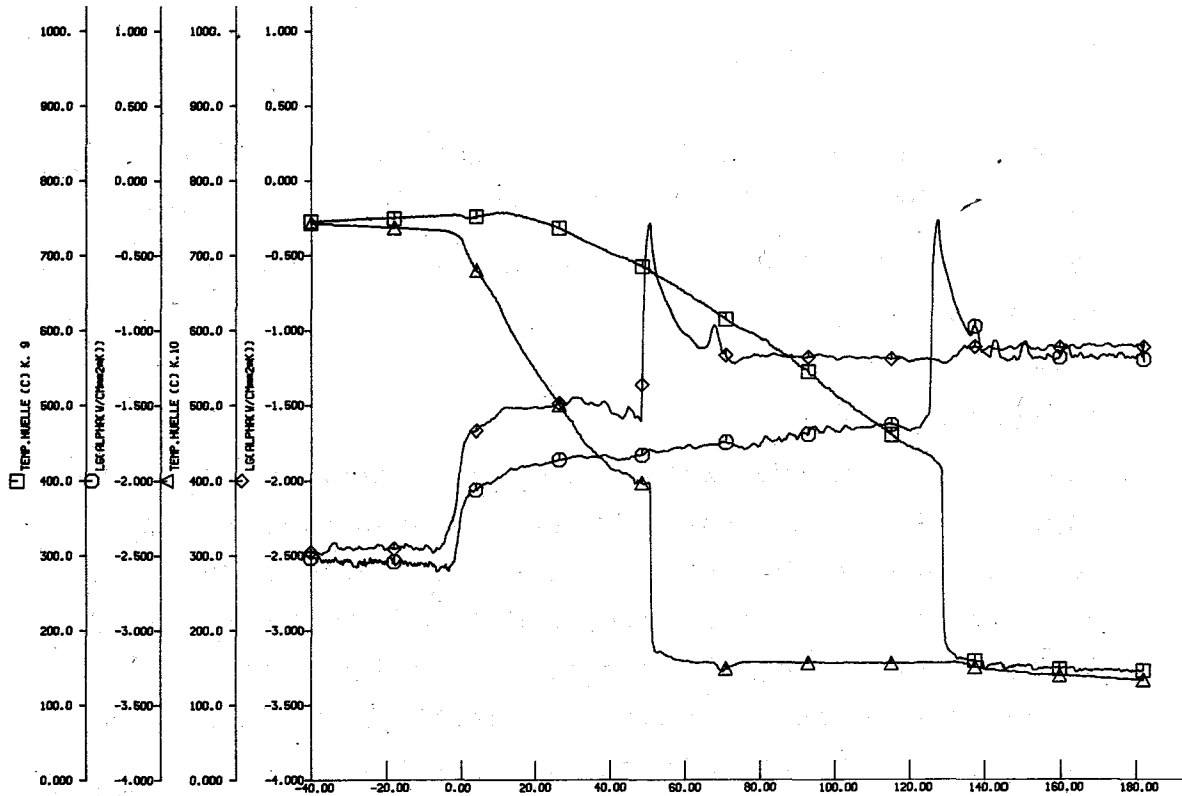


ABB. 4239-9: WÄRMEÜBERGANG VOR+HINTER DER BLOCKADE

S

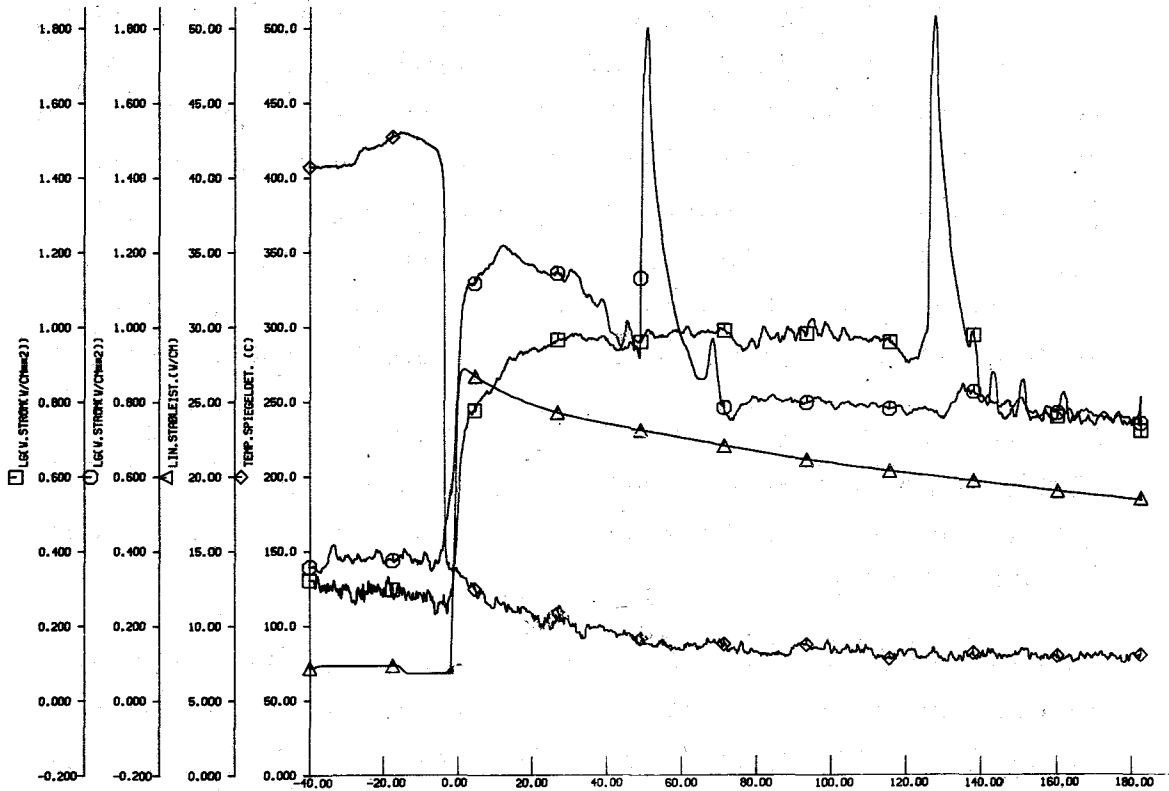


ABB. 4239-10: WÄRMESTROM VOR+HINTER DER BLOCKADE

S

4240 Kernschmelzen 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)

#### Einleitung

Die in den früheren Berichten beschriebenen Einzelstabexperimente haben gezeigt, daß das Abschmelzverhalten von LWR-Brennstäben durch die Wechselwirkung zwischen  $UO_2$  und Zircaloy einerseits und dem Zircaloy und dem Inconel des Pellets andererseits geprägt wird. Das Ausmaß der Wechselwirkung wird dabei ganz wesentlich durch die umgebende Atmosphäre beeinflusst.

Im Unfallreaktor würde diese aus Wasserdampf bestehen. Durch die infolge der Metall-Wasserdampf-Reaktion entstehende Oxidschicht wird der Einfluß des Abstandshalters stark reduziert und der Brennstab bei ausreichend vorhandenem Wasserdampf mit einer festen Oxidschicht umhüllt. Das innerhalb dieser Oxidhülle verbleibende Restzircaloy bildet zusammen mit dem  $UO_2$  des Pellets eine schmelzförmige Legierung, die bei den am Einzelstab vorliegenden Verhältnissen bei ca.  $1900^\circ C$  Oberflächentemperatur der Hülle durch sich bildende Löcher austritt.

Für die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen den Komponenten des Stabes beim Aufheizen bis zum Schmelzbeginn war es ausreichend, das Verhalten von Einzelstäben zu untersuchen.

Im Reaktor wird der einzelne Stab von Nachbarstäben mit nahezu der gleichen Temperatur umgeben, so daß die austretende Schmelze in allen Richtungen eine Umgebung gleichhoher Temperatur sieht. Beim Einzelstab ist dies nicht mehr der Fall. Durch die Abstrahlungsverluste tritt eine stärkere Abkühlung auf.

Um das Abfließen und Erstarren der Schmelzen realistisch zu simulieren, ist es also notwendig, die von den Nachbarstäben herrührende Strahlung zu simulieren. Um dies zu erreichen, haben wir zwei verschiedene Versuchsanordnungen aufgebaut. In der ersten wird der Stab im Original-Gitterabstand von weiteren Stäben umgeben. In der zweiten Anordnung befindet sich der Stab in einem zylindrischen Heizrohr, das den aus Vollpellets aufgebauten Stab durch Strahlung erwärmt. Die beiden Apparaturen wurden im letzten Halbjahr aufgebaut und erprobt.

#### Aufbau und Erprobung des Versuchskessels für die Durchführung der Bündelexperimente

Abb. 4241-1 zeigt auf der linken Seite eine schematische Darstellung des Versuchskessels. Der wesentliche Unterschied gegenüber der früher benutzten Einzelstabanordnung besteht im Aufbau der Elektroden. Sie gestatten jetzt den Aufbau eines Bündels bis zu 7 x 7 Stäben. Hierbei kann der zentrale Stab getrennt von den restlichen Stäben beheizt werden. Auf der schematischen Darstellung sieht man die gemeinsame mittlere Stromzuführung und die Zentralstabzuleitung auf der linken Seite und diejenige für das Restbündel auf der rechten Seite. Durch leitenden oder isolierten Einbau der Stäbe kann eine beliebige Zahl der Stäbe beheizt werden oder als unbeheizte Reflektorstäbe benutzt werden.

Die Stäbe können parallel oder in Reihe beheizt werden. Für die beiden Heizkreise stehen zwei unabhängig zu steuernde Transformatoren von 30 V x 1500 Amp. zur Verfügung, die bei Bedarf auf 90 V x 500 Amp. umgeändert werden können. Das Foto auf der rechten Seite von Abb. 4241-2 zeigt die Elektroden mit Stromanschlüssen und Kühlleitungen und ein Bündel von 49 Stäben.

Die Länge der Stäbe kann maximal 1 m betragen. Der neue Versuchsaufbau gestattet die Verwendung von strömendem Dampf.

Von den durchgeführten Versuchen zur Erprobung der Elektrodenanordnung zeigt Abb. 4241-2 den Einfluß von unbeheizten Reflektorstäben auf die Temperatur des beheizten Zentralstabes in Abhängigkeit von der Stableistung. In Abb. 4241-3 sieht man einen im Zentrum des Bündels teilweise abgeschmolzenen Brennstabsimulator. Das abgelaufene Schmelzgut ist im unteren kühlen Bereich zusammengelaufen und erstarrt.

#### Aufbau und Erprobung des Ofeneinsatzes für die Aufheizung von Stäben mit Vollpellets

Der im ersten Halbjahr 1976 konstruierte Ofeneinsatz wurde im Berichtszeitraum aufgebaut. Mit der Erprobung dieses Einsatzes haben wir begonnen.

Abb. 4241-4 zeigt eine schematische Darstellung, aus der man den zentralen Brennstab, das Heizrohr, den beheizten und unbeheizten Strahlenschirm erkennen kann.

Die verschiedenen Aufbaustufen sind in den Fotos auf dem gleichen Bild wiedergegeben. Das Heizrohr, die Isolation des beheizten Strahlenschirms und der unbeheizte Strahlenschirm bestehen aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Der Heizdraht im Heizrohr und im beheizten Strahlenschirm besteht aus Tantal. Die Temperatur im Ofenraum ist durch die Verwendung von  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , das sich durch seine geringe Thermoschockempfindlichkeit auszeichnet, auf  $1950^\circ\text{C}$  begrenzt. Es ist vorgesehen, für die Erreichung höherer Temperaturen für das Heizrohr Zirkonoxyd oder Thoriumoxyd zu verwenden.

Im Heizrohr können die Stäbe in Schutzgas oder Dampf aufgeheizt werden.

Abb. 4241-5 zeigt als Beispiel den Querschnitt eines zur Erprobung der Apparatur bis auf  $1850^\circ\text{C}$  aufgeheizten Stabes. Die Schliffe zeigen, daß auch bei der Heizung durch Einstrahlung von außen das gleiche Wechselwirkungsverhalten zwischen dem Zircaloy der Hülle und dem  $\text{UO}_2$  des Pellets wie bei den W-Stab-beheizten Brennstabsimulatoren auftritt.



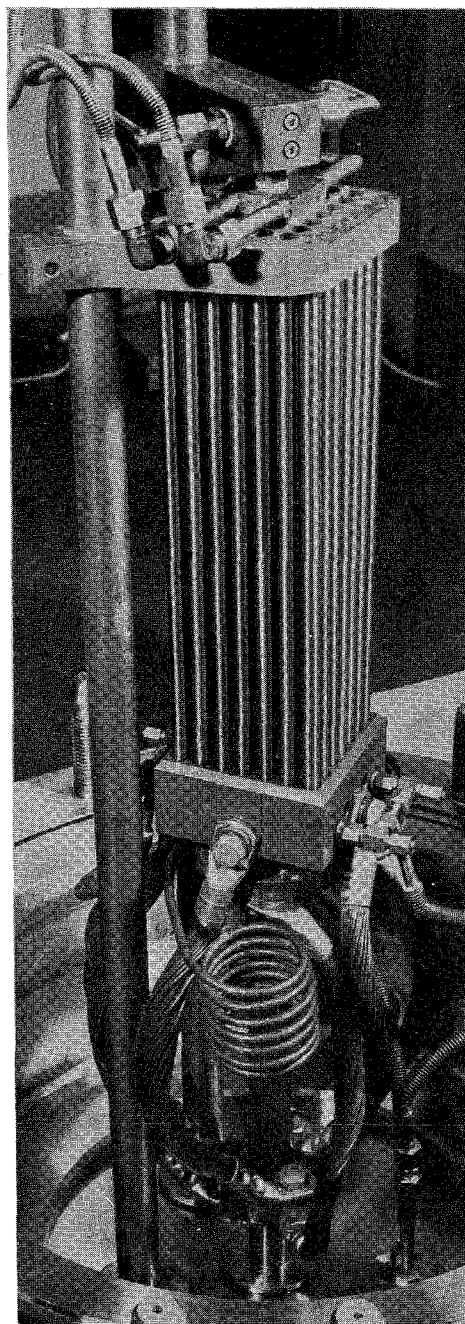
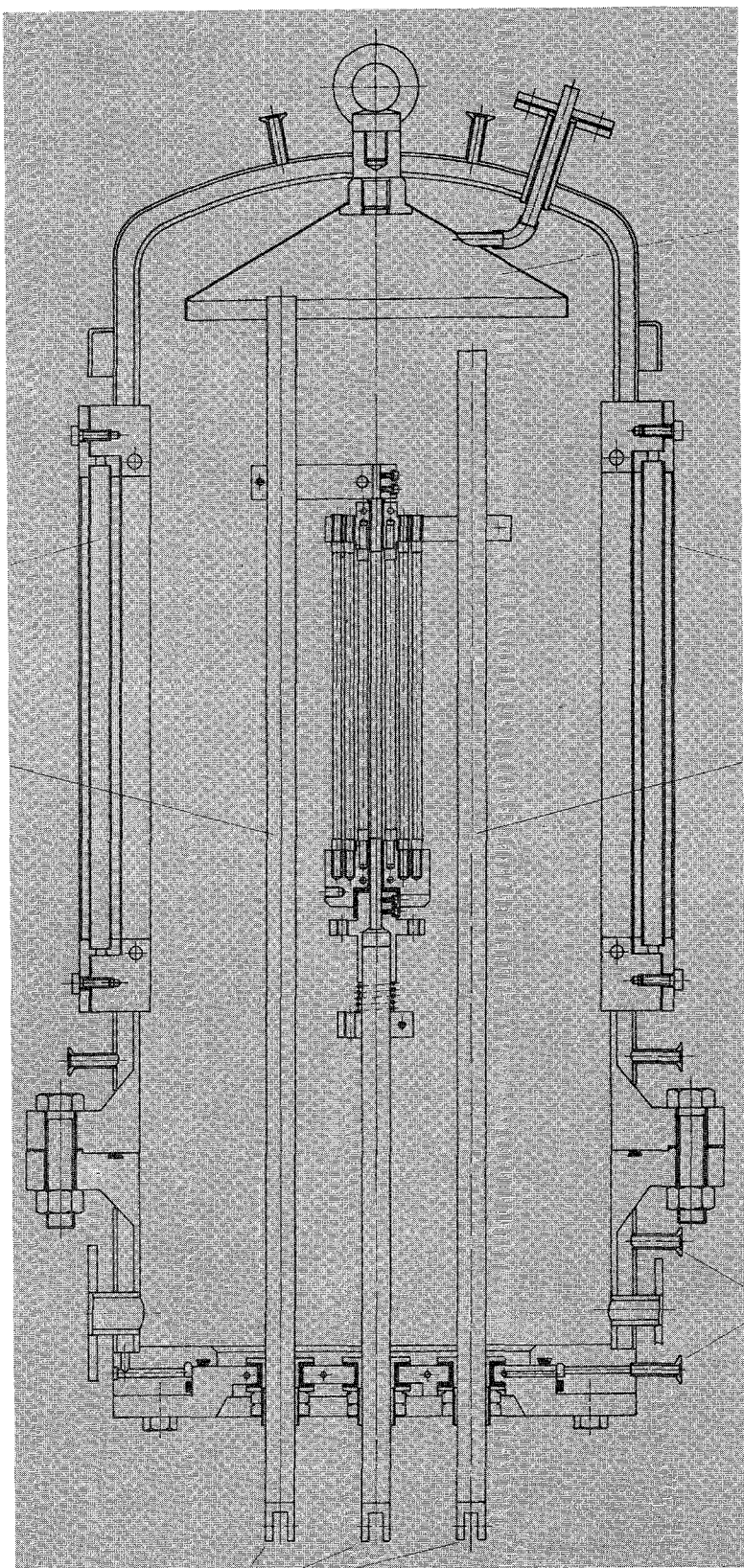


ABB: 4241-1

Schematische Darstellung des Versuchskessels für die Bündel-  
experimente. Die Photographie zeigt den geöffneten Versuchskessel mit einer Bündelanordnung von 7 x 7 Stäben.

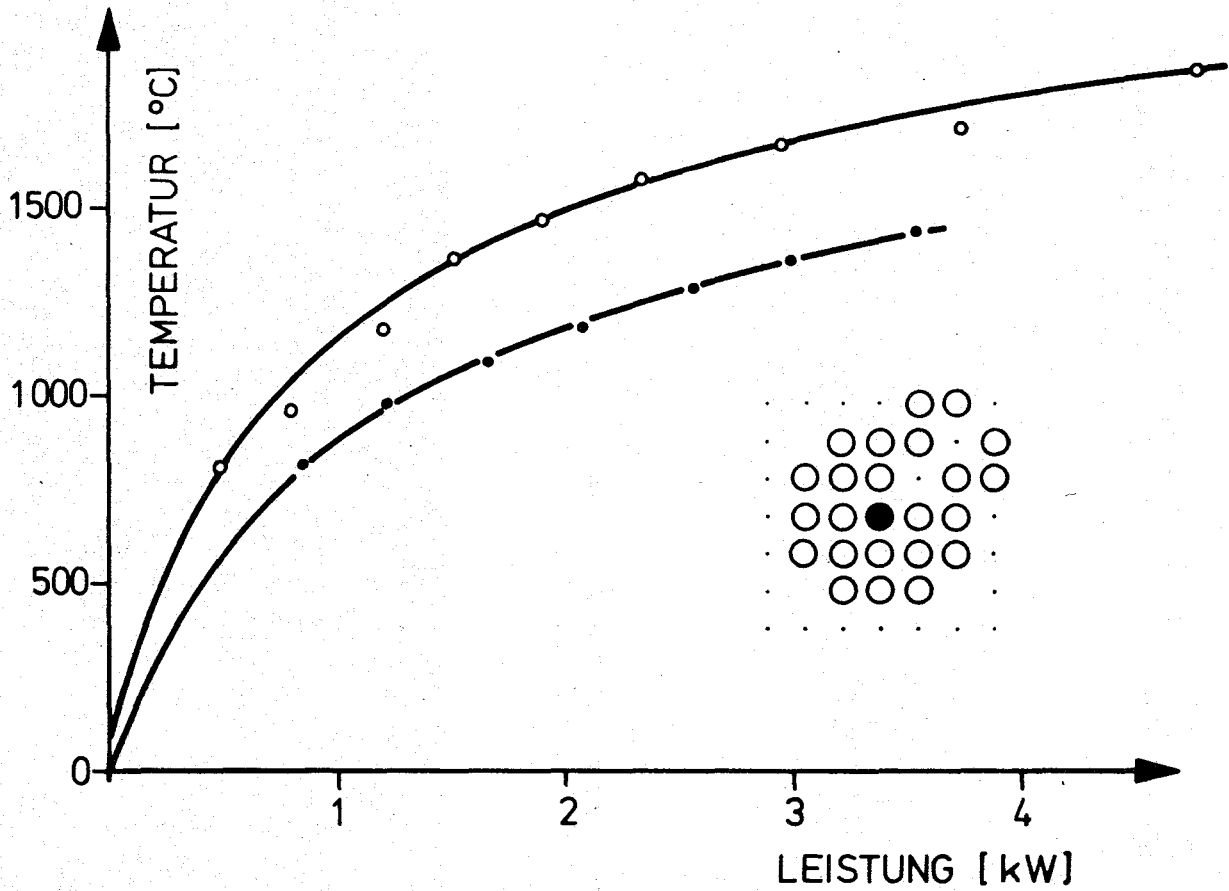


ABB: 4241-2

Einfluß der Reflektorstäbe auf die Oberflächentemperatur in der Mitte des Zentralstabes als Funktion der Stableistung (Stablänge 22 cm).

- = Zentralstab allein
- = Zentralstab mit 23 Reflektorstäben

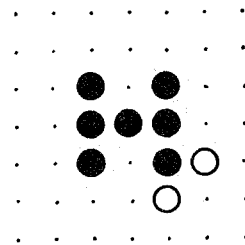
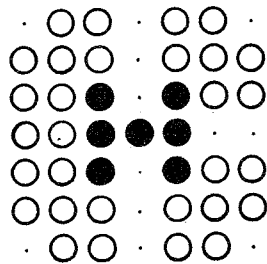
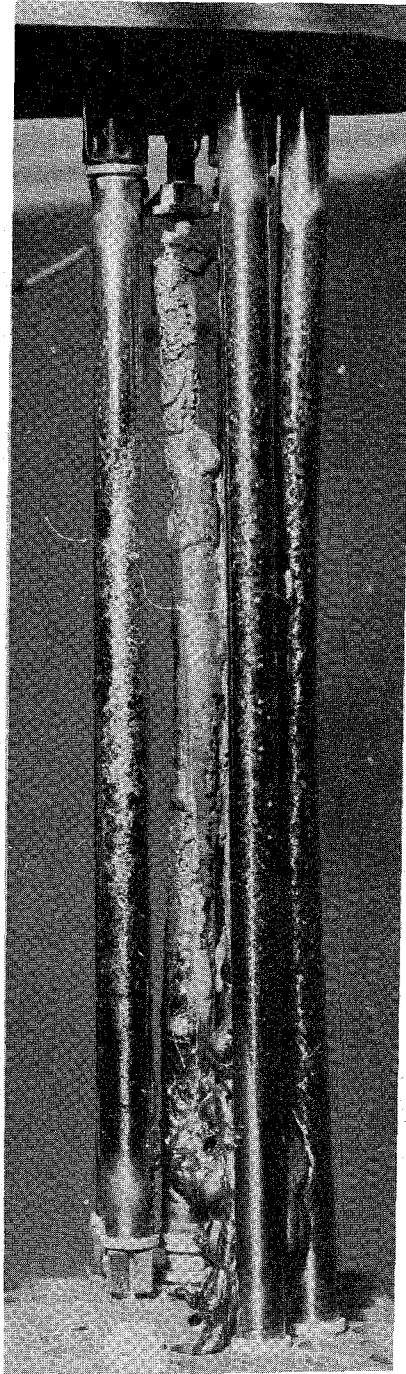
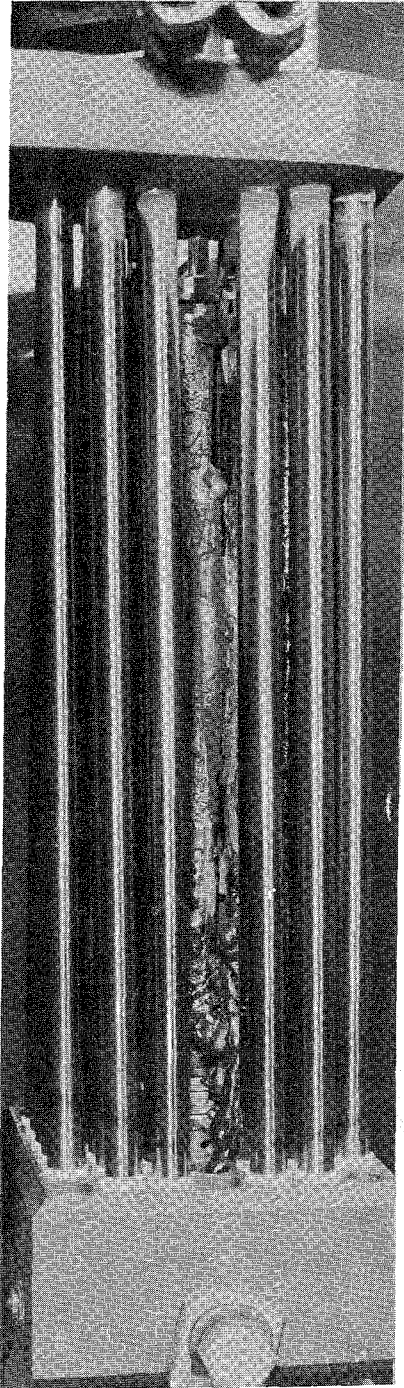
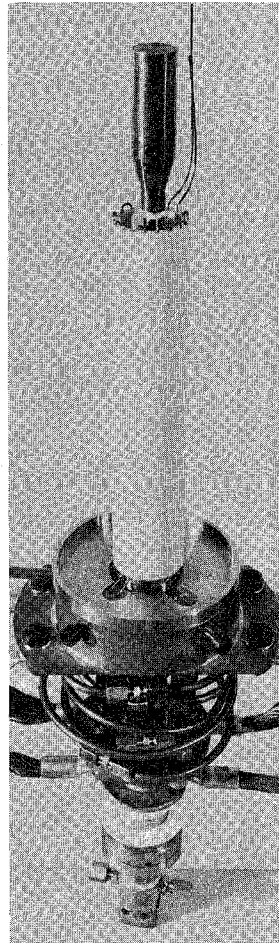
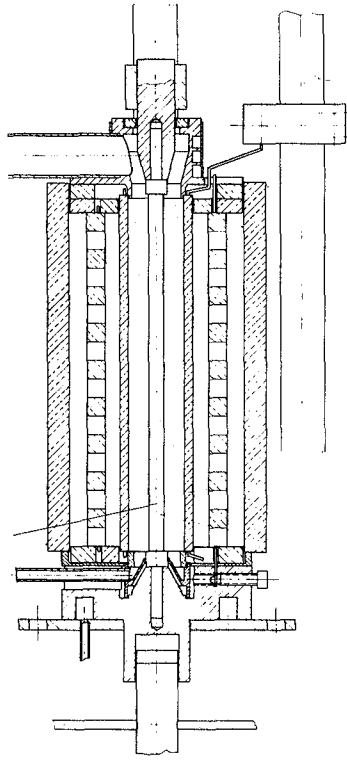


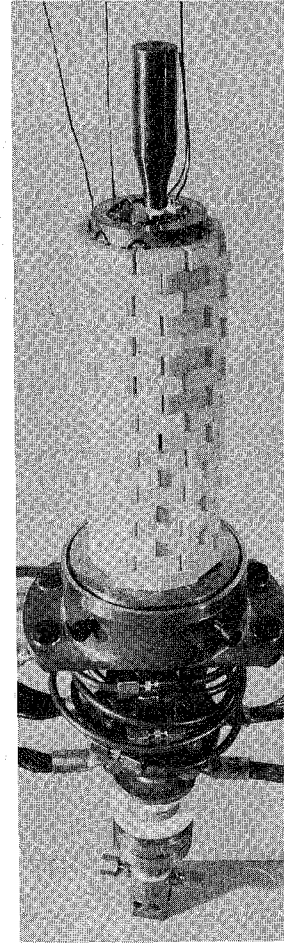
Abb.: 4241-3

Die linke Seite zeigt die Anordnung und ein Foto des in He aufgeheizten Bündels aus 7 beheizten Simulatoren (●) und 30 Reflektorstäben (○). Die rechte Seite gibt die sieben Simulatoren und 2 angeschmolzene Stäbe nach Entfernen der restlichen Reflektorstäbe wieder.

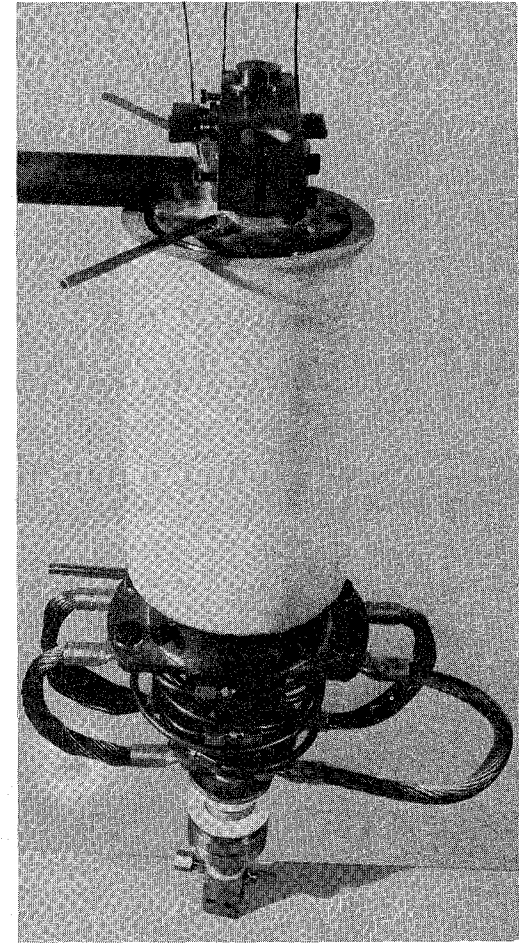
Brennstab



Heizrohr



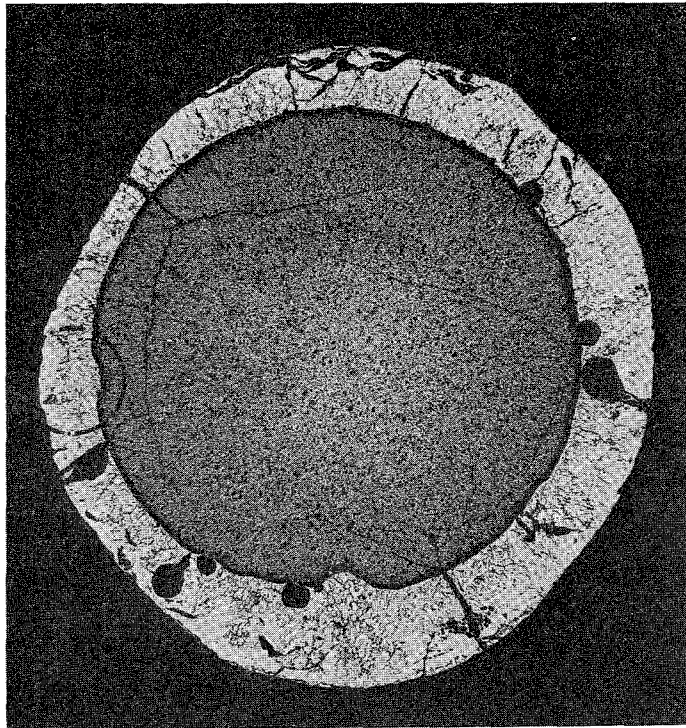
beheizter Strahlenschirm



unbeheizter Strahlenschirm

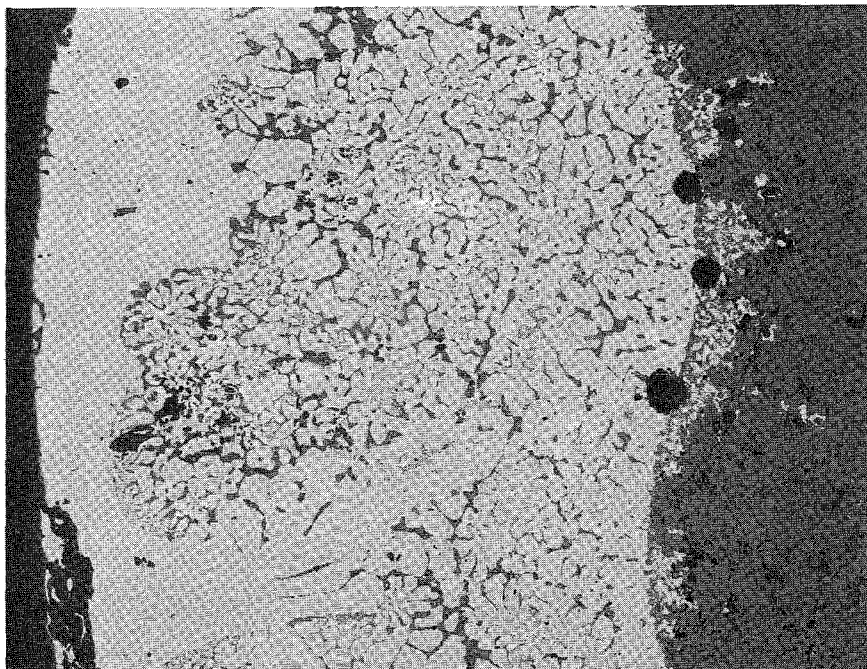
ABB: 4241-4

Schematische Darstellung und Aufbaustufen des Strahlungs-ofens für Stäbe mit Vollpellets.



10:1

Ausschnitt 100:1



Zirkaloy  $\longleftrightarrow$   $\text{UO}_2$

ABB: 4241-5

Beginn der Wechselwirkung zwischen Hülle und Pellet an einem im Strahlungssofen auf  $1850^\circ\text{C}$  aufgeheizten Brennstab.

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen

(H. Albrecht, K. Nolte, H. Wild, Institut für Radiochemie;  
D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, Abteilung  
Reaktorbetrieb und Technik;  
M.F. Osborne, Delegierter der US-NRC)

Einleitung

Seit Ende 1975 werden in der Schmelzanlage SASCHA Experimente durchgeführt, die der Lösung der folgenden Aufgaben dienen sollen:

- Entwicklung einer Versuchsanordnung, die es gestattet, die Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus LWR-Coreschmelzen unter möglichst realistischen Bedingungen zu messen
- Ermittlung der relevanten Parameter, die die Freisetzung beeinflussen; quantitative Erfassung der wichtigsten Abhängigkeiten
- Beschreibung des physikalischen und chemischen Verhaltens der Coreschmelze und der Freisetzungsergebnisse
- Diskussion der Übertragbarkeit der im Labormaßstab gewonnenen Ergebnisse auf die Dimension kommerzieller Leistungsreaktoren.

Zur Entwicklung der experimentellen Technik (Tiegelanordnung, Temperaturmessung, Analysentechnik) und zur Untersuchung des Verhaltens der Hauptkomponenten der Coreschmelze (Stahl,  $UO_2$ , Zircaloy) wurde bisher nur inaktives Schmelzgut verwendet, was wesentliche praktische Vorteile bei der Handhabung der Proben und bei der Zugänglichkeit der verschiedenen Komponenten des Versuchsstandes mit sich brachte. Parallel dazu wurde eine Anlage zur Herstellung von schwach aktivem Fissium aufgebaut und weitgehend fertiggestellt, so daß ab Frühjahr 1977 die ersten Versuche zur Bestimmung der Spaltprodukt-Freisetzung beginnen können.

Im folgenden wird eine Bilanz aus den bisherigen Experimenten mit 30 g Schmelzgut (meist Corium-E) gezogen, um daraus die wichtigsten Gesichtspunkte für die Fortsetzung des Versuchsprogramms abzuleiten.

## 1. Versuchsanordnung

### 1.1. Tiegelssystem

Nach allen bisherigen Versuchen scheint außer Zweifel zu stehen, daß auch in Zukunft die aus einem inneren  $\text{ThO}_2$ - und einem äußeren  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tiegel bestehende Anordnung (1) beibehalten wird. Dieses System hat sich sowohl unter oxidierender Atmosphäre (Luft, Wasserdampf) als auch unter inerten bzw. schwach reduzierenden Bedingungen (Ar bzw. Ar + 5 %  $\text{H}_2$ ) bis zu Temperaturen von ca.  $3000^\circ\text{C}$  bewährt, wenn eine Aufheizgeschwindigkeit  $\leq 100^\circ\text{C}/\text{min}$  eingehalten wurde. Allerdings gilt diese Empfehlung nur für die hochdichten (90 % TD), gesinterten  $\text{ThO}_2$ -Tiegel der Firma Zircoa; die zusätzlich untersuchten gepreßten  $\text{ThO}_2$ -Tiegel der Fa. Kelpin erwiesen sich als ungeeignet, denn sie konnten nur bis ca.  $2300^\circ\text{C}$  belastet werden.

Doch auch bei der Verwendung der erstgenannten Tiegel sind eine Reihe von Einschränkungen zu beachten:

- a) Ab ca.  $1800^\circ\text{C}$  ist eine mit steigender Temperatur zunehmende Diffusion von Schmelzgut in die Tiegelwand festzustellen.

Unter einer Wasserdampf-Atmosphäre ist der Angriff des Tiegelmateriale intensiver als unter Luft, weil die metallischen Schmelzgutkomponenten in stärkerem Maße oxidiert werden und die Verträglichkeit von oxidischen Tiegeln mit Oxidschmelzen allgemein schlechter ist als mit Metallschmelzen.

Unter Argon, wo die Coreschmelze zum überwiegenden Anteil metallisch vorliegt, erfolgt der stärkste Angriff auf das Tiegelmateriale durch das Zircaloy. Dies ergab sich deutlich durch 2 Experimente, bei denen das Schmelzgut einmal nur aus  $\text{UO}_2$  und Zircaloy und einmal nur aus  $\text{UO}_2$  und Stahl bestand. Im ersten Fall war der Tiegelboden bereits nach 0,6 min bei  $T = 2620^\circ\text{C}$  völlig aufgelöst; im zweiten Fall wurde er sogar bis  $2800^\circ\text{C}$  nur geringfügig angegriffen.

- b) Eine starke Zunahme des Tiegelangriffs setzt ein, wenn die metallischen Anteile der Schmelze zu sieden beginnen, d.h. bei  $T > 2600^\circ\text{C}$  für Systemdrücke  $\geq 0,8$  bar. Diese Siedevorgänge wurden nur unter Ar und Luft beobachtet. Die Schmelze stieg dabei im Tiegel hoch (vgl. Abb. 4243-1), und es kam zu einem stoßweisen Auswurf von Partikeln mit Massen bis zu einigen Gramm. Unter Wasserdampf dagegen verhielt sich die Schmelze bis zu Temperaturen von  $2900^\circ\text{C}$  (und Drücken  $\geq 1,5$  bar) relativ ruhig, d.h. es kam weder zum Aufquellen noch zur Eruption von Schmelzgutpartikeln (vgl. Abb. 4243-2).

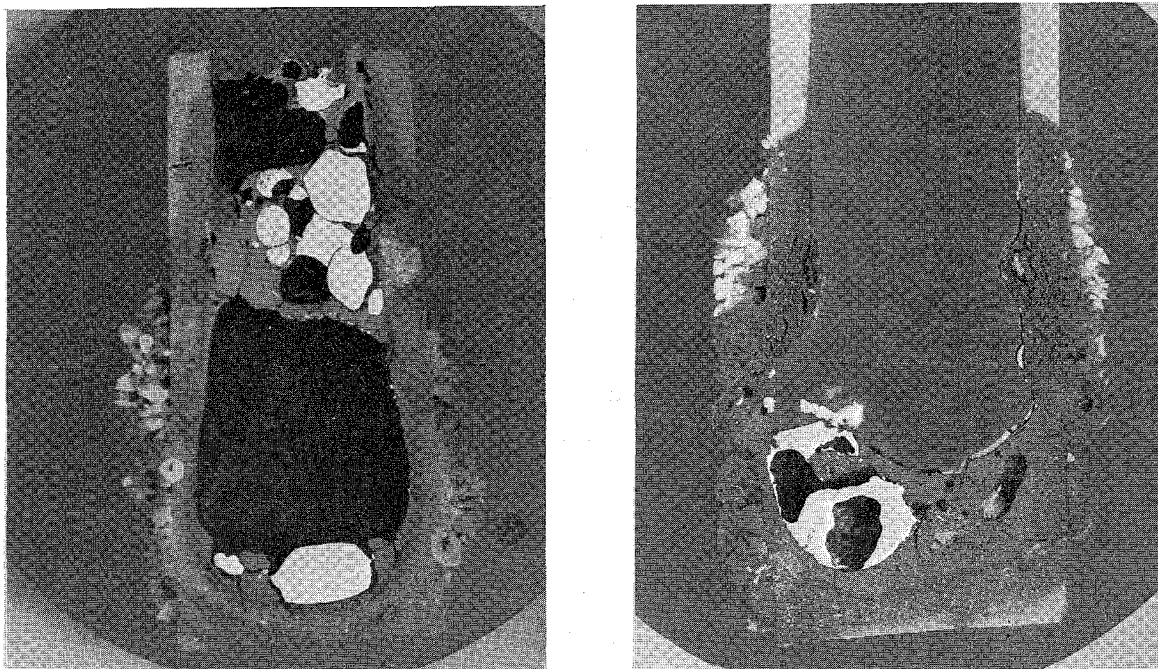


Abb. 4243-1 und -2: Corium-E-Schmelze in  $\text{ThO}_2$ -Tiegeln nach Versuchen unter Luft (links,  $T_{\text{max}} = 2700^\circ\text{C}$ ) und Wasserdampf (rechts,  $T_{\text{max}} = 2900^\circ\text{C}$ )

- c) Bei Versuchen mit Maximaltemperaturen  $\geq 2800^\circ\text{C}$  wurden von der Corium-schmelze ca. 10 g  $\text{ThO}_2$  aus der Tiegelwand ausgewaschen; umgekehrt sind mehrere Gramm Schmelzgut in die Tiegelwand eindiffundiert, so daß sich dadurch eine erhebliche Veränderung der Schmelzgutzusammensetzung ergab. Trotz dieser Auswascheffekte an der Tiegelinenseite konnte ein Auslaufen der Schmelze bisher in allen Versuchen vermieden werden, denn ab ca.  $2500^\circ\text{C}$  sintert der zwischen dem Schmelztiegel und dem äußeren Schutztiegel befindliche  $\text{ThO}_2$ -Gries in zunehmendem Maße am Schmelztiegel fest und verstärkt so die mechanische Stabilität der Tiegelwand.
- d) Für die Freisetzung ist von Bedeutung, daß durch das Hochsteigen der Schmelze (in Argon und Luft) eine starke Vergrößerung des Oberflächen/Volumen-Verhältnisses eintrat; dadurch entstanden für das Abdampfen der verschiedenen Schmelzgutkomponenten extrem günstige Bedingungen, wie sie bei größeren Schmelzgutmassen als 30 g mit Sicherheit nicht vorliegen.



Konsequenzen: Die Einflüsse der Wechselwirkung zwischen Tiegelmaterial und Schmelze sowie des extremen Oberflächen/Volumen-Verhältnisses auf die Freisetzung lassen sich durch Vergrößerung der Schmelzgutmassen auf 500-1000 g reduzieren. Die entsprechenden experimentellen Voraussetzungen hierfür (größere Schmelztiegel, höhere Betriebsleistung des HF-Generators) sind seit längerem in Vorbereitung (2).

Bei zukünftigen Experimenten sollte der Atmosphärendruck  $\geq 2$  bar betragen, denn niedrigere Drücke sind bei einem Coreschmelzen-Unfall weder im Druckbehälter noch im Containment zu erwarten. Experimentell wirkt sich ein erhöhter Systemdruck insofern positiv aus, als der Einsatzpunkt des Metallsiedens und damit des verstärkten Tiegelangriffs zu Temperaturen  $\geq 2800^{\circ}\text{C}$  verschoben wird (vgl. Abb. 4243-3).

## 1.2. Temperaturmessung

Die bisher angewandte Methode, bei der mit Hilfe eines Quotienten-Pyrometers die Oberflächentemperatur der Schmelze gemessen wird, hat sich im wesentlichen bewährt. Die erreichbare Genauigkeit liegt bis zu Temperaturen von  $2500^{\circ}\text{C}$  bei ca.  $\pm 50^{\circ}\text{C}$  ( $\cong \pm 2\%$ ). Dann treten durch zunehmende Abdampfung und Flammen über der Schmelze Abgleichschwankungen in der Anzeige auf. Besonders nach dem Einsetzen des oben beschriebenen Stahlsiedens und der Schmelzgut-Eruptionen ist die Oberfläche zeitweise optisch nicht mehr zugänglich. Die dadurch entstehende Unsicherheit bei der Beurteilung der gemessenen Temperatur beträgt schätzungsweise  $\pm 100^{\circ}\text{C}$  (diese Angabe entspricht der Schwankungsbreite des Pyrometer-Schreibers).

Wegen der geringen Schmelzbaddtiefe bei 30 g Schmelzgut und der intensiven Umwälzung durch die induktive Aufheizung ist anzunehmen, daß im Inneren der Schmelze die gleiche Temperatur herrscht wie an der Oberfläche.

Als sehr schwierig erwies es sich, die Schmelzproben entsprechend einer vorgegebenen Temperaturkurve aufzuheizen und eine bestimmte Zeit auf konstanter Maximaltemperatur zu halten.

Es gibt dafür 2 wesentliche Gründe:

- a) Die Ankopplungsbedingungen ändern sich während bestimmter Versuchsphasen sehr schnell und in unterschiedlichem Ausmaß, so z.B. während des Schmelzens der einzelnen Komponenten, bei der Diffusion von Schmelzgut in die Tiegelwand, beim Hochsteigen der Schmelze im Tiegel, durch Veränderung des elektrischen Widerstandes mit der Temperatur oder infolge von chemischen Reaktionen (Oxidation).

- b) Der Wärmeinhalt der Schmelze ändert sich zusätzlich durch exotherme bzw. endotherme Reaktionen der Schmelzgutkomponenten untereinander sowie mit dem Tiegelmaterial und v.a. mit der Atmosphäre. Die Stärke und Zeitdauer dieser Reaktionen hängt wiederum ab von der Schmelzgut-Zusammensetzung, der räumlichen Verteilung, dem Druck, der Temperatur etc.

Bis zu einem gewissen Grade kann man diese Einflüsse auf die Schmelzguttemperatur durch Regelung der Generatorleistung kompensieren; die gezielte Untersuchung einiger Parameter wie z.B. des Einflusses der Haltezeit bei vorgegebener Temperatur auf die Freisetzung ist jedoch nur näherungsweise möglich. Ähnliches gilt für die Reproduzierbarkeit einzelner Freisetzungsergebnisse.

### 1.3. Analysenmethode

Die aktivierungsanalytische Bestimmung der Freisetzungsergebnisse aus inaktiven Corium-Schmelzen stellt, wie bereits aus früheren Untersuchungen (3) hervorging, im vorliegenden Fall die geeignetste Methode dar. Folgende, im Corium z.T. sogar nur als Spuren vorkommende Elemente lassen sich bestimmen

Fe, Cr, Ni, Mn, Co, Sb, Zr, Mo, U.

Bei der Auswertung der  $\gamma$ -Spektren ist jedoch darauf zu achten, daß die Nuklide Zr-95 und Mo-99 nicht nur durch die Aktivierung der Elemente Zr und Mo entstehen, sondern zusätzlich durch die Spaltung von Uran. Es zeigte sich, daß der Spaltprodukt-Anteil in den bestrahlten Freisetzungsergebnissen in der Regel zwischen 70 und 95 % der genannten Nuklide ausmacht, so daß nach Abzug dieses Anteils die resultierenden Werte für die Zr- und Mo-Konzentration mit relativ hohen Unsicherheiten ( $\geq 100$  %) behaftet sind.

Ähnliche Fehlerbreiten können sich bei der aktivierungsanalytischen Bestimmung von Co und Ni ergeben, wenn die Schmelzproben auf Temperaturen  $< 2400^{\circ}\text{C}$  erhitzt werden, weil dann die freigesetzten Mengen in der Nähe der Nachweisgrenze liegen. Co ist nämlich in einer 30 g Corium-E-Probe nur mit einem Anteil von 0,02 g enthalten und Ni kann nur über die Reaktion  $\text{Ni-58}(n,p)\text{Co-58}$  bestimmt werden, die bei der Reaktorbestrahlung mit sehr niedriger Ausbeute abläuft.

Die freigesetzten Anteile der Elemente Fe, Cr, Mn, Sb und U sind dagegen mit einer Genauigkeit von mindestens +20 % bestimmbar.

Ergänzend sei darauf hingewiesen, daß das Analysenverfahren durch gleichzeitig mitbestrahlte Standards und durch mehrfache Messung der Proben zu verschiedenen Zeiten nach der Aktivierung bereits weitgehend optimiert wurde. Als Fazit ergibt sich daher:

Die quantitative Bestimmung inaktiver Freisetzungserzeugnisse mit Hilfe der Aktivierungsanalyse erfordert einen hohen Zeit- und Rechenaufwand. Sie bleibt auf die angegebenen Elemente beschränkt, da diese eine Matrix bilden, die bereits zu sehr komplexen  $\gamma$ -Spektren führt und außerdem die Spaltprodukte im Durchschnitt in wesentlich geringeren Konzentrationen vorliegen. Die künftigen Versuche werden deshalb mit schwach aktivem Fissium durchgeführt. Die Spaltprodukte werden dabei durch direkten  $\gamma$ -spektroskopischen Nachweis bestimmt.

Zur Kontrolle der bisher ermittelten Freisetzungsergebnisse für die Stahl- und Zircaloy-Komponenten (s.u.) sollen parallel zu den Versuchen mit Fissium auch einige Versuche mit Corium durchgeführt werden, bei dem die Stahl- und Zircaloy-Anteile vorher im FR2 aktiviert wurden.

## 2. Ergebnisse

### 2.1. Freisetzungsversuche unter Luft

Bei Schmelzversuchen unter Luft wurden aus den Corium-Proben von 30 g bis zu einer Temperatur von  $2850 \pm 100^\circ\text{C}$  maximal 1,2 Gew.-% freigesetzt. Dieser Wert beinhaltet die aktivierungsanalytisch bestimmten Massenanteile aller in 1.3 genannten Komponenten; er wurde ermittelt, indem nicht nur die auf den Membranfiltern abgeschiedenen Aerosole, sondern auch die Ablagerungen an den Rohrwänden der Transportstrecke zwischen dem Schmelztiegel und den Filtern bestimmt wurden.

Als flüchtigste Komponenten erwiesen sich Mn und Sb mit einer relativen (d.h. auf die Konzentration im Schmelzgut bezogenen) Freisetzung von 11-17 % bei  $2850^\circ\text{C}$ . Die übrigen Stahlkomponenten sowie Zr zeigten eine mittlere Flüchtigkeit mit Freisetzungswerten zwischen 1,0 und 5 %, während U nur bis maximal 0,4 % freigesetzt wurde.

Wesentliche Unterschiede ergaben sich auch beim Transportverhalten: während die freigesetzten Anteile von U und Zr zu ca. 90 % im Glasabsaugsystem abgeschieden wurden, waren es bei den übrigen Elementen nur ca. 30-50 %, vgl.

(2). Bei allen Elementen zeigte sich im Temperaturbereich zwischen 2100° und 2900°C eine Zunahme der Freisetzung um etwa 2 Größenordnungen. Eine Variation des Systemdrucks zwischen 1,0 und 2,0 bar führte zu keinen meßbaren Unterschieden in der Freisetzung.

### 2.2. Freisetzungsversuche unter Ar und Ar + 5 % H<sub>2</sub>

Die Schmelzversuche unter neutralen bzw. schwach reduzierenden Bedingungen ließen dagegen im Temperaturbereich zwischen 2600° und 2800°C eine ausge-

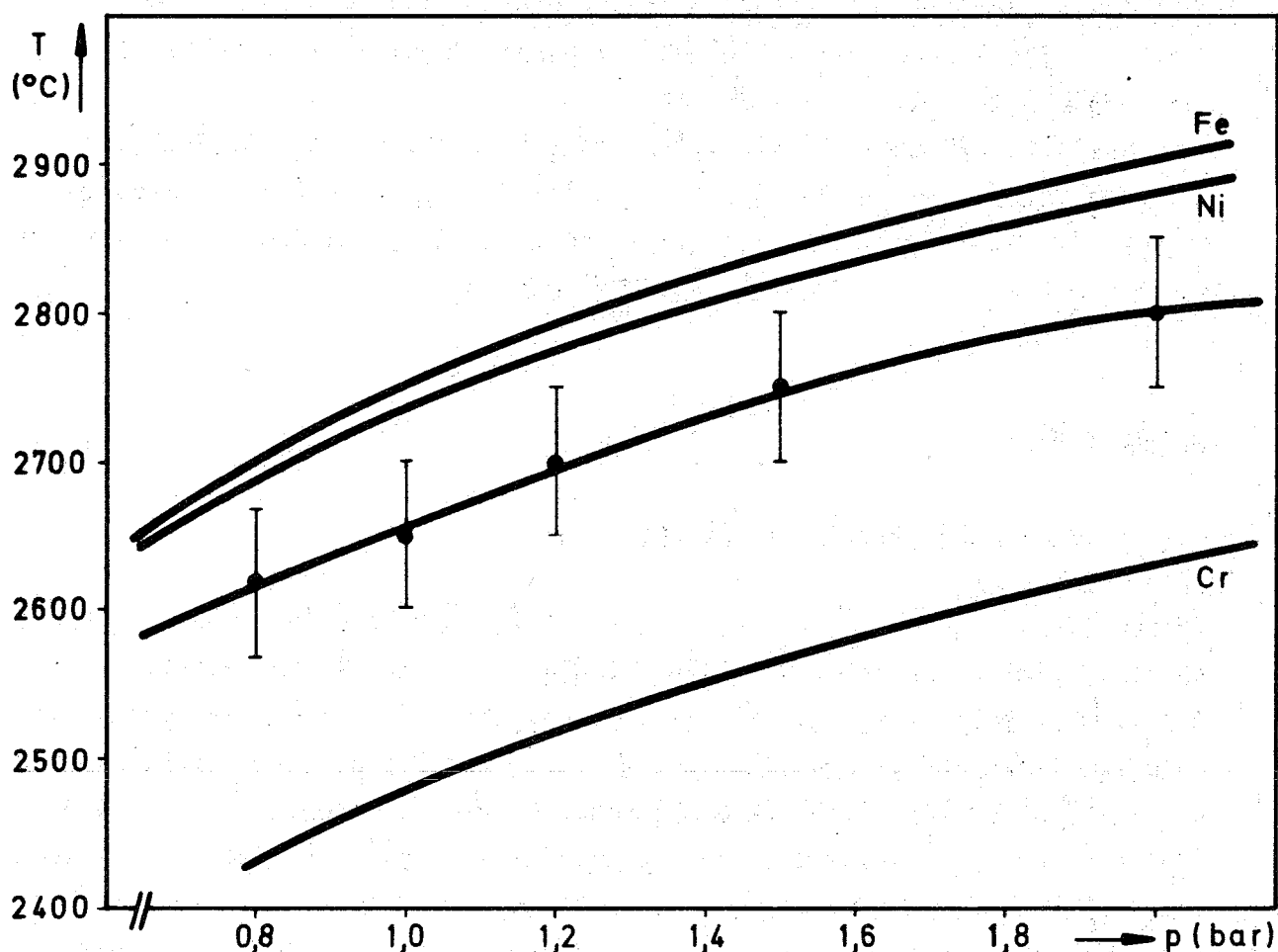


Abb. 4243-3: Temperatur des Siedebeginns der metallischen Komponenten von Corium-E unter Argon als Funktion des Druckes; im Vergleich dazu die Siedepunktskurven von Fe, Cr und Ni nach Handbook of Chemistry and Physics, 55. Ed. (1975)

prägte Druckabhängigkeit erkennen (vgl. 1.1.b): Bei einer bestimmten Temperatur, die offensichtlich von der Siedetemperatur der Stahlkomponenten abhing, nahm die Freisetzung innerhalb kurzer Zeit (<3 min) um etwa eine Größenordnung zu. In einer zusätzlichen Versuchsreihe wurde daher die Temperatur des Siedebeginns als Funktion des Atmosphärendrucks bestimmt. Das Ergebnis ist in Abb. 4243-3 dargestellt. Man sieht, daß die gemessene Kurve zwischen den Siedepunktkurven von Fe, Cr und Ni liegt und sogar parallel zu ihnen verläuft. Dies weist eindeutig darauf hin, daß die schon erwähnten Schmelzgut-Eruptionen durch das Stahlsieden erklärt werden können und die auf die Schmelze wirkenden Kräfte des Induktionsfeldes höchstens eine sekundäre Rolle spielen.

Bei Temperaturen unterhalb des Siedebeginns weichen die Freisetzungswerte nach den bisher durchgeführten Analysen nicht stark von den Ergebnissen für Luft ab. Insgesamt wurde unter Ar bzw. Ar + 5 % H<sub>2</sub> eine Serie von 22 Experimenten durchgeführt. Mit ihnen soll geklärt werden, bei welchen Elementen sich grundsätzliche Unterschiede im Freisetzungsverhalten unter reduzierenden, inerten und oxidierenden Bedingungen zeigen und welche Rückschlüsse man daraus auf die chemische Form der freigesetzten Produkte ziehen kann.

### 2.3. Freisetzungsversuche unter Wasserdampf

Unter Wasserdampf wurden bisher 7 Versuche durchgeführt, die jedoch z.T. noch keinen konsistenten Zusammenhang der Freisetzungsergebnisse liefern. Bemerkenswert ist jedoch, daß die integrale Freisetzung im Temperaturbereich zwischen 2600<sup>o</sup> und 2900<sup>o</sup>C um etwa eine Größenordnung niedriger ausfällt als unter Luft. Der Grund dafür liegt vermutlich in der stärkeren Oxidation des Schmelzgutes und dem dadurch bedingten Ausbleiben von Siedevorgängen der metallischen Komponenten.

Zur Zeit wird eine Meßreihe durchgeführt, um die Zeit- und Temperaturabhängigkeit des Oxidationsverhaltens genauer zu untersuchen.

### 3. Weiterer Ausbau der Schmelzanlage SASCHA

Zur Vorbereitung der endgültigen behördlichen Abnahme der Anlage wurden u.a. folgenden Arbeiten durchgeführt:

- Beschaffung eines hochempfindlichen Druckmeßgerätes für die Dichtheitsprüfung der Anlage im Überdruckbereich
- Anschluß von Meßgeräten zur kontinuierlichen Überwachung der Boxenabluft-Anlage und zur Messung der Abluft-Aktivität
- Installation einer Absaugvorrichtung für sämtliche Ofenluken, um eine Kontamination der Raumluft beim Bruch eines Ofenfensters zu vermeiden.

Weiterhin war eine funktechnische Prüfung des Hochfrequenz-Generators durch die Deutsche Bundespost erforderlich. Sie verlief ohne Beanstandungen.

Die Abwicklung des Auftrags für die Installation eines HF-Generators mit höherer Leistung (2) wurde mit der Lieferfirma im einzelnen festgelegt. Die induzierte Leistung im Werkstück soll 30 kW betragen und mit einem HF-Röhrengenerator erzeugt werden. Bei einer Arbeitsfrequenz von 40-50 kHz lassen sich sowohl die Induktorspannung wegen der Gefahr von Überschlägen auf einen Wert  $\leq 250$  V reduzieren, als auch die Übertragungsverluste technisch beherrschen.

Bisherige Erfahrungen mit einem vorhandenen thyristorgesteuerten Generator zeigen, daß sich aufgrund des Phasenanschnitts im unteren Leistungsbereich eine Störfrequenz von 150 Hz auf das übrige Netz auswirkt. Wegen der Beeinträchtigung von Fernsehaufzeichnungen und anderer am Netz angeschlossener Meßgeräte müssen diese Störungen eliminiert werden. Dies soll erreicht werden durch Speisung des Anodentrafos über einen Stelltrafo.

Ferner müssen infolge Umrüstung auf Heißwasserkühlung und Temperierung die Kombination HF-Durchführung - Induktor gemäß TRD 802, Zwergdampfkessel, neu gebaut werden.

Das zur Temperierung und Kühlung des Induktors erforderliche Heißwasser-Heiz-Kühlaggregat konnte bei einer Herstellerfirma bestellt werden.

Zur Beherrschung von Tiegeldurchbrüchen mit Auslaufen von Corium-Schmelzen in den Ofenkessel und gleichzeitigem Bruch des Induktors wurde ein technisches Konzept erstellt, das eine Auffangvorrichtung für die Schmelze sowie eine Abschaltung der HF-Leistung und der Induktorkühlung vorsieht.

#### 4. Ausbau der Anlage zur Fissium-Fabrikation (FIFA)

Bei der Einwaage der Tracernuklide (4,5) wird eine Genauigkeit von  $\pm 0,1$  mg angestrebt. Dazu wurde eine Vorrichtung für Manipulatorbetrieb entwickelt und erprobt. Dabei wird ein zylindrischer Behälter mit konischer Auslauföffnung verwendet, der in die Halterung eines Vibrationsgestelles eingespannt wird. Die Dosiermenge wird durch die Neigung des Behälters, Auswahl der Düsenöffnung und Vibratorzuschaltung gesteuert. Es zeigte sich, daß bei optimaler Auswahl der Einflußparameter die gewünschte Dosiergenauigkeit erreicht werden kann.

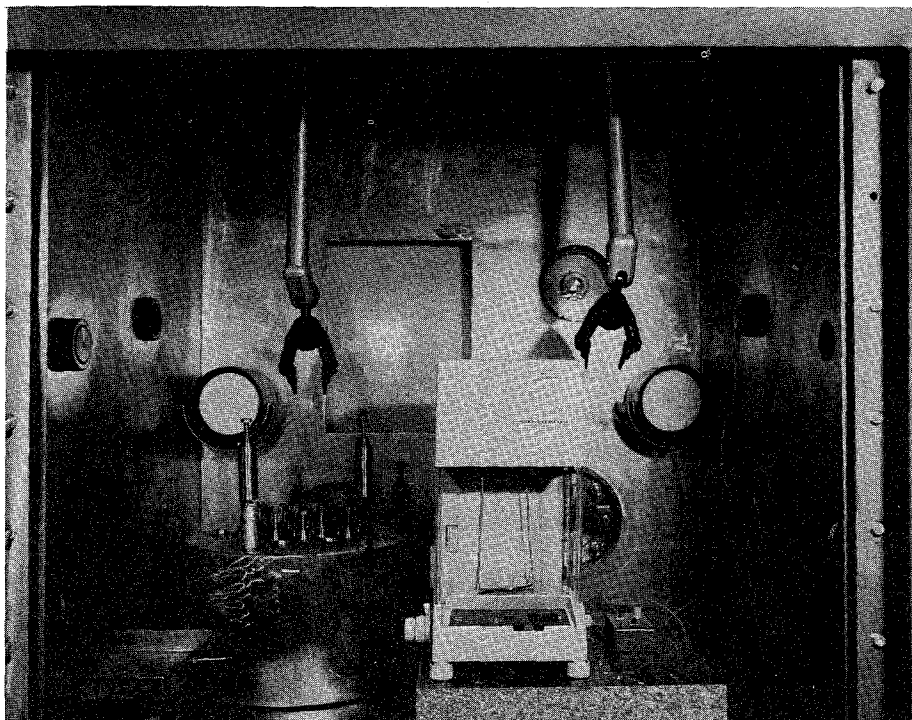


Abb. 4243-4: Bleizwischenlager für Tracernuklide mit Präzisionswaage  
(Abschirmwand abgebaut)

Weitere Versuche dienten der fernbedienten Handhabung beim Mahlen, Pressen und Chargieren des Sinterofens.

Am 11.6.1976 konnte die Lieferfirma des Sinterofens die Funktion und die geforderte Leckrate für manuelle Steuerung nachweisen. Seit Ende Oktober 1976 steht die Boxenlufttrocknungsanlage betriebsbereit zur Verfügung. Die Dichtheitsprüfung der Boxenanlage wurde am 8.12.1976 im Beisein eines Vertreters des Landesamtes für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin mit dem Nachweis der Integralen Leckrate von  $< 0,05$  vol % pro Stunde erfolgreich abgeschlossen.

Zusätzlich wurde eine Handschuhbox installiert, in der die Tracermaterialien vor der Bestrahlung unter trockener Atmosphäre in Quarzglasampullen eingewogen werden.

Eine Sicherheitsbetrachtung wurde erstellt und eine Erweiterung der vorhandenen Umgangsgenehmigung beantragt. Entsprechend einer Auflage der Aufsichtsbehörde müssen drei  $\gamma$ -Meßgeräte vor der Boxenanlage fest installiert werden.

Die Anlage befindet sich z.Z. im Probetrieb mit inaktiven Tracermaterialien; der Betrieb mit aktiven Stoffen kann voraussichtlich im März 1977 aufgenommen werden. Die Abb. 4243-5 zeigt den derzeitigen Ausbaustand der Anlage.

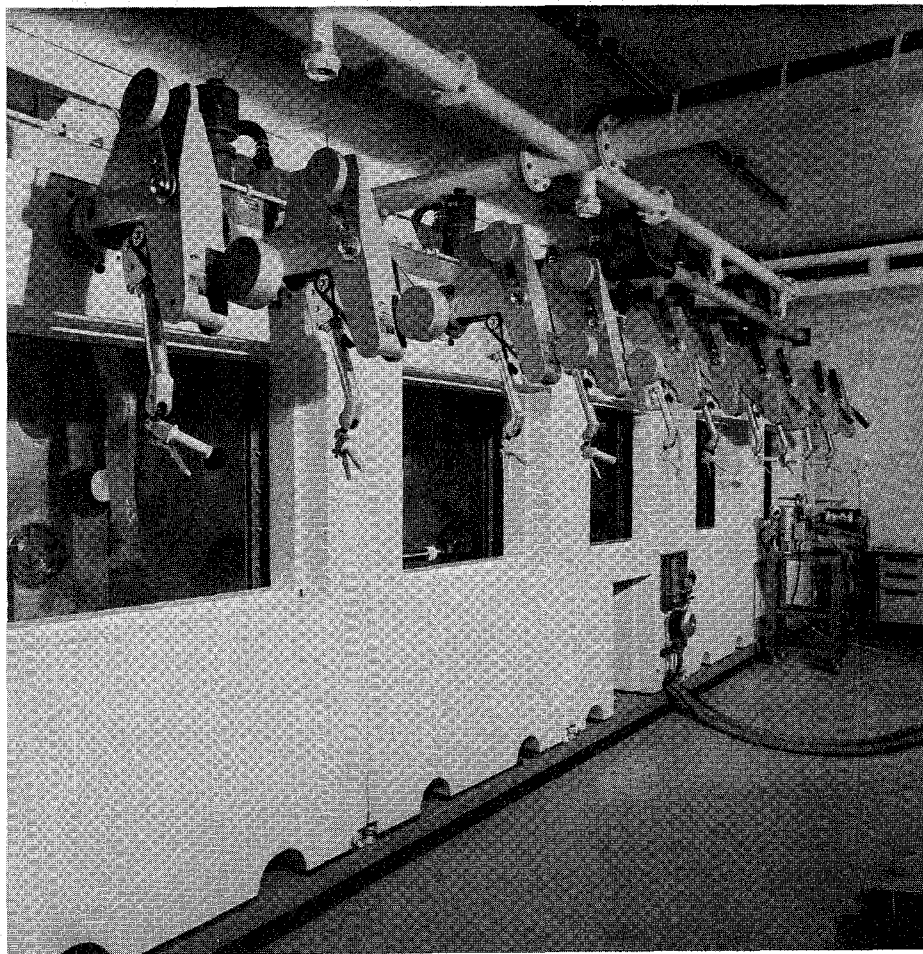


Abb. 4243-5: Ansicht der Anlage FIFA



Literatur

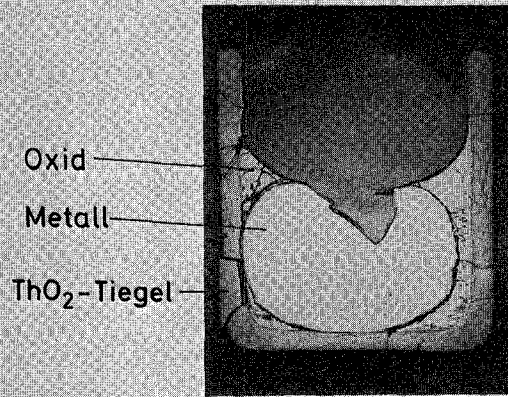
- (1) H. Albrecht, M.F. Osborne, H. Wild:  
Experiments on Determination of Fission and Activation Product  
Release During Core Meltdown, OECD-NEA Meeting, Spatind, Norwegen,  
12.-16. Sept. 1976
- (2) PNS-Halbjahresbericht 1976/1, KFK-2375, p. 404 (1976)
- (3) PNS-Halbjahresbericht 1975/2, KFK-2262, p. 347 (1976)
- (4) PNS-Halbjahresbericht 1975/1, KFK-2195, p. 318 (1975)

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

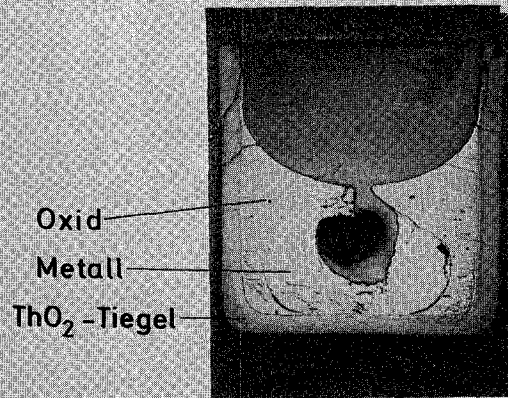
1. Untersuchungen zur Zusammensetzung der Schmelzen im RDB

Als wesentlichste Materialien sind im LWR vor dem Schmelzen im Kontakt miteinander:  $UO_2$  + Spaltprodukte mit Zry sowie Zry mit Stahl. Hinzu kommt schon vor einem hypothetischen Unfall eine Teiloxidation sowohl an der Innenseite des Zry als auch an der Hüllaussenseite. Die Temperaturen des Schmelzbeginns an diesen Kontaktstellen werden durch eine zunehmende Oxidation erhöht, so dass man für den realistischen Fall mit den Temperaturen der zumindest teiloxidierten Systeme rechnen kann. Im Laufe des Abschmelzens nehmen die Schmelzen weiter Sauerstoff auf, so dass im RDB ein teiloxidiertes System vorliegt, d.h. es enthält sowohl flüssige Oxidphasen als auch Metallschmelzen. Diese sind bei Temperaturen, welche nicht allzusehr oberhalb der Schmelztemperatur der Komponenten liegen, nicht mischbar, wie es in Abb. 4244.1 an Hand von Tiegelversuchen demonstriert ist.

Der Mengenanteil der Oxidschmelze bzw. der Metallschmelze im RDB hängt vom Oxidationsgrad und von der Menge der aufgeschmolzenen Stahlbestandteile ab. Die Zusammensetzung der beiden Teilschmelzen, die im rechten Teilbild wiedergegeben ist, wird im wesentlichen vom Oxidationsgrad bestimmt. Wenn der Sauerstoff in die Schmelze nur durch den Brennstoff eingebracht wird (inerte Bedingungen), so besteht die Oxidschmelze aus flüssigem  $(U,Zr)O_2$ , die Metallschmelze enthält neben Stahl etwa aequimolare Mengen U und Zr gelöst. Mit steigender Oxidation der Gesamtschmelze nimmt der Uran- und Zirkongehalt in der Metallschmelze ab, die Menge der Uran-Zirkon-Mischoxid-Schmelze zu. Erreicht man den teiloxidierten Zustand, wo alles Zry oxidiert ist (in Abb. 4244.1 durch  $ZrO_2$  auf der Abszisse angedeutet, - der realistische Fall einer Coreschmelze dürfte nahe dieser Zusammensetzung liegen), so enthält die Metallschmelze weder Uran noch Zirkon, sondern ist eine reine Stahlschmelze. Eine weitere Oxidation führt zuerst zu einer Anreicherung des Chroms in der Oxidschmelze, verbunden mit einer Abreicherung in der Metallschmelze. Dem Chrom folgen dann Eisen und zuletzt Nickel, das die instabilsten Oxide bildet.



inert, 55 Stahl (Gew.%)



inert, 17 Stahl (Gew.%)

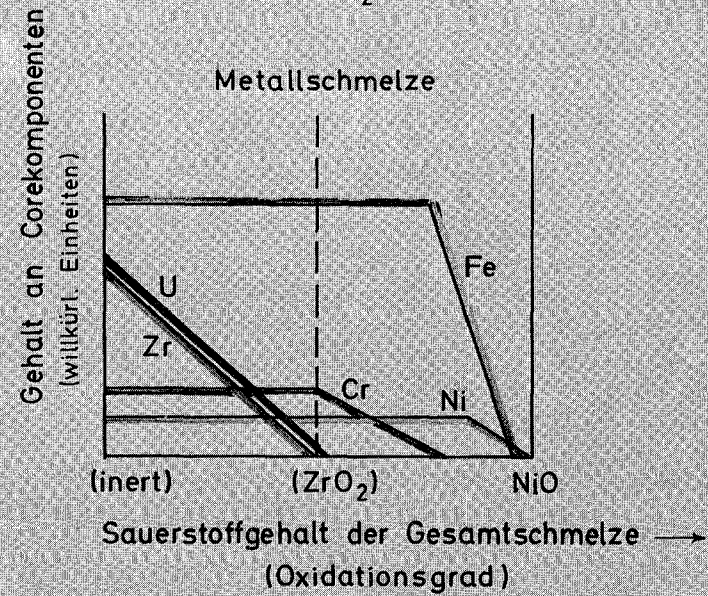
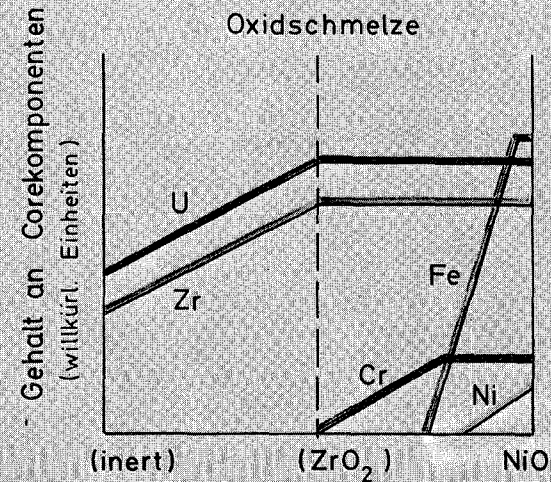
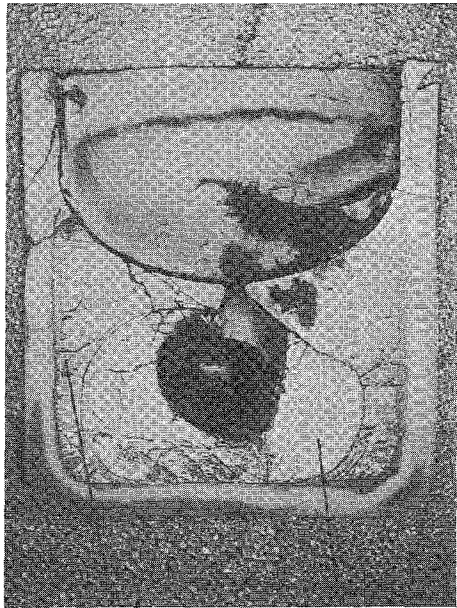


Abb. 4244-1: Mengenanteile (linkes Teilbild) und Zusammensetzung (rechtes Teilbild) der Schmelzen in Abhängigkeit vom Stahl und Sauerstoffgehalt

Mit diesen Änderungen in der Zusammensetzung der einzelnen Schmelzen ändern sich auch die Eigenschaften. Betrachtet man z.B. die Dichten der Oxidschmelze einerseits und der Metallschmelze andererseits, so erhält man ausgehend von etwa gleichen Dichten für Oxid und Metall bei inerten Bedingungen bei weiterer Oxidation für die Oxidschmelze eine gleichbleibende Dichte bis zum Zustand der Teiloxidation ( $ZrO_2$ ), gefolgt von einer Abnahme durch Lösung oxidierter Stahlkomponenten; für die Metallschmelze erhält man eine Abnahme der Dichte bis zum Zustand der Teiloxidation, bei weiterer Oxidation bleibt die Dichte im wesentlichen konstant. Für die Frage der Verteilung der Schmelzen im RDB spielt neben der Dichte auch das Benetzungsverhalten (in diesem Falle mit dem RDB) und die Thermohydraulik eine entscheidende Rolle. Es ist in Abb. 4244.2 eine Corium-A-Schmelze zu sehen, erschmolzen einmal im  $ThO_2$ -Tiegel und zum anderen im W-Tiegel. Die Dichten der Oxidschmelze einerseits und Metallschmelze andererseits sind hier sehr ähnlich. Man erkennt, dass im ersten Fall der Thoriumoxidtiegel von der Oxidschmelze gut benetzt wird, die Metallschmelze in die Oxidschmelze eingeschlossen ist, dass im Falle des Wolfram-Tiegels eine Schichtung auftritt, wobei die Metallschmelze eine grosse Oberfläche zum Tiegel sucht. Beide Tiegel sind nicht wechselwirkungsfrei gegenüber der Schmelze. Im einen Falle dringen Oxidkomponenten in das Tiegelmaterialein (oberes rechtes Teilbild) im anderen Falle Wolfram in die Metallschmelze (unteres rechtes Teilbild).

## 2. Untersuchungen zum Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in der Kernschmelze

Um die Freisetzung zu verstehen, ist die Kenntnis des Reaktionsverhaltens der Spaltprodukte in der Schmelze Voraussetzung. Nach 10% Abbrand (vgl. Abb. 4244.3; dieser hohe Abbrand soll die Reaktionen der Spaltprodukte deutlich werden lassen) würde die Menge der Spaltprodukte in molaren Anteilen bei einer Gesamtmenge der Schmelze entsprechend dem Flächeninhalt des grossen Kreises dem Flächeninhalt des kleinen Kreises entsprechen. Obwohl man nun mit 3-4% rechnet, bleibt die Menge beträchtlich (bei Corium-E sind es wegen des relativ geringen  $UO_2$ -Anteils entsprechend weniger). Hierbei sind auch die Spaltprodukte mitberücksichtigt, die leicht flüchtig sind - in der Abbildung durch



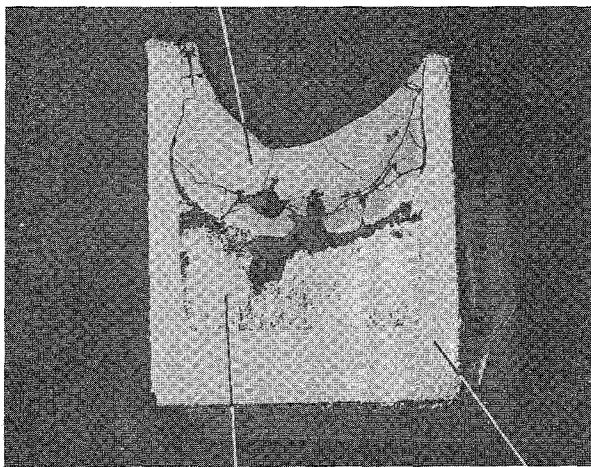
Oxid

Metall



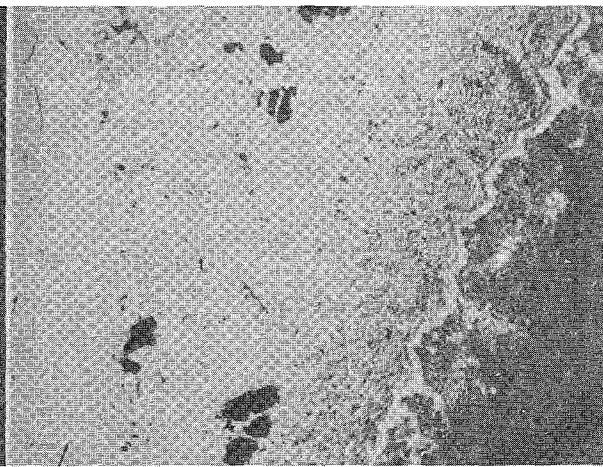
Oxid

ThO<sub>2</sub>-Tiegel



Metall

W-Tiegel



Oxid

Abb. 4244-2: Verteilung der Teilschmelzen (Corium-A) und Wechselwirkung mit Tiegeln bei Er-schmelzen im ThO<sub>2</sub>-Tiegel (obere Teilbil-der) bzw. im W-Tiegel (untere Teilbilder)

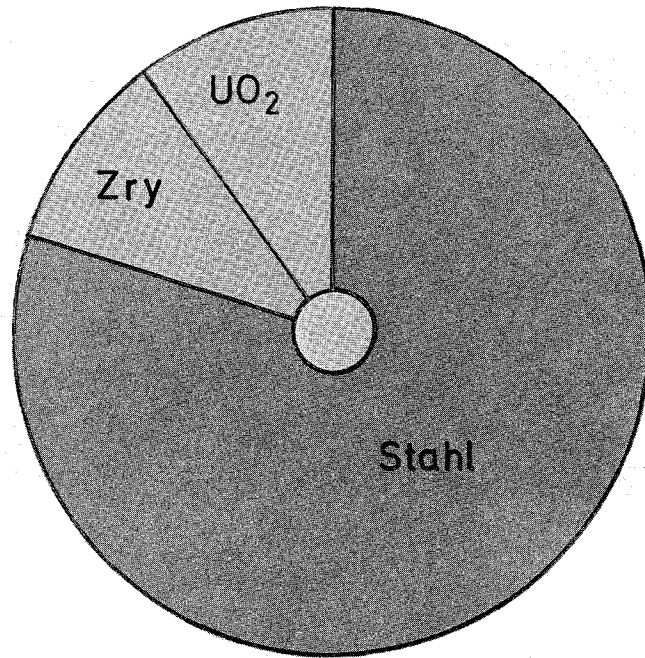
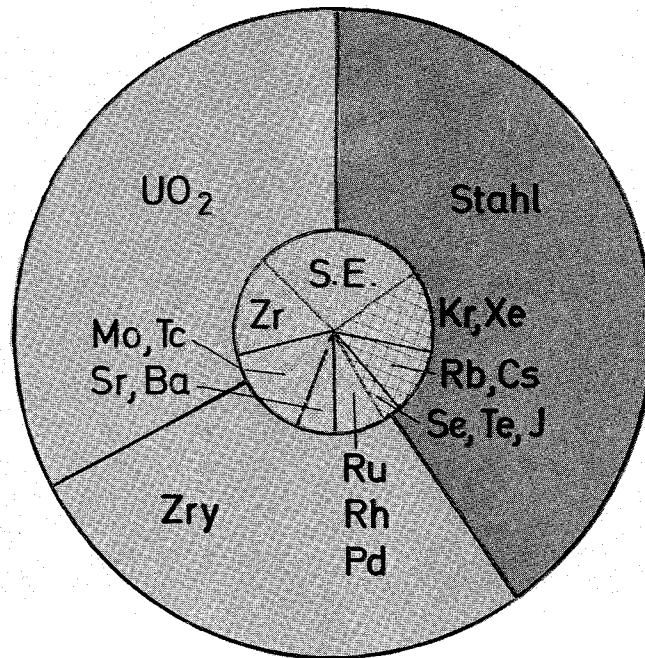


Abb. 4244-3: Spaltproduktgehalt (Mol-%) in einer Kernschmelze entsprechend Corium-A und Corium-E nach 10% Abbrand

das grobe Karo gekennzeichnet - und wahrscheinlich nicht in die Schmelze gelangen werden. Der grössere Anteil (die Menge der einzelnen Elemente entspricht der Fläche der Segmente in Abb. 4244.3) wird jedoch in der Schmelze gelöst sein. Dies sind die Seltenen Erden, Zr, Mo und Tc, Sr und Ba sowie die Platinmetalle Ru, Rh und Pd.

Typische Ergebnisse der bisherigen Experimente über das Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in der Schmelze sind in Abb. 4244.4 bis 4244.7 dargestellt. Die Untersuchungen wurden in Schmelzen entsprechend einer Zusammensetzung von Corium-A und Corium-E durchgeführt. Die Aufteilung der Spaltprodukte auf die Oxid- bzw. Metallphase wurde für beide Fälle in gleicher Weise gefunden. Die in Abb. 4244.4 bis 4244.7 wiedergegebenen Experimente entsprechen Versuchen mit Schmelzen entsprechend der Zusammensetzung von Corium-A, da hier das Verhalten der Spaltprodukte bei gleichem Abbrand infolge des höheren  $UO_2$ -Anteils deutlicher wird. Um die Anreicherungen der einzelnen Spaltprodukte deutlicher zu machen, wurden immer Probenstellen untersucht, wo sowohl Oxid- als auch Metallphase erfasst wurde. Abb. 4244.4 zeigt das Schliffbild des Übergangs zwischen der Oxid- und der Metallphase einer Corium-A Probe mit 20% Abbrand und markiert die mit der Mikrosonde untersuchte Stelle. Abb. 4244.5 zeigt dazu die entsprechenden Röntgenbilder. Besonders deutlich wird die Verteilung der Spaltprodukte (und der Corekomponenten) auch bei der Betrachtung eines sphärischen Oxidpartikels in der Metallschmelze in Abb. 4244.6. Man erkennt, dass bei inerten oder leicht

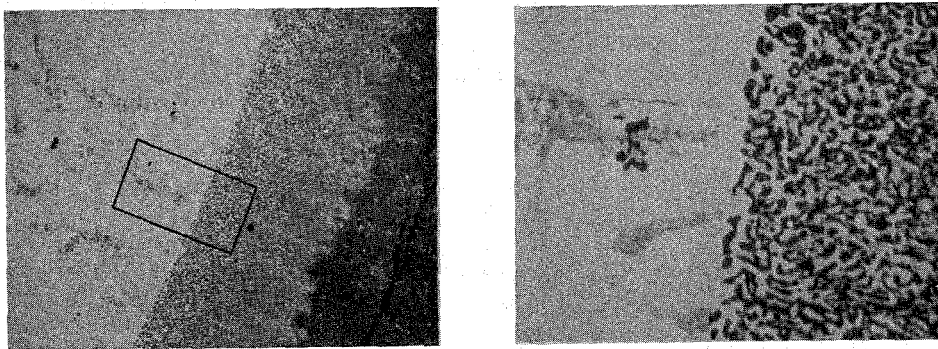
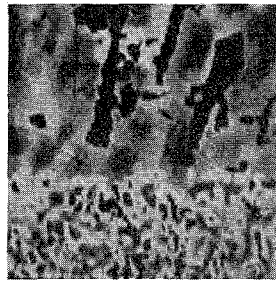
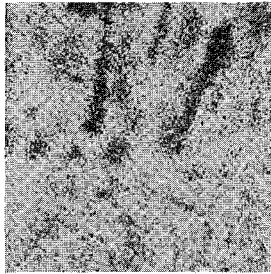


Abb. 4244-4: Schliffbild der Übergangszone Metallschmelze  
-> Oxidschmelze einer Corium-A Probe mit einem simulierten Abbrand von 20%.



Schliffbild

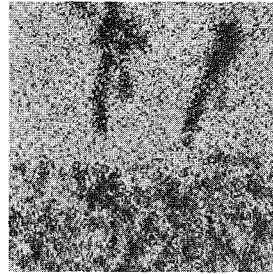
Probenstrombild (neg.)



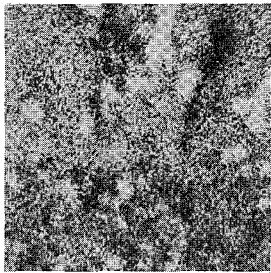
U



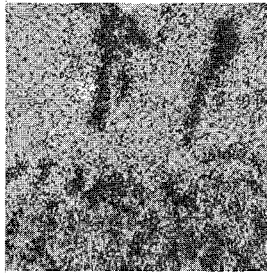
Zr



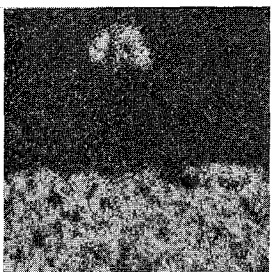
Fe



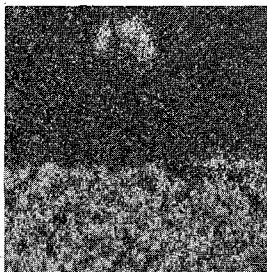
Cr



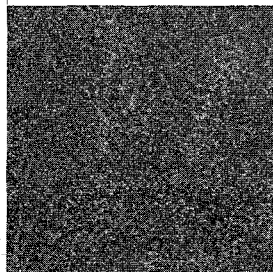
Ni



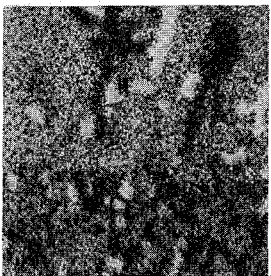
Nd



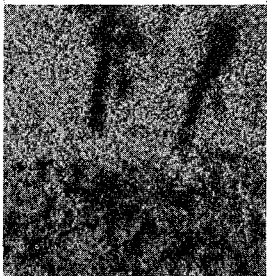
Ce



Sr



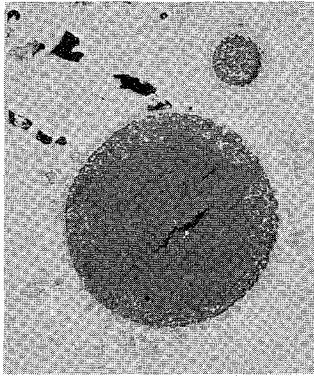
Mo



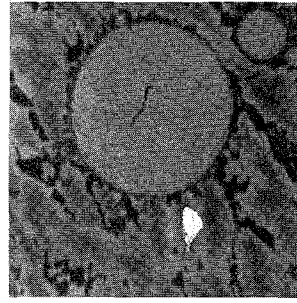
Ru

Abb. 4244-5: Röntgenbilder der Übergangszone Metallschmelze  
→ Oxidschmelze einer Corium-A Probe mit einem  
simulierten Abbrand von 20%

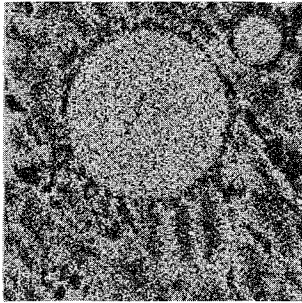




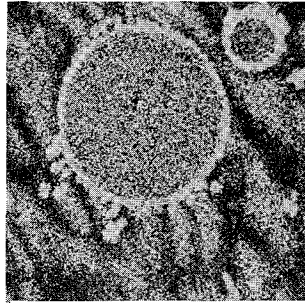
Schliffbild



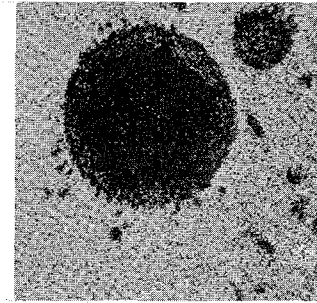
Probenstrombild (neg.)



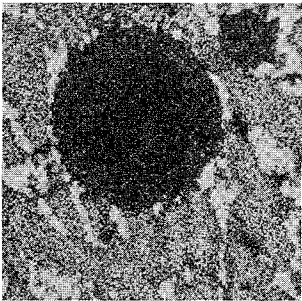
U



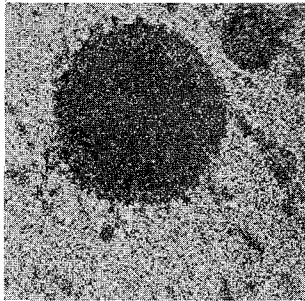
Zr



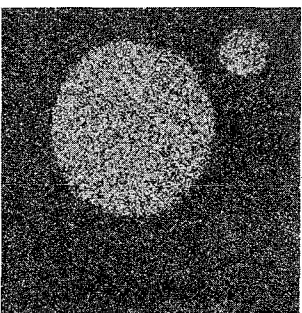
Fe



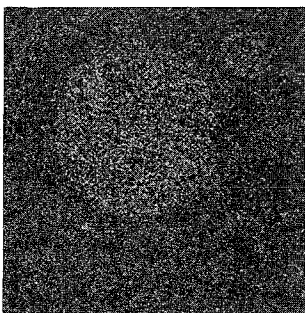
Cr



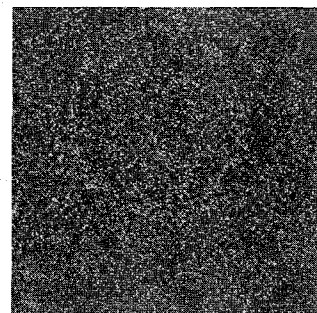
Ni



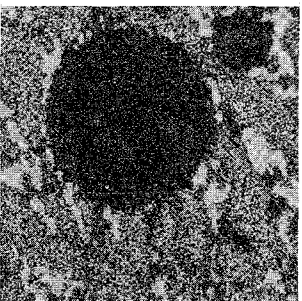
Nd



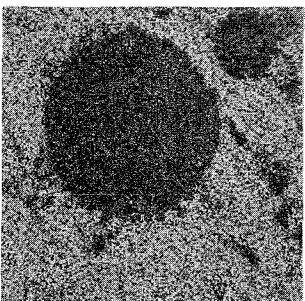
Ce



Sr

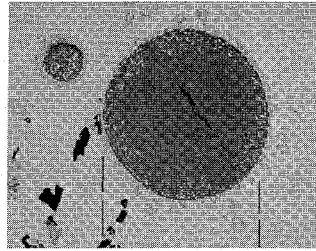


Mo

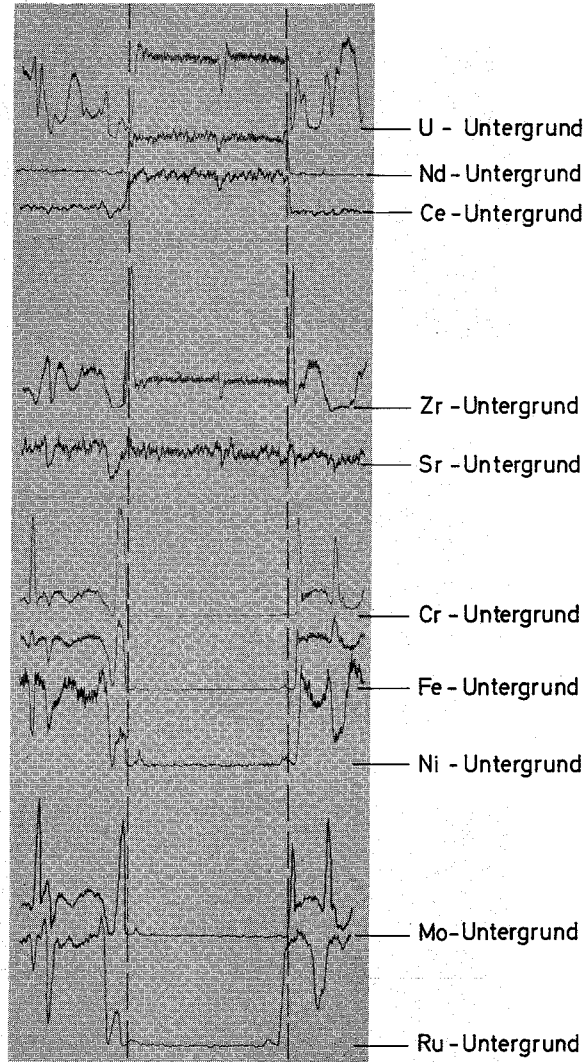


Ru

Abb.4244-6: Röntgenbilder eines Oxidpartikels in der Metallphase einer Corium-A Probe mit einem simulierten Abbrand von 20%



Schliffbild



4244-7: Konzentrationsprofil der Elemente in der Oxid- und Metallphase einer Corium-A Probe mit einem simulierten Abbrand von 20%

oxidierenden Bedingungen U und Zr sowohl in der Metallphase wie in der Oxidphase, die Stahlkomponenten nur in der Metallschmelze auftreten. Die Spaltprodukte aus der Reihe der Seltenen Erden sind homogen in der Oxidphase verteilt. Die Erdalkalimetalle treten in der Oxidphase auf und zeigen hier besondere Tendenz sich an das Zr zu binden. Die Platinmetalle sind homogen in der Metallphase gelöst. Mo tritt ebenfalls in der Metallschmelze auf und zeigt dort Tendenz sich an das Cr des Stahls zu binden. Obwohl solche Anreicherungen im flüssigen Zustand sicherlich nicht in dieser Form existieren, deuten sie doch auf zusätzliche Bindungskräfte hin, die bei der Spaltproduktfreisetzung möglicherweise manches Verhalten erklären können. Diese Bindung verschiedener Elemente in bestimmten Phasen oder mit bestimmten anderen Elementen wird noch deutlicher bei Betrachtung der Konzentrationsprofile der Elemente bei der gleichen Probe, die in Abb.4244.7 wiedergegeben sind. Die Konzentrationsprofile entsprechen einer Messung von der Metallphase über den Oxidpartikel in die Metallphase, wie auf dem Schliffbild der Abb. 4244.7 angedeutet. Bei den hier durchgeführten experimentellen Untersuchungen konnten die entstehenden Actinoide nicht simuliert werden. Uran tritt, wie gezeigt, sowohl in der Metallphase als auch in der Oxidphase auf, mit zunehmender Massenzahl werden die Actinoide jedoch durch zunehmende Lokalisierung der f-Elektronen den Seltenen Erden ähnlicher, so dass Pu, Am und Cm nur in der Oxidphase zu erwarten sind.

Eine weitere Diskussion des Reaktionsverhaltens muss nun den fortschreitenden Oxidationsgrad der Schmelze berücksichtigen. Untersuchungen an teiloxidierten Schmelzen sind im Gange.

### 3. Reaktionsverhalten der Coreschmelze mit aufgeschmolzenem Beton

Die bereits im letzten Halbjahr begonnenen Untersuchungen zur Wechselwirkung Corium/Beton wurden fortgesetzt. Die Auswertung der teiloxidierten Proben wurde weitergeführt, darüber hinaus wurden Versuche an vollständig oxidierten Proben sowie an nicht voroxidierten karbonathaltigen Proben durchgeführt.

### 3.1 Proben mit teilweise oxidiertem Corium

#### 3.1.1 Oxidationsverhalten der Coreschmelze mit Beton

Es liegen nunmehr auch die chemischen Analysenwerte der erstarrten Oxidschmelzen aus den Proben mit teilweise oxidiertem Corium vor (s. Tab. 4244.1). Im Vergleich zu den Proben mit nicht voroxidiertem Corium, deren Analysendaten bereits veröffentlicht sind /1/, weisen diese Proben in der Tat einen höheren Gehalt an Eisenoxiden auf. Dies war bereits vermutet worden, da bei teiloxidiertem Corium wegen des Überschusses an Sauerstoff (Zr verbrauchte hier keinen Sauerstoff, da es bereits als Oxid eingesetzt wurde) der Stahl verstärkt oxidiert werden konnte.

Anhand der Mikrosonden-Profilaufnahmen am Übergang Oxid-Metallschmelze (Abb. 4244.8) einer Probe mit teiloxidiertem Corium lassen sich Aussagen über die Reihenfolge der Oxidation der verschiedenen Stahlbestandteile gewinnen. Aus Abb. 4244.8 wird ersichtlich, dass die Fe-Konzentration ebenso wie die Ni-Konzentration in der Oxidschmelze stark abfällt (auf nahezu Nullpegel), während der Cr-Gehalt in der Oxidschmelze etwa demjenigen in der Metallschmelze entspricht. Die kleinen Fe-peaks in der Oxidschmelze stehen den Cr-Minima gegenüber und sind demzufolge wahrscheinlich auf metallische Einschlüsse zurückzuführen. Die Minima von Fe, Cr und Ni in der Metallschmelze sind durch Wolframausscheidungen zu erklären, wie aus dem W-Profil zu entnehmen ist.

Diese Profilaufnahmen zeigen, dass unter den Stahlkomponenten zunächst Cr vor Fe und Ni oxidiert wird. Dieser Befund steht im Einklang mit den freien Bildungsenthalpien der Oxide von Cr, Fe und Ni, die in Abb. 4244.9 zusammen mit denen einiger anderer Oxide aus der Corium/Beton-Schmelze in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen sind. Das Diagramm enthält auch die Daten der Sauerstofflieferanten im Beton, in erster Linie  $H_2O$  und darüber hinaus - bei karbonathaltigem Zuschlag - auch  $CO_2$ . Aus der Lage der Kurven (je niedriger die Bildungsenthalpie  $\Delta G^0$ , desto stabiler ist das Oxid) ist zu entnehmen, dass aus der Coreschmelze zunächst eventuell noch metallisch vorhandenes Zr, dann Cr, dann Fe, und erst bei höheren Sauerstoffpartialdrücken Ni oxidiert wird. Die Oxidation des Eisens durch  $CO_2$  und  $H_2O$

Probe	Corium	Mischung Cor.:Beton "S"	UO <sub>2</sub>	ZrO <sub>2</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> <sup>+</sup>	Rest	UO <sub>2</sub> +ZrO <sub>2</sub>	T <sub>s</sub> (°C)
11	(A+R)2	3:1	51,8	15,1	3,3	29,8	66,9	~1870
12	(E+R)2	3:1	38,7	11,2	2,4	47,7	49,9	~1680
13	(A+R)2	1:1	37,9	5,0	3,9	53,2	42,9	~1550

+) 3-Wertigkeit nur angenommen, bei Berechnung als FeO verschoben sich die Werte unwesentlich

Tabelle 4244-1: Chemische Analysendaten (in Gew.%) und Schmelztemperaturen T<sub>s</sub> der erstarrten Oxidschmelzen aus drei teiloxidierten Corium/Beton "S"-Schmelzproben

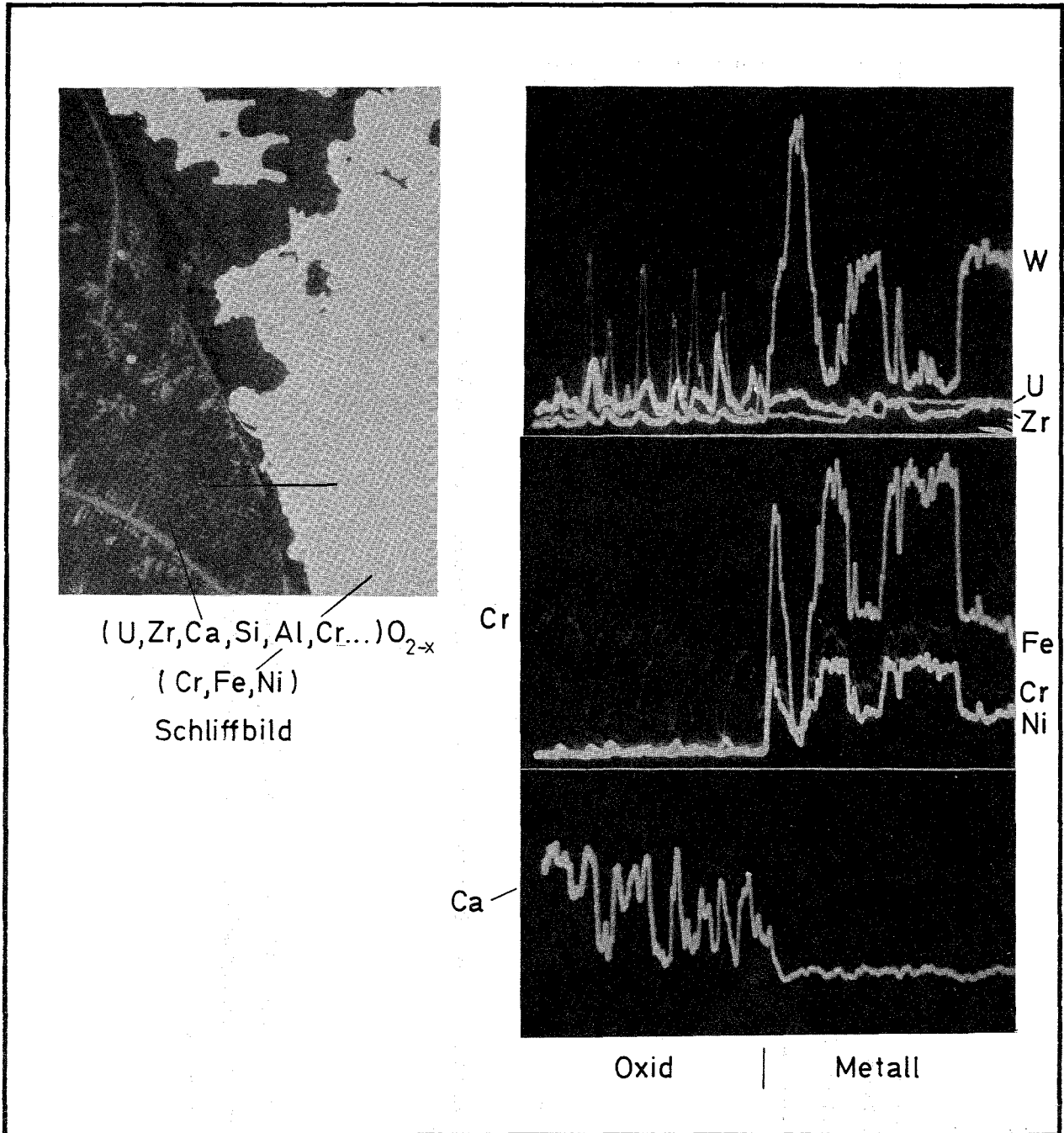


Abb. 4244-8: Schliffbild und Konzentrationsprofile der Elemente U, Zr, Ca, Cr, Fe und Ni in der Oxid- und Metallschmelze einer teiloxidierten Probe (Corium (E+R)2/Beton" S" = 3:1)

allein würde bei  $T > 600^{\circ}C$  nur bis zum FeO erfolgen. Freigesetzter Wasserdampf kann bei  $T > 830^{\circ}C$  durch  $CO_2$  (aus karbonathaltigem Zuschlag) entsprechend der Reaktionsgleichung  $H_2 + CO_2 \rightleftharpoons H_2O + CO$  (Wasser-

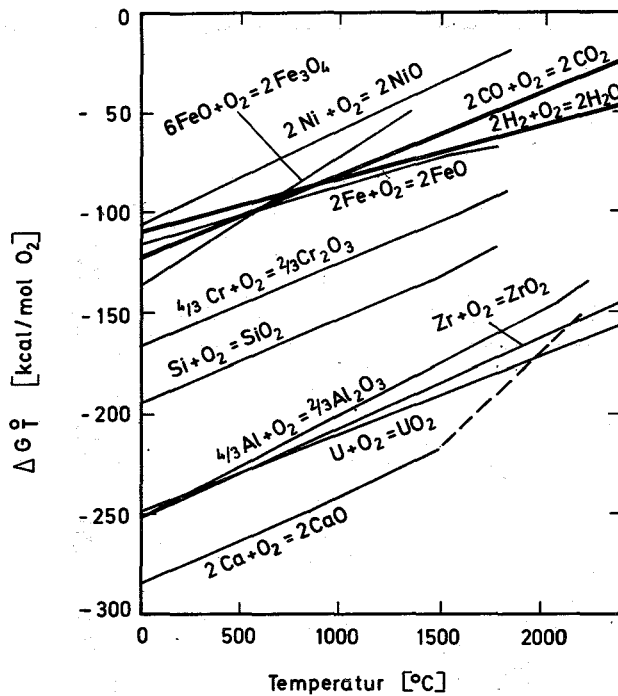


Abb. 4244-9: Freie Bildungsenthalpien einiger wichtiger Oxide aus der Schmelze Corium+Beton

gasgleichgewicht) wieder oxidiert werden.

### 3.1.2 Schmelztemperaturen der erstarrten Oxidschmelzen

Die (phänomenologischen) Aufschmelztemperaturen der erstarrten Oxidschmelzen von Proben mit teilweise oxidiertem Corium (s.Tab. 4244.1) hängen in gleicher Weise wie bei den nicht voroxidierten Proben /1/ vom Gehalt an den hochschmelzenden Oxiden  $UO_2$  und  $ZrO_2$  ab. Abb. 4244.10 enthält alle bisher gemessenen Schmelztemperaturen als Funktion des  $UO_2+ZrO_2$ -Gehaltes (in Gew.%). Der Kurvenverlauf zeigt, dass bei fortlaufender Verdünnung der oxidischen Kernschmelze durch aufgeschmolzenen Beton die Schmelztemperatur kontinuierlich erniedrigt wird. Die Erstarrungstemperatur konnte vorläufig noch nicht experimentell bestimmt werden, sie dürfte jedoch in der Nähe der gemessenen Schmelztemperatur liegen. Zwar existieren Eutektika in den beiden binären Systemen  $UO_2-SiO_2$  /2/ und  $ZrO_2-SiO_2$  /3/ und somit wahrscheinlich auch im Vielstoffsystem Kernschmelze-Beton "S", doch interessieren in diesem Zusammenhang nicht die wahren Solidus- und Liquidustemperaturen, sondern

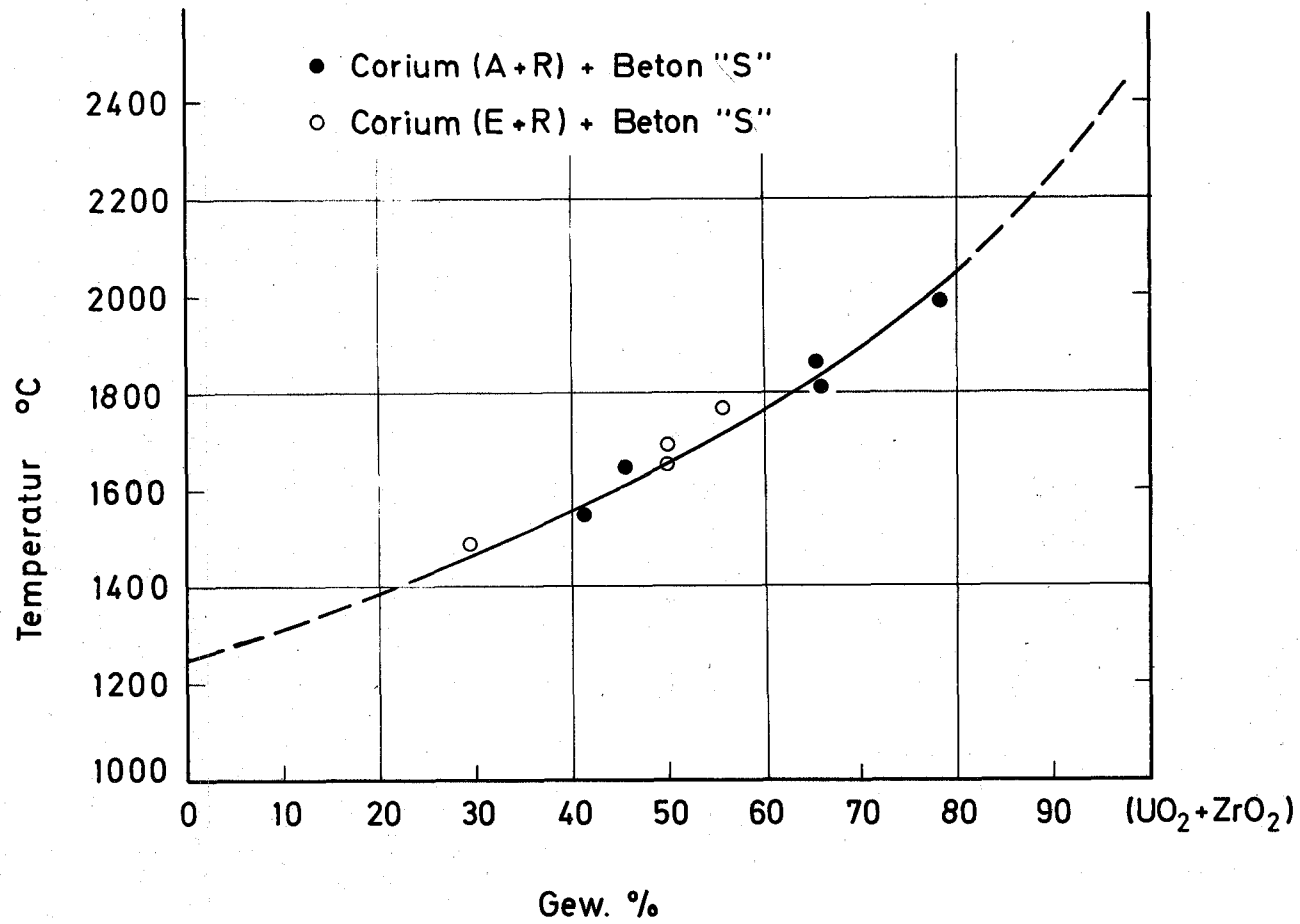


Abb. 4244-10: Aufschmelztemperaturen der erstarrten Oxidschmelze einiger Corium/Beton-Schmelzen in Abhängigkeit vom  $(UO_2+ZrO_2)$ -Gehalt. (Beton "S" = Beton mit Silikat-Zuschlag)



diejenigen, bei denen sich die Hauptmasse der Schmelze verfestigt oder wiederaufschmilzt - und diese liegen zwischen Solidus und Liquidus.

Durch die Verdünnung der Kernschmelze mit Beton sinkt andererseits auch die Temperatur der Schmelze infolge abnehmender Wärmequellendichte. Bei Kenntnis der Konzentrationsabhängigkeit dieser Temperatur als auch der Erstarrungstemperatur lässt sich der Schnittpunkt beider Kurven als Erstarrungstemperatur der Schmelze am jeweiligen Ort festlegen. Dieser Zusammenhang erscheint wichtig im Hinblick auf eine modelltheoretische Beschreibung der Aktivitätsfreisetzung aus der Schmelze und der Betonzerstörung bzw. der Ausbreitung, des Stillstands und einer eventuellen Krustenbildung der Schmelze.

### 3.2 Proben mit vollständig oxidiertem Corium

Bei diesen Versuchen wurden die Corium-Mischungen (A+R)<sub>3</sub> bzw. (E+R)<sub>3</sub> verwendet, die sich aus den Oxiden UO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und NiO zusammensetzen. Als Beton wurde Beton "S" (= mit silikat.Zuschlag) verwendet. Die Proben wurden im Induktionsofen bei 600 Torr Ar in Wolfram-Tiegeln bis 2000°C aufgeheizt. Der Schmelzbeginn wurde bei ~1350°C beobachtet, nach einer Haltezeit der Schmelze von 2 Min. betrug der Verdampfungsverlust im Mittel 30 Gew.%. Es wurden vereinzelte metallische Einschlüsse beobachtet (s.Abb. 4244.11), die wahrscheinlich auf Dissoziation von NiO zurückzuführen sind.

### 3.3 Abschätzung der Menge an Beton "S", die für eine vollständige Oxidation metallischer Coreschmelzanteile benötigt wird

Die Coreschmelze wird nach dem Versagen des RDB durch Wechselwirkung mit Beton kontinuierlich aufoxidiert. Dabei wird der Anteil an metallischer Schmelze allmählich aufgebraucht und in oxidische Schmelze überführt, welche sich mit dem aufgeschmolzenen Beton vermischt. Als Endprodukt bildet sich eine vollständig oxidische Schmelze aus. Die Gewichtsanteile an Beton "S" (= mit Silikatzuschlag), die hierfür aufgeschmolzen werden müssen, wurden für verschiedene Corium-Mischungen in unterschiedlichem Oxidationszustand abgeschätzt und sind in Tab. 4244.2 angegeben. Hierbei wurde vereinfachend davon ausgegangen, dass der gesamte Wassergehalt des Betons zur Oxidation der Coreschmelze

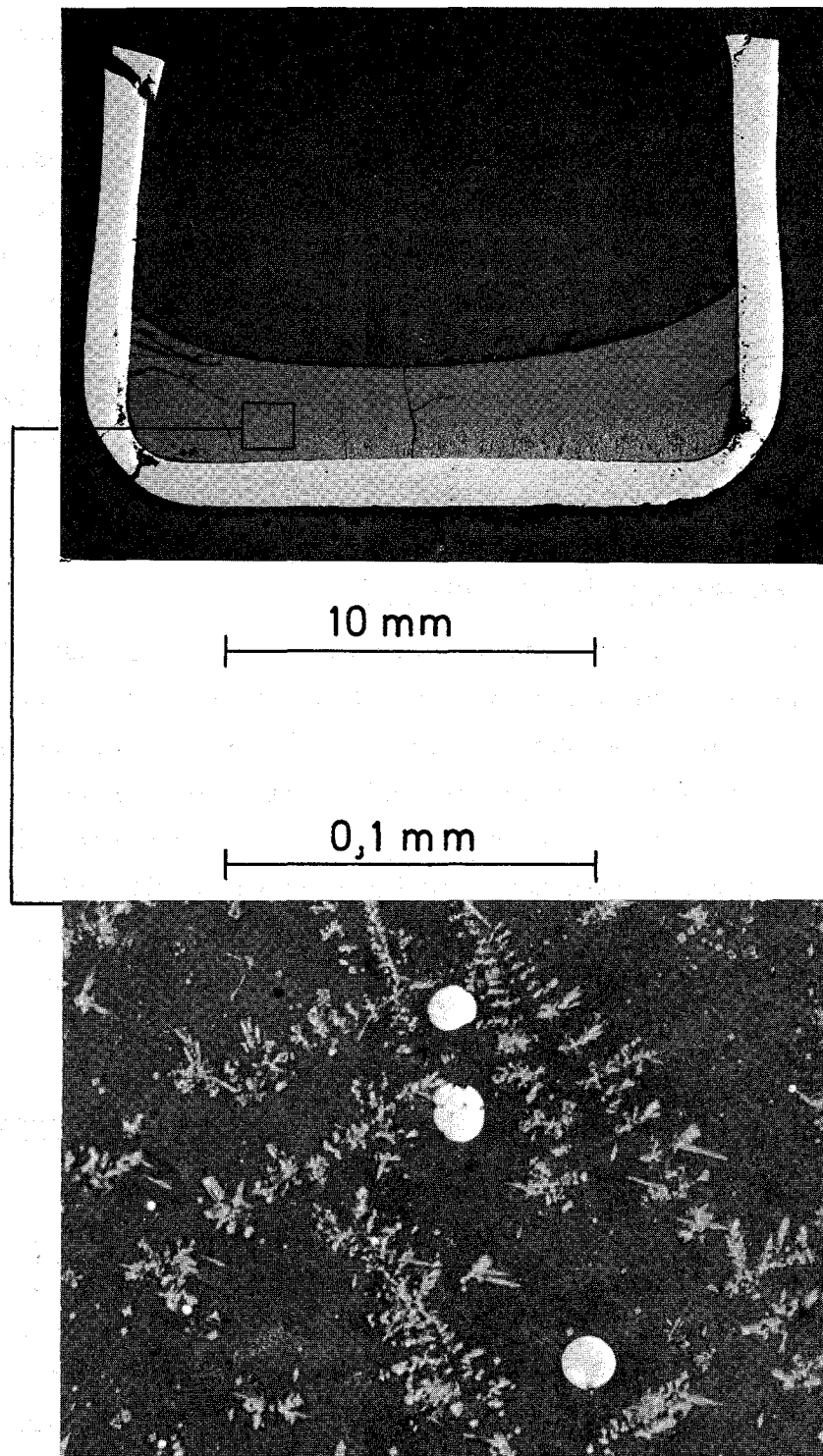


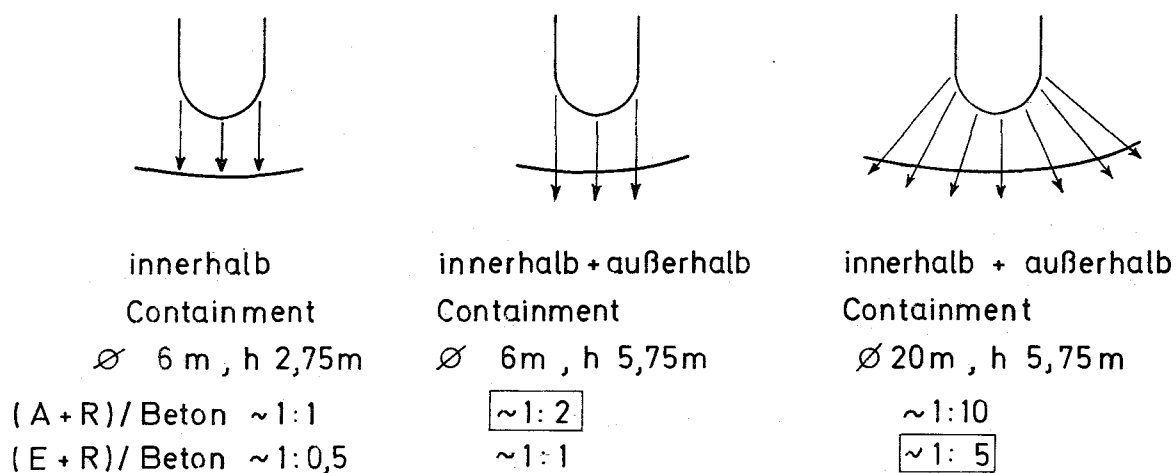
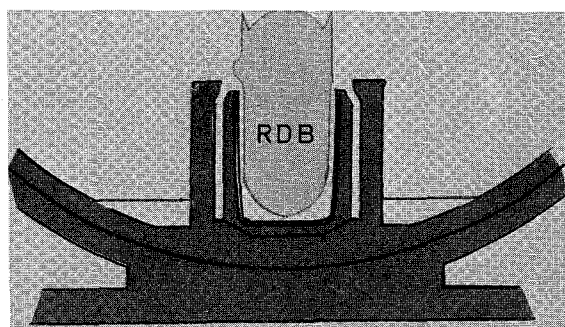
Abb. 4244-11: Schmelzversuch mit vollständig oxidiertem Corium + Beton "S" (= mit Silikat-Zuschlag); Übersicht (oben) und Detail aus der Oxid-schmelze

Coreshmelze	Oxidationsgrad	aufzuschmelzender Beton zur vollständigen Oxidation → einphasige Oxidschmelze (Gewichtsverhältnis) Corium / Beton "S"
A + R	nicht voroxidiert	1 / 2,5 - 3
A + R	teiloxidiert	1 / 1,5 - 2 (1/2 - 2,7)
E + R	nicht voroxidiert	1 / 4 - 5,5
E + R	teiloxidiert	1 / 3,5 - 4,5 (1/5 - 7)

Tab.: 4244-2: Gewichtsverhältnisse Corium/Beton "S", die aufgrund der aus dem Beton freigesetzten Wassermenge zur vollständigen Oxidation der jeweiligen Coreshmelze führen können

verwendet wurde. Diese Annahme ist sicherlich nicht gerechtfertigt, liefert aber brauchbare Anhaltspunkte für die erforderlichen Mindestmengen an Beton. Aus Tab. 4244.2 ist zu entnehmen, dass für den wahrscheinlich realistischen Fall einer teilweise oxidierten Kernschmelze (Zr = oxidiert zu  $ZrO_2$ ) je nach Stahlgehalt - entsprechend (A+R) bzw. (E+R) - etwa das doppelte bis vierfache Gewicht an Beton "S" zur vollständigen Oxidation benötigt wird. Für die Zahlen in Klammern ist der mit dem aufgeschmolzenen Beton mit eingebrachte Anteil an Armierungsstahl mit berücksichtigt. Die Bereichsangaben (z.B. 1,5 - 2) deuten an, dass es für Fe und Cr verschiedene Oxidationszustände gibt.

Um einen Eindruck von den im LWR tatsächlich zu erwartenden Mengenverhältnissen zu gewinnen, sind in Abb. 4244.12 die Mengenverhältnisse (in Gewichtsanteilen) für drei verschiedene fiktive Aufschmelzstadien angegeben. Bei senkrechtem Durchschmelzen über den RDB-Querschnitt ( $\varnothing \approx 6m$ ) wird das zur vollständigen Oxidation von Corium (A+R) benötigte Gewichtsverhältnis Corium/Beton "S" = 1:2 erst mit der insgesamt vorhandenen Betonschichtdicke von  $\sim 5.75$  m erreicht. Für Schmelzen mit einem höheren Stahlgehalt als er (A+R) entspricht, ist in diesem Falle auch dann noch mit dem Vorhandensein eines metallischen Schmelzanteils zu rechnen, so dass für diesen Fall erst bei sehr brei-



Corium / Beton Verhältnisse bei verschiedenen hypothetischen Aufschmelzstadien

Abb. 4244-12: Mengenverhältnisse Corium/Beton "S" (in Gewichtsanteilen) für drei fiktive Aufschmelzstadien.  
Abschätzung am Beispiel Biblis B.

tem Durchschmelzen eine homogene Oxidschmelze gebildet werden kann.

Diese groben Abschätzungen zeigen, dass im Verlaufe der Betonaufschmelzung nicht mit einer schnellen Oxidation der metallischen Kernschmelze gerechnet werden kann. Das bedeutet wiederum, dass der hinsichtlich Thermohydraulik und Wärmequellenverteilung kompliziertere Fall einer zweiphasigen Schmelze wahrscheinlich nicht nur auf die Anfangsphase der Betonwechselwirkung beschränkt bleibt.

Für karbonathaltigen Beton haben diese Abschätzungen keine Gültigkeit, da hier auch  $\text{CO}_2$  auf Fe und Cr oxidierend wirkt und dadurch eine schnellere Oxidation möglich wird.

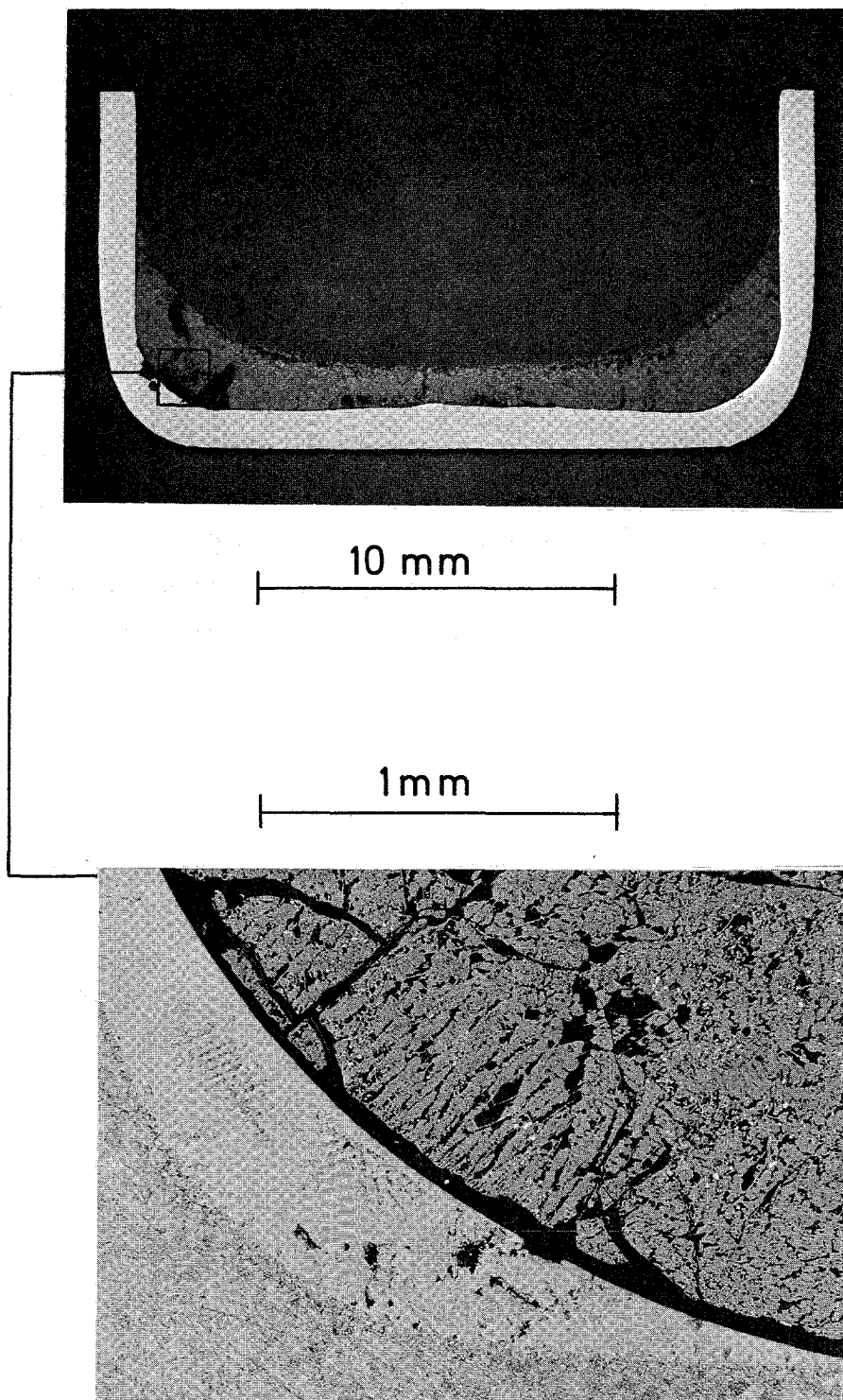


Abb. 4244-13: Schmelzversuch mit Corium (A+R)1 + Beton "K"  
(= mit Karbonatzuschlag); Corium/Beton = 1:1.  
Übersicht (oben) und Detail am Kontakt  
Wolframtiegel-Metallschmelze-Oxidschmelze

### 3.4 Proben mit Beton "K" (= mit Karbonat-Zuschlag)

Beton "K" wurde aus Zement (13,34 Gew.%) pulverisiertem Kalk (80,55 Gew.%) und Wasser (6 Gew.%) hergestellt. Die Lagerzeit betrug etwa zwei Monate.

Es wurden zunächst zwei Vorversuche durchgeführt mit den Mischungen Bn 16: 1 Teil Corium (A+R) + 1 Teil Beton "K" und Bn 17: 1 Teil Corium (E+R) 1 + 1 Teil Beton "K". Beide Proben wurden in Wolframtiegel bei 600 Torr Ar auf 2000°C aufgeheizt und bei Erreichen dieser Temperatur sofort abgekühlt. Der Schmelzbeginn konnte ab etwa 1400°C deutlich beobachtet werden. Der Verdampfungsverlust lag bei 37 Gew.% für Bn 16 und 17 Gew.% für Bn 17. In der erstarrten Oxid-schmelze beider Proben wurde röntgenographisch neben CaO ein Mischoxid  $\text{Ca}_2(\text{U,Zr})\text{O}_4$  nachgewiesen. Beide Proben enthielten noch metallische Schmelze (s. Abb. 4244.13).

#### Literatur:

- /1/ PNS-Hj.Bericht 1976/1, KFK 2375, S. 432
- /2/ S.Lungu et al., J,Nucl.Mat. 48 (1973), S.165 - 171
- /3/ W.C.Butterman and W.R.Foster, Am.Miner. 52 (1967), S.884

4245 Technologie und Stoffdaten zum Coreschmelzen

(S.Nazaré, G.Ondracek, IMF)

Der Kernschmelzunfall ergibt sich als Konsequenz der höchst unwahrscheinlichen Annahme, daß bei einem Leichtwasserreaktor das gesamte Kühlsystem gleichzeitig versagt. Er beginnt beim Druckwasserreaktor mit der Kühlwasserverdampfung und Aufheizung (I.Periode) und wird bei Erreichen der Schmelztemperaturen von Coreeinbaumaterialien zum Abschmelzvorgang (II.Periode) /1,2/. Nach Abschluß des Abschmelzens und Abstürzens der Coreeinbauten in den Reaktordruckbehälter bildet sich dort eine "CORIUM"-Schmelze mit Spaltprodukten als innere Wärmequellen (III.Periode). Die von ihnen produzierte Wärme führt nach dem derzeitigen Wissenstand zur Aufheizung des Reaktordruckbehälters bis zum Schmelzen seines Stahls und damit zum Versagen des Reaktordruckbehälters. Die Coriumschmelze mit eingeschmolzenen Teilen des Reaktordruckbehälter-Stahls befindet sich nun im Betonunterbau des Reaktordruckbehälters (IV.Periode). Da Beton bei seiner Herstellung keine Wärmebehandlung erfährt, bringt allein der Kontakt mit der heißen Schmelze Veränderungen mit sich, die durch Wechselwirkungen ergänzt werden. Insbesondere kommt es zur Abspaltung des im Beton gebundenen Wassers, dessen Reduktion durch die mit Beton wechselwirkende Kernschmelze zur Wasserstoffentwicklung führt. Die folgenden Untersuchungen galten der Beschreibung des Zustandes des Systems am Beginn dieser Unfallperiode.

Von den sechs möglichen Grenzfällen der Coriumschmelze (s.Abb.4245-1) Corium-EX1 als experimentelles Ausgangsmaterial gewählt, weil dieser Zustand im weiteren Verlauf des Leichtwasserreaktor-Kernschmelzunfalles alle anderen denkbaren Ausgangszustände der Kernschmelze auf Corium-E-Basis (z.B. Corium-EX2, EX3 /3,4/) durchläuft. Er ist im Vergleich zur Kernschmelze auf Corium-A-Basis als denkbarer Endzustand zu betrachten, da sich in Kernschmelzen auf Corium-E-Basis alle, in solchen auf Corium-A-Basis nur ein Teil der Coreeinbauten befinden. Vergleichbare Arbeiten mit der durchaus berechtigten Annahme einer Kernschmelze auf Corium-A-Basis laufen an anderer Stelle /5/.

Corium-EX1 wurde - ohne Berücksichtigung von möglichen Abdampf- und Reaktionsvorgängen mit dem verwendeten Tiegelmateriale - als praktisch homogene metallische Schmelze nach folgendem technologischen Rezept hergestellt: Eine Charge aus 55 Gew.% Stahl 1.4550, 10 Gew.% Zry-4 und 35 Gew.%  $UO_2$ , entsprechend der Zusammensetzung von Corium-E wird in  $ThO_2$ -Tiegeln unter Inertgas (600 Torr Helium) erschmolzen. Dabei tritt eine makroskopisch homogene metallische Schmelze auf, deren Zusammensetzung durch Abdampfverluste und Wechselwirkung mit dem Tiegelmateriale von der Ausgangszusammensetzung abweicht. - Die Chargengröße betrug zwischen 30 und 250 g. Die Heizung erfolgte in einer Mittelfrequenzinduktionsanlage mit einem Graphitzylinder als Suzceptor. Das Schmelzgut wurde in einer Scheibenschwingmühle zerkleinert und anschließend chemisch analysiert (19,9±1,3 Gew.% U; 50,5±2,4 Gew.% Fe; 7,6±0,4 Gew.% Ni; 13,1±1,0 Gew.% Cr; 5,2±1,2 Gew.% Zr; 0,5±0,2 Gew.% O; 0,25±0,08 Gew.% C; 0,66±0,4 Gew.% Th).

Das so hergestellte Corium-EX1 wurde dann unter Wasserdampf oxidiert (5 g Corium-EX1,  $ThO_2$ -Tiegel, 1 atm.  $H_2O$  Dampf, 1800 K, Aufheiz- und Abkühlzeit 7 min, Haltezeit auf Maximaltemperatur 5 min); es bestand danach zu etwa gleichen Teilen aus einer oxidischen und einer metallischen Phase. Wie Mikroanalysen zeigten, waren die Elemente Uran und Zirkon des Ausgangsmaterials überwiegend in der oxidischen, die Elemente Eisen, Chrom und Nickel überwiegend in der metallischen Phase konzentriert. Während die Corium-EX1-Schmelze bereits oberhalb 2100 K erstarrt, tritt bei der metallischen Phase des teiloxidierten Zustandes ( $\sim$  Corium-EX2 /3/) Erstarrung erst unterhalb 1800 K ein. Bei dem beschriebenen Oxidationsexperiment wird die stahlähnliche Metallphase daher bereits flüssig /10/.

Durch die relativ niedrige Oxidationstemperatur und die kurze Oxidationsdauer wurde erreicht, daß die Wechselwirkungen zwischen der Oxidphase und dem  $ThO_2$ -Tiegel vernachlässigbar klein waren. Die Oxidation durch Wasserdampf kommt den realistischen Bedingungen beim Unfall näher als die Oxidation in Luft oder die Simulation des zweiphasigen Coriums EX2 über oxidische Ausgangskomponenten /4/. Andererseits wird die Entstehung des oxidierten Coriums unter tatsächlichen Unfallbedingungen eher beschleunigt, da die Oxidationsgeschwindigkeit von flüssigem Corium-EX1 höher sein dürfte als diejenige von festem, wie im beschriebenen Experiment.



In weiteren Versuchen wurden  $\text{ThO}_2$ -Tiegel mit Beton (BN 250; Analysenwerte: 12-13 Gew.% Ca; 0,6-0,7 Gew.% Fe; 1,3-1,4 Gew.% Al; 41,5-46,1 Gew.% O; 2,9-3,9 Gew.% C; Rest Si) ausgekleidet, mit oxidiertem Corium (metallische Phase unten, oxidische Phase oben) gefüllt (s. Bild in Abb. 4245-2) und in einer Differentialthermoanalyse-Apparatur erhitzt (Beton: Corium-EX2-Volumenverhältnisse variabel  $\geq 1$ ; 1 atm. Wasserdampf; Maximaltemperatur 1800 K; Aufheiz- und Abkühlzeit 7 min; Haltezeit auf Maximaltemperatur 5 min). Dabei kommt es zunächst zur Abspaltung des Wassers aus dem Beton /1/, zu dessen Schmelzen in dem in Abb. 2 angegebenen Temperaturbereich und zu einer Reaktion zwischen Betonschmelze und fester Oxidphase des Corium-EX2. Bei allen verwendeten Volumenverhältnissen von Beton und Oxidphase Corium-EX2 ( $>9$ ) existieren dann zwei Schmelzen unter 1800 K (s. Bild in Abb. 4245-2), wobei nach Mikroanalysen die metallische Schmelze in ihrer Zusammensetzung praktisch der Metallphase des Corium-EX2 entspricht, während die homogene oxidische Schmelze aus den Bestandteilen des Betons und denjenigen der Oxidphase des Corium-EX2 besteht. Das Ergebnis ist konsistent mit Solidustemperaturbestimmungen an Mischungen aus Beton,  $\text{UO}_2$  und  $\text{ZrO}_2$ , deren Solidustemperaturen bei Betonvolumenanteilen von über neun Zehntel des Gesamtvolumens unter 1800 K liegen /6/.

Dieser Befund stützt die Wahrscheinlichkeit, daß die Erosionsergebnisse aus Großversuchen mit Stahlschmelzen, die in Beton gegossen wurden (Erosionsgeschwindigkeit 24-100 cm/h) /7/, bei Verwendung von Coriumschmelzen anstelle von Stahlschmelze nicht wesentlich anders ausfallen dürften, solange der Anfangszustand betrachtet wird.

Gefügebilder der Schmelze im Beton zeigen eine Entmischungstendenz der Phasen an, bei der die metallische Phase unter der oxidischen angeordnet ist. Diese Segregationstendenz soll durch Dichteabschätzungen für die beiden flüssigen Phasen der Schmelze genauer untersucht werden.

Dazu laufen zur Zeit

- Dichtemessungen bei Raumtemperatur an Pulvern der metallischen und der oxidischen Phase mit variablen Betonanteilen
- Ausdehnungsmessungen an pulvertechnologisch hergestellten Proben der metallischen und der oxidischen Phase in festem Zustand, wobei die thermische Ausdehnung durch die Porosität nicht beeinflußt wird /8/.

Mit Hilfe der Meßergebnisse kann die Dichte der jeweiligen Phase am Schmelzpunkt im festen Aggregatzustand extrapoliert werden. Unter Berücksichtigung der Tatsache, daß sich die Dichte von Metallen beim

Übergang in den flüssigen Aggregatzustand in der Regel um etwa 3% erniedrigt und bei Oxiden um etwa 20% /9/, erhält man die gesuchten Dichten der beiden Schmelzphasen.

Zusammenfassend läßt sich der Ausgangszustand für die IV.Periode des Leichtwasserreaktor-Kernschmelzunfalles wie folgt beschreiben: Im festen Betonfundament befindet sich eine zweiphasige Schmelze. Die Zusammensetzung ihrer metallischen Phase entspricht derjenigen von Stahl, in der oxidischen Phase ist der größte Teil des vorhandenen Urans und Zirkons sowie der Bestandteile des Betons gelöst, nicht - noch nicht - dagegen nennenswerte Anteile der Oxide der Stahlkomponenten. Beide Phasen sind - Betonüberschuß von etwa 9:1 vorausgesetzt - bei  $\leq 1800$  K flüssig. Die metallische Phase befindet sich unter der oxidischen Phase. In der Grenzfläche ist durch thermisch bedingte Turbulenzen und infolge der durch die Schmelze aufsteigenden Wasser- bzw. Wasserstoffblasen aus dem Beton eine Zone unvollständiger Segregation anzunehmen. Da sich die Core-schmelze auf Corium-A- und Corium-E-Basis nur im Eisengehalt unterscheiden (Abb.4245-1) und das zusätzliche Einschmelzen des Reaktordruckbehälters - sowie außerdem der Stahllarmierung des Betons - lediglich den Stahlanteil, d.h. den Anteil der metallischen Schmelzphase erhöht, gilt diese Beschreibung des Ausgangszustandes allgemein.

#### Literatur

- /1/ K.Hassmann, M.Peehs, persönliche Mitteilung, Kraftwerk-Union, Erlangen (1976)
- /2/ K.Hassmann, Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Düsseldorf (1976)
- /3/ S.Nazaré, G.Ondracek, B.Schulz, Nucl.Technology (1976)
- /4/ P.Hofmann, Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe, KFK 2220 (1976)
- /5/ M.Peehs, K.Mollwitz, P.Petri, persönliche Mitteilung, Kraftwerk-Union, Erlangen (1976)
- /6/ P.Hofmann, H.Holleck, C.Politis, A.Skokan, Projekt Nukleare Sicherheit des Kernforschungszentrums Karlsruhe, Halbjahresbericht KFK 2375 (1976)
- /7/ D.A.Dahlgren, D.A.Powers, J.F.Muir, B.M.Butcher, Proc. OECD-NEA Specialists Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions, Spatind-Nordtorpa (1976) Paper SNI 8/32
- /8/ S.Nazaré, G.Ondracek, Z.f.Werkstofftechnik (1977) im Druck
- /9/ S.Nazaré, G.Ondracek, B.Schulz, Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe KFK 2217 (1975) 35
- /10/ E.Houdremont, Handbuch der Sonderstahlkunde, Bd.I, Springer-Verlag Berlin (1956) 646

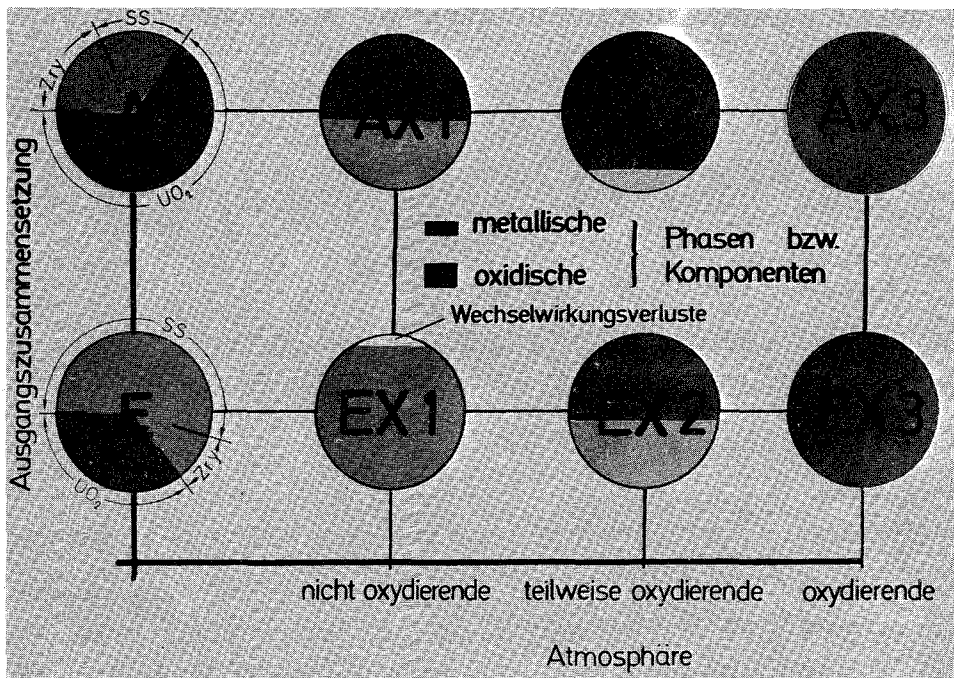


Abb. 4245-1: Coriumschmelztypen

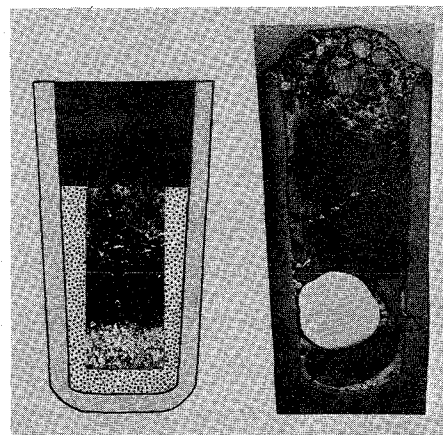
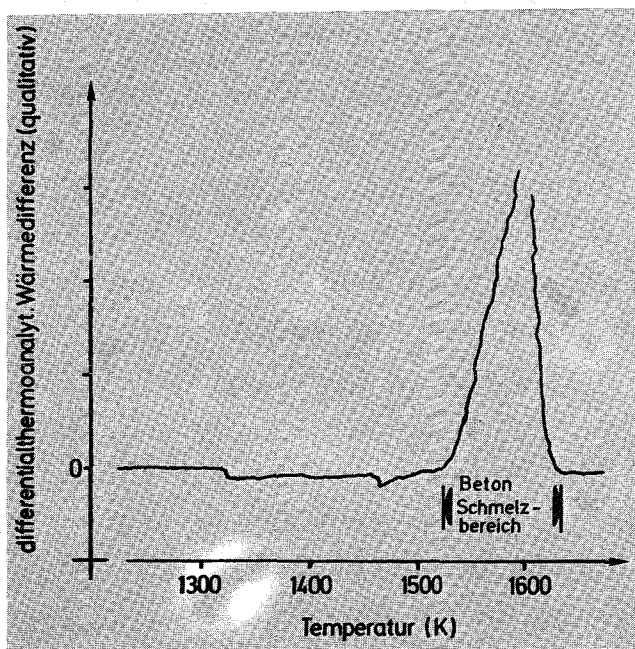


Abb. 4245-2: Corium in Beton

4246 Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen  
(Vorprojekt)  
(D.Perinić, B.Kammerer, A.Mack, B.Stuka, RBT/IT)

### 1. Schmelzanlage

Einige wichtige Anlagendaten wie u.a. einzuspeisende elektrische Schmelzbadleistung, Arbeitsfrequenz, Arbeitsspannung, Atmosphäre, Schmelzbadgeometrie wurden untersucht.

Zur Erreichung ähnlicher Bedingungen an der Schmelzfront bei Versuch und Unfall wurde die max. Schmelzleistung in folgender Weise bestimmt. Die elektrisch erzeugte Wärmestromdichte an der Schmelzfront einer Versuchsschmelze soll der Wärmestromdichte entsprechen, die bei Unfall eines Referenz DWR mit 3500 MW Nennleistung rd. 30 min nach der Reaktorabschaltung alleine durch Zerfallsleistung zu Stande kommt. Unter Annahme eines Wertes für die Wärmestromdichte von  $q = 0,71 \text{ MW/m}^2$  errechnen sich folgende maximalen einzuspeisenden Schmelzbadleistungen:

Schmelzmasse	kg	100	1000	10000
Schmelzleistung für $H = D$ MW		0,213	0,987	4,586
Schmelzleistung für $4H = D$ MW		0,268	1,243	5,771

Für die zylindrische Schmelzbadgeometrie  $H=D$  wurde eine Untersuchung zur Optimierung der Arbeitsfrequenz und Arbeitsspannung durchgeführt. Zur Unterdrückung der Arbeitsspannung unter 1000V werden die Arbeitsfrequenzen von 3000 Hz für 100 kg und 1000 Hz für 1000 kg unter gleichzeitiger Minimalisierung der Windungszahl festgelegt. Wegen der Durchschlagsgefahr unter einer Atmosphäre aus Sattdampf sollen Vorversuche unter ähnlichen Atmosphärebedingungen und gleichen Induktorspannungen vor dem Bau der Anlage durchgeführt werden.

Zur Simulation einer spezifischen Unfallatmosphäre oberhalb des Schmelzbades wurden technische Konzepte ausgearbeitet, die einen druckfesten Sicherheitsbehälter (6 bar) vorsehen. Durch Aufsprühen von Wasserdampf auf die Schmelzbadoberfläche wird die Containmentatmosphäre simuliert. Zur Haltung des Gasdruckes im Sicherheitsbehälter stehen zwei Alternativen zur Auswahl: Druckhaltung über ein nichtkondensierbares Gas bei gekühlter Wandung oder mit Wasserdampf bei temperierter Wandung. Dabei sollte nicht nur der Sicherheitsbehälter auf einer Temperatur oberhalb des Sättigungspunktes (rd. 160 °C) gehalten werden sondern auch die gesamten Inneneinbauten wie Tiegel, Induktor, Jochgestell und Stromzuführungen. Die Druckhaltung mit einem nichtkondensierbaren Gas ist technisch einfacher. Zur besseren Simulation der Unfallverhältnisse kann auch Luft eingesetzt werden, es besteht jedoch die Gefahr einer Wasserstoff-Luft-Reaktion.

Es wurden Wasserstoff-Entstehungsraten bei einer Reaktion von Wasserdampf mit Corium-Schmelzen bei 2800°C untersucht. Es ist dabei mit einer extrem hohen Metallverdampfungsrate zu rechnen, so daß es eher zu einer Wasserdampf-Metалldampf- als Wasserdampf-Schmelze-Reaktion kommt. Bei den Schmelzversuchen an der Anlage SASCHA wurde oberhalb 2200°C eine heftige Verbrennung oberhalb des Tiegelrandes beobachtet, die auf die Metалldampfverbrennung zurückzuführen ist. Es wurden dabei Verbrennungsraten auf 10 mg Metall/cm<sup>2</sup>s geschätzt. Für die zylindrische Schmelzbadgeometrien ergeben sich daraus unter Annahme H=D und FeO-Bindung folgende maximalen Wasserstoffentstehungsraten:

Schmelzbadmasse	kg	100	1000	10000
Schmelzbadoberfläche	m <sup>2</sup>	0,0499	0,231	1,07
Metallverbrennungsrate	g/s	4,99	23,1	107,0
Wasserdampfmassenstrom	g/s	1,61	7,44	34,4
Wasserstoffvolumenstrom	Nm <sup>3</sup> /h	7,23	33,3	154,0

Zur Untersuchung der Eintrittswahrscheinlichkeit einer Wasserstoff-Explosion sowie einer Wasserdampf-Explosion und zur Festlegung von Sicherheitsmaßnahmen wurde ein Forschungsauftrag an das Institut für Chemie der Treib- und Explosionsstoffe der Fraunhofer Gesellschaft spezifiziert (für die Genehmigung der Anlage erforderlich).

Weiterhin wurden Untersuchungen folgender Problemkreise durchgeführt: Abgaskühlung- und Filterung, Schmelzzusammensetzung, Fissiumeinsatz, Tiegelherstellung, Temperaturmeßverfahren, Nachuntersuchung, Entsorgung des radioaktiven Abfalls und Versuchshalle.

## 2. Versuche

Zur Untersuchung der Phänomenologie der Schmelze/Beton-Reaktion und zur Entwicklung von betriebssicheren Betontiegeln wurden Schmelzversuche mit kleinen Corium-Schmelzen an der Anlage SASCHA (PNS 4243) und Eingießversuche mit Graugußschmelzen bis zu 300 kg in einer Industriegießerei durchgeführt.

In einer Reihe von 14 Versuchen mit rd. 30 und rd. 300 g Coriumschmelzen unter Argon-, Luft- und Wasserdampfatmosphäre wurde die Ausbreitung einer volumenbeheizten Schmelze in Beton studiert. Es zeigte sich, daß die Variation der Atmosphäre keinen wesentlichen Einfluß auf die Schmelzfront-Ausbreitungsgeschwindigkeit hat. Es wurden bei einer mittleren dehydrierten Betonschichtstärke von 5 - 20 mm mittlere Ausbreitungsgeschwindigkeiten axial 4 mm/min und radial 1 mm/min gemessen (Abb. 4246-1). Es wurden maximale Oberflächentemperaturen bei den 30g-Schmelzen von 2100 °C und bei den 300g-Schmelzen von 1700 °C gemessen.



Abb. 4246-1: Schnitt durch einen Betontiegel mit CORIUM-Schmelzregulus

Wegen der bei früheren Versuchen immer beobachteten Zerstörung der Betontiegel durch Wärmespannungen, die sich in Auftreten von Rissen und einem Auslaufen der Schmelze durch die Risse äußerte, wurde eine Glasfaserbewehrung der Tiegel entwickelt. Diese Bewehrung kann das Auftreten von Rissen nicht verhindern, sie hält aber die Tiegelwandung zusammen und verhindert das Auseinanderklaffen der Risse.

Bei vier Eingießversuchen mit Schmelzbadmassen zwischen 100 und 300 kg wurden glasfaser- und asbestzementrohrverstärkte Betontiegel (Abb. 4246-2) eingesetzt. Es wurde Grauguß aus einem Kupolofen mit einer Temperatur von rd.  $1430^{\circ}\text{C}$  in die Tiegel eingegossen. Dabei kam es zu einer heftigen Reaktion der Metallschmelze mit dem Beton, die sich bei den tieferen Schmelzen in einem starken Auswurf der Schmelze, in Funkenbildung, Flammen- und Rauchentwicklung äußerte. Die flachen Schmelzen zeigten ein völlig anderes Verhalten. Dort verlief die Reaktion wesentlich ruhiger, mit nur kleiner Verspritzung der Schmelze und kleiner Flammen- und Rauchentwicklung. In beiden Versuchen mit flachen Schmelzen wurde eine toriodale Umwälzzelle, die mit einer verhältnismäßig hohen Geschwindigkeit rotierte beobachtet. Die Rotationsrichtung dieser Zelle deutet auf eine dominierende Düsenwirkung des aufwärts strömenden Wasserdampfes in der Randzone des Schmelzbades.

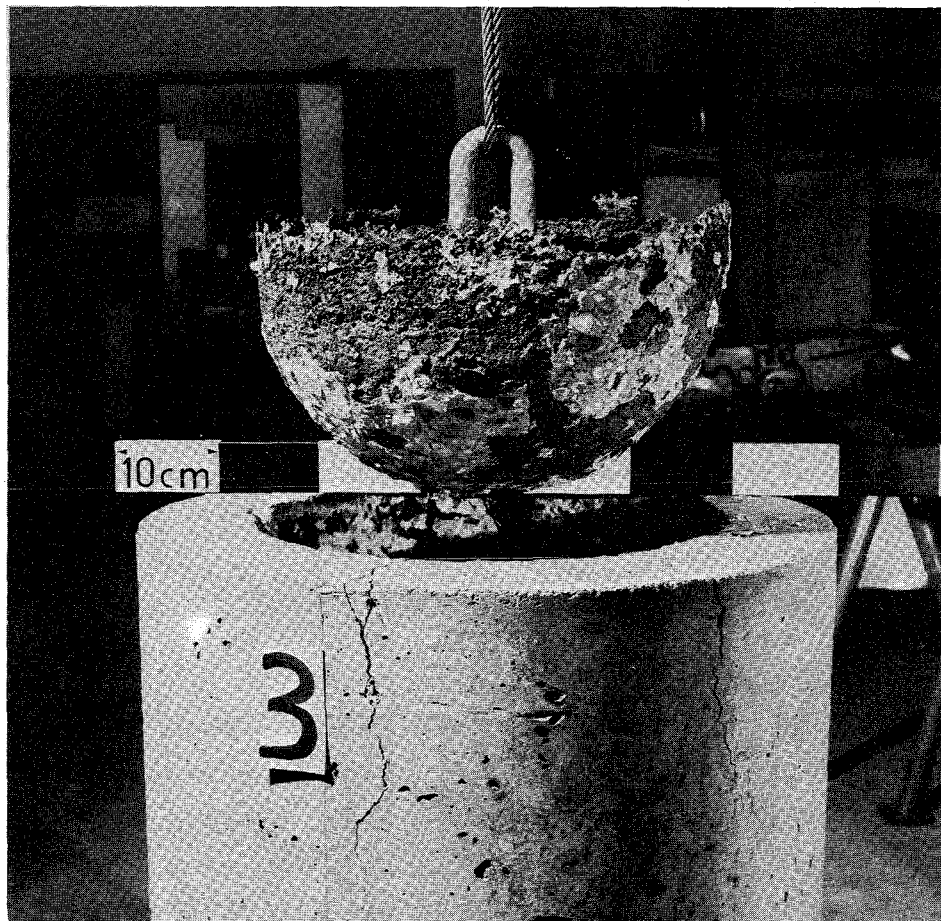
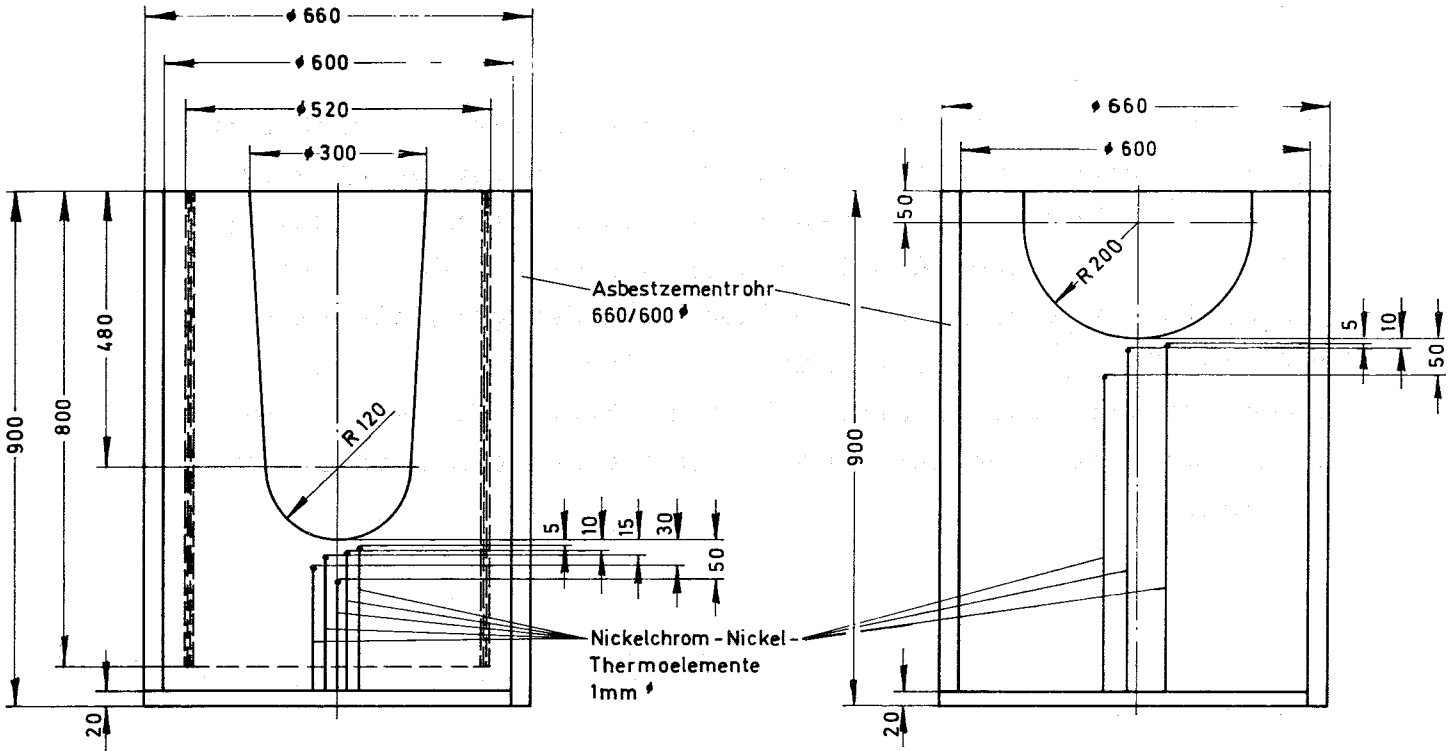


Abb. 4246-3: Betontiegel mit herausgezogenem Grauguß-Regulus

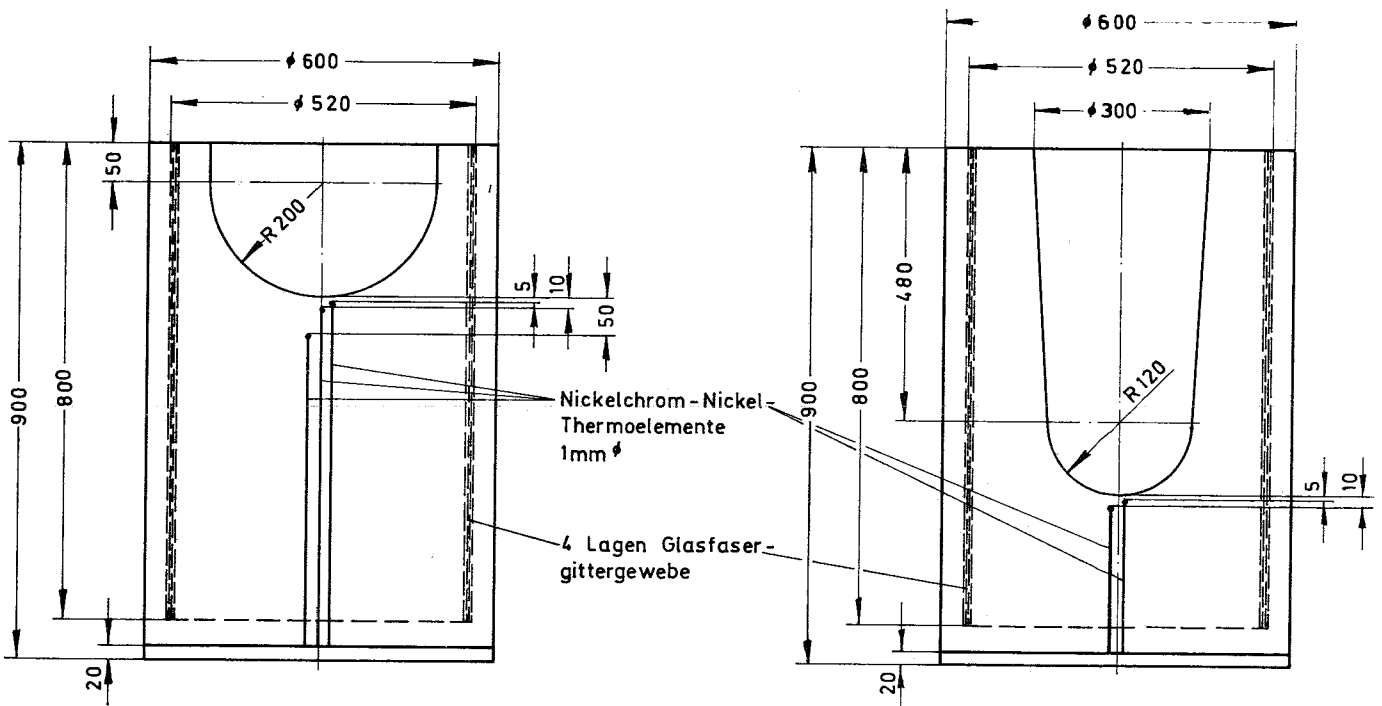


An den Tiegeln sind bereits in den ersten Minuten nach dem Eingießen Risse entstanden, durch welche Wasserdampf auströmte. Es kommt zur Kondensation des Dampfes im Riss, so daß noch 30 min nach dem Eingießen Wasser aus den Rissen herausfloß. Die Rißbreite am Außenrand der glasfaserverstärkten Tiegel erreichte max. 7 mm (Abb. 4246-3), an einem nur mit einem Eternitrohr verstärkten Tiegel dagegen 20 mm. Zu einem Austreten der Schmelze aus den Rissen kam es nicht.



Betontiegel Nr.:1

Betontiegel Nr.:2



Betontiegel Nr.:3

Betontiegel Nr.:4

Abb. 4246-2: Betontiegel für Eingießversuche mit 100 und 300 kg Grauguß

## 4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

4310 Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und  
Reaktionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen  
bei schweren Störfällen

4311. Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten  
und Aerosolen in LWR-Containments

(H. Bunz, G. Haury, C. Sack, W. Schöck)

Im letzten Halbjahresbericht [1] wurde über die Sensitivity-Studie zum  
Aerosolverhalten in der Nachunfallatmosphäre eines LWR-Containments be-  
richtet. Die Studie verfolgte das Ziel, anhand realistischer Contain-  
mentrechnungen mit dem Modell NAUA-Mod1 unter der Menge der nicht genau  
genug bekannten Parameter jene zu identifizieren, deren Relevanz eine  
genaue experimentelle Bestimmung erfordert, um die Modellrechnungen auf  
eine abgesicherte Grundlage zu stellen.

Nachdem dieses Ziel erreicht war [2, 3], galt es, im Berichtszeitraum  
die Durchführbarkeit der notwendigen Messungen zu überprüfen und die  
Konstruktion des Versuchsstands abzuschließen. Die hierzu durchgeführten  
Arbeiten sowie weitere Arbeiten zur Verbesserung des NAUA-Modells sind  
Gegenstand dieses Berichts.

### 1. Modelltheorie

#### 1.1. Einführung von Temperaturfunktionen

Die Modellversion NAUA-Mod1 enthält als temperaturabhängige Größen nur  
den Wasserdampfdruck und den Wasserdampfgehalt. Da man jedoch nach einem  
Kühlmittelverluststörfall im LWR-Containment mit Temperaturänderungen  
von mindestens 100°C zu rechnen hat, stellt sich die Frage, wie weit die  
Temperaturabhängigkeit verschiedener Größen sich auf das Verhalten des  
Aerosolsystems von trockenen Partikeln und Tröpfchen auswirkt.

Sehr stark temperaturabhängig sind die Größen Wasserdampfdruck und  
Wasserdampfgehalt sowie damit auch die Dampfsättigung. Letztere be-  
stimmt die Dynamik der Kondensationsprozesse und damit den Verlauf des  
Partikelabbaus. Daher sind diese Größen von Anfang an als Temperatur-

funktionen im Mod1 enthalten. Die Funktionen [4] lassen sich mit der erforderlichen Genauigkeit durch Polynome fünften Grades darstellen, ihr Verlauf ist in Abb. 4311-1 dargestellt.

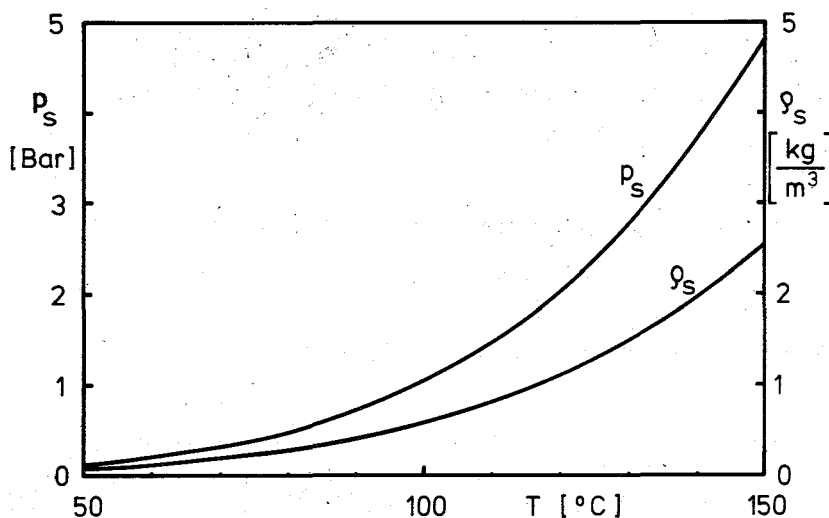


Abb. 4311-1: Temperaturabhängigkeit von Wasserdampfgehalt  $\rho_s$  und Wasserdampfpartialdruck  $p_s$

Darüberhinaus sind auch viele andere Größen temperaturabhängig, zum Beispiel:

- Viskosität der Luft,
- Viskosität des Wasserdampfs,
- Wärmeleitfähigkeit der Luft,
- Wärmeleitfähigkeit des Wasserdampfs,
- mittlere freie Weglänge der Gasmolekeln im Luft-Wasserdampf-Gemisch,
- Oberflächenspannung des Wassers und
- Kondensationswärme

Die Daten für Luft konnten aus [5], die für Wasser und Dampf aus [4] entnommen werden. Die für das Modell geeigneten Funktionen wurden aus diesen Daten berechnet. Dabei ergab sich für den benötigten Temperaturbereich von 150 bis 50°C, daß die Viskositäten, die Wärmeleitfähigkeit und die Oberflächenspannung des Wassers sehr genau linear approximiert werden können. Aus den Viskositäten für Luft und Dampf und aus dem Sättigungsdampfgehalt läßt sich dann die Viskosität des Luft-Wasserdampf-Gemischs berechnen, wie in Abb. 4311-2 dargestellt.

Bei der Beschaffung der Daten ergaben sich insofern Schwierigkeiten, als die Werte für gesättigten Wasserdampf Differenzen in den Angaben aus verschiedenen Quellen aufweisen, insbesondere bei der Wärmeleitfähigkeit des Dampfs. Neueste Daten ergeben einen deutlich verschiedenen Verlauf

[6, 7] als den in [4] angegebenen. Die Unsicherheiten von 5 % (nach [6]) erlauben jedoch auch hier eine Linearisierung im verlangten Temperaturbereich.

Die mittlere freie Weglänge wird vernünftigerweise aus den Funktionen für die Viskosität, dem Sättigungsdampfgehalt und der thermischen Geschwindigkeit der Gasmolekeln berechnet.

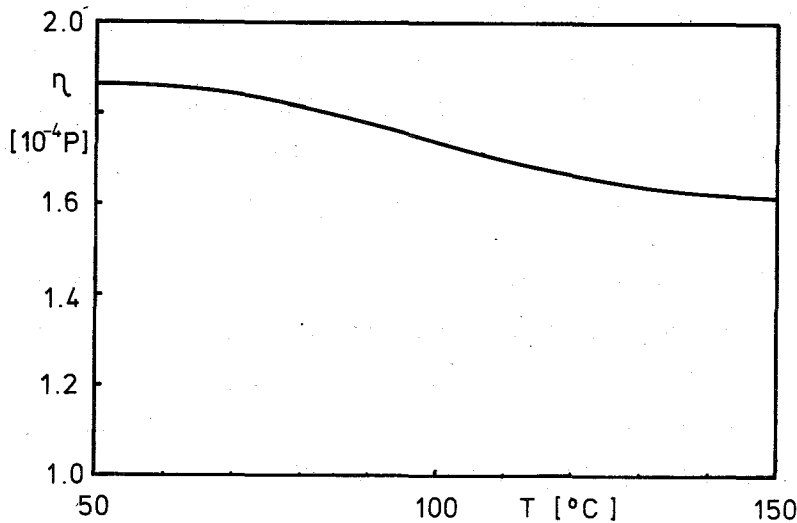


Abb. 4311-2: Mischviskosität des Luft-Wasserdampf-Gemischs als Funktion der Temperatur

## 1.2. Auswirkungen auf die Modellrechnungen

Um sich ein genaues Bild über die Relevanz der Temperaturabhängigkeiten zu machen, müssen noch detaillierte Rechnungen mit dem temperaturabhängigen Modell Mod2 im Vergleich zu den bisherigen Ergebnissen durchgeführt werden. Qualitative Abschätzungen lassen sich aber bereits durch Betrachtungen allgemeinerer Art gewinnen.

Besonders einfach ist dies bei der Viskosität, die direkt in die Beweglichkeit eingeht und somit alle Partikelabbaumechanismen beeinflusst. Da die Viskosität mit steigender Temperatur wegen des steigenden Wasseranteils mit der im Vergleich zu Luft niedrigeren Viskosität abnimmt, sind eine Beschleunigung der Abbauprozesse und der Koagulationsraten zu erwarten. Die bisherigen Rechnungen dürften daher als konservativ angesehen werden.

Weniger leicht überschaubar ist der Effekt bei den anderen Größen. Da die Wärmeleitfähigkeit mit steigender Temperatur zunimmt, wird nach der verwendeten Modellgleichung [8] die Kondensationsgeschwindigkeit und damit der Abbau der Übersättigung und das Tröpfchenwachstum zunehmen.

Die langfristige Auswirkung dieses Vorgangs läßt sich nur durch Rechnungen mit temperaturabhängiger Leitfähigkeit bestimmen.

Die mittlere freie Weglänge des Trägergases nimmt mit steigender Temperatur wegen des erhöhten Wasserdampfgehalts ab. Sie geht ausschließlich als Korrekturfaktor (Cunningham-Korrektur) in die Beweglichkeit der kleinen Partikeln ein. Eine Verkleinerung der freien Weglänge führt zu einer Abnahme der Beweglichkeit, d.h. die bisherige Annahme einer konstanten freien Weglänge resultiert in einer Überschätzung des Abbaus der kleinen Partikeln. Wieweit dieser Effekt den entgegengesetzten bei der Viskosität kompensiert muß durch weitere Rechnungen geklärt werden.

Die Verminderung der Oberflächenspannung des Wassers mit steigender Temperatur führt zu einer Dampfdruckabnahme über den Tröpfchen, d.h. zu einer weiteren Verkleinerung des kritischen Radius. Auch hier kann nicht ohne genauere Untersuchungen gesagt werden, ob die bisherigen Rechnungen konservativ oder nicht konservativ waren.

Insgesamt läßt sich zur Einführung der Temperaturabhängigkeiten in das NAUA-Modell folgendes zusammenfassen.

Der Einfluß der Temperaturabhängigkeiten der bisherigen "Konstanten" ist sicher nicht vernachlässigbar. Die Modellversion NAUA-Mod2 enthält daher alle Temperaturfunktionen in einer dem numerischen Verfahren angepaßten Darstellung, deren Genauigkeit der Güte der verfügbaren Daten und der Relevanz der Parameter entspricht.

Andererseits ist der Einfluß der Temperatur mit Sicherheit kleiner als der Einfluß vieler der in der Sensitivity-Studie identifizierten anderen Parameter. Temperaturabhängige Rechnungen mit Mod2 werden daher erst durchgeführt, nachdem beispielsweise die Aerosolparameter experimentell bestimmt sind.

Die Erstellung der temperaturabhängigen Modellversion Mod2 ist aber eine wichtige Vorarbeit für spätere Vergleiche mit anderen Aerosolverhaltens- und Transport-Codes wie z.B. CORRAL [9] oder HAARM-2 [10], die mit sehr detaillierten Temperaturfunktionen arbeiten.

## 2. Ergänzungen zum experimentellen Konzept

### 2.1. Anforderungen an die Versuchsanlage

Die thermodynamischen und aerosolphysikalischen Zustände, die bei den Experimenten einzustellen sind, werden durch die im Störfall zu erwartenden Bedingungen bestimmt. Dies gilt zunächst ohne Rücksicht darauf, ob sich ein zu untersuchender Effekt bei diesen Bedingungen besonders gut isolieren und beobachten läßt. Die "realistischen" Bedingungen werden auf jeden Fall für die Untersuchungen zur Verifikation des NAUA-Modells benötigt.

Die bei Blowdownrechnungen erreichten maximalen Temperaturen liegen um  $130^{\circ}\text{C}$ . Als obere Grenze des experimentellen Temperaturbereichs wurden  $150^{\circ}\text{C}$  festgelegt. Der zugehörige Totaldruck des Luft-Wasserdampf-Gemischs von 6,3 Bar liegt damit so hoch, daß alle im Containment möglichen Temperaturen und Drücke auch im Experiment eingestellt werden können.

Die Versuchsanlage muß weiterhin die im Containment nach dem Blowdown zu erwartenden Wasserdampfsättigungen und Wasserdampfquellen simulieren können. Ebenso wird ein Spraysystem notwendig, um die in der Sensitivity-Studie berechneten Sprayeffekte experimentell zu überprüfen.

Wegen großer Unsicherheiten über die physikalischen Eigenschaften des im Störfall freigesetzten Aerosols muß in den Experimenten mit einer großen Auswahl verschiedener Aerosolquellen gearbeitet werden. Die wichtigste wird dabei ein  $\text{UO}_2$ -Aerosolgenerator sein, da  $\text{UO}_2$  den überwiegenden Bestandteil der beim Kernschmelzen freigesetzten luftgetragenen Partikeln bildet. Die erforderlichen Partikel- und Massenkonzentrationen sind im Störfall sehr groß, so daß an die Leistungsfähigkeit des Generators besondere Anforderungen zu stellen sind.

### 2.2. Durchführbarkeit der Messungen

In der Sensitivity-Studie wurden die zu messenden Parameter bestimmt. Als nächster Schritt war zu untersuchen, welche Meßeffekte zur Bestimmung dieser Parameter geeignet sind, und wie die Messungen durchgeführt werden können. Dabei ist anzustreben, daß diejenigen Effekte isoliert werden, die überwiegend durch nur einen unbekannt Parameter bestimmt werden.

Die Formparameter des Aerosols, die in die Definition der Beweglichkeit und der Koagulationsquerschnitte eingehen, können in Einzelexperimenten bestimmt werden. Dabei gilt es, einen Zusammenhang herzustellen zwischen der aus rein rechentechnischen Gründen gewählten unabhängigen Variablen "Partikelmasse" und den tatsächlich für den Aerosolabbau verantwortlichen Parametern.

Die Beweglichkeit läßt sich direkt durch Sedimentationsmessung in einer Aerosolzentrifuge bestimmen. Hinzu kommt eine Bestimmung der Partikelmasse und der Vollständigkeit halber eine Messung der Partikelgröße mit elektronenmikroskopischen Methoden. Es ist zu erwarten, daß sich der Zusammenhang zwischen Masse und Beweglichkeit für verschiedene Aerosole unter Zuhilfenahme der Dichte einheitlich darstellen läßt.

Der Koagulationsquerschnitt kann nur aus zeitabhängigen Messungen der Partikelgrößenverteilungen ermittelt werden. Dabei ist es günstiger, stationäre Zustände in einem strömenden System zu verwenden, und so die Zeitabhängigkeit durch eine Ortsabhängigkeit zu ersetzen. Damit wird das Verfahren unabhängig von der jeweils eingesetzten Meßmethode. Eine Vereinfachung der Messung ergibt sich daraus, daß die Koagulation im LWR-Containment überwiegend zwischen Partikeln und Tröpfchen abläuft; d.h. daß ein Partner kugelförmig ist.

Die Kondensationsgeschwindigkeit des Wasserdampfs an den zunächst trockenen Partikeln ist ein sehr wichtiger Parameter, der auch von entscheidendem Einfluß auf den langfristigen Aerosolabbau ist. Die Messung des Tröpfchenwachstums kann nur mit optischen Verfahren durchgeführt werden. Um diesen Meßeffect zu isolieren wird die Wasserdampfübersättigung durch adiabatische Expansion erzeugt.

Die Wände des Versuchsbehälters sind thermostatisiert, um Wandeinflüsse bei der Messung von Kondensationseffekten und Thermophorese nach Erfordernis ausschalten zu können. Bei einigen Messungen ist es jedoch unter Umständen nicht möglich und bei der Verifizierung des Modells als ganzem nicht erwünscht, die Wandeffekte von den Volumeneffekten zu trennen. In diesem Zusammenhang ergab sich die Frage, wie sich die in der Sensitivity-Studie berechneten Abbauraten und die Anteile der einzelnen Abbaumechanismen verhalten, wenn man von der Containmentgeometrie übergeht zur Geometrie des geplanten Versuchsstands, der ein wesentlich größeres Oberflächen/Volumen-Verhältnis hat.



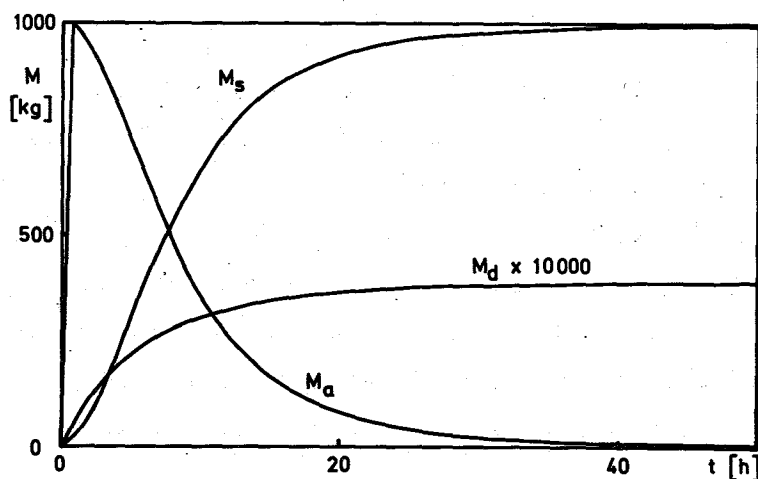


Abb. 4311-3: Abbau der freigesetzten Aerosolmasse im Containment

- $M_a$  - luftgetragene Masse
- $M_s$  - durch Sedimentation abgeschiedene Masse
- $M_d$  - durch Diffusion abgeschiedene Masse

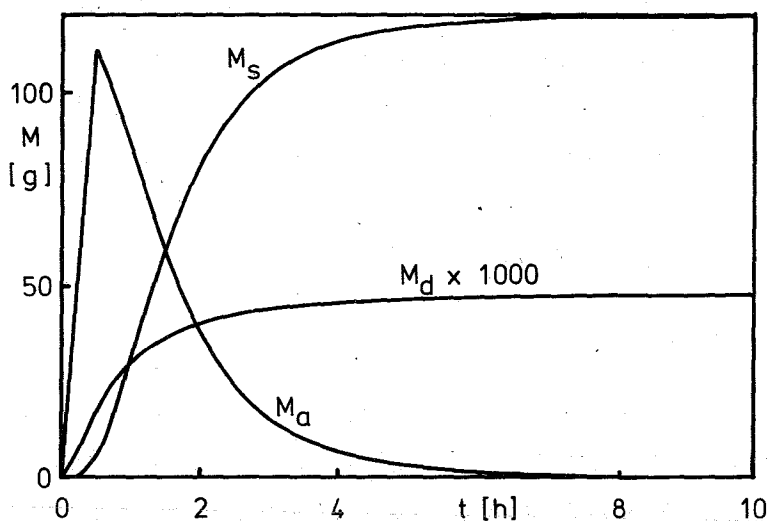


Abb. 4311-4: Abbau der Aerosolmasse im NAUA-Versuchsstand

Bezeichnung der Kurven wie in Abb. 4311-3

In den Abb. 4311-3 und 4311-4 ist ein typisches Beispiel dargestellt. Abb. 4311-3 zeigt den in der Sensitivity-Studie gerechneten Fall D1: die luftgetragene Partikelmasse  $M_a$ , die durch Sedimentation abgeschiedene Masse  $M_s$  und die durch Diffusion abgeschiedene Masse  $M_d$  als Funktion der Zeit, wobei die insgesamt freigesetzte Gesamtmasse 1000 kg ist. Der gleiche Fall wurde für den Versuchsstand gerechnet, wobei nur die geometrischen Daten geändert wurden. Abb. 4311-4 zeigt das Ergebnis. Bei gleicher freigesetzter Massenkonzentration beträgt die aufintegrierte

Masse dann 120 g entsprechend dem kleineren Volumen von  $3 \text{ m}^3$ . Qualitativ sind beide Fälle gleich. Quantitativ fällt im Versuchsstandsmaßstab sofort die verkürzte Zeitskala auf. Dies ist von Vorteil, da ein Vorgang, der sich im Containment über 20 Stunden erstreckt, bei den Versuchen nur 4 Stunden benötigt. Ebenso vorteilhaft ist es, daß die Diffusionsabscheidung um einen Faktor 10 verstärkt ist. Die Diffusion trat bei den Berechnungen der Sensitivity-Studie nur als kleiner Effekt auf. Dies gilt aber nur unter der Voraussetzung, daß die den Rechnungen zugrundegelegten Grenzschichten richtig sind. Es ergibt sich jetzt aber die Möglichkeit, die Diffusionsgrenzschicht experimentell zu bestimmen, wenn man die stärkere Diffusionsabscheidung im Versuchsstand ausnutzt.

Insgesamt läßt sich feststellen, daß alle in der Sensitivity-Studie berechneten Vorgänge auch im Versuchsstandsmaßstab auftreten. Damit ist sichergestellt, daß die bei den Containmentrechnungen aufgetretenen Effekte auch experimentell beobachtet werden können und darüberhinaus zum Teil besser meßbar sind, wie es bei gezielt durchgeführten Untersuchungen wünschenswert ist. Wesentlichen Anteil daran haben die Thermostatisierung des Behälters, die es gestattet, einige Wandeffekte nach Bedarf auszuschalten, und die Expansionsvorrichtung, mit der die Kondensationseffekte von allen anderen Vorgängen isoliert werden.

### 3. Konstruktion der Versuchsanlage

#### 3.1. Versuchsstand

Das Konzept der Versuchsanlage ist im wesentlichen unverändert gegenüber dem im Abschnitt 4. des 2. Halbjahresberichts 1975 gesagten. Daher werden hier nur die Änderungen und Ergänzungen aufgeführt.

In der früheren Planung war vorgesehen, die Kondensationsversuche nur bis  $130^\circ\text{C}$  durchzuführen. Der Auslegungsdruck wurde nun auf 7 Bar erhöht, um den Temperaturbereich bis  $150^\circ\text{C}$  bei gesättigter Wasserdampfatosphäre auszudehnen.

Die adiabatische Expansion wird jetzt mit einem Federbalgkompensator aus Edelstahl durchgeführt. Das wurde durch den erhöhten Temperatur- und Druckbereich notwendig. Die Lebensdauer der ursprünglich vorgesehenen Membrane wäre zu kurz, und ein mehrfaches Auswechseln würde insgesamt teurer als die Lösung mit dem Kompensator. Das Expansionsvolumen wurde

auf 200 l erhöht, und eine Ablesevorrichtung für den genauen Stand des Kompensators wurde vorgesehen.

Die Betätigung des Kompensators erfolgt über Druckluft und Ausgleichsleitungen. Diese Teile sind innerhalb des thermostatisierten Bereichs untergebracht und demontierbar. Die dabei freiwerdenden Anschlüsse können nach Beendigung der Kondensationsversuche zum Einbau der Spraydüsen genutzt werden.

Mit diesen Änderungen wurde der Versuchsstand Ende 1976 bestellt. Der zylindrische Teil des Kessels hat einen Durchmesser und eine Höhe von je 150 cm. Mehrere Flansche sind für die Aufnahme der Meßinstrumentierung und für den Aerosolgenerator vorgesehen. Das Tröpfchengrößenspektrometer kann durch andere Streulicht- oder Absorptionsmessungen ergänzt werden, wobei die Anordnung der Fenster unter verschiedenen Winkeln zueinander eine genügende Flexibilität zuläßt. Alle anderen Meßinstrumente sind konventionell und mit elektrischen Meßwertausgängen versehen, die der zentralen Datenerfassung zugeleitet werden.

Zur Erzeugung von  $UO_2$ -Aerosol ist ein Generator in der Entwicklung, in dem das Material zwischen  $UO_2$ -Elektroden im Lichtbogen verdampft wird. Erste Versuchsreihen verliefen erfolgversprechend, an der Steigerung des Wirkungsgrads und an der Stabilisierung der Bogenentladung wird noch gearbeitet.

### 3.2. Meßtechnik

Das Tröpfchengrößenspektrometer wurde in einer Reihe von Testmessungen erprobt. In Abb. 4311-5 ist der Strahlengang schematisch gezeigt. Die erste Blende in Beleuchtungsstrahl gestattet eine stufenlose Abschwächung der Intensität, um das Gerät auf die jeweils benötigte Empfindlichkeit einzustellen. Der Beobachtungsstrahlengang ist dagegen starr, die Streulichtimpulse gelangen über einen Lichtleiter zu dem außerhalb des Kessels gelegenen Detektor. Eine Beschreibung des Spektrometers wurde an anderer Stelle gegeben [11, 12].

Der Konzentrationsmeßbereich wurde bis zu  $10^5$  T/cm<sup>3</sup> ausgedehnt, wobei allerdings Kompromisse zu Lasten der Partikelgrößenmeßgenauigkeit eingegangen werden müssen. Diese Schwierigkeiten sind prinzipieller Art und können nicht behoben werden. D.h. daß die Einstellung des Spektro-

meters dem Meßobjekt angepaßt werden muß. Die berechnete Untergrenze der Partikelgrößenempfindlichkeit liegt bei  $0,4 \mu\text{m}$  und ist für die Tröpfchengrößenmessung voll ausreichend.

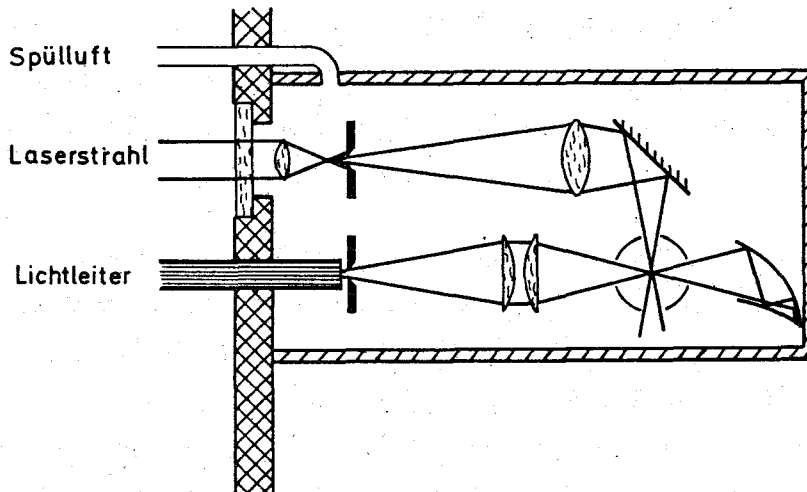


Abb. 4311-5: Optik des Tröpfchengrößenspektrometers  
(schematisch)

Die in Abb. 4311-5 gezeigten optischen Komponenten des Spektrometers befinden sich im Versuchskessel. Sie sind in einem Gehäuse untergebracht, das mit trockener Luft gespült wird, um ein Beschlagen der Optik zu verhindern. Das Gehäuse wird z.Z. konstruiert, die Spülluftversorgung kann jedoch erst nach Lieferung des Versuchsstands aufgebaut werden.

Die Meßgeräte für die nichtoptischen Meßdaten sind geliefert und einsatzbereit, soweit sie nicht die Temperaturmessung betreffen. Ähnlich wie bei der schnellen Druckmessung zur Bestimmung des Wasserdampfgehalts muß bei den Expansionsvorgängen auch eine schnelle Temperaturmessung eingesetzt werden. Die Möglichkeit dazu ist mit Hilfe von Halbleiterfühlern prinzipiell gegeben, jedoch existieren keine Erfahrungen über deren Zuverlässigkeit bei den im Versuchsstand herrschenden Temperaturen und Feuchten. Sollten sich hier Schwierigkeiten ergeben, so kann jedoch auf andere erprobte Methoden zurückgegriffen werden, wenn man geringere Zeitauflösung in Kauf nimmt.

Das Datenerfassungskonzept hat sich nicht geändert, insbesondere soweit es die Messung der Tröpfchenspektren betrifft. Die Elektronik für die Erfassung der Kontrolldaten, die bei der Durchführung eines Versuchs anfallen, wurde bestellt. Das System ist in der Lage, sowohl die sehr schnell veränderlichen Größen wie Wasserdampfgehalt und Gastemperatur

als auch die langsamen Daten wie Wandtemperatur, Quellparameter etc. gleichzeitig unabhängig voneinander zu erfassen. Die Auswertung der Meßdaten erfolgt ausschließlich auf der Anlage der ADI, da die Umformung fast aller Meßsignale in die Meßgrößen nichtlinear ist und somit einen größeren Rechenaufwand erfordert. Die zugehörigen Programme sind für die Tröpfchenspektren erstellt, die für die Kontrolldaten sind in Bearbeitung.

Literatur:

- [ 1 ] Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht I/1976, KFK-2375, (1976)
- [ 2 ] G. Haury, W. Schöck, Modell zum Aerosolverhalten im Containment eines LWR nach einem schweren hypothetischen Störfall, Fachtagung der Gruppe Reaktorsicherheit der kerntechnischen Gesellschaft, Karlsruhe, 1.-2. Juni 1976
- [ 3 ] G. Haury, W. Schöck, The removal of radioactive aerosols from the post accident atmosphere of an LWR-containment, 14th Air Cleaning Conference, Sun Valley, Idaho, August 2-4, 1976
- [ 4 ] VDI-Wasserdampftafeln, VDI Hrsg., 7. Auflage, Berlin 1968
- [ 5 ] VDI-Wärmeatlas, Berechnungsblätter für den Wärmeübergang, VDI Hrsg., Düsseldorf 1963
- [ 6 ] T. Minamiyama, J. Sata, A formulation of thermal conductivity of water substance, unpublished, Kyoto Inst. of Tech., Kyoto, September 1976
- [ 7 ] K. Scheffler, N. Rosner, U. Grigull, Draft of the skeleton table proposal for thermal conductivity of water substance, unpublished, Techn. Univ. München, Lehrstuhl f. Thermodynamik, September 1976
- [ 8 ] Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht I/1976, KFK-2195 (1975)
- [ 9 ] USNRC Reactor Safety Study, App. VII, WASH 1400, NUREG 75/014, 1975
- [ 10 ] L.D. Reed, J.A. Gieseke, HAARM-2 users manual, BMI-X-665, October, 1975

[11] W. Schöck, Messung von Tröpfchengrößenspektren in übersättigter Wasserdampf-atmosphäre mit einem Laser-Streulichtspektrometer, Jahrestagung der Gesellschaft für Aerosolforschung 1976, Bad Soden, 3.-6. November 1976

[12] S. Jordan, W. Schikarski, W. Schöck, Research on aerosol formation, aerosol behavior, aerosol filtration, aerosol measurement techniques and sodium fires at the Laboratory for Aerosol Physics and Filter Technology at the Nuclear Research Center Karlsruhe, IWGFR Specialists' Meeting on Aerosol Formation, Vapor Deposits and Sodium Vapor Trapping, Cadarache, December 13-17, 1976

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 und 2), Vorbereitung von Tetroonflügen (Abschnitt 3), statistische Analyse gemessener meteorologischer Daten (Abschnitt 4), Beitrag zur Risiko-Analyse kerntechnischer Anlagen (Abschnitt 5).

### 1. Ausbreitungsversuche

(J. Hiller, H. Schüttelkopf, P. Thomas)

#### 1.1 Durchführung der Versuche

Im 2. Halbjahr 1976 wurden die drei in Tab. 4312-1 zusammengestellten Ausbreitungsversuche durchgeführt. Mit Ausnahme des Versuches 41 wurden zwei verschiedene Tracer in den Höhen 60 m und 100 m freigesetzt. Bei jedem Versuch wurden an mehr als 50 Stellen Proben genommen. Die Probenahmedauer betrug außer bei Versuch 42 zweimal 30 min.

Um Ausbreitungsparameter auch bei stabiler Luftschichtung experimentell zu ermitteln, wurden die Versuche jeweils ca. drei Stunden nach Sonnenuntergang durchgeführt. Wegen der Dunkelheit waren die Arbeitsbedingungen für das Personal entsprechend erschwert.

Die automatischen Sammelstationen kamen, wie im 1. Halbjahr, bei allen Versuchen erfolgreich zum Einsatz. Der maximale Abstand der Probenahmegeräte zur Quelle betrug über 8 km.

Bei Kategorie F soll in Zukunft die Emissionsstärke und die Sammelstellendichte erhöht werden. Dazu wird nur noch während einer Periode an bis zu 120 Stellen gesammelt. Die zusätzlichen Leitgeräte sind bereits in der Fertigung.

Tab. 4312-1 Zusammenstellung der durchgeführten Ausbreitungsversuche

Laufende Nr.	Kategorie	Probenahmezeit	Emissionshöhe in m und Tracer			
41	E/F	20.30-21.30	60	CFC1 <sub>3</sub>		
42	D	20.30-21.00	60	CFC1 <sub>3</sub>	100	CBr <sub>2</sub> F <sub>2</sub>
43	E	19.30-20.30	60	CFC1 <sub>3</sub>	100	CBr <sub>2</sub> F <sub>2</sub>

## 1.2 Auswertung

Für die Emissionshöhe 60 m liegen jetzt zu den Kategorien A bis E Ausbreitungsparameter von mindestens einem Versuch vor. Allerdings sind weitere Versuche bei den Kategorien A, D und E nötig, um die Parameter statistisch besser abzusichern. Die Abb. 4312-1 und -2 zeigen die aus den Versuchen 35 (siehe Halbjahresbericht 1976/1, KFK 2375) und 43 gewonnenen Ausbreitungsparameter  $\sigma_y$  und  $\sigma_z$ . Während dieser Versuche herrschten die Kategorien A bzw. E.

Abb. 4312-3 zeigt die bei Versuch 35, Periode 1 gemessene Konzentrationsverteilung des Tracers CBr<sub>2</sub>F<sub>2</sub> in Form von Höhenlinien. Die Höhenlinien wurden durch Interpolation der Meßwerte vom Computer berechnet und gezeichnet. Die Positionen der Meßstellen sind durch die offenen Quadrate dargestellt. Die Treppenkurve gibt die um 180° gedrehte Windrichtungsverteilung in 40 m Höhe während der 1. Sammelperiode an.

## 2. Feldmessungen

(H. Dilger)

Im Rahmen der Feldmessungen über verschieden rauhem Untergrund wurde ein 15 m hoher Kurbelmast auf einer Wiese in der Nähe von Spöck aufgestellt. Der Mast ist in 2 m, 5 m und 15 m Höhe mit je einem Schalensternanemometer und in 15 m Höhe mit einer Vektorfahne bestückt. Zur Datenerfassung wird ein tragbares, netzunabhängiges und wetterfestes Gerät verwendet. Es er-



faßt sowohl digitale Signale der Anemometer als auch analoge Meßwerte der Vektorfahne. Die Daten werden in 16-bit-Worte umgeschrieben auf Kassette gespeichert. Parallel dazu ist zur Kontrolle eine Analogregistrierung der Vektorfahnenmeßwerte vorgesehen. Mit den 3 Anemometern wird mittels des Windprofils bei adiabatischer Schichtung die Rauigkeitslänge  $z_0$  am Standort bestimmt. Die Vektorfahne liefert Aufschluß über die Turbulenz über dem gewählten Untergrund. Der Meßort ist in jeder Richtung mehr als 2 km vom nächsten Wald und mehr als 1 km vom nächsten Ort entfernt, so daß die dort erhöhte Turbulenz weitgehend abgeklungen sein dürfte. Die am Standort in Spöck gewonnenen Turbulenzparameter  $\sigma_\phi$  und  $\sigma_\theta$  werden mit denjenigen im KFZ verglichen und zwar sowohl während Einzelzeiträumen von ein bis zwei Stunden als auch im statistischen Mittel über mehrere Monate. Bisher wurde bei neutraler Wetterlage ein Meßlauf über eine Stunde registriert.

### 3. Ausbreitung von Schadstoffen im Mesoscale

(P. Thomas, S. Vogt)

Es ist geplant, die Ausbreitung von Schadstoffen im Mesoscale (10-100 km) mittels radarverfolgter Tetroonflüge zu untersuchen. Diese Methode ist im PNS-Halbjahresbericht 1976/1, KFK 2375, beschrieben. Fliegt der Tetroon sehr niedrig oder ist die Entfernung zwischen Tetroon und Radar sehr groß, wird der zu messende Höhenwinkel klein. Dann treten Schwierigkeiten beim Verfolgen durch die am Boden reflektierten Radarechos auf. Ein in Amerika entwickeltes sogenanntes Transponder-System beseitigt diese störenden Bodenechos. Der etwa 250 g schwere Transponder wird am Tetroon befestigt. Er besteht aus Sender und Empfänger. Empfängt dieser ein genügend starkes Signal des Radars, dann sendet er auf der ihm eigenen Frequenz, welche sich von der Frequenz des Radars unterscheidet, ein Signal zurück. Dieses Signal wird über zusätzliche Antennen und Empfänger in das automatische Nachführungssystem des Radars eingespeist. Ende Oktober fand eine Besprechung mit E. F. Pound, dem amerikanischen Hersteller der Transponder, statt. Dieser stellte zu Testzwecken zwei Transponder zur Verfügung.

Das Radar soll geliehen werden. Dazu werden Verhandlungen mit dem Meteorologischen Institut der Universität Karlsruhe (MIK), Besitzer eines PLESSY-WF 3 (Wind finding radar) und mit dem Amt für Wehrgeophysik, Besitzer eines

PHILIPS MBVR 120 (Mobiles Ballon Verfolgungs Radar), geführt. Beide Radarsysteme sind mobil. Für einen Betrieb mit Transpondern sind sie nicht ausgerüstet. Grundsätzlich ist das jedoch nach entsprechenden Umbauten möglich. Bei den Umbauten handelt es sich um eine Leistungsminderung des Radars und um das Einspeisen der empfangenen, verstärkten und entsprechend geformten Transpondersignale. Antenne, Empfänger, Verstärker und Wandler der Transpondersignale müssen angeschafft werden.

Wegen der Umbauten und Neuanschaffungen werden Verhandlungen mit den Herstellerfirmen geführt. Die Umbauten des PLESSY-WF 3 erscheinen aufwendig. Bei diesen Besprechungen wurden auch andere Lösungsvorschläge diskutiert, die nicht auf der Verwendung von Transpondern beruhen. Diese Vorschläge werden geprüft. Eine Fluggenehmigung für Tetroons wurde eingeholt.

#### 4. Auswertung meteorologischer Messungen

(S. Vogt)

Die umfangreichen Messungen meteorologischer Parameter am 200 m hohen Meßmast wurden hinsichtlich der Ausbreitungsstatistik, der Niederschläge, der Strahlungsbilanz und der besonderen Ausbreitungssituationen ausgewertet. Hier wird als Beispiel solcher Auswertungen die für Berechnungen der Umgebungsbelastung durch eine Schadstoffquelle wichtige Ausbreitungsstatistik aufgeführt.

Unter Ausbreitungsstatistik wird die dreiparametrische Häufigkeitsverteilung der Windrichtung, der Windgeschwindigkeit und der Ausbreitungskategorie verstanden. Eine solche Statistik ermöglicht u. a. die Berechnung der Strahlenexposition in der Umgebung kerntechnischer Anlagen und dient der Berechnung von Langzeitausbreitungsfaktoren. Die Ausbreitungskategorien sind wie üblich mit A bis F bezeichnet. A bedeutet sehr labil, F bedeutet sehr stabil. Sie wurden aus 1-h-Mittelwerten der Windrichtungsfluktuation bestimmt. Der Windgeschwindigkeit liegen ebenfalls 1-h-Mittelwerte der Höhe 60 m zugrunde. Tabelle 4312-2 zeigt die richtungsunabhängige Ausbreitungsstatistik des meteorologischen Jahres 1976. Die vollständige, d. h. richtungsabhängige Statistik kann KFK 2433 entnommen werden. /1/.

Tab. 4312-2

AUSBREITUNGSSTATISTIK AUFSUMMIERT ÜBER ALLE WINDRICHTUNGSSEKTOREN

1.12.1975 - 30.11.1976

(IN PROZENT)

WG (M/S)	AUSBREITUNGSKATEGORIE						SUMME
	A	B	C	D	E	F	
0.0- 0.4	0.01	0.05	0.14	0.12	0.02	0.03	0.37
0.5- 0.9	0.16	0.29	0.43	0.47	0.34	0.17	1.86
1.0- 1.4	0.25	0.73	1.06	1.09	0.53	0.49	4.15
1.5- 1.9	0.50	0.83	1.11	2.14	1.43	0.94	6.95
2.0- 3.9	1.58	4.30	5.38	12.45	11.31	7.43	42.45
4.0- 7.9	0.05	1.76	7.60	20.09	6.72	4.06	40.28
8.0-14.9	0	0	0.36	3.55	0	0	3.91
15.0-30.0	0	0	0	0.02	0	0	0.02
SUMME	2.56	7.96	16.10	39.91	20.36	13.12	100.00

Literatur

- /1/ H. Kiefer, W. Koelzer;  
Jahresbericht 1976 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit,  
KFK 3433

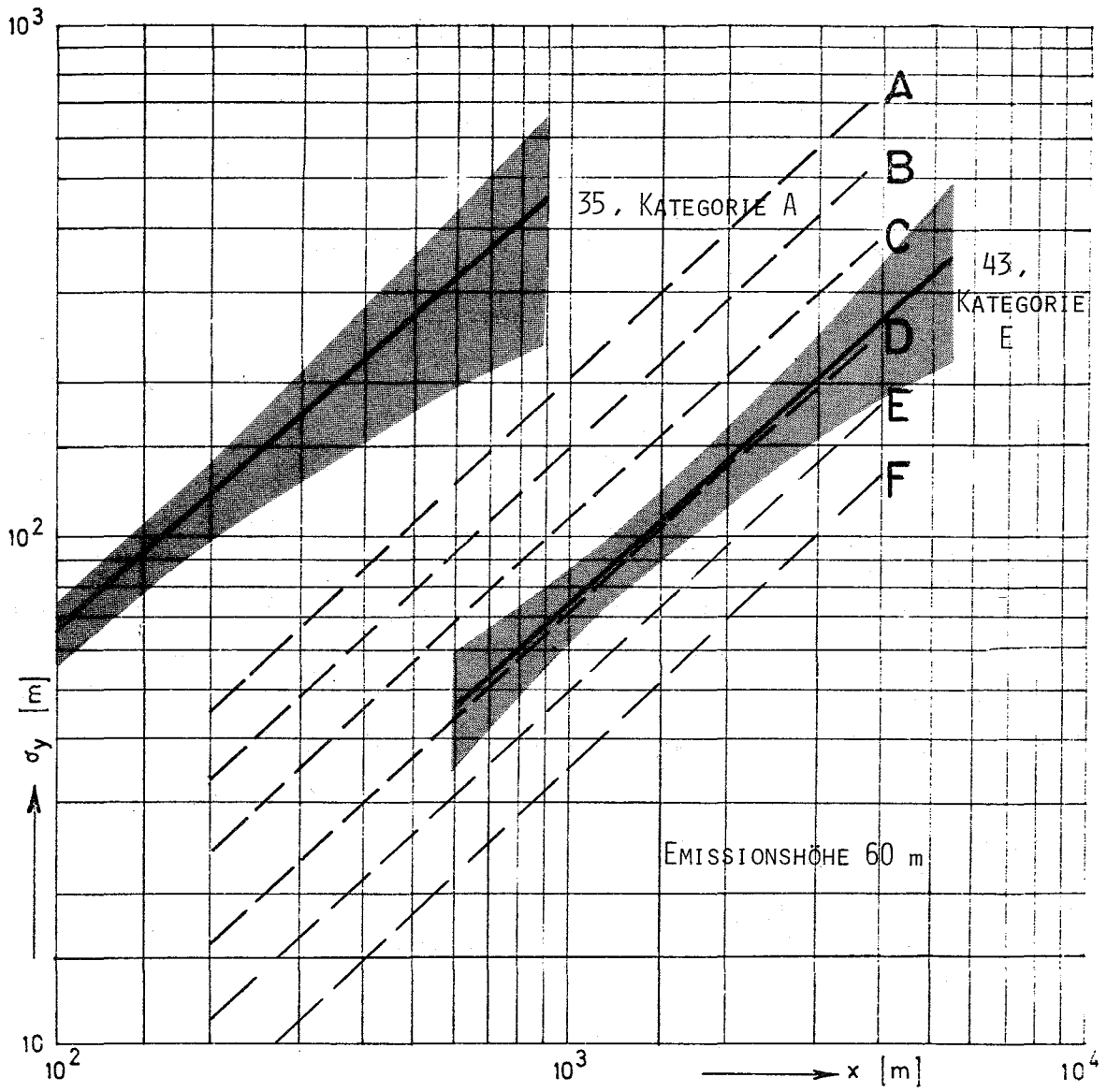


ABB. 4312-1 ERGEBNISSE DER AUSBREITUNGSVERSUCHE BEI EINER EMISSIONS-  
HÖHE VON 60 m  
VERSUCH 35, KATEGORIE A  
VERSUCH 43, KATEGORIE E  
(--- NACH PASQUILL/GIFFORD)

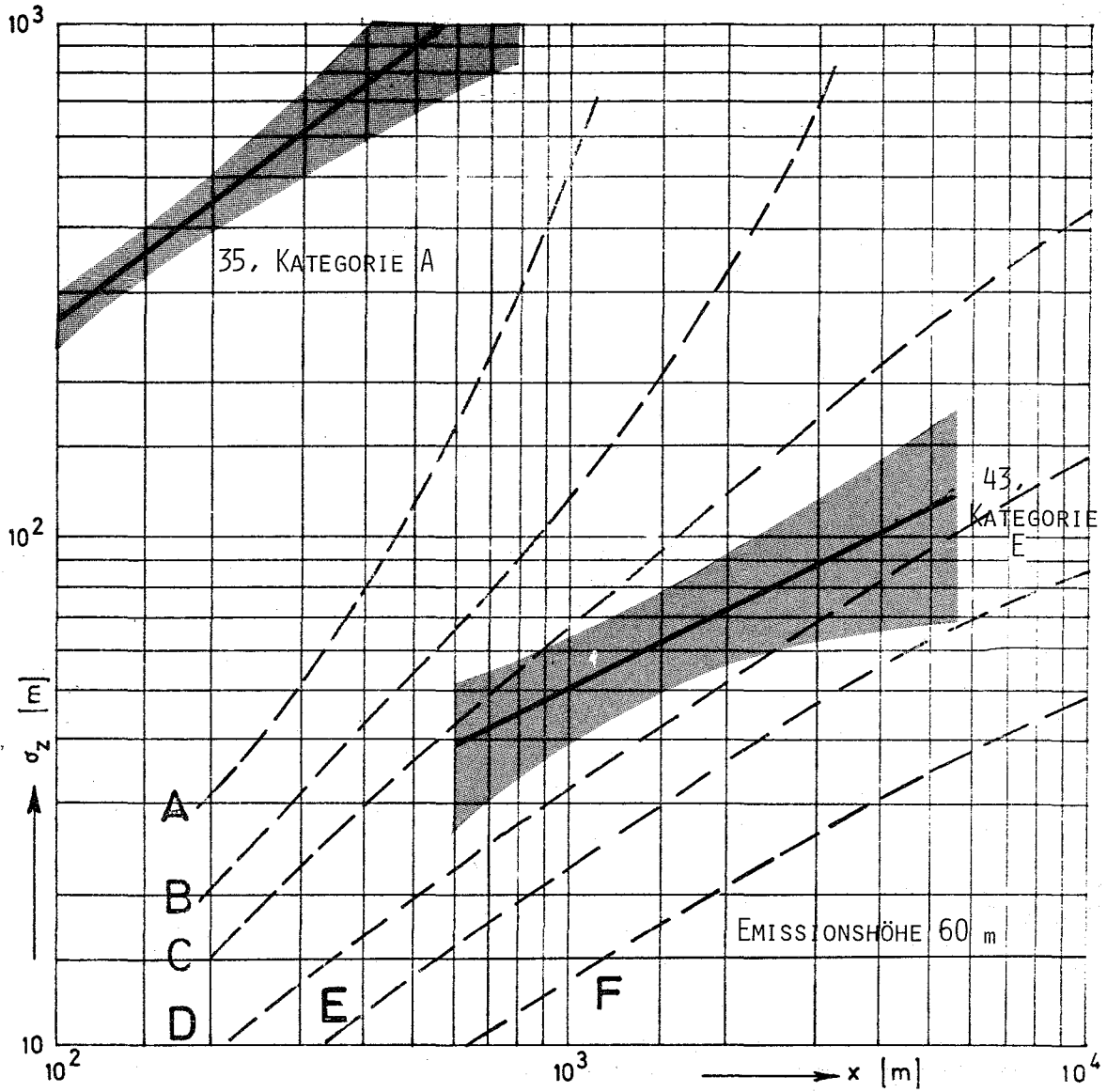


ABB. 4312-2 ERGEBNISSE DER AUSBREITUNGSVERSUCHE BEI EINER EMISSIONSHÖHE VON 60 m  
VERSUCH 35, KATEGORIE A  
VERSUCH 43, KATEGORIE E  
(--- NACH PASQUILL/GIFFORD)

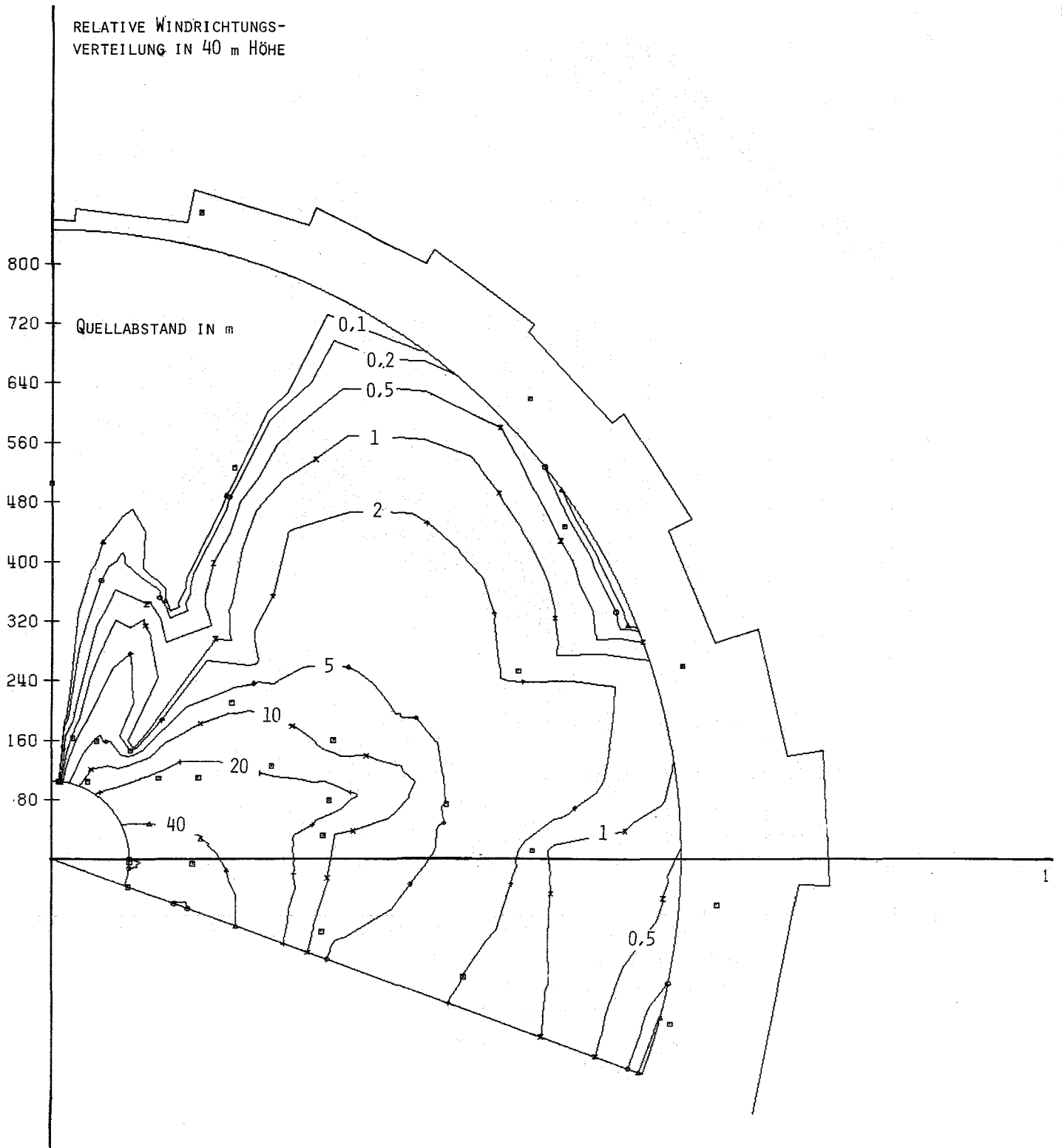


ABB. 4312-3: KONZENTRATIONSVERTEILUNG IN  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  BEI VERSUCH 35, SAMMELPERIODE 1, EMISSIONSHÖHE 60 m,  
MIT WINDRICHTUNGSVERTEILUNG IN 40 m HÖHE;  $\square$  MESSSTELLE

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

#### Vorbemerkung

Im Laufe der weiteren Erstellung des numerischen particle-in-cell Rechenprogramms XPIC wurde dieses Programm im letzten Halbjahr durch Aufteilung in zwei Versionen für die praktische Anwendung flexibler gestaltet.

Außerdem wurde der mögliche Umfang der Teilchen- und Zellenanzahlen beträchtlich erweitert.

Mit diesem verbesserten Programm wurden Untersuchungen mit höhenabhängigen turbulenten Diffusionskoeffizienten und Windgeschwindigkeiten, sowie mit Windrichtungsscherungen 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 [1975a] dieses Erstellungsauftrages erläutert. Auf die Möglichkeit der Bestimmung der turbulenten Diffusionskoeffizienten wurde im 2. Halbjahresbericht [1975b] näher eingegangen.

#### Erstellung des Programms XPIC

Im Verlauf unserer Untersuchungen stellte es sich als zweckmäßig heraus, für die in der Praxis häufiger vorkommenden Ausbreitungsfälle zwei unterschiedliche Versionen des Programms vorzubereiten. Zur Berechnung der Ausbreitung größerer Schadstoff-Einzelwolken über größere Strecken und Zeiten ist ein Programmtyp zweckmäßig, bei dem das Zellensystem in seinen Abmessungen schrittweise durch Vergrößerung der Zellenabmessungen an die größer werdende Wolke angepaßt werden kann. Wenn dagegen in einem begrenzten größeren Gebiet das Verhalten von Schadstoffwolken mehrerer Quellen über längere Zeiten verfolgt werden soll, dann ist es für eine hinreichend genaue Erfassung in einem System mit entsprechend vielen Zellen wegen der begrenzten Speicherkapazität der Rechenanlage unumgänglich, die Rechnungen gruppenweise für die den Schadstoff repräsentierenden Teilchen und abschnittsweise für das Zellensystem durchzuführen.

Außerdem ergibt sich bei diesem festen Zellen-system die Belastung an einem Detektorpunkt unmittelbar durch Aufsummierung der Konzentrationen in der untersten Schicht entsprechend den einzelnen Zeitschritten, während in der Version A eine einfache Berechnung der Belastung nur unter bestimmten Annahmen möglich ist.

Somit teilt sich die Programmerstellung in die Schaffung zweier Versionen A und B.

#### Version A:

Für eine Einzelwolke wurde das Programm XPIC in der Version A weiterentwickelt. Dabei wird der Koordinatenursprung des Zellen-systems mit dem Wolkenschwerpunkt mitgeführt, und die Zellendimensionen werden durch schrittweises Vergrößern an die expandierende Wolke angepaßt. Die die turbulente Diffusion bestimmenden Größen werden für jede Zellecke jeweils neu berechnet. An den Zellenrändern zur freien Atmosphäre hin werden sie aus den Größen in den inneren Zellen ermittelt. Für die Zellenränder, die durch eine reflektierende oder absorbierende Schicht, wie z. B. durch den Erdboden, abgeschlossen werden, wurde ein Mechanismus eingeführt, der dafür sorgt, daß sich die Teilchen physikalisch sinnvoll über dem Erdboden bewegen. Während im Gaußschen Modell durch eine Spiegelquelle eine totale Reflexion erzeugt wird, deren Wirkung sich momentan über die ganze Wolke fortsetzt, stauen sich in der "particle-in-cell" Methode die Teilchen naturgemäß entsprechend der abnehmenden Diffusionskonstanten und der -geschwindigkeit über dem Erdboden. Dadurch steigt die Konzentration in der untersten Zelle stärker, aber der Stau pflanzt sich nur schrittweise langsam und zeitlich verzögert nach oben-hin fort.

Die Belastung wird vorerst dadurch bestimmt, daß zu einem festen Zeitpunkt die Konzentrationen in den Zellen längs der Bewegungs-richtung der Wolke aufsummiert werden. Das heißt, daß die Wolke wie im Gaußschen Modell als unveränderlich angesehen wird, solange sie am Empfänger vorbeistreicht. Die Belastungen sind mit der particle-in-cell Methode sowohl mit einem passend gewählten Mittelwert für die Windgeschwindigkeit als auch mit einem höhen-



abhängigen Geschwindigkeitsprofil berechnet worden. Beide Male stimmen sie gut mit denjenigen des Gaußschen Modelles unter entsprechenden Bedingungen überein.

Wenn man zusätzlich eine höhenabhängige Windrichtungsscherung einführt, so bewirkt der durch die Scherung verdrehte Bodenwind im Gegensatz zu einem einheitlichen Transport in der Hauptwindrichtung, daß die Belastung unterhalb der Zentrallinie abnimmt, während sie in Richtung des bodennahen Windes zunimmt. Abbildung 1 zeigt dieses für eine punktförmige Emission in 100 m Höhe.

Die Rechnungen lassen sich auch mit höhenabhängigen turbulenten Diffusionskoeffizienten wiederholen, wie sie z. B. von Wippermann [1973] und Blackadar [1962] angegeben werden, siehe hierzu Schultz et al. [1976]. Dabei ergeben sich für beide Fälle in den bisher durchgeführten Rechnungen einheitlich niedrigere Belastungen aufgrund kleinerer  $K_z(z)$ -Werte gegenüber dem Gaußschen Modell.

Die Untersuchungen können bisher noch nicht als endgültig angesehen werden, da noch weitere Punkte in rechen-technischer wie in meteorologischer Sicht untersucht werden müssen, z. B.

- 1.) Der Einfluß der Emissionshöhe auf die Belastung am Erdboden bei höhenabhängigen Diffusionskoeffizienten, oder
- 2.) die Frage, ob es überhaupt zulässig ist, die höhenabhängigen Diffusionskoeffizienten  $K_z(z)$  in der Vertikalen nach der Grenzschichttheorie mit den transportzeitabhängigen Koeffizienten  $K_x(x)$  und  $K_y(y)$  in der Horizontalen nach der statistischen Theorie zu kombinieren oder
- 3.) die Zuordnung und Anpassung der Zellendimensionen an die  $K_z(z)$ -Werte, usw.

#### Version B

Durch die Behandlung der Teilchen in Gruppen können so große Teilchenanzahlen durchgespielt werden, wie es die Computerzeit erlaubt.

Bei der abschnittsweisen Behandlung der Ausbreitung im Zellen-system durch Scheiben in der yz-Ebene ist es sinnvoll, wenn die Teilchen nach ihrer x-Komponente sortiert vorliegen. Denn im allgemeinen wird man eine Scheibe des Zellen-systems so groß wählen, daß sie gerade noch im Kernspeicher bearbeitet werden kann, und die Daten und Inhalte der übrigen Scheiben (Abschnitte) auf externe Dateien auslagern. Wären die Teilchen nicht sortiert, würde sehr viel Rechenzeit für das Hereinholen und Auslagern der Dateien verbraucht. Da aber leider die Teilchen im Laufe des Ausbreitungsvorganges außer Sortierung geraten werden, muß nach etlichen Rechenschritten neu sortiert werden. Um ein häufiges Sortieren zu vermeiden, arbeitet man mit in der x-Richtung über-lappenden Scheiben (Abschnitten).

Mit Hilfe dieser abschnittsweisen Abarbeitung des Transportes im Zellen-system können bis jetzt bis zu 100 000 Zellen behan-delt werden. Diese Version B befindet sich vorläufig noch in der Testphase, um zu einer optimalen Ausnutzung der verfügbaren Speicherkapazität und Rechenzeit zu gelangen.

#### Literatur

- Blackadar, A.K., The Vertical Distribution of Wind and Turbulent Exchange in a Neutral Atmosphere, J. Geophys. Research, Vol.67 No. 8, July (1962), S. 3095
- Schultz, H., E. Voelz, C.-D. Wüneke, 2. Halbjahresbericht 1975 zum Thema 4312-TUH KFK 2262 S. 436
- Schultz, H., E. Voelz, C.-D. Wüneke, 1. Halbjahresbericht 1976 zum Thema 4312-TUH (im Druck)
- Wippermann, F., The Planetary Boundary Layer of the Atmosphere, Annalen der Meteorologie, Deutscher Wetterdienst, Offenbach (1973), S. 314-321
- Wüneke, D.-D., H. Schultz, 1. Halbjahresbericht 1975 zum Thema 4312-TUH, FKF 2195, S. 386

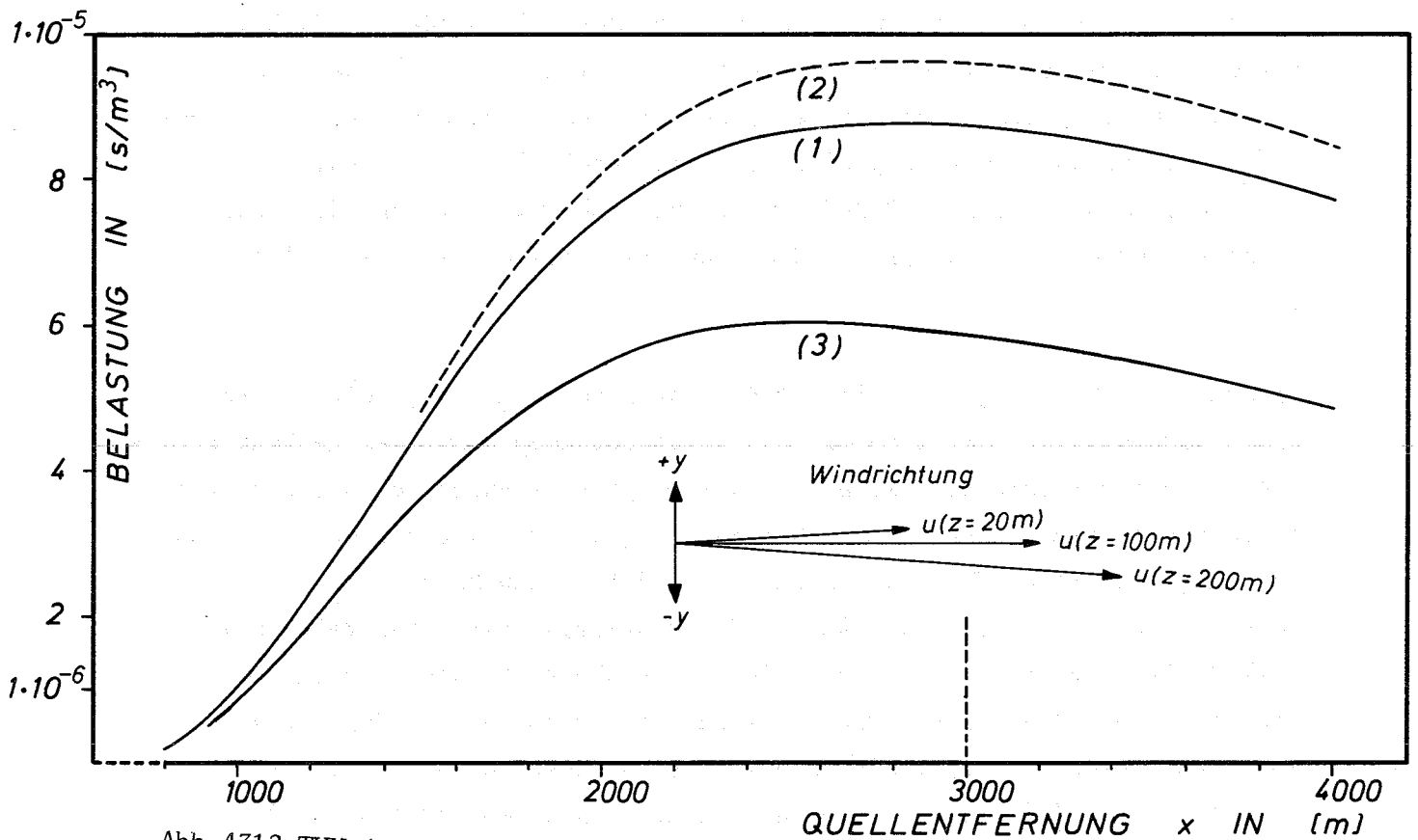
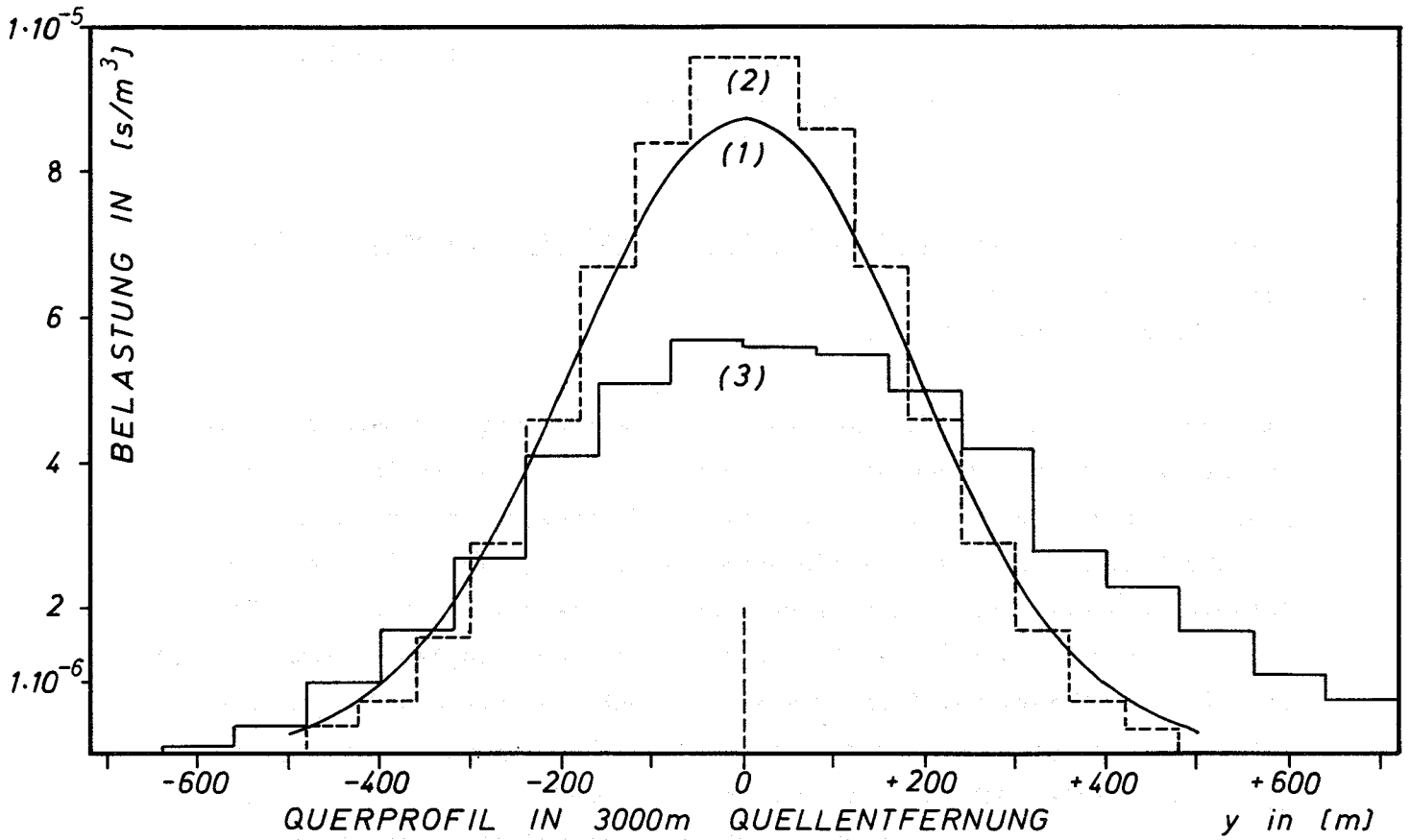


Abb.4312-TUH-1:

Normierte Belastung nach einer punktförmigen Einheitsemission in 100 m Höhe unter neutralen Diffusionsbedingungen berechnet nach dem Gaußschen Rauchfahnenmodell (1) und nach der particle-in-cell Methode mit einem höhenabhängigen Windprofil (2) und mit einer zusätzlichen Windrichtungsscherung (3).

4330      Untersuchung der radiologischer Folgen von Reaktorunfällen  
unter probabilistischen Gesichtspunkten

Atmosphärische Ausbreitungsmodelle für das Unfallfolgenmodell in der  
Reaktor-Risiko-Studie

(W. Hübschmann, S. Vogt, ASS)

Im Rahmen der deutschen Risiko-Studie zur Beurteilung der Sicherheit von Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktoren an Standorten in der Bundesrepublik (Leitung: Prof. Dr. A. Birkhofer, München) wurde GfK/PNS die Aufgabe übertragen, das Unfallfolgenmodell zu erstellen. Dies hat die Aufgabe, die durch die freigesetzten Schadstoffe resultierenden Schäden und Risiken gesundheitlicher Art zu ermitteln. Das Programmsystem gliedert sich in zwei Teile. Das Basisprogramm UFO-BAS geht von den Freisetzungsdaten aus und errechnet das Zeitintervall der bodennahen Luftkonzentration der freigesetzten Nuklide. Die  $\gamma$ -Strahlung aus der Wolke und zusätzliche Effekte, die die atmosphärische Verdünnung beeinflussen, wie thermischer Auftrieb, Fallout, Washout und radioaktiver Zerfalls werden in UFO-BAS berechnet. Das Programm UFO-DOWI (Dosiswirkung) geht aus von den abgespeicherten Konzentrationsintegralen und errechnet unter Anwendung der Dosis-Wirkungsbeziehungen die resultierenden gesundheitlichen Schäden. Die Zwischenergebnisse von UFO-BAS sind abzuspeichern, um in der Wahl des Inhalationsmodells (UFO-DOWI) und des Evakuierungsmodells flexibel zu sein.

In der deutschen Reaktor-Risiko-Studie ist neben dem Ziel, solche Ergebnisse darzustellen, die sich mit der amerikanischen Reaktorsicherheitsstudie (WASH-1400) vergleichen lassen, vor allem die Berechnung des ortsabhängigen Individualrisikos geplant. Dies hat zur Folge, daß das atmosphärische Ausbreitungsmodell aus WASH-1400 nicht verwendet werden kann. Nach mehreren Voruntersuchungen zeigte es sich, daß die atmosphärische Ausbreitung in zwei Fälle unterteilt werden muß. Für den Nahbereich, d.h. bis 30 km, wird ein quasi-stationäres Modell verwendet werden, das im Gegensatz zum amerikanischen Modell die Windrichtung berücksichtigt. In diesem Modell müssen allerdings Aufpunkte in alle Richtungen und sehr viele Wetterabläufe berücksichtigt werden, um die statistische Verteilung der Ausbreitungssituationen richtig wiederzugeben. Das führt zu großen Rechen-

zeiten und zu einer Überschreitung der zur Verfügung stehenden Speicherplatzkapazität (350 Mio. Speicherplätze).

Für den Fernbereich von 30 km bis 500 km wurde ein dynamisches Modell entwickelt. Hierbei werden zwar die Änderungen der atmosphärischen Turbulenz während des Transports der emittierten Schadstoffe berücksichtigt, die Windrichtung wird jedoch vernachlässigt und eine geradlinige Ausbreitung angenommen (Modell A). Diese Vernachlässigung ist ohne Einfluß auf das Ergebnis; denn in größerer Entfernung wird die Bevölkerungsverteilung nur noch entfernungs- und nicht mehr richtungsabhängig angegeben. Wichtig ist aber, die Änderung der Ausbreitungsbedingungen während des Transports zu berücksichtigen; denn die Transportzeiten liegen, wie Abb. 4330-1 zeigt, selbst bei dem vereinfachten Modell A fast durchweg über einen Tag. Noch längere Transportzeiten ergäben sich, wenn ein realistischeres zweidimensionales Trajektorienmodell, Modell B, verwendet würde, siehe Abb. 4330-1. In der Phase A der Reaktor-Risiko-Studie wird das Ausbreitungsmodell für den Fernbereich auch im Nahbereich verwendet.

Um die statistische Repräsentanz der Ergebnisse zu gewährleisten, sollten alle innerhalb eines Jahres möglichen Wetterabläufe in die Berechnungen einbezogen werden. Infolge der dabei auftretenden Schwierigkeiten bei Speicherkapazität und Rechenzeit muß die Anzahl der Wetterabläufe eingeschränkt werden. Es wurde gezeigt, daß im Nahbereich 4300 Wetterabläufe genügen, um sicher zu sein, daß im Mittel die Ergebnisse um nicht mehr als 15 % von den Ergebnissen abweichen, die erzielt würden, sofern alle Wetterabläufe berücksichtigt würden. Für den Fernbereich genügen 115 Wetterabläufe.

Für die weitere Arbeit am Unfallfolgenmodell ist es wichtig, solche Situationen zu analysieren, in denen besonders schwerwiegende Unfallfolgen zu erwarten sind, so daß Gegenmaßnahmen wie Räumung und Dekontaminierung erforderlich werden. Für die Berechnung einer derartigen Unfallsituation konnte eine Programmversion des UFO-DOWI verwendet werden, welche das unveränderte Modell aus /1/ enthält, und der Analyse der Ergebnisse der Rasmussen-Studie diene, s. /2/.

Für das Rechenbeispiel wurden folgende Randbedingungen gewählt:

Freisetzungskategorie PWR 2, s. /1/;

Wahrscheinlichkeit der Freisetzung  $8 \cdot 10^{-6}/a$ ;

Freisetzungsbeginn 10 h;

Ausbreitungskategorie D, Regen, Niederschlagsmenge 6,25 mm in der Zeit von 10 - 14 h;

Windgeschwindigkeit während dieser Zeit 6 - 8 m/s in 60 m Höhe.

Die Niederschläge bewirken eine Auswaschung der Aktivität aus der aktiven Wolke, was eine verstärkte Strahlung vom Boden zur Folge hat. Niederschläge der obigen Intensität treten nur wenige Male pro Jahr auf (Häufigkeit ca. 1 %/a), so daß Unfallfolgen dieser Art eine sehr geringe Wahrscheinlichkeit ( $10^{-8}$  bis  $10^{-9}/a$ ) aufweisen. Abb. 4330-2 zeigt die Kurzzeit-Knochenmarksdosis nur durch Inhalation (untere Kurve) und über alle drei Belastungspfade (externe Strahlung aus der Wolke, externe Strahlung vom Boden über 24 h integriert, sowie interne durch Inhalation, obere Kurve). Die Strahlung aus der Wolke macht nur einen Bruchteil der Kurzzeit-Inhalationsdosis aus, so daß die hohen Dosen der oberen Kurve nur bei zu langem Aufenthalt einer Person im verseuchten Gebiet erreicht werden. Während die Inhalationsdosis selbst am Ort des Maximums (25 rem in 2 km Entfernung) noch zu keinen akuten Strahlenschäden führt, ist die Strahlung der vom Regen ausgewaschenen Aktivität unmittelbar unter der Ausbreitungsachse so intensiv, daß ein Aufenthalt von wenigen Stunden an ungeschützter Stelle zu akuten gesundheitlichen Schäden führen würde. Die in Abb. 4330-2 ebenfalls eingetragene Wahrscheinlichkeit für akuten Strahlentod ist in dieser allerdings relativ schmalen Zone bis in 10 km Entfernung bei 24-stündigem Aufenthalt gleich eins. Das Beispiel zeigt, daß selbst in einem solchen äußerst unwahrscheinlichen Fall das Vorüberziehen der radioaktiven Wolke allein noch zu keinen akuten Strahlenschäden führt, daß aber die abgelagerte Aktivität, besonders im Fall von Niederschlägen, einen längeren Aufenthalt in einem begrenzten Gebiet verbietet. Selbst wenn man berücksichtigt, daß die für Reaktoren amerikanischer Bauart errechneten Raten der Spaltproduktfreisetzung für deutsche Reaktoren zu hoch erscheinen, zeigt dieses Beispiel doch die große Bedeutung der Aktivitätsmessungen im betroffenen Gebiet, der

schnellen und gezielten Räumung und der späteren Dekontaminierung dieses Gebietes.

#### Rechenmodell zur Berechnung der Schäden aus den Aktivitätskonzentrationen

(A. Bayer, K. Burkart, M. Schückler, INR)

Auf der Basis von Vorschlägen für die Schadensberechnung der deutschen Risikostudie wurde ein Konzept für das gesamte Rechenprogramm des Unfallfolgenmodells erstellt (Abb. 4330-3), sowie Überlegungen über die dafür benötigte Rechenkapazität angestellt. Auf der Grundlage dieser Abschätzungen wurde ein überarbeitetes Parameternetz vorgeschlagen /3/.

Zusammen mit dem Institut für Unfallforschung (IfU) wurden Überlegungen zur Implementierung eines Evakuierungsmodells in das Unfallfolgenmodell angestellt. Das Evakuierungsmodell selbst wird vom Institut für Unfallforschung entwickelt.

Es wurden erste Überlegungen zur Berechnung des Personenschadens sowie zu dessen Darstellung angestellt. Dabei wurde sowohl eine beliebige Zeitabhängigkeit der Dosisraten als auch eine beliebige Zeit- und Alterabhängigkeit der Dosis-Wirkungsbeziehungen zugelassen. Letztere werden von der GSF bereitgestellt.

Für den Zwischenbericht der Phase A, die dadurch charakterisiert ist, daß am Beispiel von Biblis B in möglichst enger Anlehnung an die amerikanische Risikostudie WASH-1400 Ergebnisse erzielt werden sollen, die sich mit den Ergebnissen der amerikanischen Studie vergleichen lassen, wurde mit der Nachprogrammierung der Dosis- und Schadensberechnung begonnen.

Schließlich wurden von einigen Risikostudien, die von Dritten in Auftrag gegeben wurden, jene Teile analysiert, die mit dem Unfallfolgenmodell thematisch im Zusammenhang stehen.

#### Literatur:

/1/ Reactor Safety Study, final version, WASH 1400

/2/ W. Hübschmann, S. Vogt;

Strahlenrisiken in der Umgebung von Kernreaktoren nach störfall-  
bedingten Aktivitätsemissionen,

KTG-Fachtagung, 1./2. Juni 1976, Karlsruhe

/3/ M. Schückler;

Zur Konzeption des Rechenprogramms für das Unfallfolgenmodell der  
deutschen Risikostudie: Parameternetz, Schnittstellen und Kapazitäts-  
überlegungen, Okt. 1976 (unveröffentlicht)



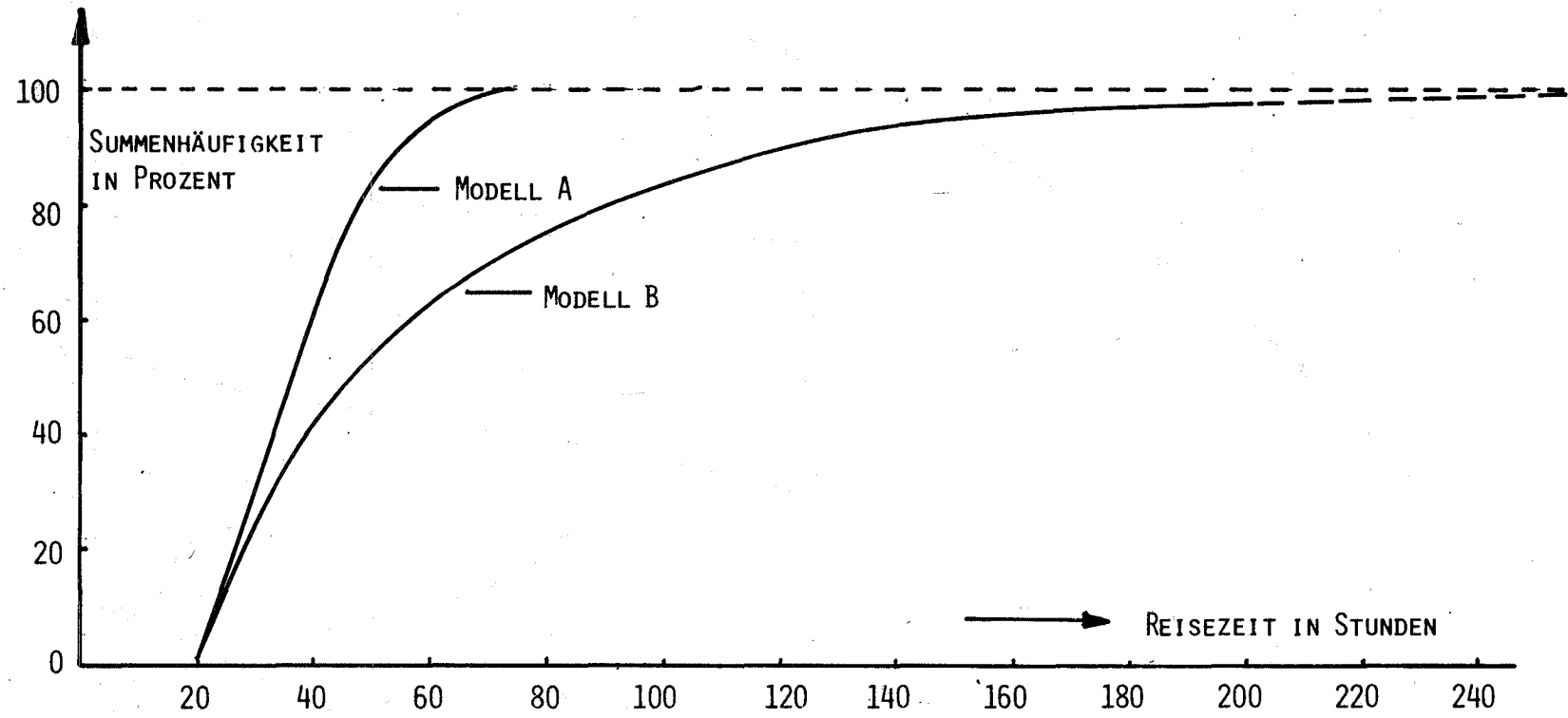


ABB. 4330-1: SUMMENHÄUFIGKEIT DER TRANSPORTZEITEN FÜR EINEN QUELLABSTAND VON 500 km

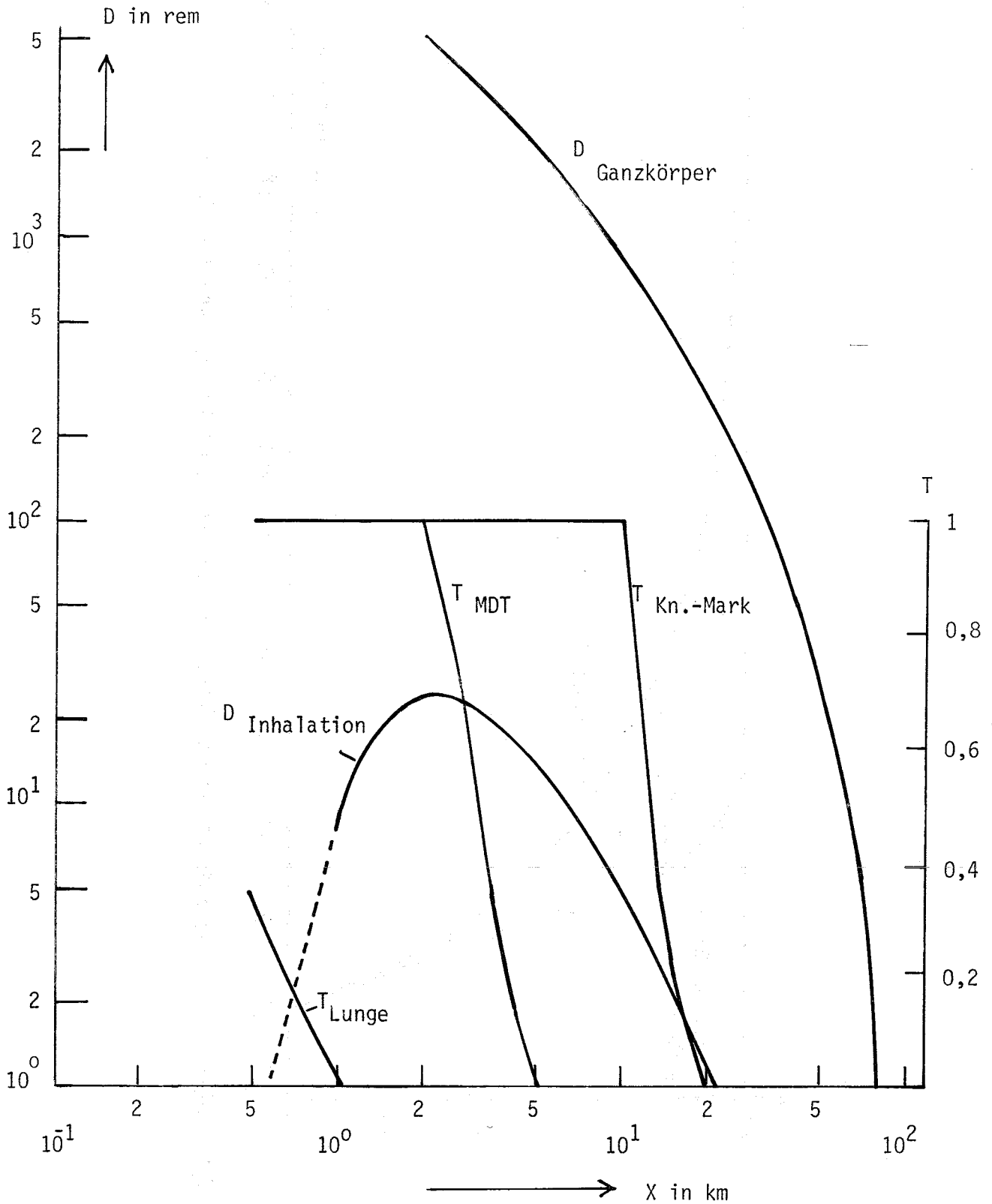


Abb. 4330-2: Knochenmarksdosis  $D$  und Wahrscheinlichkeit  $T$  für akuten Strahlentod bei 24-stündigem Aufenthalt



4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN

4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen

4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren

1. Optimierung eines flüssigen Reinigers für Dekontaminationszwecke  
(S. Kunze, ABRA)

Einleitung

Reiniger zur Entfernung von radioaktiven Kontaminationen müssen für alle Oberflächen (Anstrichsysteme, Bodenbeläge, metallische und nichtmetallische Werkstoffe) hohe Dekontaminationswirkung haben. Bei der Aufkonzentrierung der radioaktiven Dekontaminationsabwässer z.B. durch Verdampfung, soll keine störende Schaumbildung auftreten und bei der Verfestigung dieser Verdampferkonzentrate dürfen bis ca. 200°C keine exothermen oder endothermen Reaktion mit dem Matrixmaterial (Bitumen, Kunststoff, Zement) ausgelöst werden.

Um dieses Ziel zu erreichen, wurden zuerst alle für einen Reiniger infrage kommenden Grundsubstanzen auf ihre thermische Stabilität geprüft. Dann wurde bzw. wird aus den thermisch stabilsten waschaktiven Substanzen eine wasserverdünnbare, schaumregulierte Reinigergrundlösung gemischt und durch Zusätze an Reinigungsverstärkern bzw. Komplexbildnern erst einzeln, dann in Mischungen, die Dekontaminationswirkung optimal eingestellt.

Erzielte Ergebnisse

1. Thermische Stabilität von Grundsubstanzen

Diese Ergebnisse wurden in Tab. 4411-1 zusammengefaßt. Es lassen sich nachfolgende Tatsachen entnehmen:

Zu I Von den Produkten mit temperaturabhängiger Schaumentwicklung sind die Alkylphenolpolyglycoläther beständiger als die Fettalkoholpolyglycoläther.

Zu II Von den schaumarmen Produkten sind diejenigen auf Fettaminäthylenbasis am stabilsten. Der exotherme Zersetzungsbereich aller anderen Produkte liegt zwischen 125 und 180°C.

Zu III Bei den Komplexbildnern nimmt die Stabilität wie folgt ab:

Natriumfluorid, Natriumpolyphosphate >

Aminoacetate, Phosphorsäureester, Ascorbin- u. Weinsäure >

Zitronensäure

Zu IV Reinigungshilfsprodukte wie spezielle Fettlöser und Schaumbremsen sind mäßig stabil.

## 2. Reinigermischungen

Ihre wichtigsten Ergebnisse sind in Tab. 4411-2 gegenübergestellt.

Da im allgemeinen der konventionelle Schmutz der Träger der Kontamination ist und mit seiner Beseitigung in vielen Fällen auch ein großer Teil der radioaktiven Stoffe entfernt wird, wurde zuerst aus den waschaktiven Substanzen unter Konstanthaltung der Komplexbildner und der zur Schaumregulierung erforderlichen Hilfsprodukte ein Grundreiniger entwickelt.

Reinigergemische aus Alkylphenolglycoläthern mit schaumdämpfenden Propylenäthylenoxidadditionsprodukten (s.I) ergaben die besten Resultate. Vergleiche mit Papan-Dekopan zeigen, daß die thermische Stabilität und die Schaumwerte bei 100°C verbessert wurden, die Dekontaminationsergebnisse hingegen schlechter waren.

Anschließend wurde der Einfluß von Komplexbildnern in Reinigermischungen die als reinigungsaktive Grundlage Alkylphenolpolyglycoläther und Propylenäthylenoxidadditionsprodukte enthielten untersucht. Mit den bisher getesteten Komplexbildnern (s.II) lagen die Dekontaminationsergebnisse im Vergleich zu Papan-Dekopan bei  $^{106}\text{Ru}$  teilweise besser,  $^{137}\text{Cs}$  geringfügig ungünstiger und  $^{60}\text{Co}$  immer schlechter.

## Durchgeführte Arbeiten

### 1. Thermische Stabilität

Die Untersuchung thermischer Eigenschaften von Substanzen wurde mit Hilfe der Differential-Thermoanalyse (DTA) durchgeführt. Als Vergleichssubstanz diente bei ca. 1000°C ausgeglühtes Aluminiumoxidpulver. Bei festgelegter Aufheizgeschwindigkeit und vorgewählter Endtemperatur von 300°C wurden alle exothermen und endothermen Vorgänge aufgezeichnet.

### 2. Schaumwerte

Die Schaumentwicklung und- beständigkeit von Reinigerlösungen wurde (aufgrund der Ein- und Ausgangskonzentrationen im Verdampfer) mit Wasser im Verhältnis 1:200 und 1:10 verdünnt durch Reiben einer Perlonbürste an einem Siebzylinder bei konstanter Tourenzahl mit dem Verfahren nach Dr. H. Wilmsmann bei 100°C bestimmt.

### 3. Dekontaminationswirkung

#### 3.1 Herstellung der kontaminierten Werkstoffproben

Edelstahlplättchen (Werkstoff - Nr. 1.4541, 25 mm x 25 mm x 1 mm) wurden mit 0,1 ml einer schwach salz- oder/und salpetersauren Radionuklidmischung, welche <sup>106</sup>Ru, <sup>137</sup>Cs, und <sup>60</sup>Co in annähernd gleicher Konzentration enthält (spez. Aktivität der Lsg ca 5 µCi/ml) kontaminiert und bei 200°C zwei Stunden eingetrocknet.

#### 3.2 Dekontaminationsprüfungen

Zwei kontaminierte Plättchen wurden an einem Edelstahlrührstab befestigt und bei 500 Upm 20 Minuten in jeweils 400 ml einer 1%igen wässrigen Reinigerlösung bei 60°C gerührt, die Plättchen herausgenommen, 10 Sekunden in dest. Wasser gespült, getrocknet und die Restaktivität an einem Vielkanalanalysator ermittelt.

### Fortgang der Arbeiten

Es werden noch weitere Komplexbildner, dann Komplexbildnergemische an kontaminierten Edelstahlproben getestet.

Die besten Reinigermischungen werden dann in Abhängigkeit vom pH-Wert optimal auf Dekontaminationswirkung eingestellt werden. Außerdem muß die Wirkung an Glas, PVC-Bodenbelag und Anstrichsystemen überprüft und gegebenenfalls die Reinigerzusammensetzung auf universale Verwendbarkeit abgestimmt werden.

Abschließend werden thermisches Verhalten und Schaumwerte überprüft und die Dekontaminationsergebnisse mittels standardisierter Prüfverfahren nachgewiesen. Diese Dekontaminationsergebnisse werden den mit Papan-Dekopan 85 erhaltenen gegenübergestellt.

Nun werden mehrere größere Reinigerchargen hergestellt, in der Gerätedekontamination der ADB erprobt und falls erforderlich die Zusammensetzung auf optimalen Erfolg abgeändert.

Abb. 4411-1

Thermische Stabilität von Reinigerbestandteilen bis 300°C

Reinigerbestandteile	Thermische Stabilität Zeretzungsbeginn in °C	
	endotherm	exotherm
<b>I. <u>Alkoholpolyglycoläther</u></b>		
(temperaturabhängige Schaumentwicklung der Produkte)		
Fettalkoholpolyglycoläther (BASF)		155-175
Alkylphenolpolyglycoläther (BASF)		175-200
Alkylphenolpolyglycoläther (Hoechst)		195-240
Alkylphenolpolyglycoläther (Hüls)		180-200
<b>II. <u>Alkylenoxid-Additionsprodukte</u></b>		
(schaumarme Produkte)		
Äthylenpropylenoxidbasis (BASF)	90-220	125-160
Alkylphenoläthylenoxidbasis (BASF)		145-170
Äthylenpropylenoxidbasis (Hoechst)		130-180
Fettalkoholäthylenoxidbasis (Hoechst)	40	130-200
Fettaminäthylenoxidbasis (Hoechst)		180-220
Fettalkoholalkylenoxidbasis (Hüls)		150-155
Alkylphenolalkylenoxidbasis (Hüls)		155
vergleichbares Produkt (Henkel)	220	170
<b>III. <u>Komplexbildner für Radionuklide</u></b>		
Aminoacetate (A,B,C,D)	150-168	200-280
Ascorbinsäure	180	210
Natriumfluorid	stabil	stabil
Natrium-(Poly-)phosphate	stabil	stabil
Phosphorsäureester	90-200	70-210
Weinsäure	160	190
Zitronensäure	75,160	
<b>IV. <u>Hilfsprodukte</u></b>		
spezielle Fettlöser		170
spezielle Schaumbremsen	20-70	140-280



Thermische Stabilität, Schaumverhalten und Dekontaminationswirkung von Reinigermischungen

+) 6 Gew.% Alkylphenolpolyglycoläthermischung + 10 Gew.% Phosphorsäureester + 5 Gew.% Zitronensäure + Wasser

++) + 5 Gew.% Propylenäthylenoxidadditionsprodukte + Wasser

+++) auf Edelstahl (1.4541) nach 20 Min. Dekont. in 1%iger wäss. Reinigerlsg. unter Rühren bei Konst. Drehzahl(500 Upm)

Reinigerzusammensetzung	Thermische Stabilität Zersetzungsbeginn in °C		Schaumentwicklung in ml bei 100°C in Reinigerlösungen		Schaumbeständigkeit bei 100°C in min. in Reinigerlösungen		Restaktivität in +++) %		
	endotherm	exotherm	0,5%ig	10%ig	0,5%ig	10%ig			
<u>I Variation von 5 Gew% schaumdämpfender Zusätze zur Reiniger- mischung +)</u>									
Fettalkoholäthylen- add.-prod.		180	100	800	0	1,50	27,3	5,9	16,1
Aminpolyglycolkon- densate		180	150	400	0	0,85	25,8	9,4	22,2
Propylenäthylenoxid- add.-prod.		195	0	300	0	0,90	18,5	4,8	13,2
Propylenäthylenoxid- add. prod.(stick- stoffhaltig)		205	0	100	0	0,90	36,4	6,5	18,4
vergleichbares Produkt (Fa. Henkel)		210	150	850	2,5	1,20	22,6	3,8	10,7
<u>II Variation von 10 Gew% Komplexbildner in Reinigergrundmischung ++)</u>									
Aminoacetat A		190	0	150	0	0,90	26,8	0,2	3,2
Aminoacetat B		150	0	100	0	0,85	6,6	0,6	2,8
Aminoacetat C		190	0	150	0	0,85	7,9	0,6	3,7
Aminoacetat D		200	0	150	0	0,80	6,3	0,4	3,1
Ascorbinsäure	190	170	0	200	0	0,90	25,6	0,2	2,1
Zitronensäure	140	180	0	150	0	0,80	6,7	0,2	2,9
Methylphosphorsäure- ester		215	0	100	0	0,75	16,2	0,4	2,7
Papan-Dekopan		145/210	200	250	0,50	0,90	8,2	0,1	1,3

## 2. Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

(D. Hentschel, ABRA)

### Einleitung

Die in der Literatur beschriebenen Dekontaminationschemikalien wurden in einem Verzeichnis zusammengestellt und nach ihrem Einsatz - auch in der Praxis - ausgewertet. Es ergab sich, daß in den meisten Fällen nach einem Zweistufenverfahren gearbeitet wird. In der ersten Stufe soll oxydativ die kontaminationstragende Oxidschicht zerstört werden. Dazu kommt im allgemeinen die alkalische Permanganatlösung zur Anwendung. Daran schließt sich eine Behandlung mit Komplexbildnern oder sauren Salzen an. Am häufigsten werden hier Oxalsäure, ammoniakalische Citronensäure, eine Kombination beider, ammoniakalische Citronensäure mit EDTA, Amidosulfonsäure und Natriumbisulfat genannt.

Als weitere Chemikalien werden Salpetersäure und 3/20-iger Reagenz ( $\text{HF}/\text{HNO}_3$ ) eingesetzt. Das Ziel des Vorhabens ist es, durch Senkung der Konzentration dieser Chemikalien die entsprechenden Abfallmengen zu reduzieren.

### Ergebnisse

Als erste Versuchsergebnisse sind zu nennen:

- Erwartungsgemäß zeigten alle Dekontaminationsmittel bei erhöhten Temperaturen ( $80^\circ\text{C}$ ) ein besseres Dekontaminationsverhalten als bei Raumtemperatur
- Aus den bisherigen Versuchen ist ersichtlich, daß bei der alkalischen Permanganatlösung der Anteil der Natronlauge von 180 g/l auf 30 g/l Wasser gesenkt werden kann. Zu beachten ist die gute Dekontaminationswirkung für Ru-106 bei den alkalischen Permanganatlösungen (Restaktivitäten  $< 5\%$ ).
- 1%ige Oxalsäure zeigt gegenüber höheren und niedrigen Oxalsäurekonzentrationen das beste Dekontaminationsverhalten ( $\text{RA}_{\text{Ce}} \approx 20\%$ ,  $\text{RA}_{\text{Ru}} \approx 45\%$ ,  $\text{RA}_{\text{Co}} \approx 25\%$ ). Die Ergebnisse müssen noch durch weitere Versuche abgesichert werden.

- Die Kombination Citronensäure/Oxalsäure zeigt bei den in der Literatur beschriebenen Konzentrationen (0,2 bzw. 0,3 m) die besten Dekontaminationswerte. Die erzielten RA liegen jedoch bis auf die des  $^{60}\text{Co}$  ( $\approx 15\%$ ) höher als bei der 1%-igen Oxalsäure. Auch hier ist eine Überprüfung der Werte erforderlich.
- Bei der Salpetersäure stellt die Konzentration von 20% ein Optimum dar ( $\text{RA}_{\text{Ce}} \approx 15\%$ ,  $\text{RA}_{\text{Ru}} \approx 35\%$ ,  $\text{RA}_{\text{Co}} \approx 30\%$ ); hier sinkt zwar die RA bei Erhöhung der Konzentration, jedoch ist der Effekt geringfügig. Weitere Versuche sind erforderlich (Abb. 4411-3).
- Das 3/20er Reagenz zeigt bei Halbierung der Konzentration die gleichen Dekontaminationsergebnisse wie die Originallösung (RA = 0 für alle untersuchten Nuklide)

#### Durchgeführte Arbeiten

Das Verzeichnis der Dekontaminationschemikalien wurde aus der Literatur insbesondere aus dem Standardwerk von J.A. Ayres [1] zusammengefaßt. Für die Versuche dienten die dort angegebenen Konzentrationen als Stammlösungen. Sie wurden nach den erzielten Ergebnissen variiert, das heißt in der Regel gesenkt. Die Versuche wurden mit den einzelnen Lösungen bei Raumtemperatur und bei  $80^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Da bei Raumtemperatur im allgemeinen schlechtere Ergebnisse erzielt wurden, wurden späterhin nur Versuche bei  $80^{\circ}\text{C}$  angesetzt.

Als Probenmaterial dienten wie bisher im Autoklaven kontaminierte Plättchen (25x25x1.5 mm) des Werkstoffs 1.4541. Sie wurden jeweils 15 Minuten mit der Lösung behandelt, die Restaktivität und das Gewicht bestimmt, und anschließend wieder in die gleiche Lösung getaucht. Als Dekontaminationszeit wurden zwei Stunden (8 x 15 Minuten) festgesetzt.

Zur Untersuchung kamen bisher folgende Lösungen:

- Alkalische Permanganatlösung verschiedener Zusammensetzung
- Oxalsäure (Konzentration: 0,25-, 1-, 5-, 10%-ig)
- Citronensäure/Oxalsäure (Konzentration: 0,2/0,3 m bzw. 1:1 u. 1:4 verdünnt)
- Salpetersäure (Konzentration: 10-, 20-, 40-, 60%-ig)
- 3/20-Reagenz (Konzentration: 3% HF und 20%  $\text{HNO}_3$  und 1:1 verdünnt)

Teilweise sind diese Versuche jedoch noch zu wiederholen.

### Ausblick

Die Versuche mit den Dekontaminationslösungen in Tauchbädern können nicht wie geplant zum Jahresende abgeschlossen werden, da die Ergebnisse der bisherigen Versuche weitere Experimente erforderlich machen. So waren wegen der Wichtigkeit der alkalischen Permanganatlösung mehr Versuche als ursprünglich geplant notwendig. Neuer Termin für die noch notwendigen, weiteren Versuche in Tauchbädern ist Februar 1977. Der Aufbau des Labor-Dekontaminationskreislaufs beginnt im Januar 1977.

### Literatur

{1} J.A. Ayres

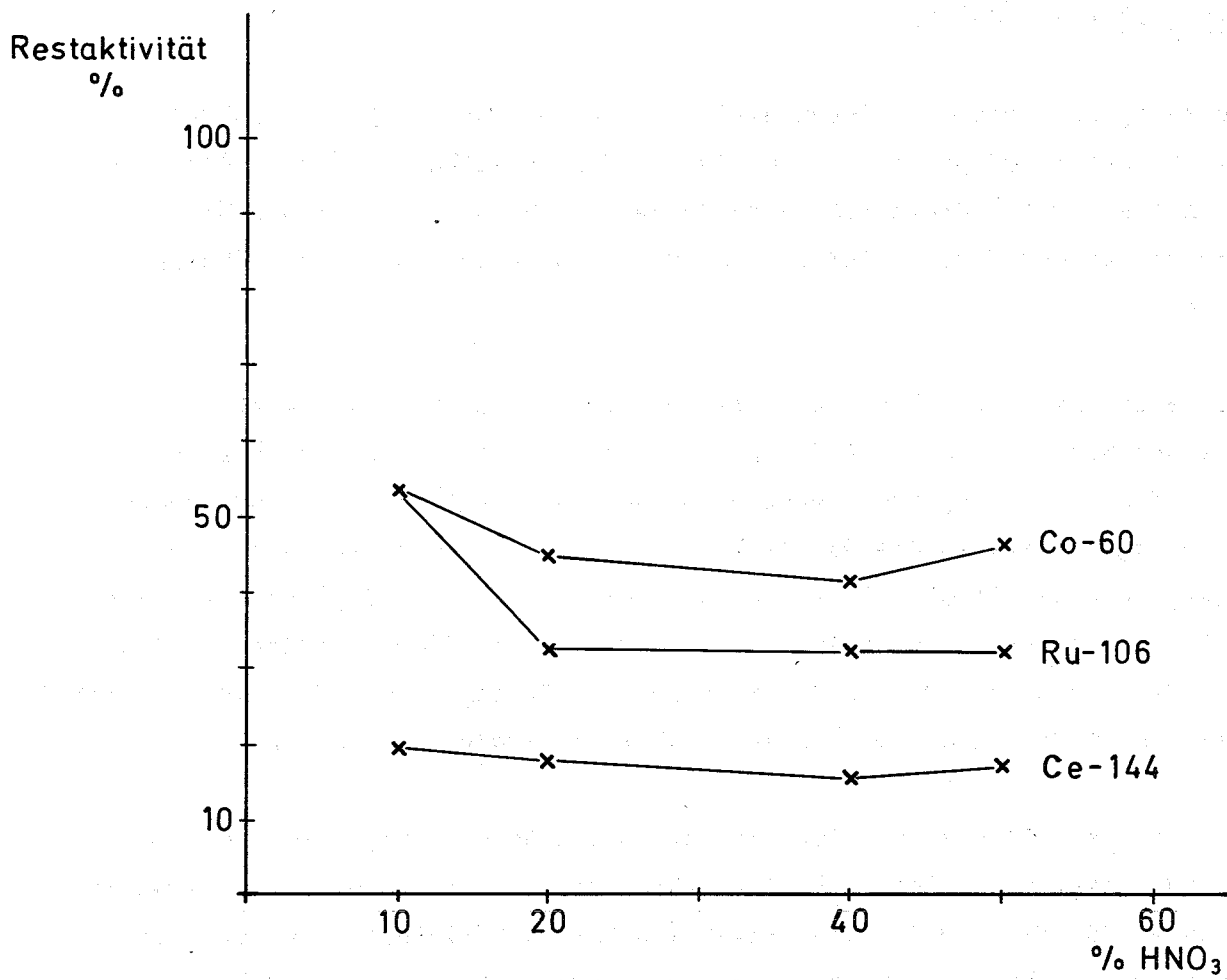
Decontamination of Nuclear Reactors and Equipment  
The Ronald Press Comp. N.Y. 1970

Abb.: 4411-1

### Abhängigkeit der Restaktivität von der Salpetersäurekonzentration

Behandlungszeit: 2 h

Arbeitstemperatur: 80°C



4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241)  
im Boden und in geologischen Formationen

Wanderung und Verteilung von Plutonium in natürlichen Böden

(A. Jakubick, ABRA)

Durchgeführte Arbeiten

Die Zeitgeschichte des Plutonium-Inputs in den Boden aus dem Bombenfallout der vergangenen Jahre wurde für den Heidelberger Raum ermittelt. Mit Hilfe einer Korrelation zwischen den Messungen in Ispra und Heidelberg konnte der Verlauf der Pu-Konzentration in der Luft rekonstruiert werden.

Zur Bestimmung der Ablagerung waren weiterhin 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 Plutoniumkonzentration in der Luft und von einer Ablagerungsgeschwindigkeit von 0,5 cm/s angenommen. Die Summe der Integrale des Naß- bzw. Trocken-Fallouts ergab die Gesamtablagerung über den gewünschten Zeitraum.

Bei Laborbestimmungen an nicht aufbereiteten Bodenproben wurden die folgenden bodenphysikalischen Eigenschaften und die mineralogische Zusammensetzung bestimmt. Um das Eindringen von Fall-out-Plutonium in den Boden verfolgen zu können, mußten anschließend geeignete Stellen zur Entnahme von Bodenproben gefunden werden. Die Standorte wurden nach spezifischen Kriterien so ausgewählt, daß angenommen werden konnte, daß der Boden den ganzen Pu-Beitrag der vergangenen Jahre enthält.

Die Entnahmestellen liegen auf einem Sandboden, einem Lößlehmboden und organisch-tonigem Boden.

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 kann 2 cm dicke Schichten abgetragen. Dabei wurde so verfahren, daß das Gewicht und die Tiefe des Bodenmaterials in direkte Beziehung zur Fläche gesetzt werden konnte.

Im Labor wurden die Bodenproben je nach Bedarf mehrere Tage lang 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.

Alle Feldarbeiten wurden mit dem Zweck eines späteren Vergleichs mit Labordaten durchgeführt. Für die experimentelle Modellierung der Pu-Migration wurde die Aufstellung einer Handschuhkastenlinie vorbereitet. Sie besteht aus 5 Einheiten: Eingangs- und Vorratsbox, Versuchsbox, Probenentnahmebox, Box für die Herstellung der Meßpräparate und Meßpräparatsammelbox.

Zur Modellierung der Pu-Wanderung im Boden wurde eine Apparatur entwickelt. Sie besteht aus einer Hochdruckflüssigkeitspumpe mit der das Perkolat bei konstantem Druck durch eine Bodenkolonne gepreßt werden kann. Die Kolonne ist auf einer elektronischen Waage angebracht, so daß die Änderung im Wassergehalt der Bodenkolonne jederzeit verfolgt werden kann. Die Entnahme des kontaminierten Perkolats am anderen Ende der Kolonne erfolgt durch einen Fraktionensammler, der in seiner Drehgeschwindigkeit dem schnellen Ausfluß des Perkolats angepaßt ist.

### Erzielte Ergebnisse

Die Berechnung des Pu-Inputs in den Boden ergab für die Umgebung von Heidelberg:

Jahr	1954	1955	1956	1957	1958	1959	1960	1961	1962
Kum. Ablagerung {mCi/km <sup>2</sup> }	0,066	0,14	0,25	0,37	0,53	0,79	0,82	0,85	0,91

Jahr	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970
Kum. Ablagerung {mCi/km <sup>2</sup> }	1,61	2,09	2,32	2,39	2,41	2,48	2,51	2,54

**Bodenphysikalische Eigenschaften auf den Standorten:**

Die Ablagerung der weiteren Jahre trägt zur Pu-Gesamtmenge im Boden nur unbedeutend bei. Damit ist gleichzeitig ungefähr auch die Basislinie der momentanen Pu-Konzentration gesetzt. Eine weitere Erhöhung der Pu-Konzentration im Boden würde eine zusätzliche Kontamination z.B. aus einer Pu-verarbeitenden Anlage bedeuten.

Die Laborbestimmungen an nicht aufbereiteten Bodenproben ergaben:

- Der Lösslehm Boden und organisch-toniger Boden besteht aus Quarz, Tonmineralen, Feldspat und Calcit.
- Die Tonmineralien wurden als Chlorit und Illit bzw. Chlorit, Illit und Illit-Montmorillonit identifiziert.
- Der Sandboden setzt sich praktisch nur aus Quarzkörnern zusammen.

Für die Standorte können folgende bodenphysikalische Eigenschaften angegeben werden:



Tiefe {cm}	S a a n d b o d e n		L ö ß b o d e n		o r g . t o n . B o d e n	
	Lagerungs- dichte {g/cm <sup>3</sup> }	Porosität {%}	Lagerungs- dichte {g/cm <sup>3</sup> }	Porosität {%}	Lagerungsdichte { g/cm <sup>3</sup> }	Porosität { % }
0- 2	1,05	60	0.81	68	0,46	82
0- 4	1,06	59	1.05	59	1,50	42
0- 6	1,29	50	1,03	57	1,25	52
0- 8	1,71	34	1,19	53	1,41	46
0-10	1,75	33	1,20	53	1,08	59
0-12	1,70	35	1,16	55	1,09	59
0-14	1,72	34	1,32	48	1,47	45
0-16	1,74	33	1,37	46	0,88	67
0-18	1,76	32	1,21	53	1,18	55
0-20	1,74	33	1,50	41	0,88	67
0-22	1,77	33	1,39	47		
0-24	1,73	35	1,37	47		
0-26	1,72	35	1,28	51		
0-28	1,69	36	1,13	57		
0-30	1,73	35	1,37	47		

Mit der Meßapparatur können an Bodenkomponenten und Bodenproben aus natürlichen Böden in weitem Bereiche teilgesättigte Zustände eingestellt werden. Die Zeiträfferwirkung der Apparatur beträgt 1:3000.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Zur Prüfung der Feldergebnisse und des Pu-Verhaltens unter veränderten Randbedingungen werden Laborversuche durchgeführt.

Es ist geplant, die Pu-Verteilung von verschiedenen Böden zu vergleichen, die mittlere Verweilzeit zu berechnen und nach Abhängigkeiten zwischen Konzentrationsverteilung und Lagerungsdichte, Porosität und spez. Oberfläche zu suchen.

4420 Technik der Räum- und Demontearbeiten

4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur  
Stillegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen

Im Rahmen der Erstellung einer Gesamtanalyse sicherer Stillegung und Endbeseitigung von Kernkraftwerken wurde eine Reihe von Teilproblemen bearbeitet:

1. Ausbau, Zerkleinerung - Stahl/Beton,  
Konditionierung großer Komponenten

Der Ausbau einer aktivierten und kontaminierten Primärkomponente eines Kernkraftwerkes kann im wesentlichen die folgenden Arbeitsschritte umfassen:

Entfernen von Setzwänden, Decken und Bühnen, sowie der thermischen Isolierung,

Abtrennen der Loopleitungen,

Demontage oder Teildemontage der Komponenten,

Zerlegung oder Teilzerlegung der Komponenten,

Verladen in Abschirmbehälter, Transport innerhalb des Reaktorgebäudes,

Demontage und Zerlegung außerhalb des Reaktorgebäudes.

Zur Einsparung von Personendosisleistung ist nach Möglichkeit fernbedient zu arbeiten, dabei ist das Freiwerden von Aktivität zu verhindern oder zumindest so weit wie möglich einzuschränken.

Zum Abtrennen von Loopleitungen sowie anderer dünnwandiger Profile eignen sich pneumatische Rohrsägen und Fräsen, die sich bis zu automatischem Betrieb ausbauen lassen.

Die gegebenenfalls zur Vereinfachung des Transportes durchzuführende Demontage einer Komponente ist mit fernbedienbaren Druckluftgeräten wie Schraubern, Schlagschraubern und Meißeln vorzunehmen.

Eine Zerlegung vor dem Ausbau ist zumindest beim Reaktordruckbehälter (RDB) neuer Siedewasserreaktoren (SWR) erforderlich. Wegen der Komponentengröße sowie der Wanddicken sind thermische Trennverfahren wie Plasmaschmelzschnneiden und autogenes Brennschnneiden bevorzugt einzusetzen. Der kombinierte Einsatz beider Verfahren ermöglicht auch das Trennen einseitig austenitisch plattierter Komponenten mit Wanddicken über 18 cm (max. Schnittdicke beim Plasmaschmelzschnneiden).

Wegen der zu erwartenden hohen Dosisleistung muß die Führung der Werkzeuge fernbedient mit Manipulatoren erfolgen.

Sollte sich eine Zerlegung von Primärkomponenten innerhalb des Reaktor Gebäudes als nicht zweckmäßig erweisen, kann je nach Endlagerkonzept, die Zerlegung in einer noch zu bauenden Konditionierungsanlage erforderlich werden (Ausnahme: RDB eines SWR).

Nach dem Ausbau der Primär-Komponenten sind bei der Stilllegung eines Kernkraftwerkes, abhängig von der gewählten Stilllegungsvarianten, auch aktivierte und kontaminierte Betonstrukturen zu beseitigen (z.B. Biologischer Schild), wofür sich die folgenden Geräte und Techniken eignen:

Sauerstofflanze, Pulverbrenner, Sprengen, Kernbohrer, Hydraulische Pressen, Preßlufthämmer.

## 2. Hilfssysteme

Um bei Ausbau, Demontage und Zerlegen von Primärkomponenten sowie bei der Beseitigung von Betonstrukturen eine Ausbreitung von Kontamination zu verhindern, ist der Einsatz von Hilfssystemen notwendig.

Bei zu erwartender Entstehung von Aerosol-Aktivität ist es zweckmäßig, unter einem Schutzzelt mit Absaugung und Filter zu arbeiten. Eine zusätzliche örtliche Absaugung verringert die Kontaminierung der näheren Umgebung der Arbeitsstelle.

Auch bei Unterwasser-Arbeiten sind diese Vorsichtsmaßnahmen zu treffen, da Kontamination aufschwimmen und über die Wasseroberfläche freigesetzt werden kann. Der weitaus größte Anteil der bei Unterwasser-Arbeiten freierwerdenden Kontamination bleibt im Wasser und kann durch entsprechende Reinigungskreisläufe ausgefiltert werden.

Bei Sprengungen von Betonstrukturen mit in der Regel sehr starker Staubentwicklung ist die Verwendung von Explosionsdämpfungsmatten zweckmäßig. Weiterhin läßt sich mit Hilfe eines Nebelsprühsystems ein Großteil des Staubes binden, der dann aus dem Niederschlag herausgefiltert werden kann.

Unter dem Aspekt des Schutzes von Personen vor negativen Auswirkungen bei der Arbeit an aktivierten und kontaminierten Reaktorkomponenten ließen sich auch die folgenden Geräte unter dem Begriff Hilfssysteme einordnen:

Schutzanzüge, Atemmaske, Lärmschutzkapseln, Mikrofon, Fernsehkamera, Meßgeräte (Strahlungs-, Temperatur-).

### 3. Transportmöglichkeiten von Reaktor-Komponenten ab Kernkraftwerk

Alternativ stehen für den Transport von aktivierten und kontaminierten Reaktorkomponenten drei Möglichkeiten zur Verfügung: Bahntransport, Schifftransport und Straßentransport.

#### Bahntransport

Abmessungen und Gewichte der auf der Schiene zu transportierenden Komponenten liegen in der Regel durch das Lademaß fest. Überschreitung des Lademaßes sind nach eingehender Prüfung möglich. Als Grenzwerte können die folgenden Abmessungen angesehen werden:

Länge: 12.400 mm, Breite: 4.000 mm, Höhe: 4.550 mm, Gewicht: 450 t.

Da die Primärkomponenten ohne vorhergehende lange Zwischenlagerung nur innerhalb einer mehrere Zentimeter dicken Bleiabschirmung transportierbar sind, ist ausschließlich der Transport der unzerlegten Pumpe auf dem Schienenwege möglich. Dafür sind Fahrzeuge höchster Tragfähigkeit, sogen. Tragschnabelwagen, erforderlich.

#### Schifftransport

Zum Transport der Primärkomponenten eignen sich insbesondere Schiffe der Europaklasse I und II. Die max. nutzbare Ladehöhe beträgt unter Berücksichtigung der Durchfahrtshöhe und des maximalen Tiefgangs ca. 6,00 m, so daß auch für den Schifftransport eine Zerlegung der meisten Primärkomponenten erforderlich ist.

#### Straßentransport

Wegen der begrenzten Brückentragfähigkeit eignen sich Straßenfahrzeuge nur für den Anschlußtransport derartiger Lasten.

Im anderen Falle ist eine weitere Zerlegung der meisten Primärkomponenten notwendig.

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 2. Halbjahr 1976

8. Halbjahresbericht / 1. Halbjahr 1976

KFK 2395 (1976)

M. Fischer,

Wichtigste Aktivitäten und Ergebnisse des Projekts Nukleare Sicherheit  
im Jahr 1976,

Jahreskolloquium des Projekts Nukleare Sicherheit, 23. November 1976,  
KFK 2399 (in Vorbereitung)

K. Hassmann, E. Herkommer, J.P. Hosemann,

Zum Verlauf hypothetischer LWR-Kernschmelzenunfälle,

Jahreskolloquium des Projekts Nukleare Sicherheit, 23. November 1976,  
KFK 2399 (In Vorbereitung)

M. Bocek, M. Fischer,

Cladding Research in Germany,

Paper to be presented at the

USNRC Fourth Water Reactor Safety Research Information Meeting,  
Washington, D.C., Sept. 27 - 30, 1976

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

Z.R. Martinson, G.W. Cawood, S. Dagbjartsson,

Power Cooling Mismatch Test Series, Test PCM-3,

TFBP-TR-129, July 1976

S. Leistikow, H. v. Berg, D. Jennert,

Comparative Studies of Zircaloy 4 High Temperature Steam Oxidation  
under Isothermal and Temperature - Transient Conditions,

Specialists' Meeting on the Behavior of Water Reactor Fuel

Elements under Accident Conditions,

Spafind, Nord-Torpa, Norwegen, 13. - 16.9.1976

R. Meyder, S. Raff, W. Sengpiel,  
Sensitivity Studie on Some Parameter of Internal Pressure of  
LWR Fuel During Blowdown of a LOCA Using SSYST-Mod 1  
Specialists' Meeting on the Behavior of Water Reactor Fuel  
Elements under Accident Conditions,  
Spatind, Nord-Torpa, Norwegen, 13. - 16.9.1976

S. Malang, G. Schanz,  
Description and Verification of SIMTRAN-T - A Computer Code for the  
Calculation of the High Temperature Steam Oxidation of Zircaloy  
dito

H. Albrecht, M. Osborne, H. Wild,  
The Release of Fission and Activation Products During Core Meltdown,  
dito

F. Erbacher, H.J. Neitzel, M. Reimann, K. Wiehr,  
Out-of-pile- Experiments on Ballooning in Zircaloy Fuel Rod  
Cladding in the Low Pressure Phase of a Loss-of-Coolant Accident,  
dito.

D. Hentschel, T. Dippel, S. Kunze,  
Dekontamination kerntechnischer Komponenten mit Salzschnmelzen,  
atw, Sept./Okt. 1976, S. 467-68

S. Malang,  
Berechnung der Oxidation von Zircaloy-Hüllrohren durch Lösung  
der Diffusionsgleichung, "  
atw, Sept./Okt. 1976, S. 488 ff.

W. Schöck,  
Messungen von Tröpfchengrößenspektren in übersättigter Wasser-  
dampf-atmosphäre mit einem Laser-Streulichtspektrometer,  
Gesellschaft für Aerosolforschung, Bad Soden, 2. - 5.11.1976

U. Schumann,  
Instationäre Potentialströmung in komplexer Geometrie am Beispiel  
von DWR-Blowdown-Strömungen, KFK 2324, Juli 1976

H. Dilger,  
Statistik besonderer Ausbreitungssituationen,  
KFK 2383 (1976)

A. Weinert,  
Vor-Ort-Prüfung großer Schwebstofffilteranlagen - Betriebserfahrungen  
und Erweiterung des Verfahrens auf Prüfungen unter simulierten LWR-  
Störfällen, Kommission der Europäischen Gemeinschaften, 22. - 25.11.1976

G. Class, J. Kadlec,  
Survey of the Behaviour of BWR-Pressure Suppression Systems during  
the Condensation Phase of LOCA,  
American Nuclear Society 1976  
International Conference  
Nov. 17 - 19, 1976, Washington

G.W. Köhler, M. Selig, M. Salaske,  
Manipulator Vehicles of the Nuclear Emergency Brigade in the Federal  
Republic of Germany,  
Proceedings of the 24th Conference on Remote Systems Technology, 1976

B.G. Beier,  
Erzeugung und Freisetzung von Aktiniden durch Kernkraftwerke und Wieder-  
aufarbeitungsanlagen und die voraussichtliche radiologische Belastung  
bis zum Jahr 2000 (in Vorbereitung)

A. Bayer,  
Radiological Impact from Nuclear Facilities Under Normal Operation  
Lecture Notes  
IAEA-Interregional Training Course, Karlsruhe 1976

W. Gulden, et al.,  
Synopsis of the basic models implemented in the fuel rod behavior  
codes FRAP-T and SSYST and some comparative calculations,  
CSNI-Specialists' Meeting, Spatind, Norway, 13. - 16. Sept. 1976



E. Karb, G. Harbauer, W. Legner, L. Sepold, K. Wagner,  
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Gasströmung in  
LWR-Brennstäben bei Kühlmittelverluststörfällen,  
KFK 2411, Dez. 1976

K. Rust, S. Malang, W. Götzmann,  
"PEW - Ein FORTRAN IV-Rechenprogramm zur Bereitstellung physikalischer  
Eigenschaften von Werkstoffen für LWR-Brennstäbe und deren Simulatoren"  
KFK-Ext. 7/76-1, Dez. 1976

G. Haury, W. Schöck,  
The removal of radioactive aerosols from the post accident atmosphere  
of an LWR-containment; 14th Air Cleaning Conference, Sun Valley,  
Idaho, Aug. 2 - 4, 1976

S. Jordan, W. Schikarski, W. Schöck,  
Research on aerosol formation, aerosol behavior, aerosol filtration,  
aerosol measurement techniques and sodium fires at the Laboratory  
for Aerosol Physics and Filter Technology at the Nuclear Research  
Center Karlsruhe, IWGFR Specialists' Meeting on Aerosol Formation,  
Vapor Deposits and Sodium Vapor Trapping, Cadarache, Dec. 13-17, 1976

Interne Projektberichte (beschränkter Verteiler)

D. Enderle,

Entwurf eines zweidimensionalen Modells für den Fluidodynamik-  
Code FLUST 1

Juli 1976

H. Schüttelkopf,

Zur <sup>129</sup>J-Emission aus einer Wiederaufarbeitungsanlage für einen  
Durchsatz von 1500 t/a

Juli 1976

S. Dorner,

Beiträge zu einem Arbeitsprogramm für eine GfK-KWU-Studie "H<sub>2</sub>-  
Entwicklung aus der mit Beton wechselnden Kernschmele"

Juli 1976

H. Mössinger,

Kopplung der Fluid- und Strukturgleichungen eines 1 1/2-dimensionalen  
Modells und über ihre Behandlung mit dem Charakteristikenverfahren

Aug. 1976

W. Sengpiel,

Über die probabilistische Betrachtung des Brennstabverhaltens bei  
einem hypothetischen Kühlmittelverluststörfall,

Aug. 1976

S. Dagbjartsson,

Bericht über das Zircaloy Cladding Review Group Meeting und  
Diskussionen im Argonne National Laboratory, 20. - 22. Juli 1976,

Aug. 1976

W. Pfeiffer, G. Neffe,

Berechnung von Rektifikationskolonnen zur Trennung eines polynären  
Gemisches nach der Relaxionsmethode, angewendet auf das fünf

Komponentengemisch N<sub>2</sub>, Ar, O<sub>2</sub>, Kr, Xe

Okt. 1976

E.G. Schlechtendahl,  
Überlegungen zur Datenstruktur dreidimensionaler Modelle im Code  
FLUST unter topologischen und geometrischen Gesichtspunkten,  
Sept. 1976

G. Weber,  
Failure Diagnosis and Fault Tree Analysis,  
Okt. 1976

S. Dagbjartsson,  
1. Bericht über die Mitarbeit beim PBF-Programm und bei der Code-  
Entwicklung der ANC,  
Juli 1976

G. Hofmann,  
Bericht über einen Informationsbesuch im Idaho National Engineering  
Laboratory, 7. und 8. Juli 1976,  
Aug. 1976

K. Schulz,  
Berechnungsmöglichkeiten von Mischphasengleichgewichten,  
Okt. 1976

M. Schückler,  
Zur Konzeption des Rechenprogramms für das Unfallfolgenmodell der  
deutschen Risikostudie, Parameternetz, Schnittstellen und  
Kapazitäten, Überlegungen,  
Okt. 1976

A. Bayer,  
Several Statements on the GESMO-Report and Recommendations for  
an European Version of a Simulator Study (Parts Submitted to the  
ad hoc-Group on "Radiological Health Assessments and Radiological  
Hazards" on the European Commission),  
Okt. 1976

S. Vogt,

Die Ausbreitungsmodelle in der amerikanischen und in der deutschen  
Reaktorsicherheitsstudie,

Okt. 1976

R. Löffel,

Zwischenbericht über die bei den Marviken-II-Experimenten am  
Bruchstützen durchgeführten Versuche,

Okt. 1976

H. Schnauder, K.D. Appelt,

Versuchsprogramm zur Untersuchung verschiedener Meßleitungstypen  
und Störpegelmessungen im HDR,

Okt. 1976

G. Hailfinger, R. Krieg,

Elastisch-plastische Spannungs- und Verformungsanalyse für die  
Kernmanteleinspannung bei den DWR-Blowdown-Versuchen am HDR-  
Reaktor,

Okt. 1976

K.D. Appelt,

Aufbau und Übertragungsverhalten der verschiedenen Meßketten der  
HDR-RDB-Instrumentierung nach dem derzeitigen Kenntnisstand,

Nov. 1976

H. Schöllhammer,

Einsatz eines richtungsabhängig messenden Thermo-Lumineszenz-  
Dosimeter zur Berechnung von Kontaminationen des Primärkreises  
eines Druckwasser-Reaktors,

Nov. 1976

J. Vehlow, C.H. Leichsenring,

Ergebnisse der Dosisleistungsmessungen im Kernkraftwerk Biblis A in  
der Abschaltphase April bis Juli 1976

Nov. 1976

S. Vogt, R. Kubsch,

Untersuchungen zum Ausbreitungsmodell im Fernbereich für die deutsche Risikosicherheitsstudie,

Nov. 1976

G. Hofmann,

Reisebericht von einem Informationsbesuch beim 4. Water Reactor Safety Information Meeting vom 26. - 30.9.1976 in Gaithersburg,

Okt. 1976

S. Dagbjartsson,

Beiträge zur Modellentwicklung für das Dehnungsverhalten und Versagen von Zry-Hüllrohren,

Sept. 1976

P. Hofmann,

Über die mechanische Beanspruchung von Zirconium, Zircaloy und anderer Werkstoffe durch die Bildung von Oxidschichten (Literaturstudie),

Dez. 1976

K. Stölting,

Vorausberechnung der HDR-Blowdown-Untersuchungen (Fall 3) mit dem Rechencode YAQUI,

Nov. 1976

St. Müller,

Verfahren und Einrichtung zum Identifizieren einer 2-Phasen-Strömung,

Dez. 1976

F. Eberle,

Beitrag zur Entwicklung von Meßfehlerkorrekturverfahren für transiente Meßsignale,

Dez. 1976

R. Krieg,

Obere Abschätzung für die horizontale Verschiebung des HDR-Reaktor-druckbehälters, hervorgerufen durch innere Kräfte bei den geplanten Blowdown-Versuchen,

Nov. 1976

H. Unger et al.,

Bericht über die im Auftrag des PNS geleisteten Arbeiten des  
IKE Stuttgart im Zeitraum April - Juni 1976,  
Juli 1976

S. Vogt,

Überlegungen und Berechnungen zur Anzahl der Wetterabläufe  
für die deutsche Risikostudie,  
Jan. 1977

D. Perinic,

Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen,  
Durchführbarkeitsstudie, Vorläufige Ergebnisse,  
Stand. Oktober 1976,  
Dezember 1976