

KfK 2500
Dezember 1977

Halbjahresbericht 1977 / 1

Projekt Nukleare Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2500

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

11. Halbjahresbericht / 1. Halbjahr 1977

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

Vorwort

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

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

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

Der vorliegende 11. Halbjahresbericht 1/77 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 - 51) und englisch (S. 52 - 113.), in denen über

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

Der Bericht wurde von der Projektleitung zusammengestellt.

Zum Druck eingereicht: Dezember 1977

NUCLEAR SAFETY PROJECT

FIRST SEMIANNUAL REPORT 1977

The 11th Project Report 1/77 is a description of work within the Nuclear Safety Project performed in the first six month of 1977 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. 52 - 113) 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	52
DETAILLIERTE BERICHTE	114
4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS- ANLAGEN	114
4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbei- tungsanlagen	114
4111 Störfall-Umluftfilter zur Abscheidung von Spaltpro- dukten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre	114
4112-1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbei- tungsanlagen	119
4112-2 Entwicklung und Bau einer Abgasfilteranlage für große Wiederaufarbeitungsanlagen	126
4114 Abluftfilterung an Reaktoren	129
4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen	154
4123 Reduktion der Aktivierung und Kontaminierung von Reaktorkreisläufen	154
4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung	157
4132 Untersuchungen zur ¹²⁹ J- Radioökologie	157
4140 Krypton- und Xenon-Entfernung aus der Abluft kerntechnischer Anlagen	158
4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN	191
4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen	191
4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen	191
4214 Entwicklung eines Radionuklidmeßverfahrens zur Massen- strommessung in instationären Mehrphasenströmungen	196
4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren verschiedener Zweiphasen-Massenstrommeßverfahren	206
4220 Untersuchungen der dynamischen Beanspruchung von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen	224
4221 Auslegung, Vorausberechnung und Auswertung der HDR-Blowdown- Experimente zur dynamischen Belastung und Beanspruchung von Reaktordruckbehältereinbauten	224

	<u>Seite</u>
4222 Meßtechnische Erfassung und Auswertung des dynamischen Verhaltens der Versuchseinbauten im Reaktordruckbehälter (RDB) des HDR im Rahmen der HDR-Blowdown-Versuche	229
4223 Weiterentwicklung und Verifizierung gekoppelter fluid-struktur-dynamischer Codes zur Analyse der dynamischen Spannungen und Verformungen von RDB-Einbauten bei Kühlmittelverluststörfällen in LWR.	234
4230 Notkühlung von LWR	243
4231 Theoretische Untersuchungen zum Brennstabverhalten bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnellabschaltung	243
4234 Bestimmung der Nachzerfallswärme von ²³⁵ U im Zeitbereich 10 - 1000 sek	268
4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Reaktorstörfällen	270
4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial	270
4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohren	306
4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffes und von Spaltprodukten auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren bei Störfalltransienten	345
4235.4 Bersttests mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren unter kombinierter mechanisch-chemischer Beanspruchung (FABIOLA-Programm)	380
4236 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Blowdown-Phase eines Kühlmittelverluststörfalles	384
4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles. In-pile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2. Nuklearversuche und Referenzversuche.	388
4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase von Kühlmittelverluststörfällen und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung (REBEKA-Programm)	395
4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles (FEBA-Programm)	404

	<u>Seite</u>
4240 Coreschmelzen von LWR	418
4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO ₂ - Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung	418
4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen	429
4244/ Zustand, Reaktionsverhalten, Technologie und Stoffdaten	448
4245 von LWR-Materialien beim Coreschmelzen	
4246 Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen(Vorprojekt)	462
4247 Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton	468
4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN	479
4310 Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reak- tionsvorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen	479
4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments	479
4320 Theoretische und experimentelle Untersuchungen der Ausbrei- tung radioaktiver Gase und Aerosole	492
4320-TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogrammes für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausge- dehnten bebauten Regionen	510
4330 Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten	516
4331 Rechenmodelle zur Berechnung der Ortsdosen	516
4332 Rechenmodelle zur Berechnung der Schäden	526
4400 EINDÄMMUNG UND BESEITIGUNG DER FOLGEN VON STÖRFÄLLEN	535
4410 Isolierung und Beseitigung von Kontaminationen	535
4411 Entwicklung von Dekontaminationsverfahren	535
4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241) im Boden und in geologischen Formationen	554
4420 Technik der Räum- und Demontgearbeiten	559
4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur Stilllegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen	559
Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1977	563

-KURZFASSUNGEN

KURZFASSUNGEN

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGS-
ANLAGEN

4110 Luftfilteranlagen in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungs-
anlagen

4111 Entwicklung von Störfall-Umluftfiltern zur Abscheidung von Spalt-
produkten aus der Sicherheitsbehälter-Atmosphäre
(H.-G. Dillmann, A. Weinert, LAF II)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Die Prüfung am Fangrillentropfenabscheider wurde abgeschlossen. Die Ergebnisse zeigten, daß bei den geforderten Abscheidegraden der Abscheider für die Verwendung in einem Störfall-Umluftfilter einen zu hohen Druckabfall ergibt. Aus diesem Grund wird der Einsatz von neuen, seit kurzer Zeit auf dem Markt angebotenen Metallfaserabscheidern mit sehr dünnen Faserstärken ($d \geq 4 \mu\text{m}$) vorgesehen. Diese Abscheider sollen entsprechende Abscheidegrade bei wesentlich geringerem Druckabfall erbringen. Ein entsprechender Einsatz wurde konstruiert und befindet sich in der Bestellphase.

Die Funktionsfähigkeit des Plasmaaerosolgenerators für die Schwebstofffilterprüfung wurde bei Drücken bis zu 5 bar nachgewiesen.

Die Konstruktionsarbeiten für den Einbau des Generators in den Filterprüfstand wurden abgeschlossen. Der Anbau des Generators soll Ende des dritten Quartals 1977 abgeschlossen sein.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Untersuchungen zur Tropfenabscheidung mit den bestellten Metallfaserfiltern werden aufgenommen. Nach Einbau des Aerosolgenerators werden die ersten Schwebstofffilterprüfungen unter Störfallbedingungen durchgeführt.

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Hochbeladungsversuche des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H₁ wurden abgeschlossen. Die Desorptions-, Standzeit- und Vergiftungsuntersuchungen werden fortgeführt. GC-Untersuchung des Auflöse- und Gesamtabgases werden durchgeführt.

Die fernbedienbaren Filtereinheiten mit gleichen Behälteraußendurchmessern und klappbarem Deckel wurden konstruiert und befinden sich im Anfragestadium. Ein Teil der Probeaufgabe- und Probenahmeeinheiten wurde getestet. Ein Filtergehäuse mit klappbarem Deckel wurde gebaut und teilerprobt. Der Auftrag zum Bau der PASSAT wurde vergeben. Mit dem Aufbau wurde begonnen.

Erzielte Ergebnisse

Auch bei einer Verkürzung der Bett-Tiefe der Jod-Sorptionsfilter ergeben sich keine Schwierigkeiten, die geforderten Abscheidegrade von $\geq 99,9$ % im simulierten Abgas für das ankommende Jod einzuhalten.

Beim Einsatz der innerhalb dieses Programmes entwickelten Jodmeßsonde im Auflöserabgas wurden die Jodkonzentrationen im Verlaufe einer Auflösung ermittelt. Im Auflöserabgas vor den Jodsorptionsfiltern der WAK wurden als organische Jodkomponenten Methyl-, Ethyl- und Butyliodid gaschromatographisch bestimmt. Das Gesamtabgas enthielt in meßbaren Konzentrationen nur Methyl- und Ethyliodid.

Mit dem Muster-Filtergehäuse wurden in kalten Versuchen gute Ergebnisse in Bezug auf Fernbedienbarkeit, Dichtheit und Funktion erzielt. Aerosolaufgabe und Probenahmestrecken für die PASSAT wurden getestet und verbessert.

Ausblick auf den geplanten Fortgang der Arbeiten

Die Messungen der Abgaskomponenten im Auflöser- und Gesamtgas der WAK werden fortgesetzt. Die Funktion der Einleit- und Probenahmestrecken sowie der Meß-

geräte für PASSAT wird überprüft. Die Meßgeräte werden nach der Eichung in den Kreislauf der PASSAT eingebaut. Nach dem Aufbau der Versuchsanlage PASSAT werden die Einzelkomponenten der Filteranlage auf ihre Funktionsfähigkeit unter den Bedingungen des Head-end Abgases einer GWA untersucht.

4114 Abluftfilterung an Reaktoren

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

Durchgeführte Arbeiten

Es wurde ein Prototypfilter für den Betrieb mit erhöhter Standzeit gebaut und ersten Prüfungen auf dem technischen Prüfstand TAI FUN unterworfen. Zwei neue mobile Prüfeinrichtungen zur Beaufschlagung von Filterkohlen mit KKW Abluft wurden im KKW Biblis aufgestellt.

Erzielte Ergebnisse

Aufgrund der bisher durchgeführten Arbeiten konnte eine neue Filterkonstruktion Mehrwegsorptions-Filter (MWS-Filter) entwickelt werden, die bei reduziertem Verbrauch an Sorptionsmaterial eine wesentlich erhöhte Standzeit erwarten läßt. Patentanmeldung und Lizenzvergabe sind erfolgt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Laborversuche zur Desorption der Schadstoffe unter Berücksichtigung des Verhaltens des bereits abgeschiedenen Radiojodes.

Einsatz der Prüfeinrichtungen zur Optimierung der Bett-Tiefe und des Wechselzyklus des MWS-Filters.

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

Durchgeführte Arbeiten

Es wurden kontinuierlich Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern unter Verwendung von DSM 11 als J_2 -Sorptionsmaterial in der Betriebsraumluft und Kaminabluft eines wegen eines Störfalls abgeschalteten SWR-Kernkraftwerks sowie in der Kaminabluft eines DWR-Kernkraftwerks bei Leistungsbetrieb durchgeführt. Außerdem wurden diskriminierende Jodsammler mit verschiedenen J_2 - und CH_3J -Sorptionsmaterialien in der Kaminabluft eines Forschungsreaktors eingesetzt.

Es wurden Versuche zur Abscheidung von radioaktiv markiertem gasförmigem Methyljodid und Jodbenzol an Jodsorptionsmaterialien sowie zur Herstellung von radioaktiv markierter gasförmiger hypoiodiger Säure und ihrer Abscheidung am Jodsorptionsmaterial AC 6120 durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

Der Anteil des anorganischen ^{131}J lag in der Betriebsraumluft und Kaminabluft der Kernkraftwerke mit Ausnahme von 2 Sammelperioden unter 50%. In der Kaminabluft des Forschungsreaktors überwog der Anteil des anorganischen ^{131}J .

Der Abscheidegrad der J_2 -Sorptionsmaterialien DSM 11 und DSM 17 für ^{131}J in Form von Methyljodid lag im gesamten relevanten Parameterbereich bei 0,1s Verweilzeit unter 1%. ^{131}J in Form von Jodbenzol wurde von DSM 11 und DSM 17 sowie von AC 6120 und LMS 13X-Ag in geringem Maße, von KJ- und TEDA-imprägnierter Aktivkohle jedoch in hohem Maße abgeschieden. Bei Verwendung von bestimmten Reagentien (Ag_2O , HgO) in den Versuchen zur Herstellung und Abscheidung von hypoiodiger Säure trat eine an AC 6120 schwer abscheidbare Jodkomponente auf, die hypoiodige Säure sein könnte. Ihr Anteil im Trägergas betrug bis zu 50%.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

In verschiedenen Abluftsträngen eines DWR-Kernkraftwerks werden während eines repräsentativen Zeitraums Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern durchgeführt.

Die Abscheidung von ^{131}J in Form von elementarem Jod an den J_2 -Sorptionsmaterialien DSM 11 und DSM 17 wird im gesamten relevanten Parameterbereich bestimmt. Außerdem wird die Abscheidung der an AC 6120 schwer abscheidbaren Jodkomponente an diesen und anderen Jodsorptionsmaterialien gemessen sowie weitere Versuche zu ihrer Identifizierung durchgeführt.

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten
in Reaktorkreisläufen

4123 Reduktion der Aktivierung und Kontaminierung von Reaktorkreisläufen
(I. Michael)

Durchgeführte Arbeiten

Die Metallabgabeuntersuchungen des Dampferzeugerrohrwerkstoffes INCOLOY alloy 800 an Druckwasser bei 340°C , 150 bar wurden weitergeführt.

Erzielte Ergebnisse

Es zeigte sich ein anomales Verhalten der Eisenabgabe in Abhängigkeit vom Gehalt an freiem Sauerstoff im Speisewasser. Es wurde erkennbar, daß für geringe Eisenabgabe eine bestimmte Sauerstoffkonzentration nicht unterschritten werden darf. Dieser Tiefstpunkt liegt bei 0,5 ppm O_2 . Wird dieser Wert überschritten, so steigt der Eisengehalt geringfügig; wird er unterschritten, so steigt der Eisengehalt im Druckwasser merklich an, wie dies Abb. 4123-1 zeigt. Die Nickel- und die Chromgehalte im Druckwasser zeigen dieses anomale Verhalten nicht. Diese Fremdstoffgehalte nehmen nach 300 Stunden mit abnehmender Sauerstoffkonzentration ebenfalls monoton ab.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Diese Untersuchungen werden mit dem alternativen Werkstoff NICROFER 3220 und mit LiOH -Alkalisierung des Druckwassers weitergeführt und Ende 1977 abgeschlossen.

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

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

Durchgeführte Arbeiten

Die ^{129}J -Messung in Milch und Bodenproben wurde fortgesetzt. Außerdem wurde ^{129}J in Prozesslösungen und in der Abluft der WAK gemessen.

^{127}J wird in der Umgebungsluft des KFZ Karlsruhe gemessen. Apparaturen zur ^{127}J -Messung wurden in Kiel, Stade und Gundremmingen installiert.

Erzielte Ergebnisse

Die ^{129}J -Konzentrationen in Ziegenmilch liegen zwischen 0,03 und 1,1 pCi/l.

Die Konzentrationen in Bodenproben liegen zwischen $\leq 0,3$ und 5,6 fCi/g.

Die ^{127}J -Konzentration in der Umgebungsluft liegt bei $10 \text{ ngJ}_2/\text{m}^3$ und ca. $2 \text{ ng Aerosoljod}/\text{m}^3$.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Milch- und Bodenuntersuchungen von ^{129}J werden bis 1978 fortgesetzt.

Die ^{127}J -Messungen in der Umgebungsluft werden Ende 1977 abgeschlossen.

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

(R. v. Ammon, IHCH, E. Hutter, RBT; R. Penzhorn IRCH)

Durchgeführte Arbeiten

Mit der Anlage KRETA und im Verbund mit ADAMO wurden zwei Versuchskampagnen zur Untersuchung des Kolonnenverhaltens und erzielbare Trennfaktoren des Dreistoffsystems N_2 -Kr-Xe durchgeführt.

Mit der katalytischen Laborkreislaufanlage wurden mehrere Versuchsserien gefahren; die Anlage REDUKTION für inaktive Versuche im technischen Maßstab wurde bestellt.

In Laborversuchen wurde das Adsorptions- und Spülverhalten von Kr (mit Kr-85 markiert) an Silikagel und Molekularsieb A-5 in trockenem und feuchten Gasstrom bestimmt. An der Anlage ADAMO wurde das Durchbruch- und Spülverhalten von Kr und Xe untersucht.

Zur Ozonbestimmung im Sumpf der TTR und Ozonzerströrung wurden analytische Methoden erprobt, ein Kryostat erstellt und in Betrieb genommen sowie Ozonzerstörungs-Katalysatoren untersucht und ausgewählt.

Erzielte Ergebnisse

Mit der Anlage KRETA wurden für das System N_2 -Kr-Xe Dekontaminationsfaktoren für die Edelgase $DF = 10^3$ in der ersten Kolonne erreicht. Bei Betriebsstörungen, die mit dem Ausfrieren von Xe zusammenhängen, sind jedoch auch geringere DF's gemessen worden: neueste Stoffdaten lassen auf einen größeren Xe - Ausfrierbereich schließen, als bisher unter idealen Annahmen berechnet wurde. Jedoch deuten die festgestellten Ausfrierungen eher auf Desublimation des Xe's aus der Gasphase hin.

Zuverlässige analytische Methoden für die Bestimmung von Ozon sind

1. Kaliumjodid - Methode, 2. UV-Derivativspektrometrie, 3. UV-Absorption, 4. Chemiluminiszenzmethode. Für die Ozonzersetzung haben sich Cu - haltige Katalysatoren am besten bewährt.

Bei den Versuchen zur Adsorption hat sich gezeigt, daß Kr und Xe durch Spülung mit N_2 bei Raumtemperatur nahezu quantitativ desorbieren, d.h. keine Verluste durch Coadsorption von Kr zu erwarten sind.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Nach Beseitigung festgestellter Fehlerquellen werden die KRETA-Versuche mit dem System N_2 -Kr-Xe fortgesetzt, um eine Betriebsweise zu finden, bei der das Ausfrieren von Xenon vermieden werden kann. Die Katalysatorversuche mit der Labor-Kreislaufanlage werden fortgesetzt, um optimale Betriebsbedingungen bei schwankenden O_2 -Gehalten zu finden; dazu wird die H_2 -Regelung verbessert. Die Anlage REDUKTION wird zum Ende des Jahres weitgehend vormontiert angeliefert.

Adsorptionsversuche werden mit säurefesten Molekularsieben fortgesetzt.

- 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

Für die bei den Marviken II-Versuchen eingesetzte Infrarot-Meßeinrichtung wurde eine zusammenfassende technische Beschreibung ausgearbeitet. Außerdem wurde ein quantitativer Vergleich mit den nach anderen Meßverfahren ermittelten Meßwerten hinsichtlich der integral in die Kondensationskammer eingeflossenen Massen durchgeführt.

Im Rahmen einer neuen Serie von Kondensationsversuchen im Großkraftwerk Mannheim wurden erneut begleitende Kontrollmessungen im Auftrag des TÜV Baden durchgeführt.

Der Einfluß des in der Kondensationskammer befindlichen Wassers auf das dynamische Schalenverhalten wurde in einem ersten Schritt mit einem einfachen Modell analytisch abgeschätzt. Im Zusammenhang mit der Frage möglicher Schwingungen in den Zuströmkanälen von Druckabbausystemen wurde eine Untersuchung über die Eigenfrequenzen strömender Medien in starren Kanälen durchgeführt.

Die im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden durchgeführten Parameterrechnungen mit den eigens hierfür entwickelten Rechenprogrammen wurden abgeschlossen. Das Rechenprogramm KONDAS wurde auch zur Untersuchung der pulsierenden Kondensation im Vielrohrverband verwendet. Die gewonnenen Ergebnisse fanden zusammen mit direkten Versuchsdaten Verwendung zur Untersuchung der Überlagerungsstatistik in der Reaktoranlage mit Hilfe des Rechenprogrammes WELLA. Mit AKUDYN wurde schließlich mit Hilfe eines Ersatzmodells für die Kopplung zwischen Fluid und Wandstruktur die Auswirkung der in den Experimenten beobachteten sehr kurzzeitigen "Drucknadeln" untersucht.

Erzielte Ergebnisse

Der Vergleich der mit den verschiedenen Meßverfahren bei den Marviken-Versuchen ermittelten, integral in die Kondensationskammer eingeflossenen Massen bestätigt die bereits beim Vergleich der Massenströme gemachten Beobachtungen. Danach ergibt sich für die Dampfmassen eine befriedigende Übereinstimmung.

Die unter Berücksichtigung des in der Kondensationskammer befindlichen Wassers berechneten Eigenfrequenzen der Wasserkammer stimmen gut mit den bei den Abblasetests im Kernkraftwerk Erunsbüttel beobachteten Frequenzen überein. Bei druckströmten Systemen hängen die Eigenfrequenzen über eine relativ einfache Gesetzmäßigkeit von der Strömungsgeschwindigkeit ab. Mit wachsender Strömungsgeschwindigkeit nehmen die Eigenfrequenzen ab bis sie bei Erreichen der Schallgeschwindigkeit verschwinden.

Die Ergebnisse der mit dem Programm KONDAS ausgeführten Berechnungen zu den niederfrequenten Vorgängen der pulsierenden Kondensation stehen in zufriedenstellender Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Auch bei den für einen Vielrohrverband durchgeführten Berechnungen ergaben sich keine ungünstigen Kopplungseffekte.

Ausblick auf den geplanten Verlauf der Arbeiten

Die Erfahrungen mit der bei den Marviken II-Versuchen verwendeten Infrarot-Meßeinrichtung werden in einem zusammenfassenden Bericht niedergelegt. Dieser Bericht wird auch eine kritische Wertung der erzielten Ergebnisse und Ausführungen über die sinnvollen Einsatzbereiche dieses Meßverfahrens enthalten.

Die im Großkraftwerk Mannheim laufenden Kontrollmessungen werden weitergeführt.

Im Rahmen der Untersuchungen zum dynamischen Schalenverhalten wird die Anregungsübertragung von den kollabierenden Blasen auf die Kugelschale einschließlich möglicher Resonanzeffekte noch genauer untersucht werden. Die Eigenfrequenzen der Zuströmkanäle in Druckabbausystemen sollen auch für einseitig periodische Durchsatzraten analytisch ermittelt werden.

Die für die Durchführung der Parameterrechnungen entwickelten Rechenprogramme KONDAS, AKUDYN und WELLA werden in speziellen Berichten beschrieben werden.

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Auswertung der Marviken-II-Experimente wurde fortgesetzt. Die Radionuklidmeßeinrichtung wurde Ende März am "Gemeinsamen Versuchsstand" installiert und in Betrieb genommen. Nach ersten Vorversuchen wurde ein Vergleich des Radionuklidverfahrens mit anderen Verfahren durchgeführt. Die Tracersignale wurden mittels Korrelationsanalyse ausgewertet.

Erzielte Ergebnisse

Die bei den einzelnen Blowdowns in den Abblasekanälen gemessenen Geschwindigkeit der Gasphase (gemessen mit dem Radiotracerverfahren) 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 kein Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase (Nebelströmung) vorlag.

Die zusätzlich im Bruchstutzen durchgeführten Geschwindigkeits- und Dichtemessungen verliefen erfolgreich, da es gelungen ist, den Massenstrom des Kühlmittels im Bruchstutzen zuverlässig zu bestimmen. Es war der erste Einsatz des Radionuklid-Massenstrommeßverfahrens unter harten Blowdown-Bedingungen.

Es wurde nachgewiesen, daß die gewählten 0,3 m Anlaufstrecke und 0,25 m Meßstrecke ausreichen, um brauchbare Ergebnisse zu erzielen. Ein durch Korrelationsanalyse ermitteltes typisches Ergebnis war: Die Geschwindigkeit erhöhte sich zwischen 0 und 1,5 sec auf 32 m/s und nahm danach ab auf ca. 26 m/s ($t = 6s$). Von $t = 6$ bis 85 s fiel sie geringfügig weiter ab. Eine Änderung der Geschwindigkeit zwischen 90 und 100 s wurde durch die Betätigung

des Sicherheitsventils (Schließversuch) ausgelöst.

Die Dichte wurde mit einem senkrecht durch die Rohrmitte gerichteten γ - Strahlenbündel (Ir-192) gemessen. Die damit erzielten Ergebnisse sind sehr zufriedenstellend.

Der beim Blowdown 21 erstmals beobachtete "Drosseleffekt" trat beim Blowdown 24 noch stärker auf. Während des Schließens des Sicherheitsventils nahmen die Dichte um 100% und der Massenstrom um 65% zu, während die Geschwindigkeit nur geringfügig abfiel.

Während bei den Marviken-II-Experimenten im Bruchstutzen und in den Abblasekanälen kein Schlupf zwischen Flüssig- und Gasphase festgestellt wurde, ergaben die bisherigen Versuche am Gemeinsamen Versuchsstand Schlupfwerte von 1 bis 4.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Neben der Fortsetzung der Versuche am Gemeinsamen Versuchsstand laufen die Vorbereitungen auf die HDR-Blowdown-Experimente.

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

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse

Beim Dampf-Wasser-Kreislauf wurden vor der Mischkammer zwei Drosselventile in die Rohrleitungen eingebaut. Wird durch Drosselung Dampf erzeugt, so kann bei kleinen Dampfgehaltes der Gesamtmassenstrom gegenüber der bisherigen Fahrweise bis zu 35 % erhöht werden. Außerdem wirkt sich die Drosselung stabilisierend auf die einphasige Massenstrom-Messung aus.

Die Betriebsdatenerfassung, die "on-line" alle wesentlichen Werte berechnet, wurde in Betrieb genommen. Das Rechenprogramm enthält die Zustandgleichungen für Dampf-Wasser, außerdem wurden die Eichkurven für jeden Signalgeber berücksichtigt.

Das γ -Densitometer wurde mechanisch fertiggestellt und mit der Elektronik bestückt. Erste statische Eichversuche waren voll zufriedenstellend.

Nach Vervollständigung der Meßtechnik wurde der Betriebsbereich des Luft-Wasser-Versuchsstandes bestimmt. Es werden, wie erwartet, um den Faktor 5 höhere Massenströme erreicht als mit dem Dampf-Wasser-Kreislauf. In der Teststrecke wird das Gebiet der dispersen Blasenströmung voll erreicht.

Zur Bestimmung der Strömungsform sowohl in Luft-Wasser- als auch Dampf-Wasser-Gemischen wurde eine lokale Impedanz-Sonde eingesetzt. Mit einer Traversiereinrichtung konnten darüberhinaus Aussagen über die jeweilige Phasenverteilung längs eines senkrechten Durchmessers gemacht werden. Die mit der Sonde ermittelten Grenzen der einzelnen Strömungsbereiche sind bei Luft-Wasser-Strömung in guter Übereinstimmung mit Werten der neueren Literatur. In horizontaler Dampf-Wasser-Strömung wurden derartige Untersuchungen erstmals durchgeführt; es zeigte sich, daß der Bereich der Schwallströmung bei hohen Drücken kleiner wird.

In ersten Versuchsserien wurden folgende Meßverfahren im Dampf-Wasser-Kreislauf eingesetzt:

- Drag-body und Turbosonde (Euratom Ispra, RS 109)
- Temperaturkorrelation (TU-Berlin, RS 135)
- Drag-body (Battelle, RS 147)
- Radionuklidmethode (GfK-LIT, RS 146 bzw. PNS 4215)

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Ausführliche Tests der vom BMFT geförderten Meßverfahren im Dampf-Wasser-Strömung (Sept. 77)
- Tests der für LOFT, Semiscale und PBF entwickelte Verfahren in Dampf-Wasser-Strömung (4. Quartal 77)
- Anschließend Tests in Luft-Wasser-Strömung, instationärer Dampf-Wasser-Strömung.

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

Durchgeführte Arbeiten

Im Zuge der Vorausberechnungen wurden mit CYLDY2 die Eigenfrequenzen bestimmt. Ein Konzept für sogenannte Snap-back-Versuche am HDR-Kernmantel wurde ausgearbeitet. Mit Hilfe dieser Tests wird man in der Lage sein, sowohl das Strukturdynamik-Modell für den Kernmantel (ohne Wasserfüllung), als auch das Koppelungsmodell für Strukturdynamik plus Fluidodynamik (mit Wasserfüllung) für sich allein, d.h. ohne die Überlagerung der Blowdown-Strömung, experimentell zu überprüfen. Die Vorbereitungen für Naturkonvektions-Versuche, die im Zusammenhang mit Problemen für eine zuverlässige Enthalpie-Einstellung für die HDR-Blowdowns stehen, wurden weitergeführt.

Erzielte Ergebnisse

Die mit CYLDY2 erhaltenen Eigenfrequenzen des HDR Versuchskernmantels stimmen mit früheren STRUDL-DYNAL Rechnungen gut überein. Abweichungen bestehen zu SAP IV-Ergebnissen.
Fluiddynamische Ergebnisse, erzielt mit den Codes DAPSY, WHAMMOD, YAQUIR wurden für Vergleichszwecke dokumentiert.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Klärung einiger Detailfragen zur Montage des HDR-Kernmantels steht an. Die Diskrepanz zwischen CYLDY2 und STRUDL/DYNAL-Rechnungen für den Kernmantel auf der einen Seite und den SAP IV-Rechnungen auf der anderen Seite sind zu untersuchen. Die Hydraulik-Einrichtung für die Snap-back-Versuche muß beschafft werden. Der Datentransfer zwischen HDR und den Auswerte-Programmen bei der GfK und LASL muß geregelt werden.

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

Die Testanlage zur dynamischen Untersuchung von Meßwertaufnehmern (unter Blowdown-Bedingungen) wurde im IRE fertig installiert und in Betrieb genommen.

Das Betriebsverhalten der Gesamtanlage (von Autoklav, Shaker und Zusatzvorrichtung) wurde ermittelt und notwendige Verbesserungen vorgenommen. Weiter wurden entsprechende Verfahren zur Ermittlung der notwendigen Daten über das thermohydraulische und dynamische Verhalten der Meßwertaufnehmer entwickelt, die ständig weiter verbessert werden.

Ein Arbeitsbericht über ein Meßfehlerkorrekturverfahren für transiente Meßsignale einschließlich Rechenprogramm wurden fertiggestellt.

Erzielte Ergebnisse

Erste Untersuchungen von Beschleunigungsaufnehmern und vor allem von induktiven Wegaufnehmern mit dem Shaker und dem Autoklav wurden durchgeführt. Sie lieferten erste Ergebnisse hinsichtlich des dynamischen Verhaltens der Aufnehmer und der Aufnehmerreaktion auf die thermohydraulischen Belastungen beim Blowdown. Diese Ergebnisse waren bisher positiv und lassen noch vor Abschluß des gesamten Versuchsprogramms erwarten, daß sich die Aufnehmer für den HDR qualifizieren werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Untersuchungen zum Verhalten der Prototyp-Aufnehmer werden gemäß dem Versuchsprogramm fortgeführt, wobei vor allem die Langzeittests im Autoklav bei kombinierter mechanischer und thermohydraulischer Belastung beim Blowdown über 10 bis 15 Blowdown-Zyklen durchgeführt werden. Daneben sind noch detailliertere Untersuchungen zum Temperaturverhalten von Beschleunigungsaufnehmern sowie zum dynamischen Verhalten von Dehnmeßstreifen geplant.

Neu hinzugekommen ist die Betreuung der Entwicklung eines Hochtemperatur-Druck- und Differenzdruckaufnehmers auf induktiver Basis. Diese Aufnehmer werden ebenfalls im IRE untersucht.

4223 Weiterentwicklung und Verifizierung fluidstrukturdynamischer Codes zur Beanspruchung von RDB-Einbauten beim Blowdown
(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

Durchgeführte Arbeiten

Erste Tests mit dem Fluidodynamik-Code FLUST wurden durchgeführt. Unter Verwendung von YAQUIR und CYLDY2 (für die Strukturodynamik des Kernmantels) wurde der gekoppelte Code STRUYA erstellt. Er erlaubt die Berücksichtigung der strukturdynamischen Rückwirkungen auf die Fluidodynamik. Außerdem wurde die inkompressible Version des Codes FLUX für die dreidimensionale, gekoppelte Fluid-Strukturodynamik in HDR- bzw. DWR-typischer Geometrie erstellt. Eigenfrequenzen für den mit Wasser beaufschlagten Kernmantel wurden bestimmt. Ferner lieferte der Code SOLA-DF für Zweiphasen-Fluidodynamik-Probleme befriedigende Ergebnisse. Obwohl bezüglich der Eigenfrequenzen des Kernmantels die Übereinstimmung zwischen STRUDL/DYNAL und CYLDY2 recht gut war, wurde die Entwicklung einer verbesserten Code-Version CYLDY3 in Angriff genommen. Die Modifikationen beziehen sich im wesentlichen auf den sogenannten Balkenbiegemode. Die Entwicklung eines auf einem fortgeschrittenen Singularitätenverfahren beruhenden und für sehr komplexe, dreidimensionale, transiente, inkompressible Potentialströmungen einsetzbaren Codes SING 1 wurde abgeschlossen.

Erzielte Ergebnisse

Testrechnungen mit dem Fluid Code FLUST verliefen erfolgreich. Eine gekoppelte Codeversion STRUYA (aus YAQUIR und CYLDY2) lieferte erste Ergebnisse. Die inkompressible Version des Codes FLUX wurde erfolgreich erprobt. Testrechnungen mit den für inkompressible Potentialströmungen einsetzbaren Codes SING1 verliefen erfolgreich.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Gewisse Einschränkungen in der Anwendbarkeit von STRUYA sollen untersucht und wenn möglich eliminiert werden. Die kompressible Version von FLUX, sowie FLUST werden für HDR-Blowdown-Analysen eingesetzt. Die theoretischen und experimentellen Arbeiten zur Nichtgleichgewichts-Zweiphasen-Fluidodynamik werden fortgesetzt. Der verbesserte Strukturdynamik-Code CYLDY3 wird erstellt und getestet. Rechnungen zum Einfluß der Core-Struktur auf die Blowdownvorgänge werden mit Hilfe von SING 1 durchgeführt. Das Verfahren der simultanen Fluid-Struktur-Koppelung basierend auf SING 1 wird getestet.

4230 Notkühlung von LWR

Untersuchung des Brennstabverhaltens bei Reaktorstörfällen 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

Die Verifikation von SSYST-1 wurde weiter vorangetrieben. Es wurden Versuchsergebnisse aus PNS 4238, TREAT (FRF2) und PBF (PCM) nachgerechnet und Vergleichsrechnungen mit FRAP-T durchgeführt.

Der Berechnung des stationären Ausgangszustandes als Basis für Transientenrechnungen wurde besondere Beachtung geschenkt. Es wurden mehrere Vergleichsrechnungen SSYST - FRAP-S und anhand eines von KWU spezifizierten Testbeispiels außerdem Vergleiche mit CARO-Ergebnissen durchgeführt. Eine lose Kopplung von FRAP-S an SSYST wurde vollzogen. Der Modul ODRUSPA zur Berechnung des Drucks im Gasspalt wurde verbessert.

Ein weiterer Modul zur Berechnung der Wärmeübergangszahl im Gasspalt wurde erstellt. Der Deformationsmodul STADEF2 wurde verbessert. Für den Modul ZETHYF wurde ein spezielles Verfahren zur Bestimmung der Wärmeübergangskoeffizienten in den verschiedenen Strömungsbereichen entwickelt. Die Auf-

bereitung der Wasser-Dampf-Stoffwerte für die Hydraulikmoduln wurde verbessert, der Modul ZWERG zur Aufbereitung von Zwischenergebnissen wurde für SSYST-2 überarbeitet.

Für die statistische Analyse des Brennstabverhaltens wurde ein Rechenprogramm zur Erzeugung von Eingabevektoren der statistischen Variablen nach der Methode von Conover erstellt und ein weiteres zur Regressionsanalyse der Antwortfunktionen.

Für das Zircaloy-Material-Modell wurde eine umfangreiche Datei mit ca. 150 Zugversuchen aufgestellt.

Erzielte Ergebnisse

Die SSYST-1-Verifikationsrechnungen bezüglich Temperatur- und Dehnverhalten führten zu befriedigenden Ergebnissen und zeigten gute Übereinstimmung mit dem Experiment (PNS 4238). Auch die Verifikation anhand von TREAT- und PBF-Experimenten (FRF-2 und PCM) fiel zufriedenstellend aus, nachdem verschiedene numerische Probleme behoben werden konnten.

Die Berechnung des stationären Ausgangszustandes mit FRAP-S und der Vergleich der Ergebnisse mit CARO-Rechnungen führte zu keiner quantitativ befriedigenden Übereinstimmung. Der Anschluß des Rechenprogramms FRAP-S an SSYST über die beiden Hilfsmoduln FRAPDR und FRASSY ermöglicht nunmehr eine detaillierte Berechnung des Brennstabausgangszustands während des stationären Reaktorbetriebs als Funktion z.B. des Betriebszustandes und der Leistungsvorgeschichte und die darauf aufbauende transiente Rechnung mit SSYST.

Durch Verbesserung der Gleichungsansätze zur Berechnung des transienten Spaltgasdrucks konnten gelegentlich auftretende Instabilitäten behoben werden.

Bei der Erprobung der Methode der Antwortfunktionen hat sich gezeigt, daß es zweckmäßig sein wird, nicht den gesamten Bereich der statistischen Variablen mit einer einzigen Antwortfunktion anzunähern, sondern daß man mehrere Unterbereiche indentifizieren kann, die für sich betrachtet besser abzubilden sind.

Die Analysen zum Zircaloy-Material-Modell haben gezeigt, daß die drei Temperaturbereiche (α , α/β - Umwandlung, β) in den Zugversuchen klar unterschieden werden können. Die maximalen Spannungen dieser Kurven lassen sich im $\log \sigma - \log \dot{\epsilon}$ -Diagramm recht gut verschiedenen Norton-Kriechbereichen zuordnen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Verifikationsrechnungen von SSYST werden fortgesetzt. Weitere Verbesserungen im Bereich der Wärmeübergangszahlen und kritischen Wärmestromdichten sind geplant. Die Vergleichsrechnungen mit anderen Programmen werden fortgesetzt. SSYST-2 wird weiterentwickelt.

4234 Bestimmung der Nachzerfallswärme von
235-U im Zeitbereich 10 - 1000 sek
(K. Baumung, INR)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Im Berichtszeitraum wurde die Meßapparatur fertiggestellt, die Temperaturfühler geeicht und mit dem Aufbau der Apparatur am FR2 begonnen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Nach der Sommerabschaltphase des FR2-Reaktors werden die Bestrahlungsexperimente aufgenommen.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei
Reaktorstörfällen

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

Durchgeführte Arbeiten

1. Einfluß von ZrO_2 -Oberflächenschichten auf das Dehnungsverhalten von Zry-4
Flachzugproben.

2. Kriechversuche unter konstanter Last an Zry-4 Flachzugproben.
3. Spannungs-Dehnungs-Versuche an Zry-4 Flachzugproben in Vakuum.
4. Analyse von Berstversuchen an Zry-4 Hüllrohren.
5. Zur Berechnung von Kriechversuchen aus dem $\dot{\epsilon} \sim \sigma^n$ -Ansatz.

Erzielte Ergebnisse

Zu 1: Es kann gezeigt werden, daß die Bruchdehnungen von im α -Bereich zugverformten Zry-4 Proben durch ZrO_2 -Oberflächenschichten erhöht werden. Auf gleiche Weise verhalten sich die in Berstversuchen gemessenen maximalen Umfangsdehnungen. Erste metallographische Untersuchungen über die Porenbildung (Cavitation) von im Zug beanspruchten Proben lassen erkennen, daß ZrO_2 -Schichten die Cavitation stark unterdrücken und auf diese Weise den Bruch verzögern. Die Erklärung dieses Phänomens beruht auf der von der Oxidschicht hervorgerufenen hydrostatischen Spannungskomponente. Diese kompensiert die für das Porenwachstum verantwortliche axiale Spannungskomponente.

Zu 2: Isotherme Vakuum-Zug-Kriechversuche wurden im Temperaturbereich $600 - 1100^\circ C$ durchgeführt. Der Anfangsspannungsbereich σ_{uni} (o) reichte von 5,0 bis 78 MPa entsprechend einem Innendruckbereich P_i von 0,8 bis 12,7 MPa für Rohrabmessungen "BIBLIS A". Zunächst werden Ergebnisse des Zeitstandverhaltens mit solchen aus Rohrberstversuchen verglichen. Die Übereinstimmung ist bei Umrechnung von der Tangential-Spannung σ_{hoop} auf die einachsige σ_{uni} durch

$$\sigma_{hoop} = \frac{2}{\sqrt{3}} \cdot \sigma_{uni}$$

für die Versuchstemperatur $800^\circ C$ sehr gut. Erkennlich ist:

- a) der Einfluß der Rekristallisation bei 600° und $700^\circ C$
 - und b) der Einfluß der Versuchsatmosphäre
- auf das Zeitstandverhalten. Ferner, dem Verlauf der Zeitstandkurven zufolge, dürfte sich eine schwächere Temperaturabhängigkeit des Spannungsexponenten n abzeichnen als jene bisher aus Geschwindigkeitswechselversuchen bekannte.

Zu 3: Im wesentlichen abgeschlossen wurden Versuche zum Spannungs-Dehnungs-Verhalten. Im Bericht erfolgt eine Gegenüberstellung von Ergebnissen aus "Luft"- und "Vakuum"-Versuchen. Diese bezieht sich in der Hauptsache auf die Abhängigkeit der Streckgrenze, des Spannungsexponenten und der Bruchdehnung von der Temperatur und Verformungsgeschwindigkeit.

Zu 4: Eine Analyse von Rohrberstversuchen wurde vorgenommen. Anhand der Darstellung: "Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur" wird der Einfluß der: Beheizungsart, Heizrate, Außenatmosphäre, Rohrfüllung, geometrischer Restriktionen und Voroxidation auf die Rohrverformung veranschaulicht. Die Aufweitung von Hüllrohren ist stark abhängig von der Versuchsführung (Beheizungsart: vergleichbar kleinere Verformungen an innenbeheizten Hüllrohren als an ohmisch beheizten). Es besteht ein deutlicher Einfluß der Heizrate (im α -Bereich größere Verformung für kleinere Heizrate) und der "Außen" und "Innen" - Atmosphäre (Oxidschicht- und Spaltprodukteinfluß). Allgemein gilt, daß die Berstdehnungen der Rohre im hohen α -Bereich ein Maximum und im $(\alpha + \beta)$ -Bereich ein Minimum aufweisen (hohe Heizraten). Die Umfangsdehnungen in diesem Bereich sind im allgemeinen weniger abhängig von der Versuchsführung.

Zu 5: Als Ansatz zur Berechnung von Kriechkurven dient die empirische Beziehung ("Zustandsgleichung")

$$\dot{\epsilon}_o = A(T) \sigma^n \Big|_{\phi_i} \quad (1)$$

Für den Kriechversuch unter konstanter Last ist die wahre Spannung σ abhängig von der Dehnung ϵ_o . Bei Wahrung der Volumenkonstanz und unter der Voraussetzung, daß jene "Strukturgrößen" ϕ_i , welche den Materialzustand charakterisieren (z.B. Korngröße, Phasenzusammensetzung etc.) während der Kriechverformung konstant bleiben, folgt durch Integration von Gleichung (1)

$$\epsilon = \frac{1 + \epsilon_{o,p}}{\left[1 - t/t_R\right]^{1/n-1}} - 1 \quad \text{für } t < t_R \quad (2)$$

wo $\epsilon_{o,p}$ die Dehnung im Primärbereich und t_R die Standzeit bedeuten.

Für $\epsilon_{o,p} \ll 1$ kann GL (1) auf die Form gebracht werden

$$\dot{\epsilon} = \frac{A(T) \sigma(o)^n}{\left[1 - \frac{t}{t_R}\right]^{1-1/n}} = \frac{\dot{\epsilon}(o)}{\left[1 - \frac{t}{t_R}\right]^{1-1/n}} \quad \text{für } t < t_R \quad (3)$$

Für praktische Rechnungen wird man auf das Experiment zurückgreifen und

und z.B. aus der Kriechkurve einen Maximalwert für $\dot{\epsilon}_0$ festlegen und mittels diesem aus GL (3) zusammen mit dem gemessenen t_R -Wert den Grenzwert $t_{MAX} < t_R$ berechnen. Dieser sollte den Bereich abstecken, in dem ein Vergleich zwischen Experiment und Rechnung im Rahmen der gegebenen Voraussetzungen überhaupt noch sinnvoll erscheint (Instabilität der Zugverformung).

Ausblick auf den geplanten Fortgang der Arbeiten

1. Untersuchung des Verformungsverhaltens von ZrO_2 -Schichten (Verbund-Werkstoff Zry-4/ ZrO_2).
2. Untersuchungen zur Bruchmorphologie.
3. Durchführung von isothermen Kriechversuchen
 - a) in oxidierender Atmosphäre
 - b) mit voroxidierten Proben im Vakuum
4. Durchführung von temperaturtransienten Zug-Kriechversuchen
5. Isotherme Rohrberstversuche an voroxidierten Prüflingen

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Auswertung der isothermen oxidationskinetischen Untersuchungen der Zircaloy/Wasserdampf-Hochtemperatur-Reaktion wurde durch Messung der Sauerstoffverteilung über den Rohrquerschnitt mit Hilfe von Härtemessungen und Mikrosondentechnik sowie begleitende, auf den physikalischen Eigenschaften und dem Zr-O-Zustandsdiagramm basierende rechnerische Abschätzungen vorgenommen. Die isotherm/isobaren Rohrinndruck-Zeitstandversuche wurden in Dampf bei $1000-1300^\circ$ fortgesetzt, die gemessenen mechanischen Kenngrößen wurden mit denen der Versuche in Argon über den gesamten Temperaturbereich $800-1300^\circ C$ verglichen. Auswertende Arbeiten wurden an in Argon und in Dampf verformten Kapselproben einerseits im Blick auf das Hochtemperatur-Verformungsverhalten mit und ohne oxidative Einwirkung, andererseits zur Bestimmung des Ausmaßes der kriechverformungsbedingt verstärkten Oxidation bei 900 und $950^\circ C$ vorgenommen. Neu aufgenommen wurden temperaturtransiente/isobare Rohrinndruck-Zeitstand- und Kriechversuche in Dampf an induktiv beheizten Rohrkapselproben.

Erzielte Ergebnisse

Der Vergleich der aus dem Konzentrationsprofil errechneten mit der gemessenen Sauerstoffaufnahme einer isothermen Zircaloy/Wasserdampf-Oxidationsreaktion ergab eine gute Übereinstimmung und sichert damit experimentell die bislang unter theoretischen Annahmen vorgenommene Aufstellung einer Verteilungsbilanz des Sauerstoffs über die Rohrwandung.

Die isotherm-isobaren Zeitstandversuche bei 1000 - 1300°C in Dampf zeigten auf, daß die Dampf-Oxidation mit fortschreitender Reaktionszeit auf das Rohrmaterial einen stark festigkeitserhöhenden und duktilitätsvermindernden Einfluß ausübt. Dieser Effekt machte sich umso stärker bemerkbar je höher die Reaktionstemperatur lag. Auch wurde ein für alle Versuche praktisch gleicher Schwellwert des Rohrrinnendrucks von 7-8 at bestimmt, unterhalb dessen in keinem Fall ein Bruch der Kapseln herbeigeführt werden konnte, da die mit steigender Temperatur abfallende Festigkeit des metallischen Werkstoffs durch die gegenläufige, verfestigende Wirkung der Oxidation überkompensiert wurde. Weit höhere Innendrucke waren erforderlich, um stark oxidierte Kapseln zu sprengen. - Das Band der gemessenen maximalen Umfangsdehnungen in Dampf setzte sich klar in den Bereich verminderter Dehnungswerte ab. Überschneidungen gab es für kurze Standzeiten bei 800 und 1000°C, phasenumwandlungsbedingt auch bei 900°C, wo die Dehnungen nach längeren Standzeiten in Dampf in etwa denen nach kürzeren Zeiten in Argon entsprechen.

Die rasterelektronenmikroskopische und metallographische Analyse von Kriechversuchen bei 900°C ergab das Auftreten erster Risse in den ZrO₂-Deckschichten ab etwa 3-4% Gesamtumfangsehnung. Die Rißdichte lag umso höher, je höher der wirksame Innendruck eingestellt wurde. Im Verlauf der Standzeit veränderte sich die Zahl der Risse nur geringfügig, die auftretenden Dehnungen wurden über ihre Verbreiterung herbeigeführt. Hohe Innendrucke führten zu vielen schmalen Rissen, niedrige Innendrucke begünstigten die Bildung weniger, breiter Risse in der ZrO₂-bedeckten Oberfläche.

Durch planimetrische Analyse der gedehnten, oxidierten Kapseloberflächen wurde das Ausmaß der verformungsbedingt verstärkten Oxidation gemessen. Es liegt für 900 und 950°C im gesamten zeitlichen Verlauf unter der isotherm und spannungslos bei 1000°C gemessenen Sauerstoffaufnahme.

Die ersten Versuche an der Anlage für temperaturtransienten/isobaren Zeitstand- und Kriechuntersuchungen unter induktiver Probenbeheizung waren isotherm/isobare Vergleichsversuche zu denjenigen, die in der Rohrofenanlage durchgeführt worden waren. Ihre gute Übereinstimmung mit den bisherigen Resultaten läßt einen erfolgreichen Einsatz zur Probenexposition unter LOCA-Bedingungen erhoffen.

Ausblick auf den geplanten Fortgang der Arbeiten

Dokumentation der kinetischen Ergebnisse. Rohrinneindruck-Zeitstand-, Kriech- und Oxidationsversuche in Dampf unter isothermen ($<800^{\circ}\text{C}$, voroxidiertes Material) und temperaturtransienten Bedingungen.

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

Durchgeführte Arbeiten

- Inbetriebnahme und Erproben einer neuen Versuchsanlage zur Durchführung von Berstexperimenten mit kurzen Zry-Hüllrohren unter Schutzgas (TUBA; Tube Burst Apparatus).
- Durchführung von temperatur- und drucktransienten Experimenten zur Spannungsrißkorrosion von Zry-4 Hüllrohren durch Jod.
- Untersuchung der Ober- und Bruchflächen von jodhaltigen Berstproben mit Hilfe eines Rasterelektronenmikroskopes (REM).
- Röntgenographische- und Mikrosondenuntersuchungen der bei den chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry auftretenden Reaktionsprodukten.
- Bestimmung der UO_2 /Zry-Wechselwirkungen und -Reaktionskinetik.

Erzielte Ergebnisse

- In der neuen Versuchsanlage (TUBA) wurden erste Berstexperimente mit

Zry-4-Hüllrohren bei kontinuierlicher Messung der Hüllmaterialtemperatur des Rohrrinnendruckes und der Hüllrohrverformung durchgeführt. Die Verformung der Hüllrohre wird mittels einer Hochgeschwindigkeitskamera erfaßt. Die Auswertung der Filme erfolgt anschließend durch einen elektronischen Bildanalysator; dabei wird die Zunahme der projizierten Rohr-Querschnittsfläche als Funktion der Zeit ermittelt.

- Die ersten Berstexperimente mit jodhaltigen Zry-Rohrproben zeigen eindeutig, daß es infolge Spannungsrißkorrosion zu einem spröden Versagen des Hüllmaterials kommen kann. Bei Bersttemperaturen $\leq 850^{\circ}\text{C}$ sind die max. Umfangsdehnungen und Bruchspannungen der jodhaltigen Proben deutlich kleiner als die der Ar-Vergleichsproben. Oberhalb 850°C geht der Einfluß von Jod auf die mechanischen Eigenschaften des Zry-4 deutlich zurück.
- Untersuchungen der Bruchflächen von geborstenen jodhaltigen Rohrproben mit einem Rasterelektronenmikroskop zeigen, daß es infolge des Jodangriffs zunächst zu einem interkristallinen Bruchbeginn an der Hüllrohrinnenoberfläche kommt, der in einen duktilen Restbruch übergeht. Jodfreie Berstproben lassen ausschließlich ein duktiles Versagen der Hüllrohre erkennen.
- Röntgendiffraktometeruntersuchungen der UO_2/Zry -Wechselwirkungszonen ergeben die Bildung von $\alpha\text{-Zr(O)}$, $\alpha\text{-Uran}$ und einer (U,Zr)-Legierung, die z.T. noch etwas UO_2 in fein verteilter Form enthält.
- Simulierte Spaltprodukte (Cs,J,Te) haben offenbar keinen Einfluß auf die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry. Te wird z.T. gemeinsam mit Cs an der Reaktionsfront im Zry mit der Mikrosonde nachgewiesen. Dünne ZrO_2 -Schichten auf der Hüllrohr-Innenoberfläche können die UO_2/Zry -Reaktionen bis 1000°C verhindern. Bei höheren Temperaturen besitzt die ZrO_2 -Schicht keine Schutzwirkung mehr. Das ZrO_2 löst sich unter Reaktionen mit dem Zry auf, und es entsteht $\alpha\text{-Zr(O)}$.
- Bei den UO_2/Zry -Wechselwirkungen unter PCM-Bedingungen erfolgt das Wachstum der verschiedenen Reaktionszonen zwischen 1000 und 1400°C nach einem parabolischen Zeitgesetz. Die Diffusion des Sauerstoffs in das Zry ist der geschwindigkeitsbestimmende Schritt der Reaktion.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

- Systematische Untersuchung des Verformungsverhaltens von kurzen UO_2 -gefüllten Zry-Rohrproben unter isothermen, isobaren Versuchsbedingungen.
- Isotherme und transiente Experimente zur Spannungsrißkorrosion (SRK) von Zry-Hüllrohren durch Jod.
- Einfluß des UO_2 -Sauerstoffpotentials und dünner ZrO_2 -Schichten auf das SRK-Verhalten der Zry-Hüllrohre.
- REM-Untersuchungen der geborstenen SRK-Proben; Bestimmung der Versagensmechanismen der Hüllrohre.
- Bestimmung der UO_2 /Zry-Reaktionskinetik. Einfluß von simulierten Spaltprodukten auf die Reaktionskinetik.

4235.4 Bersttests mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren unter kombinierter mechanisch-chemischer Beanspruchung (FABIOLA - Programm)⁺
(S. Leistikow, IMF II; L. Schmidt, IMF III)

Durchgeführte Arbeiten, erzielte Ergebnisse

Parallel zu den Einzeleffekt-Untersuchungen an Zircaloy-Hüllrohren ist vorgesehen, Berstversuche unter LOCA-typischen Temperatur- und Drucktransienten sowie überlagerter Kühlmittel- und Brennstoff-/Spaltstoff-Wechselwirkung durchzuführen. Dazu sollen in einem Versuchsstand elektrisch beheizte, innendruckbeaufschlagte Brennstabsimulatoren in Dampfumgebung getestet werden. Die wichtigsten Informationen aus den Experimenten sind die Umfangsdehnung als Funktion der Hüllrohrtemperatur und der Zeit, die Standzeit bis zum Bersten und die Ermittlung des äußeren und inneren Oxidangriffes. Bisher wurde das Konzept der Versuchseinrichtung erarbeitet und die Konstruktion der Teststrecke im wesentlichen abgeschlossen.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

- Beschaffung der Hauptkomponenten für den Versuchsstand
- Herstellung der Versuchseinrichtung
- weitere Vorversuche an Teststreckenkomponenten.

⁺) FABIOLA = facility for burst testing under fuel interaction and steam oxidation during a LOCA

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

Durchgeführte Arbeiten

Dieses Experiment wird von nun an COSIMA (=controlled single rod blowdown simulation experiment Karlsruhe) genannt.

Die elektronische Meßwertverarbeitung und die Steuerung des Blowdown-Ablaufes durch den Rechner mit Hilfe des CALAS-Systems wurden fertiggestellt und getestet. Ein flexibles und direkt vom Versuchsstand aus in den Rechner einbaubares Steuerprogramm wurde erstellt, ebenso ein Sofort-Auswerteprogramm, mit dem unmittelbar nach Versuchsende ein erster Überblick über den Versuchsablauf gewonnen werden kann.

Ein erster voll rechnergesteuerter Blowdown-Versuch wurde erfolgreich durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

Eine vorläufige Auswertung der Meßdaten ergab, daß die eingesetzte Versuchsinstrumentierung erwartungsgemäß arbeitet. Dies gilt auch für die Neuentwicklungen true-mass-flow-meter (transiente Zweiphasenmassenströmmessung) und die pyrometrische Hüllrohrtemperaturmesseinrichtung.

Die Versuchseinrichtung steht nunmehr zur Aufnahme des eigentlichen Experimentierbetriebes zur Verfügung.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Die ersten etwa 20 durchzuführenden Experimente mit dem Simulationsbrennstab dienen dazu, die Steuerprogramme zu verbessern und Informationen zur sinnvollen Festlegung des Versuchsprogrammes für die eigentlichen Hauptversuche zu erhalten.

Daneben soll das true-mass-flow-meter noch weiter verbessert werden. Das eigentliche Auswertungsrechenprogramm kann nun mit Hilfe konsistenter Meßdaten

getestet und weiter verbessert werden. Der indirekt beheizte Versuchsstab zur Messung von Wärmeübergangszahlen in der Teststrecke ist fertigzustellen und einzusetzen.

- 4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles -
In-pile-Versuche mit Einzelstäben im DK -Loop des FR2
(E. Karb, B. Räßle, RBT/IT)

Durchgeführte Arbeiten

Das Versuchsprogramm mit sechs nuklearen Prüflingen der Versuchsreihe B (nicht vorbestrahlte Prüflinge) wurde planmäßig durchgeführt. Bei drei Versuchen war der inzwischen eingebaute Dampfbypaß zur Erprobung in Betrieb.

Die Konstruktion der Handlingeinrichtung für die Montage vorbestrahlter Prüflinge wurde beendet. Die Anlagenteile sind in der Fertigung, teilweise bereits in der Erprobung. Ein Handlingstraining wurde durchgeführt.

Die Vorbestrahlung von drei Einsätzen mit je sechs Stäben wurde fortgeführt.

Ein modifizierter Brennstabsimulator (BSS 07) für weitere Untersuchungen zu den Temperaturmessungen und zur Erprobung der beulfähigen BSS-Version wurde montiert.

Die Vergleichsrechnungen zu den Versuchen, die im IKE durchgeführt werden, wurden mit den Daten der BSS 05-Versuchsreihe weitergeführt.

Die Unterlagen der Hüllrohrvermessung aller Nuklearstäbe wurden ausgewertet und die Ergebnisse in einem Bericht zusammengefaßt.

Die Versuchsdaten und die Ergebnisse der Nachuntersuchungen - ohne metallurgische Auswertung - des Stabes A 1.1 wurden zusammenfassend dokumentiert.

Erzielte Ergebnisse

Fünf Versuche der B-Reihe erbrachten Ergebnisse hinsichtlich der Versagensparameter Berstdruck- und Bersttemperatur, die im Streuband der Ergebnisse

von Out-of-pile-Versuchen anderer Experimentatoren liegen. Ein Stab blieb wegen fehlenden Innendrucks während des Versuchs intakt.

Der durch den momentanen Zustand des Dampfbypasses bestimmte Dampfstrom zum Prüfling blieb nicht ohne Einfluß auf den transienten Temperaturanstieg an der Stabhülle.

Die Koppel- und Schweißvorrichtung für die Montage und Instrumentierung vorbestrahlter Prüflinge wurde fertiggestellt, erprobt und ist einsatzbereit.

Der Vorbestrahlungseinsatz für den Abbrand 20.000 MWd/t_u ist in Nähe seines Zielabbrandes angelangt.

Die angestellten Vergleiche zwischen Rechen- und Versuchstemperaturen des BSS 05 zeigen erneut einen steileren Temperaturanstieg beim Versuch in den ersten 12 - 15 Sekunden. Die Übereinstimmung im übrigen Kurvenverlauf ist gut. Die Abweichung im Temperaturbereich um 800°C beträgt weniger als 5 %. Die Darstellung der Aufheizgradienten läßt die c_p -Änderung von Zry im Bereich der Phasenumwandlung gut erkennen. Bei höherer Leistung tritt der Effekt verstärkt auf.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Zunächst wird mit BSS 07 eine Versuchsreihe zur Erprobung des beulfähigen Konzeptes, einer neuen Dampfischerkonstruktion und zur Einengung des Temperaturmeßfehlers gefahren. Danach wird die Fertigung einer Serie von beulfähigen Brennstabsimulatoren aufgenommen.

Die Fertigstellung der Handlingskomponenten für vorbestrahlte Prüflinge und deren restliche Erprobung sowie die Montage von 4 bis 5 Prüflingen der Abbrandstufe 20.000 MWd/t_u (F-Reihe) wird vorrangig betrieben. Unmittelbar nach der Montage erfolgen die Versuche im FR2.

Die Bypass-Strecke wird kalibriert und beim BSS 07-Versuch erneut getestet.

Die Einflüsse des Bypass-Dampfstromes auf das Aufheizverhalten der Stabhülle werden vom IKE theoretisch untersucht, die Berechnungen zu den elektrisch beheizten Stäben werden abgeschlossen.

- 4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase von Kühlmittelverluststörfällen und zur Wechselwirkung zwischen aufblähender Zircaloy-Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung (REBEKA-Programm)+)
(K. Wiehr, IRB)

Durchgeführte Arbeiten und wichtige Ergebnisse

- Charakterisierung von 13 Brennstabsimulatoren für Bündelexperiment mittels verbesserten Photoscannings (Temperaturverteilung).
- Experimentelle Überprüfung des theoretischen Modells zum Kapillar-Druckmeßsystem.
- Versuche zu Einzeleffekten an verkürzten Brennstabsimulatoren
 - . . Nicht adiabate und adiabate Versuchsführung
 - . . Indirekte Beheizung unverspannter hohler Hüllrohrabschnitte.
- Bündelaufheizexperimente mit Fluten zur Funktionsprüfung.
- Berstexperiment an einem Brennstabsimulator voller Länge in quasi-adiabater Umgebung bei Dampfströmung.
- Funktionsprüfung des Quotientenpyrometers.

Erzielte Ergebnisse

Zur Vermessung der Stäbe hinsichtlich Temperaturverteilung wurde die Photoscanning-Methode durch Ermittlung von Korrekturisoothermen verbessert. Für Heizstäbe von dreizehn Brennstabsimulatoren voller Länge wurden Photoscannings erstellt.

Für das Kapillar-DMS-Druckmeßsystem wurde eine Beziehung ermittelt, die es erlaubt, unter Berücksichtigung der Temperaturverteilung über die Kapillare den tatsächlichen Druckverlauf an der Stelle der erwarteten Beule zu errechnen. Eine Reihe von Experimenten bei verschiedenen Temperaturniveaus zeigte gute Übereinstimmung mit den theoretischen Ergebnissen.

+)
REBEKA = reaktortypisches Bündelexperiment Karlsruhe

Bei Hüllrohrberstexperimenten an verkürzten Brennstabsimulatoren in Luft wurden Vergleichsexperimente zwischen adiabater und nicht adiabater Versuchsführung durchgeführt, wobei das Umgebungsrohr nur im Falle adiabater Versuchsführung direkt beheizt wurde. Beim adiabaten Versuch ergaben sich geringfügig höhere Bersttemperaturen, geringfügig niedrigere Berstdrücke, jedoch merklich höhere Berstumfangsdehnungen infolge wesentlich kleinerer azimuthaler Temperaturunterschiede.

Drei Bündelaufheizexperimente mit anschließendem Fluten wurden durchgeführt. Sie dienten der Inbetriebnahme und Überprüfung des Flutkreislaufs für Bündelversuche sowie der Überprüfung des verbesserten Dienstprogramms für die Display- und On-line-Darstellung.

Ein erster Integraltest mit einem Brennstabsimulator voller Länge in nahezu adiabater Dampfatmosfera zeigte folgendes Ergebnis:

- Berstumfangsdehnung von 51 %
- Umfangsdehnungen von mehr als 33 % auf Längen von etwa drei Stabdurchmessern begrenzt.
- Bersttemperatur und Berstdruck ähnlich wie bei den verkürzten Brennstabsimulatoren.
- Verformungsbild ebenfalls ähnlich wie bei den verkürzten Brennstabsimulatoren, trotz geringer azimuthaler Temperaturunterschiede.
- praktisch keine Verformungen an den Stellen der Abstandshalter.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

- Weitere Einzelstabversuche an Brennstabsimulatoren voller Länge
- Bündelversuche in Dampf und mit Fluten
- Weitere Versuche zu Einzeleffekten beim Aufblähvorgang an verkürzten Brennstabsimulatoren
- Fortsetzung der Funktionsprüfung und Eichung des Quotientenpyrometers
- Begleitende theoretische Arbeiten

4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles (FEBA-Programm)^{+))}
(S. Malang, IRB)

Durchgeführte Arbeiten

Die Versuche an der 5-Stab-Reihe mit Kühlkanalblockaden in Form von Lochplatten, welche alle Kühlkanäle gleichmäßig versperren, wurden abgeschlossen. Zur Untersuchung der Umströmung von Teilkanalblockaden wurden einige Versuche durchgeführt, bei denen alle inneren Kanäle voll blockiert und nur die beiden Randkanäle offen waren.

Folgende Parameter wurden bei der Versuchsdurchführung 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),
- die Kühlkanalblockade; Lochplatte 62 % und 90 % blockierend und Vollblockade mit seitlicher Umströmung, 90 % blockierend.

Die wesentlichen Versuche wurden zur Erstellung einer Übersicht ausgewertet. Es zeigt sich, daß unter den vorliegenden Versuchsrandbedingungen bei allen Blockadeformen und -größen im gesamten untersuchten Parameterbereich die Kühlung hinter der Blockade immer besser war als im ungestörten Bündel. Dies gilt auch für den zentralen Stab in einer Vollblockade mit seitlicher Umströmung.

Ein Vergleich der mit Hilfe der Brennstabsimulatoren gewonnenen Daten mit einem rechnerisch den gleichen Kühlungsbedingungen unterworfenen DWR-Brennstab zeigt, daß die Simulation über die gesamte Flutphase gut gelingt.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Die Auswertung der bisher durchgeführten Versuche wird parallel mit der Vorbereitung von Versuchen mit einem 5 x 5-Stab-Bündel betrieben.

^{+))} FEBA " Flutexperimente mit blockierten Anordnungen

Die Ziele der Untersuchungen an diesem 25-Stab-Bündel sind

- Verkleinerung des Wandeinflusses,
- Ermittlung der Wärmeübergangsverhältnisse bei symmetrischer und asymmetrischer Umströmung von Blockaden in teilweise blockierten Bündeln.

4240 Coreschmelzen von LWR

4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO_2 -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung

Durchgeführte Arbeiten

Im Berichtszeitraum wurden Experimente an Bündeln aus 7 Brennstabsimulatoren und 36 Reflektorstäben in nichtoxidierender (He) und oxidierender (He/20% O_2) Atmosphäre durchgeführt. Das Angebot an Sauerstoff war so bemessen, daß weniger Sauerstoff zur Verfügung stand als zur vollen Oxidation des ganzen Stabes notwendig war.

Es sollte damit Dampfangel-Situation im Core simuliert werden.

In oxidierender Atmosphäre enthielt ein Teil der Bündel auch Abstandshalter. Der Zentralstab wurde getrennt von den restlichen Brennstabsimulatoren geheizt oder aus Vollpellets aufgebaut.

Erzielte Ergebnisse

Die Bündelversuche in He sollten im wesentlichen Aussagen über das Erstarrungsverhalten der Schmelze zwischen den Stäben bringen. Die Experimente zeigen, daß die austretende Schmelze viel eher dazu neigt, zwischen den Stäben zu erstarrten, als hindurchzufallen. Erstarrte Schmelztropfen sind in allen Höhenlagen des Bündels zu finden.

Bei der Bildung größerer Schmelzmengen erstarrt die Schmelze auf der unteren Elektrode als Klumpen, dessen vertikale Abmessungen größer als die horizontalen sind. Die zwischen den Randstäben des heißen Kerns erstarrende Schmelze bildet die "Wände" dieses Schmelzklumpens.

Auf der anderen Seite dringt die Schmelze relativ weit in Löcher der unteren wassergekühlten Elektroden ein.

Wir versuchen, diese Ergebnisse auf das Verhalten im Kern zu übertragen:

Es wäre denkbar, daß

1. über dem Restwasser eines anfänglich voll gefluteten Kerns sich eine feste Bodenschicht ausbildet,
2. in einem trockenen Kern das Schmelzgut durch die Bodenplatte, die sich mit aufheizt, durchfließen kann.

Die Bündelversuche in oxidierendem Medium mit "Mangel" an Sauerstoff zeigen, daß eine starke axiale Abhängigkeit der Oxidation vorhanden ist. Beim Emporsteigen des oxidierenden Mediums wird der Sauerstoff verbraucht. Die Oxidation erfolgt von unten beginnend nur über einen Bereich, der dem Gesamtangebot an Sauerstoff entspricht.

So wurde bei einem Bündelversuch nur die untere Hälfte der Hülle des Zentralstabes soweit durchoxidiert, daß sie beim Überschreiten der Schmelztemperatur des Zircalloys nicht abschmolz. Für dieses Experiment hatte auch nur die Hälfte des zur vollen Oxidation notwendigen Sauerstoffes zur Verfügung gestanden.

Zusätzliche Sauerstoffzufuhr am unteren Ende auf einer Seite des Zentralstabes brachte eine deutliche Erhöhung des oxidierten Bereichs auf nur dieser Seite. Über sehr kurze Abstände können sich also unterschiedliche Oxidschichten ausbilden, wenn der Sauerstoffgehalt der vorbeiströmenden Atmosphäre entsprechend variiert.

Auch bei diesen Versuchen mit geringem Sauerstoffangebot waren die zwischen Abstandshalter und Hülle entstandenen Oxidschichten noch ausreichend, um eine Zerstörung der Hülle durch den Abstandshalter zu verhindern.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Im folgenden Berichtszeitraum werden die Bündelversuche in oxidierender Atmosphäre mit Mangel an Sauerstoff in Dampf bis hin zum Dampfüberschuß fortgesetzt. Parallel hierzu werden begleitende Experimente an Stäben mit Vollpellets im Strahlungsofen durchgeführt. Mit den Experimenten zum Einfluß der Absorberstäbe soll begonnen werden.

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von
Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen

(H. Albrecht, D. Perinic)

1. Durchgeführte Arbeiten

Die Freisetzungsversuche mit inaktivem Schmelzproben aus 30 g Corium wurden abgeschlossen. Mit dem Einbau eines Ge(Li)-Detektors in die Filterstrecke und einer sehr sorgfältigen Abschirmung gegen das HF-Feld des Generators wurde die Voraussetzung für eine on-line Messung von freigesetzten radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten geschaffen. Einige Schmelzversuche mit aktivierten Stahl- und Zircaloyproben dienen zur Erprobung dieser Meßtechnik.

Zur off-line Messung der nach dem Versuch im Schmelztiegel verbleibenden Aktivität, sowie der Aerosolablagerungen in der Transportstrecke und auf den Filtern wurde eine zusätzliche Meßkammer mit einem Ge(Li)-Detektor eingerichtet.

Der Probetrieb der Anlage zur Herstellung schwach aktiver Fissium-Pellets ist nahezu abgeschlossen. Eine erste Charge von 20 Fissium-Pellets, die Nuklide der Elemente J, Cs, Te, Cd, Mo, Ag, Se und Sb enthielt, wurde auf ihre Homogenität untersucht. Außerdem wurden bereits zwei Freisetzungsversuche unter Luft mit jeweils zwei Fissium Pellets à 5 g und den zum Corium-E gehörenden Stahl- und Zircaloy-Anteilen durchgeführt.

2. Erzielte Ergebnisse

Es zeigte sich, daß die Freisetzung der Hauptkomponenten des Coriums in folgender Weise von den einzelnen Parametern abhängt:

Temperatur: Zunahme um ca. 2 Größenordnungen im Intervall 2100°C...2900°C

Atmosphäre: Für Fe, Cr, Ni, Mn ähnliche Freisetzung in Argon und Luft, unter Wasserdampf jedoch fast eine Größenordnung geringer; U zeigt unter Luft eine wesentlich höhere Flüchtigkeit als unter Wasserdampf und Argon.

Druck: starker Einfluß auf die Siedetemperatur der metallischen Coriumkomponenten und damit auf die Freisetzung. Nach Überschreiten des Siedepunktes (2600°C bei 0,8 bar, 2800°C bei 2,2 bar unter Argon) starke Zunahme der Freisetzung.

Die Strömungsgeschwindigkeit beeinflusst das Transportverhalten der freigesetzten Produkte, insbesondere der leichter flüchtigen Stoffe wie Mn, Sb und Sn. Bei 10 l/min Durchsatz und gleicher Gesamt-Freisetzung gelangt ein 3-10fach höherer Anteil dieser Produkte bis auf die Meßfilter als bei 1 l/min.

Die Versuche mit aktiviertem Stahl und Zircaloy führten im wesentlichen zu einer Bestätigung der früher mittels Aktivierungsanalyse (AA) erhaltenen Freisetzungswerte. Für Zr ergaben sich jedoch niedrigere Werte, was darauf zurückzuführen ist, daß bei der AA die Zirkon-Bestimmung bei gleichzeitig vorhandenem Uran durch das entstehende Spalt-Zirkon verfälscht wird.

Für die relative Freisetzung von Co ergaben sich etwa 40 % niedrigere Werte als für Fe.

Mit Fissium wurden 2 Versuche unter Luft (1,5 bar) durchgeführt. Die nachfolgende Tabelle enthält für 7 Spaltprodukt-Elemente die Ergebnisse für die totale relative Freisetzung (Δ Summe der an den Rohrwänden der Transportstrecke und auf den Meßfiltern gefundenen Freisetzungsergebnisse, in % vom Ausgangsinventar):

Tmax($^{\circ}\text{C}$)	Mo	Sb	Se	Cs	Ag	Cd	Te
2000	1.96	2.23	25.42	27.57	28.7	35.25	42.09
2160	2.53	4.10	28.54	26.14	34.4	33.86	39.88

Diese Werte sind als vorläufige Ergebnisse aufzufassen, da eine Gesamtbilanz, die auch die im Schmelzgut verbliebenen Spaltprodukte berücksichtigt, noch nicht aufgestellt wurde.

3. Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Als wichtigste Arbeiten für die nächsten Monate sind vorgesehen:

- Umrüstung der Schmelzanlage SASCHA für den Betrieb mit einem neuen Generator, der die Herstellung von Corium-Schmelzen im kg-Bereich

erlaubt; hierfür sind u.a. auch eine neue HF-Durchführung und ein Heiz/Kühlsystem mit erhöhter Leistung für den Induktor erforderlich

- Anpassung der Transport- und Filterstrecke an die zu erwartenden höheren Aerosolströme im Verlauf der Freisetzungsversuche
- Untersuchungen über die physikalischen und chemischen Eigenschaften von Fissium verschiedener Zusammensetzung.

4244 Konstitution und Reaktionsverhalten von LWR-Materialien beim Coreschmelzen

Durchgeführte Arbeiten

1. Das Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in der Coreschmelze unter leicht und stark oxidierenden Bedingungen wurde untersucht.
2. Die Schmelzversuche an Corium/Beton-Proben in inerter Atmosphäre wurden fortgeführt. Es wurde nunmehr auch Beton mit Karbonatzuschlag verwendet.

Erzielte Ergebnisse

1. Das Reaktionsverhalten der Spaltprodukte läßt sich mit der unterschiedlichen Stabilität der Oxide erklären. Während die Seltenen Erden und Zirkon zu Anfang oxidiert werden, sind Mo und Tc erst zu einem späteren Zeitpunkt in der Oxidschmelze anzutreffen (gemeinsam mit den Stahloxiden). Die Platinmetalle bleiben metallisch.
2. Auch bei Verwendung von karbonathaltigem Beton erfolgt eine schnelle Durchmischung der Betonschmelze mit dem oxidischen Teil der Kernschmelze. Es ergeben sich folgende Unterschiede je nach Betonzuschlag:
 - a) Silikat: Die Oxidschmelze erstarrt auch bei langsamer Abkühlung ($1^{\circ}\text{C}/\text{min}$) als Glas.
 - b) Kalk: Die Oxidschmelze erstarrt unter Bildung mehrerer kristalliner Phasen (überwiegend $\text{Ca}_2(\text{U,Zr})\text{O}_4$). Die Erstarrungstemperaturen der Oxidschmelze liegen höher als für entsprechende Proben mit Silikatzuschlag.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Experimentelle Überprüfung der Wechselwirkungen in komplexen Systemen
Corium+Beton+Spaltprodukte (Reaktionen und Abdampfverhalten).

4245 Technologie und Stoffdaten zum Coreschmelzen
(G. Ondracek, S. Nazaré, IMF I)

Durchgeführte Arbeiten

Herstellung von Corium EX1 aus Induktionsschmelzen im Kilogrammereich

Chemische und gefügeanalytische Qualitätskontrolle des Schmelzgutes

Pulverisierung des Schmelzgutes durch Mahlen; Homogenisierung der Pulver
durch Mischen, Verdichten und Formgebung der Pulver durch Drucksintern
(1275 K; 10 min; 100 min; 400 torr Argon; 35 MN/cm²). Zusammenfassende
Darstellung der Werkstoffproblematik, zum Zustand, Reaktionsverhalten
sowie zu den Eigenschaften von LWR-Materialien beim Coreschmelzen.

Experimentelle Bestimmung des Beton-Schmelzbereichs.

Erzielte Ergebnisse

Ein Lagerbestand von erschmolzenem Corium EX1 (~2 kg) wurde geschaffen. Die
chemische und gefügeanalytische Qualitätskontrolle ergab reproduzierbare
stoffliche Zusammensetzung des Materials. Die metallische Schmelzphase ist
im festen Zustand mehrphasig, die Phasenverteilung im Gefüge ist heterogen.
Die oxidische Phase tritt infolge Tiegelreaktionen und Abdampfverlusten
praktisch nicht in Erscheinung.

Die pulvertechnologische Behandlung der Pulvergemische (Mahlen und Mischen)
beseitigte die heterogene Phasenverteilung. Durch Drucksintern konnten kom-
pakte, dichte, makroskopische homogene Corium EX1 Proben hergestellt werden.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Die Herstellung von Corium EX1-Schmelzgut ist mit Schaffung des Lagerbe-
standes abgeschlossen.

Die pulvertechnologische Probenherstellung wird fortgesetzt.

Die hergestellten Proben werden zu Messungen der Oberflächenspannung und Dichte von Coriumschmelzen eingesetzt.

4246 Experimente zur Simulation großer Kernschmelzen (Vorprojekt)
(D. Perinić, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT/IT)

Durchgeführte Arbeiten

Für die Auslegung und Entwicklung der Schmelzanlage wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

- Kalkulation der Kosten der Schmelzanlage
- Bestimmung des Raumbedarfs
- Berechnung der Druckwellen bei Auftreten einer Wasserstoff bzw. Wasserdampfexplosion im Sicherheitsbehälter (extern)
- Berechnung der Schmelzfrontausbreitung in Betontiegeln

Weiterhin wurden Vorversuche zur Untersuchung der Phänomenologie der Kernschmelze/Betonreaktion und zur Entwicklung der Schmelztechnologie und der Meßtechnik durchgeführt und ausgewertet:

- Coriumschmelzen (< 0,5 kg)
- Graugußschmelzen (< 160 kg)
- Thermitschmelzen (< 250 kg)

Erzielte Ergebnisse

- Trennung der Metall- von der Oxidschmelze. Metallschmelze befindet sich unterhalb der Oxidschmelze. Wasserstoff-Stichflammen. Bei flachen Schmelzen toroidale Zirkulationszelle in der Mitte abwärts. Oxidschmelze bildet zähflüssige Blasen.
- Bei den 250 kg Thermitschmelzversuchen in Betontiegeln wurde eine starke Abhängigkeit der Schmelzfrontgeschwindigkeit von der Schmelzbadtemperatur festgestellt. Bei Schmelzbadtemperaturen von 3000°C bis 1500°C reichten die axialen Aufschmelzgeschwindigkeiten von 40 mm/min. bis 5 mm/min, was im

Temperaturbereich bis etwa 1800°C mit früher gemessenen Werten gut übereinstimmt. Die radialen Aufschmelzgeschwindigkeiten waren stets geringer.

- Die Schmelzkaverne hat eine Birnenform.
- An die Schmelzfront schließt eine dehydrierte Betonschicht von max. 45mm, an diese eine teilweise dehydrierte Schicht von max. 55mm an.
- Durch Verwendung einer Glasfaserbewehrung und einer Zweischalenbauweise der Betontiegel konnte eine betriebssichere Tiegelanordnung entwickelt werden.
- Erprobte Meß- und Überwachungstechnik:
In Beton eingebettete Thermoelemente, Zweifarben-Pyrometer, Eintauchthermometer, Körperschallmikrophon, Gasprobenahme, Dampfdetektor, Fernsehkamera, fernbedienbare Kinokamera.

4247 Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton
(M. Reimann, IRB)

Druchgeführte Arbeiten

Es wurde ein Modell zur thermischen Wechselwirkung einer Kernschmelze mit einer horizontalen Betonschicht erstellt. Dabei sind die folgenden Annahmen zugrunde gelegt: Der aus dem Beton in großen Volumenströmen freigesetzte Wasserdampf bildet zwischen Schmelze und Beton einen instabilen Gasfilm, von dem sich Gasblasen ablösen. Durch den Gasfilm wird Wärme durch Leitung und Strahlung übertragen. Im Beton bildet sich nach kurzer Zeit ein quasi-stationäres Temperaturprofil aus, wobei die Wasserfreisetzung bei verschiedenen Temperaturen stattfindet. Durch die Kopplung zwischen Gasfilmdicke und freigesetztem Wasserdampfstrom aus dem Beton läßt sich der abwärts gerichtete Wärmestrom als Funktion der Schmelztemperatur iterativ bestimmen. Die Modellvorstellungen wurden an einfachen Modellexperimenten überprüft.

Erzielte Ergebnisse

Berechnet wurden Abschmelzraten von silikatischem Beton unter flüssigem Stahl

bei vorgegebener Schmelztemperatur zwischen 3500 K bis 1750 K. Die Rechnungen stimmen mit den von Sandia vorliegenden Experimenten überein.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Das Modell ist zur Abgrenzung des Gültigkeitsbereichs zu überprüfen. Es wird erweitert zur Beschreibung der Wechselwirkung an geneigten Wänden.

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN
 SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

4310 Untersuchung der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktionsvor-
 gänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen

4311 Untersuchungen des zeitabhängigen Verhaltens von freigesetzten
 Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments
 (H. Bunz, G. Haury, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

Durchgeführte Arbeiten

Die Entwicklung des NAUA-Modells zur Beschreibung des Aerosolverhaltens und die Spezifikation und Konstruktion des Versuchsstandes wurden im wesentlichen abgeschlossen.

Erzielte Ergebnisse

Die Arbeiten am NAUA-Modell sind soweit fortgeschritten, daß eine weitere Verbesserung nur noch anhand der experimentellen Ergebnisse möglich ist. Vergleichsrechnungen mit den verschiedenen Modellversionen zeigen deutlich, daß die Rechenergebnisse nur wenig von den zuletzt eingeführten Temperaturfunktionen abhängen, sondern daß die größte Unsicherheit nach wie vor in der Unkenntnis der mikroskopischen Aerosolprozesse liegt.

Vergleichsrechnungen wurden auch mit dem in der Reaktorsicherheitsstudie der USNRC verwendeten CORRAL-Code durchgeführt. Bezüglich des Aerosolabbaus ist das NAUA-Modell dem CORRAL-Code überlegen, da es das Aerosolverhalten per definitionem vorrangig berechnet, während CORRAL dafür Eingabeparameter verlangt, die letztenendes nicht verfügbar sind. Die Unterschiede in den Rechen-

ergebnissen sind entsprechend groß; dieses Problem wird weiter verfolgt.

Die Fertigung des Versuchsstandes ist nahezu abgeschlossen; die Auslieferung erfolgt im September. Die Instrumentierung für die Experimente zur Wasserdampfkondensation am Aerosol wurde fertiggestellt. Neben der optischen Tröpfchenwachstumsmessung besteht das Hauptproblem darin, mit ausreichender Auflösung die Temperatur und den Wasserdampfgehalt im Verlauf des Kondensationsprozesses zu messen. Die Sonden sind fertiggestellt und kalibriert. Das schnelle Datenerfassungssystem wurde installiert und erprobt. Ebenfalls abgeschlossen wurden die Vorversuche zur Erzeugung von UO_2 -Aerosol für die Experimente.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Versuche zur experimentellen Bestimmung von fehlenden Parametern werden begonnen. Im Vordergrund stehen dabei zunächst Kondensationsexperimente.

4320 Theoretische und experimentelle Untersuchung der atmosphärischen Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole und 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)

Durchgeführte Arbeiten

Für den Nahbereich (bis ca. 15 km) wurden 5 Ausbreitungsversuche mit chemischen Tracern durchgeführt. Die Tracer wurden jeweils simultan in 60 m und 100 m Höhe am meteorologischen Turm emittiert. Drei der Versuche fanden am späten Abend bei teilweise stabiler Schichtung der bodennahen Luftschicht statt.

Zur Untersuchung der Transport- und Ausbreitungsvorgänge im Mesoscale (bis über 15 km Entfernung) wurden Tetroons aufgelassen und mit Hilfe von Radar verfolgt. Zwei solcher Ballonflüge wurden am Standort Philippsburg, zwei weitere in der Nähe von Bremen durchgeführt. Am letzteren Standort wurde auch die Ortung eines Transponders mit Hilfe eines Radars getestet. Der Transponder wurde jedoch vorerst von einem Flugzeug transportiert, da

er für den Tetroon noch zu schwer ist. Die Flüge zeigten die Beschränkungen der Reichweite des Radars bei Betrieb ohne Transponder, sowie die mögliche Verbesserung durch Einsatz eines Transponders.

Ein 15 m hoher meteorologischer Meßmast wird in der Nähe des KFZK auf freiem Wiesengelände betrieben, um die dort gemessenen, für die Turbulenz charakteristischen Parameter mit den im KFZK (Waldgelände) gemessenen vergleichen zu können.

Ein Vergleich der Meßwerte der Vektorfahnen bei der Kategorie D (neutral) zeigte eine wesentlich geringere Turbulenz über Wiesen als über Waldgelände.

Erzielte Ergebnisse

Die Auswertung der Versuche mit 60 m Emissionshöhe erlaubte es, eine vorläufige Kurvenschar der Parameter σ_y und σ_z auch für diese Emissionshöhe zusammenzustellen. Diese ergänzt die inzwischen weitgehend abgesicherten Ergebnisse mit der Emissionshöhe von 100 m. Weitere Versuche mit 60 m Emissionshöhe sind jedoch zur Bestätigung der bisher gefundenen Ergebnisse notwendig.

Das Verfahren zur Transformation der experimentell für die Rauigkeitsstufe III ermittelten Ausbreitungsparameter auf die Stufen geringerer Rauigkeit (Rauigkeitsstufen II und I) wurde so verbessert, daß der Einfluß der Oberflächenstruktur auf σ_y , der bei Waldgelände (Stufe III) in der Nähe der Quelle stark ausgeprägt ist, gesondert erfaßt wird.

Die Niederschlagsmessungen wurden hinsichtlich Intensität und Andauer ausgewertet. Weiter wurde ein Verfahren zur Beurteilung der Übertragbarkeit eines Kategorienbestimmungsschemas auf andere Standorte entwickelt.

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 1978 weitergeführt. Tetroonflüge werden in der Oberrheinebene durchgeführt, jedoch in größerem Rahmen erst nach Entwicklung eines leichten kleinen Transponders.

4320 - TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen

(H. Schultz, E. Voelz, C.D. Wüneke, Arbeitsgr. f. Technischen Strahlenschutz der T.U. Hannover)

Durchgeführte Arbeiten

Es ist experimentell und theoretisch geprüft worden, inwiefern Rechenparameter und Systemgrößen die Belastungsberechnung in der Version A (einzelne Schadstoffwolke) des XPIC-Programms beeinflussen können. Soweit erforderlich, wurden die Ergebnisse bei der Programmerstellung berücksichtigt. In einigen Fällen gelten dieselben Abhängigkeiten und Konsequenzen auch für die Version B. Zusätzlich wurde in beiden Versionen versucht, die Rechenzeit zu verkürzen.

Erzielte Ergebnisse

Programmtechnisch dürften die Versionen A und B hinsichtlich der Nachbildung der physikalischen Modelle jetzt voll abgesichert sein. In Zukunft können daher mit den Versionen A und B meteorologische Einflüsse auf die Schadstoffausbreitung in der Atmosphäre untersucht werden, soweit deren Erfassung durch analytische Funktionen möglich ist.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Durch programminterne Optimierung soll die Rechenzeit bei der Programmversion B noch weiter verkürzt werden. In beiden Versionen soll die Ausgabe der Ergebnisse in Form von automatisch gezeichneten Belastungs-Isoplethen ermöglicht werden. Ferner sollen anhand von Testrechnungen die Auswirkungen unterschiedlicher Verteilungen der Diffusionskonstanten bei verschiedenen Zusatzbedingungen auf das Ergebnis untersucht werden, z.B. bei verschiedenen Stabilitätszuständen der Atmosphäre oder verschiedenen Bodeneinflüssen.

- 4330 Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten
(W. Hübschmann, S. Vogt, ASS; A. Bayer, R. Kalckbrenner, M Schückler, INR; F. Horsch, PNS-PL)

Durchgeführte Arbeiten

Im Rahmen der deutschen Risikostudie zur Beurteilung der Sicherheit von Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktoren an Standorten in der BRD wird das Unfallfolgenmodell entwickelt. Das sogenannte Fernbereichsmodell im Programmteil UFO-BAS wurde fertiggestellt. Dieser umfaßt die Ausbreitung der Spaltprodukte und deren Ablagerung, sowie die Berechnung der Ortsdosen. Das Fernbereichsmodell rechnet richtungsunabhängig und ist damit für den Fernbereich (etwa ab 30 km) geeignet, in dem weder die genaue Bevölkerungsverteilung noch die Windrichtungsänderungen einen wesentlichen Einfluß auf die berechneten Schäden haben.

Der Programmteil UFO-DOWI des Unfallfolgenmodells, welcher ausgehend von den Ortsdosen die gesundheitlichen Schäden der Bevölkerung nach schweren Reaktorunfällen berechnet, wurde in der Version für die Phase A der deutschen Risikostudie fertiggestellt. Die dabei anzuwendenden Dosisfaktoren wurden einer kritischen Durchsicht unterzogen und die Bevölkerungsdaten eines Referenzstandortes in eine für das Programm geeignete Form gebracht.

Zur Berechnung der radiologischen Belastung über den Ingestionspfad wurden altersabhängige Verbrauchsdaten erarbeitet.

Erzielte Ergebnisse

Es wurden die Unfallfolgen für ausgewählte Unfälle, deren Freisetzungsvektoren von der GRS erarbeitet worden waren, berechnet. Die Unfallfolgen wurden in Form der Schadens-/Wahrscheinlichkeitsverteilung für akute Todesfälle, Todesfälle durch Krebs und für die genetischen Schäden ausgewiesen. Schon die Zwischenergebnisse in Form der Dosierverteilungen zeigen, daß bei den zu erwartenden thermischen Auftrieben der emittierten radioaktiven Spaltprodukte die Zahl der akuten Todesfälle vornehmlich von der Aufenthalts-

zeit der Bevölkerung im Bereich der abgelagerten Spaltprodukte abhängt. Die 24h-Knochenmarks-Dosis durch Bodenstrahlung übertrifft für alle atmosphärischen Ausbreitungsbedingungen weit die durch externe Strahlung aus den Wolken oder durch Inhalation.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die bisher vorliegenden Ergebnisdaten sollen so sortiert werden, daß die Zeitabhängigkeit der Dosen an bestimmten Aufpunkten dargestellt werden kann.

In Zusammenarbeit mit dem IFU und eventuell anderen externen Forschungsstellen sollen die in der gegenwärtigen Fassung des UFO-DOW I enthaltenen, dem WASH 1400 entliehenen Modellvorstellungen zur Evakuierung, Umsiedlung, Dekontamination etc. einer gründlichen Überarbeitung unterzogen werden.

Nach Implementierung des Nahbereichsmodells werden Vergleichsrechnungen zu ausgewählten, früher mit dem Fernbereichsmodell durchgeführten Rechnungen unter identischen Randbedingungen durchgeführt, um den Gewinn quantitativ abschätzen zu können. Zur Vorbereitung der Risikoberechnung für die ganze Bundesrepublik werden Wetter- und Bevölkerungsdaten für alle Kernkraftwerkstandorte gesammelt und gesichtet.

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)

Durchgeführte Arbeiten

1. Optimierung eines flüssigen Reinigers

Die aus den thermisch stabilen, waschaktiven Substanzen entwickelte reinigungsintensivste wässrige Tensidmischung wurde mit und ohne Zugabe von Komplexbildnern - in Abhängigkeit vom pH-Wert - auf ihr Reinigungsvermögen gegenüber Radionukliden untersucht.

Durch Abstimmen der wirksamsten Komplexbildner in der wässrigen Tensidmischung wurde ein alkalisch reagierendes Reinigerkonzentrat hergestellt und die Dekontaminationswirkung an Edelstahl-, Glas- und PVC-Bodenproben sowie an anstrichbeschichteten Oberflächen nachgewiesen.

2. Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

Dekontaminationsversuche wurden in Tauchbädern mit verschiedenen konzentrierten Lösungen von alkalischem Permanganat, Oxalsäure Ammonium- bzw. Natriumcitrat - auch mit EDTA-Zusatz - und Ammonium- bzw. Natriumcitrat/Oxalsäure durchgeführt. Es wurde begonnen, die Wirkung dieser Dekontaminationsmittel nach Vorbehandlung mit alkalischer Permanganatlösung zu testen. Für Versuche, in denen das Dekontaminationsverhalten im strömenden Medium untersucht wird, wurde ein Dekontaminationskreislauf beschafft.

3. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschmelzen

Nach Beendigung der Laborarbeiten wurde eine Anlage zur technischen Demonstration dieses neuen Dekontaminationsverfahrens aufgebaut. Sie besteht aus einer Induktionsglühanlage zum Aufheizen des zu dekontaminierenden Werkstücks und einer Anlage zum Aufsprühen des Kaliumdihydrogenphosphatpulvers auf das Werkstück. Nach dem Test dieser Apparatur an nicht kontaminierten Rohren wurden Dekontaminationsversuche an kontaminierten Rohrstücken aus dem Kernkraftwerk Lingen durchgeführt.

Erzielte Ergebnisse

1. Optimierung eines flüssigen Reinigers

Nur durch Zusätze von thermisch stabilen Aminoazetaten oder Polyphosphaten zum wässrigen, schaumregulierten Tensidgemisch wurden Reiniger erhalten, deren Dekontaminationswirkung weniger thermisch stabilen zitronensäurehaltiger Produkte entsprach.

Mit dem optimierten Reinigerkonzentrat wurden Dekontaminationsversuche durchgeführt, sein Verhalten im radioaktiven Abwasser untersucht und mit den Ergebnissen von Papan-Dekopan verglichen. Es ergab sich:

- der entwickelte Reiniger zeigt an allen vier Kontaminationsträgern eine geringfügig bessere Dekontaminationswirkung,

- die für die störungsfreie Aufarbeitung radioaktiver Abwässer erforderlichen Schaumwerte konnten verbessert werden.
- die für das Bituminieren des Reinigerrückstandes erforderliche thermische Stabilität wurde erreicht.

2. Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

Die Untersuchungen über die Dekontaminationswirksamkeit der am häufigsten in der Reaktortechnik eingesetzten Dekontaminationslösungen in Tauchbädern in Abhängigkeit von der Konzentration an kontaminierten Edelstahlproben ergaben:

- Oxalsäure zeigt gegenüber anderen untersuchten Chemikalien das beste Dekontaminierungsverhalten. Als günstigste Oxalkonzentration erwies sich 1%.
- Vergleichbare Werte erhält man mit Citrat/Oxalsäure-Kombinationen, wenn der Citrat-Gehalt nicht zu hoch ist.
- Ammonium- und Natriumcitrat ergaben, auch mit Zusatz von EDTA, keine zufriedenstellenden Dekontaminationsergebnisse.
- Um eine weitere Verbesserung der Ergebnisse mit Oxalsäure bzw. Citrat/Oxalsäure zu erzielen, muß eine einstündige Vorbehandlung mit alkalischer Permanganatlösung erfolgen. Die Konzentration kann geringer sein als 18 NaOH und 3 g KMnO_4 pro 100 ml Wasser.

3. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschmelzen

In den Versuchen mit den nicht kontaminierten Rohrstücken wurden die optimalen Versuchsbedingungen mit der Anlage eingestellt. Bei den Dekontaminationsversuchen konnte die Dosisleistung der Rohrstücke auf 33% gesenkt werden (Versuchszeit 45-80 Minuten). Auf Schnittstücken aus diesen Rohren wurde anschließend indirekt die verbliebene Aktivität bestimmt. Die Auswertung ergab, daß die Rohre nicht gleichmäßig dekontaminiert wurden. Die niedrigste Restaktivität des Co-60 lag mit 5% entsprechend $0,07 \mu \text{Ci/cm}^2$ in der Rohrzone, wo die Erwärmung am günstigsten war (Rohrmittel). Die Ergebnisse decken sich mit den Laboruntersuchungen (RA 1-5%).

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

1. Optimierung eines flüssigen Reinigers

Die Arbeiten werden nach der Beseitigung der Trübungen im Reinigerkonzentrat durch Zusätze geeigneter Lösungsvermittler abgeschlossen. Ein Abschlußbericht wird angefertigt und veröffentlicht.

2. Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

Die Versuche werden in Tauchbädern und mit der Kreislauftechnik durchgeführt. Zum Abschluß werden Untersuchungen mit Reaktormaterialien durchgeführt. Das Vorhaben wird in diesem Jahr abgeschlossen.

3. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschmelzen

Die Arbeiten sind abgeschlossen. Ein umfassender Arbeitsbericht wird angefertigt.

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

Durchgeführte Arbeiten

Aus ungestörtem Gelände wurden Bodenproben zur Analyse auf Pu 239/240 gezogen. Jede Probe entspricht einer 2 cm Bodenschicht. Das Plutoniumverteilungsmuster wurde mit Hilfe eines Computermodelles analysiert. Die mittlere Verweilzeit τ wurde als Transportparameter benutzt. Die Aussagekraft von τ wurde durch Vergleich der berechneten mit den analytisch ermittelten Werten bestätigt.

Erzielte Ergebnisse

Die Wanderungsgeschwindigkeit des 50%-peaks des PuO_2 im untersuchten Löß-Lehm-Boden wurde mit $v_{\text{PuO}_2} = 0.59$ cm/a gemessen. In unmittelbarer Nähe der Probenahmestelle durchgeführte HTO-Migrationsexperimente ergaben eine Perkolationsgeschwindigkeit für Wasser $v_{\text{HTO}} = 100$ cm/a. Mit diesen Werten läßt sich eine dimensionslose relative PuO_2 -Wanderungsgeschwindigkeit berechnen.

$$v_{\text{rel, PuO}_2} = b_{\text{PuO}_2} / v_{\text{HTO}} = 5,9 \cdot 10^{-3}$$

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang der Arbeiten

Die weiteren Arbeiten beziehen sich auf die Abhängigkeit der PuO_2 -Mobilität von den Bodeneigenschaften, wie spezifische Oberfläche, Ionenaustauschenschaften, Gehalt an organischem Kohlenstoff und Karbonaten.

4420 Technik der Räum- und Demontearbeiten

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

Durchgeführte Arbeiten

Die Untersuchungen zu einer Gesamtanalyse "Sichere Stilllegung und Endbeseitigung von Kernkraftwerken" durch Auswertung der im Inland und Ausland erreichten Ergebnisse wurden weitergeführt und im Berichtszeitraum abgeschlossen.

Erzielte Ergebnisse

Für die Konditionierung von Abfällen kommen grundsätzlich die folgenden Möglichkeiten in Betracht:

- Konditionierung im Kernkraftwerk ausschließlich mit Mitteln des Kernkraftwerkes (nur bei kleinen, schwachaktiven Komponenten durchführbar)
- Konditionierung im Kernkraftwerk mit Fremdunterstützung
(Bevorzugt bei altersbedingten Stilllegungen)
- Konditionierung am Kernkraftwerk in demontierbarer Anlage (sowohl bei alters- und störfallbedingten Stilllegungen, als auch beim Komponentenaustausch)
- Konditionierung in zentraler Anlage (sowohl bei alters- und störfallbedingten Stilllegungen, als auch beim Komponentenaustausch; je nach Komponentengröße ergeben sich zum Teil erhebliche Transportprobleme)

Die Ablaufplanung umfaßt sämtliche für die Stilllegung eines Kernkraftwerkes

erforderlichen Tätigkeiten. Eine Unterteilung in folgende Planungsschritte wird vorgeschlagen:

- Vorplanung (Auswahl des Konzeptes, danach Planung der Stilllegung im Großen)
- Detailplanung (Auswahl einzelner Arbeitsschritte, Werkzeuge und Hilfsmittel, Sicherheits- und Strahlenschutzprogramm)

Parallel zur Detailplanung sind eine Reihe von Aktivitäten als vorbereitende Schritte zur Durchführung der Stilllegung notwendig.

Mitentscheidend über die Höhe der bei Stilllegungsarbeiten vom Personal aufgenommenen Strahlendosis sind die Zugänglichkeit der Komponenten sowie die räumlichen Gegebenheiten vor Ort.

Die räumlichen Gegebenheiten bei den Leichtwasser-Demonstrations-Reaktoren sind insgesamt als unzureichend zu bezeichnen.

Bei den modernen Leichtwasserreaktoren ist deutlich ein Trend zur günstigeren Anordnung der Komponenten und Armaturen festzustellen.

Es wird empfohlen, bereits während der Planung eines Kernkraftwerkes die spätere Stilllegung (totale Beseitigung) stärker als dies bisher der Fall war zu berücksichtigen.

Im einzelnen sind die folgenden Probleme von übergeordneter Bedeutung

- Verhältnis Abmessung / zur Verfügung stehender Raum
- Verhältnis Gewicht der Komponenten / Tragfähigkeit der Hebezeuge
- Dosisleistung

Bei der Stilllegung eines Kernkraftwerkes wird folgendes Vorgehen empfohlen:

- Entfernen aller inaktiven, für die weiteren Arbeiten unnötiger Teile
- Ausbauen und Konditionieren aller Teile mit niedriger Oberflächendosisleistung
- Ausbauen und Konditionieren der Großkomponenten.

Ausblick auf den geplanten weiteren Verlauf der Arbeiten

Fertigstellung des Statusberichtes.

S U M M A R I E S

-----<-----

- 4100 Environmental Impact by Nuclear Power Stations and Reprocessing Plants
- 4110 Air Filter Systems in Nuclear Power Stations and Reprocessing Plants
- 4111 Post-accident Recirculation Filters for Removal of Fission Products from the Atmosphere of the Safety Containment (H.-G. Dillmann, A. Weinert, LAF II)

Work completed and essential results

Testing of the wave plate droplet separator was terminated. The results showed that the pressure drop became too high when the removal efficiencies which are necessary for a post-accident recirculation filter should be obtained. For this reason the use of new metal fibre droplet separators is planned which have fibre-strengths down to 4 μm . The pressure drop by these separators should be much lower with removal efficiencies equivalent to the wave plate type. A filter insert for metal fibre mats has been constructed and is on order.

A functional test of the plasma aerosol generator for testing high efficiency air filters showed that it worked well under pressures up to five bar. The construction process for installing the generator in the filter test rig was terminated. The installation of the aerosol generation device is to be finished in the third quarter of 1977.

Plans for the near future

The investigation of droplet separators will be continued using the newly ordered metal fibre filters. After the installation of the aerosol generator the first tests of HEPA-filters under reactor accident conditions will be performed.

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

Work Performed

The high loading tests of the AC 6120/H₁ iodine sorption material were terminated. The tests relating to desorption, life time and poisoning are carried on. Gas-chromatographic investigations are performed of the dissolver and total off-gas.

For the demister, HEPA filter and iodine sorption filter remotely operated filter units having the same outer diameters of the containers were designed with hinged lids and enquiries for deliveries were made. Part of the sample feed and collection devices were tested. A filter housing with a hinged lid was built and partly tested. The order for construction of PASSAT has been placed. Mounting has started.

Results Obtained

Reducing the bed depth of the iodine sorption filter does not entail difficulties in observing for the simulated off-gas the removal efficiencies ≥ 99.9 % required with respect to the incoming iodine.

During operation of the iodine measuring probe developed under this program the iodine concentrations were determined in the course of dissolution. In the dissolver off-gas upstream of the iodine sorption filters installed in WAK the organic compounds methyl, ethyl, and butyl iodide were identified by gas chromatography. The total off-gas contained methyl and ethyl iodide at measurable concentrations.

Good results on remote handling, tightness and performance were obtained in cold tests using the reference filter housing. Aerosol feeding and sampling sections for PASSAT were tested and improved.

Plans for Future Work

Measurements of the off-gas components in the dissolver and total off-gas of WAK will be continued. The function of the feed and sampling sections and of the measuring instruments for PASSAT will be examined. After calibration the measuring instruments will be inserted in PASSAT. Upon the setup of the PASSAT test facility the single components of the filter system will be investigated for their performance with respect to the conditions of the head-end off-gas of large reprocessing plant.

4114 Exhaust Air Filtering in Reactors
Ageing and Poisoning of Iodine Sorption Materials
(J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, LAF II)

Work completed

A prototype filter was built for operation over an extended service life and subjected to first testing in the technical test rig TAJFUN. Two new mobile testing devices were installed at the Biblis Nuclear Power Station for exposure of filter carbons to the off-gas from the plant.

Essential results

As a result of previous work a new filter, the multi-path sorption filter (MWS filter) was developed which allows to expect a substantially longer service life accompanied by less consumption of sorption material. A patent has been applied for and licenses have been granted.

Plans for the near future

Laboratory tests on the desorption of pollutants taking into account the behavior of previously removed radio-iodine.

Use of the testing devices for optimization of the bed depth and of the MWS filter replacement cycle.

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

(G. Birke, H. Deuber , LAF II)

Work Completed

Measurements were performed with radioiodine species samplers using DSM 11 as I₂ sorption material in the stack exhaust air of a BWR, which had been put out of operation because of an accident, and of a PWR during power operation. Moreover radioiodine species samplers with different I₂ and CH₃I sorption materials were employed in the stack exhaust air of a research reactor.

Experiments were carried out to determine the removal efficiency of iodine sorption materials for radioactive gaseous CH₃I and C₆H₅I (iodine benzene). The preparation of radioactive gaseous HIO (hypoiodous acid) and its removal by the iodine sorption material AC 6120 was examined.

Essential Results

In the stack exhaust air of the nuclear power stations the portion of inorganic ¹³¹I was, apart from 2 sampling periods, less than 50 %. In the stack exhaust air of the research reactor the inorganic ¹³¹I prevailed.

The removal efficiency of the I₂ sorption materials DSM 11 and DSM 17 for ¹³¹I in the form of CH₃I and C₆H₅I was very low. ¹³¹I in the form of C₆H₅I was removed by AC 6120 and LMS 13 X-Ag (Linde molecular sieve in the Ag form) to a very small extent too, by activated charcoal impregnated with KI or TEDA however to a very high extent. In the experiments concerning the preparation and removal of ¹³¹I in the form of HIO an iodine species that was difficult to remove with AC 6120 was found which could be HIO. Its maximum portion in the carrier gas was 50 %.

Plans for the Near Future

In a PWR measurements will be performed with radioiodine species samplers over an extended period of time in different ducts of exhaust air.

The removal efficiency of the I₂ sorption materials DSM 11 and DSM 17 for ¹³¹I in the form of I₂ will be tested in the relevant range of parameters. Moreover the removal efficiency of these and other iodine sorption materials for the iodine species difficult to remove with AC 6120 will be tested. Further experiments will be carried out to identify this iodine species.

4120 Release, Transport and Plate-out of Fission Products in
Reactor Circuits

4123 Reduction of Activation and Contamination of Reactor Circuits

(I. Michael)

Work Performed

The metal loss studies of the steam generator tube material INCOLOY alloy 800 to pressurized water at 340 °C, 150 bar were continued.

Results Obtained

Anomalous behavior of the iron loss was found as a function of the free oxygen content in the feed water. It appeared that a certain oxygen concentration must not be underrated for low iron loss. This minimum point is 0.5 ppm O₂. If this level is exceeded, the iron content rises slightly. If it is underrun, the iron content in the pressurized water rises sharply, as is shown by fig. 4123-1. The nickel and chromium contained in the pressurized water do not exhibit this anomalous behavior. After 300 hours these substances also decrease monotonically with decreasing oxygen concentration.

Planning for the Near Future

These studies will be continued with the alternative material NICROFER 3220 and with LiOH alcalinization of the pressurized water.

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

Work completed

The measurement of ^{129}I concentrations in milk and soil samples was continued. In process solutions of the Karlsruhe Reprocessing Plant the ^{129}I concentrations were determined. ^{127}I was measured in air. Apparatus for the collection of ^{127}I in air were installed in Kiel, Stade and Gundremmingen.

Essential results

The concentrations of ^{129}I in goats milk were between 0,03 and 1,1 pCi/g. The soil sample concentrations were between 0,3 and 5,6 fCi/g. The concentrations of ^{127}I in air from the environment of the Karlsruhe Nuclear Research Center averages about 10 ng I_2/m^3 and about 2 ng aerosol bound I/m^3 .

Plans for the near future

Analysis of milk and soil on ^{129}I will be continued until the end of 1978. ^{127}I measurements in the environmental air will be finished at the end of 1977.

4140 Separation of Krypton and Xenon from the Offgas of Nuclear Facilities
(R. v. Ammon, W. Bumiller, G. Franz, E. Hauß, E. Hutter, G. Kimmig,
G. Knittel, G. Neffe, W. Weinländer)

1. General Aim

For environmental protection the gaseous radioactive fission product Kr-85 is to be separated from the offgas of nuclear facilities, especially of reprocessing plants. It is, furtheron, to be conditioned for final storage.

2. Particular Objectives

The feasibility of the rare gas separation from a gas mixture is to be demonstrated with the low temperature distillation process in connection with two prepurifying steps: catalytic conversion of O_2 and NO_x with H_2 and adsorption of H_2O , CO_2 , NO_x and NH_3 .

3. Research Program

3.1 Column behavior and separation factors achievable during the low temperature distillation of the three component system N_2 -Kr-Xe.

3.2 Purification of the Offgas

3.2.1 Development and operation of a catalytic test bed including a N_2 dilution loop and H_2 feed control for the reduction of O_2 and NO_x with H_2 .

3.2.2 Measurement of the adsorption capacity of various molecular sieves and silicagel and of the desorption properties of Kr, Xe, H_2O , CO_2 , NO_x and NH_3 .

4. Experimental Facilities, Computer Codes

Ad. 3.1 Pilot plant KRETA (feed gas throughput $50 \text{ Nm}^3/\text{h}$) for the low temperature rectification of the rare gases; static and dynamic codes for stage-to-stage calculations of the column behavior.

- Ad 3.2.1 Dynamic laboratory scale apparatus (throughput 1 Nm³/h) for testing catalysts; test loop (throughput 10 Nm³/h) for tests of H₂-analysis and control (H₂-safety studies).
- Ad 3.2.2 Dynamic laboratory scale apparatus (throughput 1 Nm³/h) for adsorption and desorption studies of gases on various adsorbents. Pilot plant ADAMO (throughput 50 Nm³/h) as purifying step for the pilot plant KRETA.

5. Progress to Date

- Ad 3.1 Two test campaigns (two and four weeks, resp.) were conducted with the pilot plant KRETA, the latter one in combination with ADAMO.
- Ad 3.2.1 Several test series were performed with the catalytic laboratory test loop; the corresponding pilot plant REDUKTION (throughput of feed gas 50 Nm³/h, in the loop 500 Nm³/h) has been ordered.
- Ad 3.2.2 The adsorption and desorption behavior of Kr (traced with Kr-85) on silicagel and molecular sieve 5A was determined in dry and moist N₂ carrier gas. In the pilot plant ADAMO breakthrough and elution curves of Kr and Xe on silicagel and molecular sieve 5A were measured during a two week campaign.

6. Results

- Ad 3.1 During the operation of the pilot plant KRETA with the three-component gas mixture N₂-Kr-Xe decontamination factors (DF) $\geq 10^3$ in the first column were obtained for Kr and Xe. There were, however, also several malfunctions, presumably due to solidification of Xe. These were accompanied by a pronounced decrease of the DF. The separation of Kr from Xe in the second column was achieved resulting in highly pure products.
- Material data recently obtained indicate a wider range of xenon freezing than had been calculated assuming ideal conditions. However, the freezings observed rather suggest desublimation of xenon from the gas phase.
- Ad 3.2.1 On the reduction of large O₂-concentrations (5 - 15 %) in the catalytic test loop a pronounced deterioration of the activity of the Pt catalyst has been observed caused by the presence of high humidity in the circulating gas. The reaction temperature had therefore to be increased.

Ad 3.2.2 Dynamic adsorption coefficients for Kr and Xe are about three times as high on molecular sieve 5A as on silicagel; the values for Xe surpass the values for Kr by a factor of two (silicagel) and 5 - 6 (molecular sieve), resp. At room temperature, both gases can be desorbed quantitatively with N_2 , Kr faster than Xe. The results obtained with the small laboratory apparatus are confirmed by runs with the pilot plant ADAMO.

7. Next Steps

Ad 3.1 Runs with the KRETA-plant using the system N_2 -Kr-Xe will be continued in order to find a mode of operation, where the partial solidification of Xe can be avoided.

Sources of trouble detected were eliminated by improvements of the plant. Following further integral tests parameter and incident investigations will be performed.

Ad 3.2.1 Runs with the catalytic test loop also will be continued to find optimal operational characteristics in case of fast fluctuations of the O_2 content. A faster H_2 control system will be installed. The pilot plant REDUKTION after shipment to our laboratory will be mounted and put into operation.

Ad 3.2.2 The adsorption and desorption studies with rare gases and other gases will be continued on a laboratory scale, especially with acid resistant adsorbents.

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 Performed

The infrared measuring equipment used in the Marviken II tests was described in a brief technical report. Moreover, a quantitative comparison relating to the integral flow masses into the wetwell was made with values determined by other measuring methods.

In a new series of condensation tests performed in the Mannheim Large Power Station new accompanying control measurements were performed on behalf of TÜV Baden (Technical Inspectorate).

The influence exerted by the water in the wetwell on the dynamic shell behavior was estimated analytically using a simple model as a first step. On the problem of possible vibrations occurring in the feed channels of pressure suppression systems, an investigation was made of the natural frequencies of flowing media in rigid channels.

The parameter calculations performed on behalf of and for the account of TÜV Baden, using the specifically developed computer programs, were terminated. The KONDAS computer program was also used to investigate intermittent condensation in the multitube system. The results obtained, together with directly derived test data, were used to investigate the statistics of overlaps in the reactor facility using the WELLA computer program. Finally, AKUDYN was used together with a substitute model for coupling between the fluid and the wall structure in order to investigate the impacts of the very short term "pressure needles" observed in the experiments.

Results Obtained

Comparison with the integral mass flows into the wetwell determined with the different measuring methods in the Marviken tests confirms the observation already made when comparing the mass flows. This gives a satisfactory agreement for the vapor masses while greater differences can be recognized for water and air masses.

The natural frequencies of the suppression pool calculated taking into account the water in the wetwell agree well with the frequencies observed

in the blow off tests performed in the Brunsbüttel Nuclear Power Station. In the flow systems the natural frequencies depend on the flow rate via a relatively simple law. With increasing flow rate the natural frequencies decrease until they disappear when the sound velocity is attained.

The results of calculations performed with the KONDAS computer program, relating to the low frequency events of intermittent condensation, agree satisfactorily with the experimental data. Also the calculations made for a multitube system did not indicate adverse coupling effects.

Plans for Future Work

Experience gathered with the infrared measuring equipment used in the Marviken II tests are described in a summary report. This report will also contain a critical assessment of results obtained, as well as statements about the reasonable applications of this measuring method.

The control measurements under way at the Mannheim Large Power Station will be continued.

In the studies on the dynamic shell behavior the excitation of the spherical shell by collapsing bubbles including possible resonance effects will be subjected to more detailed investigation. The natural frequencies of the feed channels in the pressure suppression systems will also be determined analytically for flow rates which are periodic at one end.

The KONDAS, AKUDYN and WELLA computer programs developed for the parameter calculations will be described in separate reports.

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

1. Work Performed

The evaluation of the Marviken II experiments was continued. The radionuclide measurement unit for the common facility was installed and started at the end of March.

After first preliminary tests a comparison between the radionuclide measurement and other methods was conducted. The tracer signals were evaluated by correlation analysis. A corresponding evaluation program was developed.

2. Results Obtained

The velocities measured in the blowdown channels during several blowdowns are on the order of 0 to 100 m/s. Comparison between the velocity of the gas phase, measured by the radionuclide technique, and the liquid phase, measured by infrared absorption (also developed within PNS) indicated good consistency of the measured results. This demonstrates that there was basically no slip between the gas phase and the liquid phase (smoke flow).

The velocity and density measurements additionally performed at the discharge outlet proceeded successfully. It was possible to determine accurately the mass flow of the coolant at the discharge outlet. This was the first application of the radionuclide mass flow measuring technique under severe blowdown conditions.

It was demonstrated that the selected take-off run of 3 m and the range of measurement of 0.25 m were adequate and yielded suitable results. One result determined by correlation analysis shows the following. The velocity increased during the first 1.5 seconds and afterwards decreased to about 26 m/s ($t = 6$ sec.). During the time from $t = 6$ sec to 85 sec a minor velocity reduction was detected. The change of velocity between 90 and 100 sec was initiated by actuation of the safety valve at the end of the experiment.

The density was measured by a vertically directed γ -ray beam (Ir-192) at the center of the tube. The results obtained by this method are shown for the complete blowdown, and with better time resolution for the onset of blowdown.

The "throttle effect", first observed in blowdown 21, appeared with even more intensity in blowdown 24. As the safety valve was closed the density increased by 100 % and the mass flow by 65 % whereas the velocity dropped only insignificantly.

The Marviken II experiments revealed no slip between the gas phase and the liquid phase in the discharge outlet and the blowdown channels, while the experiments so far performed at the common facility yielded slip values from 1 to 4.

3. Plans for the New Future

In addition to continuation of the experiments at the common facility preparations for the HDR experiments are under way.

4215 Joint Test Rig for Testing and Calibrating of
Different Methods of Two-Phase Mass Flow Measurement

(J. Reimann, IRB)

Work Completed and Essential Results

The steam-water loop was completed by building in two throttling valves upstream of the mixing chamber. By producing steam by throttling the total mass flow may be increased up to 35 % compared to the former method of operating the loop. Furthermore, throttling stabilizes the single phase mass flow measurement.

The data acquisition system and computation of the reference values has been finished. The computer program contains the equations of state of steam/water and the calibration curves for all signal transducers.

The 5 beam γ -densitometer has been finished mechanically and supplied with the electronics. First calibration tests are fully satisfactory.

The instrumentation of the air-water loop was completed. At low quality the mass fluxes are increased by a factor of 5 compared with the steam-water-loop. The regime of dispersed bubble flow is fully reached in the test section.

To detect flow regimes in air-water as well as in steam-water flow, a local impedance probe was used. In addition, the phase distribution across the channel could be detected by traversing the probe. The boundaries of the air-water flow regimes detected by the probe are in good correspondance with other investigations. For the first time, such experiments have been carried out in horizontal steam-water flow. The results indicate that the region of slug flow becomes smaller with increasing pressure.

In preliminary experiments the following measuring techniques were

tested in the steam water flow:

- Drag body and turbine meter (Euratom Ispra, RS 109)
- Temperature correlation (TU-Berlin, RS 147)
- Drag body (Battelle-Frankfurt, RS 147)
- Radiotracer technique (GfK-LIT, PNS 4214)

Plans for the Near Future

- Detailed tests of the measuring techniques sponsored by the BMFT in steam-water flow (Sept. 1977).
- Detailed tests of the techniques developed by LOFT, Semiscale and PBF (4. quarter 77).

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

The eigenfrequencies of the core barrel have been computed with the code CYLDY2. The results compare well with those obtained from STRUDL/DYNAL calculations. On the other hand unexplained discrepancies exist with SAP IV predictions obtained elsewhere. A concept for snapback tests of the core barrel-both, with and without water - has been developed. These tests will be carried out prior the blowdown tests in order to provide separate checks of the structural calculations and the fluid/structure coupling without superimposing the fluid dynamics of the blowdown. Results of blowdown calculations from DAPSY, WHAMMOD and YAQUIR have been documented for comparison purposes. Work continued on the preparation of the natural convection tests prior to blowdown.

Essential Results

Favourable agreement between CYLDY2 results and STRUDL/DYNAL results has been achieved for the eigenfrequencies of the core barrel. First movie pictures of calculated YAQUIR results have been produced.

Plans for the Near Future

Some details for the mounting procedure of the core barrel have to be worked out. The hydraulic mechanism for the snap-back tests will be ordered. Data transmission between HDR and the evaluation programs both at GfK and IASL will be worked out.

4223 Development and Verification of Coupled Fluid-Structural Dynamic Codes for Stress Analysis of Reactor Vessel Internals under Blow-down Loading

(R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, IRE)

Work Completed and Essential Results

YAQUIR has been applied to large PWR blowdown problems and compared with LECK results. The structural model of CYLDY2 and the fluid model of YAQUIR have been coupled in the code STRUYA. First tests with the fluid dynamic systems code FLUST have been successful. The incompressible fluid version of the 3D coupled code FLUX for HDR-geometry was checked against some analytical test cases and was used for evaluation of the eigenfrequencies of the coupled system. Several test cases were run with the two phase flow code SOLA-DF with satisfactory results.

Remarkable agreement was found between YAQUIR results and experimental data obtained from shallow water analogy experiments. A test for investigation of nonequilibrium twophase flow dynamics has been specified in some detail. The test is to be performed early 1978 in the water loop of the IRB.

Good agreement was found between the natural frequency predictions for the core barrel obtained from CYLDY2 and STRUDL/DYNAL. Work started on improvement of the beam mode treatment in CYLDY2. The name of this modified version will be CYLDY3.

The fluiddynamic code SING1, based on an advanced singularity method and applicable to a broad class of highly transient, incompressible 3D-problems with negligible viscosity has been developed and tested. It will be used in connection with the planned laboratory experiments in order to investigate the effect of the core structure on the blowdown process. Coupling of SING1 with structural dynamics is on the way.

Plans for the near Future

The reasons for limitation of the applicability range of STRUYA have to be localized and removed. FLUX will go into production in its compressible fluid version. FLUST will be applied to the HDR blowdown problem. Graphical output for all codes will be enhanced. Work will continue on non-equilibrium two phase flow analysis and experiment. The code CYLDY3 will be tested including small experiments with a cylindrical shell. Laboratory blowdown tests and SING1-calculations for simulation of the core structure will start. The simultaneous fluid structural coupling based on SING1 will be tested.

PNS 4222 Experimental Data Acquisition and Processing of the
 Dynamic Behaviour of the Pressure Vessel Test Inter-
 nals in the HDR-Blowdown-Experiments

Work Performed

The test facility consisting of an electrodynamic shaker, an autoclave system and auxiliary devices was installed and commissioned at IRE. This test facility serves for the dynamic investigation of prototype transducers (under blowdown conditions) and for the experimental determination of the corresponding frequency response functions. The operating behaviour of the whole system (autoclave system, shaker, and auxiliary devices) was determined and necessary improvements were made. First dynamic investigations of one prototype accelerometer and of one prototype displacement transducer were performed.

An interim report was completed which describes a method of correcting measuring errors associated with the transfer properties of the measuring gears.

Results

The first results on the dynamic behaviour of the transducers and their response to the thermodynamic loads during blowdown have been positive and even before the whole test program has been terminated they allow to expect that the transducers will qualify for being used in the HDR.

Plans for Future Work

Investigations of the behaviour of the prototype transducers will be carried on according to the test program; mainly long-term tests will be performed in the autoclave system under combined mechanical and thermohydraulic loads during blowdown extending over 10 to 15 cycles. More detailed investigations into the temperature behaviour of acceleration transducers and into the dynamic behaviour of strain gauges are planned in addition.

A new task is the supervision of development of a new inductive high-temperature pressure- and differential pressure-transducer. The corresponding prototype transducers will also be tested in the test facility described above.

4230 Fuel Behaviour under Accident Conditions

4231 Theoretical Investigation of the Fuel Rod Behaviour During
a LOCA
(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE Stuttgart)

Work Completed

The verification of SSYST-1 has been continued. Experimental results from PNS 4238, TREAT (FRF 2) and (PBF(PCM)) were calculated (standard problems), comparisons with FRAP-T calculations have been performed.

Special emphasis has been put on the calculation of the initial steady state conditions. Several comparisons of calculations with SSYST and FRAP-T and with CARO (on behalf of a sample problem specified by KWU) have been performed. The module ODRUSPA for the calculation of the pressure in the gap has been improved.

An additional module for the calculation of the heat transfer coefficient in the gap has been developed. The deformation module STADEF2 has been improved. For the module ZETHYF a special method for the calculation of the heat transfer coefficients in various flow regimes has been developed. The steam-water-data processing procedure for the hydrodynamic modules has been improved, the module ZWERG for the conditioning and processing of data has been improved for use in SSYST-2.

For the statistical analysis of rod behaviour a computer code was written to generate input vectors for the statistical variables according to Conover. Another program was developed to do the regression analysis for the response surface.

For the Zry cladding material model a data base was set up, it contains at this time about 150 tensile tests.

Essential Results

The calculations for the verification of SSYST-1 with respect to temperature and expansion of the clad showed satisfactory results which were in good agreement with the experiment (PNS 4238). The verification on behalf of TREAT- and PBF-experiments (FRF-2 and PCM) was also satisfactory although several numerical problems had to be solved in order to obtain results of acceptable quality.

The calculation of the initial conditions with FRAP-S and the comparison of the results with CARO-calculations did not lead to a quantitatively acceptable agreement. The coupling of the program FRAP-S with SSYST by means of the two auxiliary modules FRAPDR and FRASSY now allows a detailed calculation of the initial state of the fuel pin (as a function, for example, of the operation conditions and the power history) as well as the following transient calculation with SSYST.

By means of an improvement of the basic equations for the calculation of the transient fission gas pressure occasionally occurring instabilities could be eliminated.

Using the response-surface method for a "black box" it was felt, that it would be advantageous to approximate not the whole span of all statistical variables with one single function, rather than identifying subspaces where local approximations might fit better.

The investigations for the cladding material model have shown that the three temperature ranges (α , α/β transition, β) in tensile tests could be clearly identified. The maximum stresses of all these curves follow in a $\log \sigma / \log \epsilon$ representation very well different Norton type creep ranges.

Plans for the Near Future

The verification of SSYST will be continued. Further improvements with respect to the heat transfer coefficient and critical heat fluxes are planned. Comparisons with other programs will be continued. SSYST-2 will be further developed.

4234 Decay Heat Measurement of ^{235}U in the Time Region from
10 to 1000 seconds

(K. Baumung, INR)

Work Completed, Essential Results

During the tests it turned out that modifications of the pneumatic transfer system and of the computer software were necessary. The irradiation station inside the thermal column of the reactor had to be replaced by a new design in order to meet the tightness requirements.

The data registration and calorimeter control program for the 8K-mini-computer had to be enlarged to provide optimal temperature resolution by proper choice of the digital voltmeter and Wheatstone-bridge ranges. Thus the duration of the computational and dataway operations took more than the planned 500 msec so that the program, originally written in Basic-language, had to be rewritten in Fortran.

Now the experimental set up is completed and the installation at the reactor began.

Plans for the Near Future

After the summer shut-down period the irradiation experiments shall start at the reactor.

4235 Material (Zircaloy)-Behavior under Accident Conditions

4235.1 Mechanical Behavior of Zircaloy-4 Cladding Material

(M. Boček^V, IMF II)

Work Completed and Essential Results

1. Influence of ZrO₂ surface layers on the ductility of Zry-4 tensile specimens

In the α -phase region ZrO₂-layers increase the ductility of tensile specimens. Principally the same behaviour is observed in burst tests on Zry cladding. Preliminary metallographic investigation about cavitation on tensile specimens have shown that cavitation is suppressed even by the presence of very thin ($\approx 1 \mu\text{m}$) ZrO₂ layer. According to that, the failure is delayed. This phenomenon is explained on the basis of the hydrostatic stress component associated with the ZrO₂ coating. This component compensates the axial stress component (applied stress) which is responsible for the cavitation.

2. Tensile creep under constant load

Isothermal creep tests have been performed in vacuum at temperatures between 600 and 1100°C. The uniaxial stress range $\sigma_{\text{uni}}(o)$ was 5.0 to 78 MPa which corresponds to an internal pressure P_i from 0.8 to 12.7 MPa for "BIBLIS A" - type cladding. The stress-rupture behaviour is compared with results from stress rupture tests performed on Zry-4 tubing. Using the relation between the hoop stress σ_{hoop} and uniaxial stress σ_{uni}

$$\sigma_{\text{hoop}} = \frac{2}{\sqrt{3}} \sigma_{\text{uni}}$$

the agreement for tests at 800°C is very good. The stress rupture behaviour is influenced:

- i) by recrystallisation (for T = 600 and 700°C resp.)
- and
- ii) by the environment (ZrO₂ - layer)

From the slope of the stress rupture curves it seems that the temperature dependence of the stress exponent n is less pronounced as that which follows from change in strain rate experiments.

3. Stress-strain testing in vacuum

In essential these experiments have been finished. In the report the results are compared for experiments conducted in air and vacuum respectively. The comparison is mainly based on the temperature and strain rate dependence of the yield stress, the stress exponent and the total elongation resp..

4. The analysis of burst tests results

On the basis of plots: "maximum circumferential strain vers. burst temperature", the influence of heating modus, heating rate, atmosphere, inventory, constraints and preoxidation is visualized. The extend of "ballooning" is strongly dependent on testing procedure (heating modus: smaller circumferential strains for cladding internally heated as compared to ohmically heated cladding). There is a distinct influence of the heating rate (in the α -phase region larger ballons for the lower heating rate) and the "outer" and "inner" atmosphere resp. (ZrO_2 -layer, influence of fission products). Generally the smallest balloons are observed on tubing which failed in the $(\alpha + \beta)$ -phase region. In this range the strains observed seem to be less dependent on testing procedure.

5. On creep curve calculation on the basis of $\dot{\epsilon} \sim \sigma^n$

Principally the constitutive equation

$$\dot{\epsilon}_o = A (T) \sigma^n \Big|_{\phi_i} \quad (1)$$

(where $\dot{\epsilon}_o$ is the engineering strain rate and σ is the true stress resp.,) can be easily integrated assuming that the structure parameters ϕ_i (e.g. grain diameter, phase composition etc.) remain unchanged during creep. For creep at constant load the stress σ increases with strain. Assuming constancy of volume during creep it follows from eq (1)

$$\epsilon_o = \frac{1 + \epsilon_{o,p}}{\left[1 - t/t_R \right]^{\frac{1}{n-1}}} - 1 \text{ for } t < t_R \quad (2)$$

$\epsilon_{o,p}$ is the "primary" creep strain and t_R is the time to rupture. For $\epsilon_{o,p} \ll 1$ eq (1) can take the form

$$\dot{\epsilon}_o = \frac{A (T) \sigma(o)^n}{\left[1 - \frac{t}{t_R}\right]^{\frac{1}{1-1/n}}} = \frac{\dot{\epsilon}(o)}{\left[1 - \frac{t}{t_R}\right]^{\frac{1}{1-1/n}}} \quad \text{for } t < t_R \quad (3)$$

For practical calculations an appropriate maximum value for $\dot{\epsilon}_o$ can be chosen from the experiment and together with t_R the limiting (maximum) time $t_{max} < t_r$ is obtained from eq (3). This time t_{max} should limit the reliable range of comparison between experiment and calculation (e. g. instability of tensile deformation).

Plans for the Near Future

1. The deformation behaviour of ZrO_2 -layers (composite material Zry/ZrO_2).
2. Investigation of the fracture "Morphology".
3. Isothermal tensile creep tests
 - a) in an oxidative atmosphere
 - b) with peroxidized specimens in vacuum.
4. Temperature-transient tensile creep test at constant load.
5. Isothermal creep-burst tests on preoxidized cladding.

4235.2 High Temperature Steam Oxidation of Zircaloy 4
Cladding Tubes

(S. Leistikow, IMF/II)

Work Completed and Essential Results

To determine the oxygen distribution across the oxidized wall of Zircaloy 4 tubing the post-test evaluation of isothermal steam oxidation experiments was performed in parallel by hardness measurements, microprobe analysis, and theoretical calculations based on physical properties and the Zr-O phase diagram. The comparison of the results gained in this way showed that the theoretical assumptions of oxygen distribution are in good agreement with the experimental findings.

The isothermal/isobaric creep-rupture tests of one-sided closed Zircaloy 4 capsules under superimposed steam oxidation were continued at 1000-1300°C. Thus, the mechanical properties in argon and steam could be compared now over the total range of 800-1300°C. The experiments proved again the strengthening and ductility reducing effect of steam oxidation on Zircaloy 4. These effects could be recognized the earlier the higher the test temperature was chosen. For all experiments a nearly equal internal pressure threshold value of 7-8 at was found below which no capsule ruptured, which indicates that - with increasing temperature - the decreasing strength of the material was overcompensated by the strengthening effect of steam oxidation. Far higher pressures had to be applied to rupture strongly oxidized capsules. The band of maximum circumferential elongations in steam differed clearly at all temperatures from that in argon.

The scanning electron microscopic and metallographic examination of single specimen creep tests (900°C) showed that crack formation occurred at 3-4 % elongation. The crack density increased with pressure, the crack width increased with time-to-rupture. Thus, higher internal pressure produced numerous cracks of medium width, lower internal pressure a smaller number, but broader cracks. By metallography and following planimetric analysis of creep-deformed and ruptured capsule surfaces, the extent of the creep-assisted surplus in oxidation was determined. The extent of oxidation in the α/β -transformation region (900 and 950°C) was at all times not higher than that at 1000°C in the unstressed condition.

First temperature-transient/isobaric creep-rupture experiments were performed in steam under inductive heating. A good agreement could be stated between the results of first isothermal/isobaric experiments and those of the creep-rupture tests in the resistance heated furnace. Thus, a reliable performance of the new experimental set-up will be achieved when LOCA-temperature-transient testing will be performed.

Plans for the Near Future

Documentation of kinetic results. Isothermal creep-rupture testing of capsules in steam at temperatures $<800^{\circ}\text{C}$ and after preoxidation. Creep-rupture testing under temperature-transient conditions.

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

(P.Hofmann, IMF I)

Work Completed

- Testing of a new apparatus allowing to perform burst experiments with short Zry cladding tubes under inert gas (TUBA; Tube Burst Apparatus).
- Performance of temperature and pressure transient experiments on stress corrosion cracking of Zry-4 cladding tubes caused by iodine.
- X-ray and microprobe investigations of the reaction products formed during the chemical interactions between UO_2 and Zry.
- Determination of the UO_2 /Zry reaction kinetics (PCM experiments). Influence of simulated fission products and thin ZrO_2 layers on the internal cladding tube surface on the UO_2 /Zry chemical interactions and on reaction kinetics.

Essential Results

- In the new test facility (TUBA) first burst experiments were performed with Zry-4 cladding tubes while the cladding material temperature, the internal tube pressure and the deformation of the cladding tube were measured continuously. The deformation of cladding tubes is recorded by a high-speed camera. The films are subsequently evaluated by an electronic picture analyzer; the increase of the projected tube cross-sectional area is determined as a function of time.
- The first burst experiments with Zry tube specimens containing iodine clearly show that the cladding material can fail as a results of stress corrosion cracking. At burst temperature $\leq 850^{\circ}C$ the maximum circumferential strains and rupture stress of iodine containing specimens are distinctly smaller than that of Ar reference specimens.

Above 850°C the influence exerted by iodine on the mechanical properties of Zry-4 decreases markedly.

- The examination of the fracture surfaces by scanning electron microscopy show that the fracture has nucleated at the surface exposed to the corrosive environment. There are two well defined types of fracture features, namely intergranular cracking, and ductile shear. As cracks propagate through the tube wall the principle mode of failure changes from intergranular cleavage to ductile dimpling. This change of fracture mode occurs because the thickness of the remaining tube wall decreases but still has to sustain the load. In the absence of iodine the fractography of tubes shows an entirely ductile mode of failure.
- X-ray diffractometer studies of the UO₂/Zry interaction zones yield the formation of α-Zr(O), α-uranium, and a (U,Zr) alloy, part of which still containing some UO₂ finally dispersed.
- Obviously, simulated fission products (Cs, I, Te) do not exert an influence on the chemical interactions between UO₂ and Zry. Part of the Te is detected together with Cs at the reaction front in Zry. Thin ZrO₂ layers on the inner surface of the cladding tube are able to prevent UO₂/Zry reactions up to 1000°C. At higher temperatures the ZrO₂ layer has no longer a protective effect. ZrO₂ is dissolved while reacting with Zry and α-Zr(O) is formed.
- In the UO₂/Zry chemical interactions under PCM conditions the individual reaction zones grow between 1000 and 1400°C according to a parabolic time law. Oxygen diffusion into Zry is the rate determining step of the UO₂/Zry reaction.

Plans for the Near Future

- Systematic study of the deformation behavior of short UO₂ filled Zry tube specimens under isothermal isobaric test conditions.
- Isothermal and transient experiments on stress corrosion cracking of Zry cladding tubes caused by iodine.

- Influence of the UO_2 oxygen potential and of thin ZrO_2 layers on the stress corrosion cracking behavior of Zry cladding tubes.
- SEM investigations of ruptured Zry-4 tube specimens; determination of the mechanisms leading to cladding tube failure.
- Determination of the UO_2 /Zry reaction kinetics. Influence of simulated fission products on the reaction kinetics.

4235.4 Burst-tests of Zircaloy Cladding Material under Combined Mechanical and Chemical Load

(S. Leistikow, L. Schmidt, IMF)

Work Completed and Essential Results

Besides single effect experiments burst tests are going to be prepared for a more realistic description of Zircaloy cladding behavior under LOCA-typical temperature- and pressure-transient conditions and fuel and coolant interaction. An experimental test facility is designed in which pressurized fuel rod simulators will be electrically indirectly heated in steam. The main material properties to be measured as function of temperature and time will be the maximum circumferential elongation, the time-to-rupture, and the extent of external and internal oxidation. At present the concept for its layout is completed and the main components are going to be ordered in the near future.

Plans for the Near Future

Order of main components, construction of the facility, further pretesting for development purposes.

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

Work Completed

This experiment will be called from now COSIMA (= controlled single rod blowdown simulation experiment Karlsruhe).

Electronic data processing and computerized control of blowdown using the CALAS-system is ready for operation and has been tested. A flexible control program including direct data input from the experimental area to the computer has been provided, as well as a quick-look evaluation possibility, to be used immediately after experiments.

A first computer-controlled blowdown experiment has been performed successfully.

Essential Results

A first evaluation of the experimental data showed that the test instrumentation works as expected - this also holds for the recently developed true-mass-flow-meter (for transient two phase flow measurements) and for the pyrometric device for measuring cladding temperatures.

The test rig now is ready to start the full experimental operation.

Plans for the Near Future

The next experiments (about 20) with the simulation rod will be performed for optimizing of control programs and the main experimental procedures and parameters.

Besides the following activities are planned:

- Further improvement of the true-mass-flow-meter,
- test of the evaluation code with a consistent set of measured data,
- and preparation of the indirectly heated test pin for heat transfer measurements inside the test section.

4237 Investigations on the Fuel Rod Failure in the Second Heatup Phase of a Loss-of-Coolant Accident.

In-pile Tests with Single Rods in the DK Loop of the FR2 Reactor.

(B. Räßple, RBT)

Work Completed

The test program covering six nuclear specimens of the B test series (specimens not subject to pre-irradiation) was performed according to schedule. In three of the tests the vapor bypass recently installed was operating for the purpose of checking.

Design was completed of the handling device for assembling pre-irradiated specimens. The components are being fabricated and part of them are being tested already. Training in handling was performed.

Pre-irradiation was continued of three rigs accommodating 6 rods each.

A modified fuel rod simulator (BSS 07) was mounted for additional investigations of temperature measurements and for testing the BSS version capable of ballooning.

The comparison calculations with respect to the tests performed at IKE were continued using the data obtained in the BSS 05 test series.

A report was published on the methods and results of dimensional characterization of the cladding tubes of all nuclear rods.

The data of test N^o A 1.1 and the results of the post-test examinations - without metallurgical evaluation - of the fuel rod sample were summarized in a document.

Essential Results

Five tests of the B series yielded results on the burst pressure and burst temperature, which lie well within the scattering band of the failure data obtained in out-of-pile tests performed by other workers. In one test the rod remained intact due to the absence of internal pressure during the test.

The steam flow past the specimen through the steam bypass in its present state had a measurable influence on the transient temperature rise of the cladding.

The coupling and welding device for assembly and instrumentation of pre-irradiated specimens was completed and tested and is now ready for operation.

The pre-irradiation rig provided to reach a burnup of 20,000 MWD/t_U is approaching its target burnup.

The comparisons made between calculated and measured temperatures of BSS 05 reveal once more a steeper temperature rise in the test during the first 12 - 15 seconds. The agreement was good for the rest of the plot. The deviation in the temperature range around 800 °C is less than 5 %. The representation of the heatup gradients makes clearly visible the c_p variation of Zry in the range of phase transition. At a higher power level this effect is even more pronounced.

Plans for the Near Future

First BSS 07 will be used in several runs for testing the concept of a BSS capable of ballooning, and for testing a new mixer design, and to reduce the errors in temperature measurements. Subsequently, fabrication will start of a series of fuel rod simulators capable of ballooning.

Priority will be given to the completion and testing of the handling components for pre-irradiated specimens as well as to mounting of 4 to 5 specimens of the 20,000 MWd/t_U burnup level (F series). Immediately after mounting the test will be performed in the FR2 reactor.

The bypass section will be calibrated and retested during the BSS 07 test.

The influences of the bypass steam flow on the heatup behavior of the rod cladding will be the subject of theoretical investigations to be performed at IKE; the calculations relating to the electrically heated rods will be terminated.

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 13 fuel rod simulators for the bundle experiment by means of improved photoscanning (temperature distribution).
- Experimental verification of the theoretical model of the capillary pressure measuring system.
- Experiments on separate effects in shortened fuel rod simulators.
 - .. non-adiabatic and adiabatic experimental conditions
 - .. indirect heating of unconstrained empty cladding tube sections.
- Bundle heating experiments with flooding for functional checks.
- Burst experiment on a full length fuel rod simulator in a quasi-adiabatic environment with steam.
- Functional check of quotient pyrometer.

Essential Results:

For measuring the temperature distributions in the rods the photoscanning method was improved by determining correction isotherms. Photoscannings were completed for the heater rods of thirteen full length fuel rod simulators.

For the capillary pressure measuring system a relation was obtained which allows the actual pressure development at the point of the expected balloon to be calculated by taking into account the temperature distribution over the capillary. A number of experiments carried out at different temperature levels showed good agreement with the theoretical results.

Comparative cladding tube burst experiments were performed on shortened fuel rod simulators in air under adiabatic and non-adiabatic experimental conditions, the shroud tube being directly heated only in the case of adiabatic experimental conditions. The adiabatic experiment resulted in slightly higher burst temperatures, slightly lower burst pressures, but considerably higher circumferential burst strains due to much smaller azimuthal differential temperatures.

Three bundle heating experiments with subsequent flooding were performed. They served for commissioning and checking the loop for bundle tests and for verification of the improved service program for the display and on-line representation.

A first integral test with a full length fuel rod simulator in a nearly adiabatic steam atmosphere produced the following results:

- Circumferential burst strain of 51%.
- Circumferential strains in excess of 33% limited to lengths of approximately three rod diameters.
- Burst temperature and burst pressure similar to the shortened fuel rod simulators.
- Deformation shape also similar to the shape in the shortened fuel rod simulator tests, despite of minor azimuthal differential temperatures.
- Practically no strains at the points of spacers.

Plans for the Near Future:

- Further single rod tests on full length fuel rod simulators
- Bundle experiments in steam and with flooding.
- Further experiments on separate effects accompanying ballooning of shortened fuel rod simulators.
- Continuation of functional checks and calibration of the quotient pyrometer.
- Supporting theoretical work.

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

Work Completed

120 tests have been performed with a row of 5 rods using grid plates as blockage simulators to study the two-phase flow passing through the uniformly blocked channels and to analyse its cooling effect upstream and downstream of the blockage. To complete this series rods with sleeve blockages have been prepared.

In preparation for tests with a 25 rod bundle, heater rods and the test section have been ordered.

The evaluation of the tests performed was continued.

Essential Results

The results were obtained in tests with forced feed at constant flooding rates and with two different plate type blockage simulators reducing the cross section of all subchannels uniformly by 62 % and 90 %, respectively. Comparing the measured transient temperature behaviour for tests with the same flooding rate in blocked and unblocked configurations it can be concluded:

The presence of the blockage plate

- improves the heat transfer downstream of the blockage plate as an effect of the atomization of water droplets in the two-phase flow when passing through the blockage.
- does not change the heat transfer upstream and very far downstream of the blockage plate significantly.

Plans for the Near Future

- Tests in a row of 5 rods are continued using sleeve blockages.
- Testing with the 25 rod bundle will start in early 1978.
These tests will be performed with both uniform blockages and blockages covering only a group of channels.

4240 Core Meltdown of LWR

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

Work Completed

In the reporting period experiments with bundles of 7 fuel rod simulators and 36 reflector rods were performed in non oxidizing (He) and oxidizing atmosphere (He / 20 % O_2). The supply of oxygen was limited, so that less oxygen was available than was necessary for the full oxidation of all the rods. In this way we intended to simulate the limited amount of steam. In the oxidizing atmosphere some of the bundles also contained spacers. The central rod was heated with separate control, or was unheated and contained solid pellets.

Results

The bundle experiments in He should give us mainly information on the refreezing behaviour of the melt between the rods. The experiments show that the melt tends to refreeze between the rods, rather than to drop down. Solidified droplets can be found at all heights of the bundle.

With large amounts of melt the molten material tends to solidify on the bottom electrode as a lump, the vertical dimensions of which are larger than the horizontal. The melt refreezing between the outer rods of the heated center forms "walls", so to speak. On the other hand, the melt penetrates into the holes of the water cooled electrodes.

These results can be translated to the behavior in the core, i.e., it is conceivable that:

1. There may be the formation of a solidified bottom layer above the residual water of an initially flooded core.

2. In a dry core the melt may penetrate the groundplate, which heats up together with the core.

The bundle experiments in an oxidizing atmosphere with lack of oxygen show that there exists a strong axial dependency of the oxidation. During upward streaming along the rod the oxygen is consumed. The oxidation begins at the lower end and is limited to a region depending on the total amount of oxygen available.

Thus, in a bundle experiment, only the lower half of the central rod was so heavily oxidized as to avoid melting of the can when the melting temperature of Zircaloy was exceeded. For this experiment only half of the necessary oxygen was available.

An additional supply of oxygen on one side of the central rod enlarged the oxidized region on this side only. From this it can be seen that the formation of quite different oxide layers close together is possible when only the oxygen content of the adjacent atmosphere is varying analogously.

Even in these experiments with oxygen deficiency, the oxide layers formed between spacer and can were thick enough to prevent the melting of the can by the molten spacer.

Plans for the Near Future

In the next reporting period the bundle experiments in oxidizing atmospheres with limited oxygen will be continued in steam with varying amounts up to excess. Parallel to this experiments on rods with solid pellets will be conducted in the radiation furnace. The experiments on the influence of the absorber rods will be started.

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

Work Completed

The release experiments with inactive melt material composed of 30 g-Corium samples have been completed. After installing a Ge(Li) detector at the rear side of the primary filter and after accurate insulation against the HF-field of the power supply it is now possible to make on-line measurements of released radioactive fission and activation products. Six melt experiments have been carried out with activated steel and zircaloy specimens for testing this technique.

An additional Ge(Li) system has been installed and is being calibrated for off-line measurement of the activities which remain in the crucible after the melting experiment and also of those which are associated with the aerosols deposited on the walls of the transport line and on the membrane filters.

Several test runs for producing slightly active fissium pellets have been completed successfully. The homogeneity of the first batch of 20 fissium pellets containing nuclides of the elements I, Cs, Se, Te, Cd, Mo, Sb, and Ag was determined. Furthermore, two release experiments under air were carried out with Corium-E samples containing two of these 5g-fissium pellets.

Essential Results

It was found that the release of the main corium components depends in the following manner on the most important parameters:

- temperature: increase of about 2 orders of magnitude in the range of
2100°C...2900°C
- atmosphere: for Fe, Cr, Co, Mn the release is similar in Ar and air,
but seems to be nearly one order of magnitude less in
steam; U appears to be much more volatile in air than in
argon or steam
- pressure: in argon, a strong influence on the boiling point of the
metallic corium components was found; after exceeding the

boiling point (2600°C at 0.8 bar, 2800°C at 2.2 bar) the release increased very rapidly; under oxidizing conditions this effect was less marked (in air) or not at all apparent (in steam)

flow rate: there is an influence on the transport behavior of the higher volatile products such as Mn, Sb, and Sn. At 10 l/min flow rate and equal total release, the fraction of these products which reach the filters is 3-10 times higher than for 1 l/min.

The experiments with activated steel and zircaloy led to a general agreement with the earlier release values determined by activation analysis (AA). For Zr however, a lower release fraction was found which is due to the fact that in the case of AA during irradiation an additional amount of Zr-95 is formed by the fission of uranium and so the resulting values for Zr are always too high.

Two release experiments were carried out with fission under air (1.5 bar). The following table contains the results for the total release, i.e. the sum of the activities found on the walls of the transport line and on the membrane filters, in percent of the initial inventory:

T_{\max} (°C)	Mo	Sb	Se	Cs	Ag	Cd	Te
2000	1.96	2.23	25.42	27.57	28.7	35.25	42.09
2160	2.53	4.10	28.54	26.14	34.4	33.86	39.88

These values should be seen as preliminary results because a total balance which also takes into account the fission products remaining in the melt has not yet been established.

Plans for the Near Future

The next steps will be:

- modification of the melting plant SASCHA for operation with a new power supply which allows production of corium melts in the kg-range; for this purpose a new HF-transmission and a heating/cooling system with increased power are also needed.

- adjustment of the transport and filter line to the higher aerosol flows expected in the course of release experiments with larger melt masses,

- investigation of the physical and chemical characteristics of fission pellets with varying composition.

4244 Constitution and Reaction Behaviour of LWR-materials under Core
4245 Melting Conditions

(H. Holleck, S. Nazare, G. Ondracek,, A. Skokan, IMF I)

Work Completed

1. The reaction behaviour of fission products in the core melt was investigated under oxidizing conditions.
2. Further melting experiments with corium+concrete were performed in an inert atmosphere. Concrete containing limestone aggregates was also used .

Essential Results

1. The reaction behaviour of the fission products can be explained by the different relative stabilities of the oxides. While the rare earth metals and zirconium are oxidized in the fuel, Mo and Tc are oxidized at the same time as the steel components enter the oxide melt. The platinum metals remain in the metallic state.
2. The oxide part of the corium melt is rapidly mixed up with molten concrete containing limestone aggregates. According to the aggregate type the following differences are observed:
 - a) silicate: The solidification of the oxide melt leads to a vitreous material even if it is cooled down slowly ($1^{\circ}\text{C}/\text{min}$).
 - b) limestone: The solidified oxide melt contains several crystalline phases (predominantly $\text{Ca}_2(\text{U,Zr})\text{O}_4$). The solidification temperatures of the melt are higher than those of the corresponding silicate type melt.

Plans for the Near Future

The chemical interactions in the complex system containing corium+concrete +fission products with regard to reactions and vaporization behavior will be checked by further experiments.

4246 Experiments with Simulated Large Core Melts
(D. Perinić, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Seuka, RBT/IT)

Work Performed

The following activities were performed to design and develop a melting facility:

- calculation of costs for the melting facility,
- determination of space requirements,
- calculation of pressure waves generated in case of a hydrogen and steam explosion, respectively, in the safety vessel,
- calculation of the propagation of the melting front in concrete crucibles.

In addition, preliminary tests were performed and evaluated to investigate the phenomenology of the core melt/concrete reaction related to the development of the melting technology and measuring technique.

- corium melts (<0,5 kg)
- cast iron melts (<160 kg)
- thermit melts (<250 kg)

Results obtained

1. Separation of metallic from oxide melts, with the metal underlying the oxide.
2. Jets of hydrogen flame.
3. With flat melts, toroidal circulation cells, downward in the middle.
4. Highly viscous bubbles in oxide melts.

The 250 kg Fe-melting experiments by Thermite reaction and with concrete crucibles have shown a strong dependence of the erosion velocity on the pool temperatures. The velocities varied from 40 mm/min to 5 mm/min with temperatures from 3000°C to 1500°C. In the temperature range of 1800°C this agrees well with information of other experiments. The radial velocities were lower than the axial.

5. The melting cavity takes the shape of a pear.
6. A dehydrated layer of 45 mm maximum thickness joins the melting front, followed by a partly dehydrated layer of 55 mm maximum thickness.
7. By use of a fibreglass reinforcement and a double shell design of the concrete crucible a configuration was designed which operated in a reliable manner.
8. Proven measuring and monitoring techniques were found to be:
 - a) thermocouples embedded in concrete,
 - b) two color pyrometers,
 - c) dip-in thermometers,
 - d) contact microphones,
 - e) gas sampling,
 - f) steam detector,
 - g) television camera,
 - h) remotely operated movie camera.

4247 Hydrodynamical and thermal models for the interaction of a core melt with concrete

(H. Alsmeyer, L. Barleon, J. Koster, I. Michael, U. Müller, M. Reimann, IRB)

Work Completed

A model was developed to describe the downward penetration rate of a core melt on a horizontal layer of concrete. The heat transfer processes are assumed to be dominated by the gas flow released from the decomposing concrete and forming an unstable gas layer between concrete and core melt. The departure of gas bubbles from the unstable layer is similar to the film boiling phenomenon. The downward heat flux is transmitted by conduction and radiation through the unstable layer. The concrete decomposition model includes steam and gas release fronts influencing the temperature distribution in the concrete.

Essential results

The downward heat fluxes and the concrete decomposition rates for liquid steel on concrete were computed for a large temperature range. The results agree in the large with the experiments of SANDIA-Laboratories (SANDIA 76-0369) and with the thermite experiments recently carried out at GfK, Karlsruhe.

Plans for the Near Future

Applicability and limitations of the gas film model will be considered. The model will be extended to describe the thermal interaction of core melt and concrete for inclined and vertical walls.

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, C. Sack, W. Schöck, LAF I)

Work Completed

The NAUA model describing aerosol behavior has been further developed.
The specification of the experimental facility was completed.

Essential Results

The improvement of the NAUA model has been advanced so far, that further
improvements can be achieved only with the aid of experimental results.
Comparison of the different model versions showed that the recently built
in temperature functions have only small influence on the results, but
that the greatest uncertainties are due to the lack of the data of the
microscopic aerosol processes.

Comparison with the CORRAL II code were done, too. Concerning the aerosol
removal, the NAUA code is more realistic because it calculates the aerosol
behavior directly.

CORRAL needs input data for aerosol removal calculations, which are not
known in most cases. The results obtained with both codes are quite
different, especially for long term calculations.

The construction of the experimental facility is nearly completed, the
installation will be done in September.

The instrumentation for the steam condensation experiments is completed. The fast techniques for measuring droplet growth and related thermodynamic data have been tested. The data acquisition system has also been tested. Preliminary experiments for generating sufficient concentrations of UO_2 -aerosol were successful.

Plans for the Near Future

After the installation and testing of the facility the experiments on steam condensation in presence of aerosol will be started.

4320 Theoretical and Experimental Investigations of the Atmospheric Diffusion of Radioactive Gases and Aerosols
(H. Dilger, J. Hiller, W. Hübschmann, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

Work completed

In the direct environment (up to 15 km) five diffusion experiments were carried out using chemical tracers. The tracers were emitted simultaneously from the meteorological tower at 60 and 100 m heights. Three of the experiments were performed at night under conditions of partly stable stratification.

To investigate the mesoscale (above 15 km distance) transport and diffusion in the atmosphere tetrons - balloons of constant volumes - were made to ascend and tracked by radar. Two of these flights took place at the Philippsburg site, another two near Bremen. In Bremen also tracking of a transponder - a sender-receiver-unit - was tested. The transponder was - in this first test - carried by an airplane since it weighs too much to be carried by a tetron yet. The flights showed the limitations of the radar range when operating without a transponder as well as the possible improvements by use of a transponder.

A 15 m high meteorological tower has been operated close to the Karlsruhe Nuclear Research Center on flat pasture ground, allowing to compare the measured parameters characteristic of the atmospheric turbulence with the parameters measured at the Center (forested area). A first glance at the vector vane measurements for category D (neutral) showed essentially lower turbulence above the pasture than above the forest.

Essential Results

The evaluation of the experiments performed at 60 m emission height allowed to draw a preliminary σ_y and σ_z curve family also for this emission height. It supplements the curve families valid for 100 m emission height, which rely on a broader statistical basis. Further experiments to be carried out at 60 m emission height will be necessary to confirm the results obtained up to now.

The procedure of transforming the experimentally determined diffusion parameters of the roughness grade III (forest) into the parameters of lower roughness grades (II and I) has been improved such that the influence of the surface structure on σ_y , which is strong in forested areas (grade III) close to the source, is separated from other effects.

Precipitation measurements were evaluated with regard to intensity and duration; moreover, a procedure was developed allowing to assess the transferability of a category definition scheme to other sites.

Plans for the near future

The tracer experiments will be continued and concentrate on stable stratifications prevailing at night. The field measurements will be carried on in 1978. Tetroon flights will be performed in the Upper Rhine Valley, but more frequently only after a light-weight transponder will have been developed.

4320 TUH Modelling of Pollutant Dispersion in the Atmosphere
under Varying Conditions in Large Regions
(H. Schultz, E. Voelz, C.-D. Wüneke, TU Hannover)

Work Completed

In version A of the computer code XPIC for simulating the turbulent diffusion of a single cloud, it is tested experimentally and theoretically in which way the parameters of the computer code and of the diffusion model will affect the calculations of the concentration time integral on the ground. As far as necessary, the code is fitted to the results of these tests. In some cases, these results and their consequences are valid in version B, too. Furthermore, attempts have been made to optimize the code for a more convenient computation time.

Essential Results

Version A as well as version B should now be able to simulate a given physical model without uncertainties caused by computer or by model techniques. Therefore it is now possible to investigate the meteorological influences on the turbulent diffusion and transport, in so far as these influences can be described by analytical forms.

Plans for the Near Future

In version B the computation time shall be further reduced by program optimization. In both versions the results shall be given in the form of automatically drawn isopleths of the concentration time integrals. The effects of various distributions of the turbulent diffusion constants shall be analysed under different conditions, e.g. under various atmospheric stabilities or under different surface conditions.

4330 Investigation of the Radiological Consequences of Reactor
Accidents under Probabilistic Aspects
(W.Hübschmann, S.Vogt, ASS; A.Bayer, R.Kalckbrenner,
M.Schückler, INR; F.Horsch, PNS-PL)

Work completed

In connection with the German pressurized water Reactor Safety Study the consequence model is being developed. The so-called long range model in the subroutine UFO-Bas has been completed. The subroutine comprises the atmospheric dispersion and deposition of fission products and the calculation of local dose equivalents. The calculation is independent of the wind direction and therefore suitable in the long range (above about 30 km distance) in which neither the exact population distribution nor the wind direction changes have an essential influence on the results.

The subroutine UFO-DOWI of the consequence model which - starting from local doses - calculates the health effects of the population after severe accidents has been completed in the version for phase A of the German Reactor Safety Study. The dose factors which will be used in this study have been scrutinized and the population data of a reference site has been evaluated to a form which fits the programme.

For the calculation of the radiological impact via the ingestion pathway age dependent food consumption data have been evaluated.

Essential results

The consequences of selected accidents for which the release sectors had been defined by the GRS have been calculated. They were presented as health effects/probability distributions for the early fatalities, latent cancer fatalities and for the genetic effects. Already the local dose distributions (as an intermediate result) showed that with the expected thermal buoyancies of the emitted radioactive clouds the number

of early fatalities strongly depends on the residence time of the population in the contaminated area. The 24h-bone marrow dose by the radiation from deposited fission products exceeds for all atmospheric conditions by far the dose due to the external radiation from the passing cloud or to inhalation.

Plans for the near future

The stored data will be evaluated in such a way that the time dependence of the local doses can be displayed. In cooperation with the IFU and other external research organizations the presently in UFO-DOWI integrated model for evacuation, relocation and decontamination etc. which is in close agreement with that in WASH 1400 will be thoroughly revised.

After implementation of the "short range" model computer runs will be performed with the same input data which were used for the runs with the "long range" model in order to get a quantitative idea on the profit. In preparing the risk analysis for the whole FRG atmospheric diffusion and population data for all sites will be collected and revised.

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. Optimization of a Liquid Cleanser for Decontamination Purposes

Work Completed

An aqueous mixture of thermal stable tensides has been developed and tested for their cleansing effectiveness in combination with complexing agents and in relation to different pH-values. With the most effective material combination an alkaline cleanser concentrate was formulated and tests for decontamination efficiency with samples of stainless steel, glass, PVC-floorings and coatings.

Essential Results

By adding thermically stable amino acetates or polyphosphates to aqueous tenside mixtures, having a controlled foam generation rate, a cleanser could be found. The decontamination efficiency is the same as that of thermal less stable citric acid containing products.

Using the Papan-Dekopan cleanser as a base for comparison, the new cleanser, optimized in respect to thermal stability, can be characterized as follows:

- The decontamination efficiency is slightly better.
- With respect to the treatment of the radioactive decontamination liquids the foam generation rate was further reduced.
- The thermal stability essential for fixing the liquid concentrates in bitumen was achieved.

Plans for the Future

After some work regarding the stability of the cleanser concentrate this work will be finished. A final report will be prepared and published.

2. Decontamination of metal surfaces with molten salts

Work Completed

After termination of laboratory experiments a pilot facility for the technical demonstration of this decontamination procedure was planned and installed. It consists of an induction heating system for heating the components to be decontaminated and a powder spraying apparatus for application of the salt powder to the surface of the component. Decontamination tests have been carried out with pieces of a condensator tube provided from the Lingen power station.

Essential Results

The overall reduction of the dose rate of tube pieces was about by a factor of 0.3 during a heating period between 45 min and 80 min. To find the optimal results the pieces have been cut in small samples. The residual activity was determined. The evaluation of the measurements showed that

- the contamination of the tube was evenly distributed over the surface and
- the residual activity was about 5%, i.e. $0.07 \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ in that area of the pieces which had been heated to optimal working conditions.

These results are consistent with respect to the laboratory experiments (residual activity 1% to 5%).

Plans for the Future

The work on this decontamination method is finished. A final report is being prepared.

3. Optimization of the Decontamination of Big Components

Work Completed

Decontamination experiments have been carried out with solutions of potassium permanganate, oxalic acid, citrates with the addition of complexing agents in different concentrations. The pretreatment of the samples with alkaline permanganate prior to other treatments was started. To substitute the currently used dipping technique a lab facility for decontamination experiments with moving liquids was installed.

Essential Results

Decontamination tests with stainless steel samples gave the following results

- The optimal concentration for oxalic acid is 1%. Oxalic acid in this concentrations yields the best decontamination results.
- Results from citric acid/oxalic acid mixtures are similar as long as the concentration of which is low.
- Results with ammonium - or sodium citrates are poor, regardless of additions of complexing agents.
- To gain better results a pretreatment of one hour with alkaline permanganate is inevitable necessary. The concentration of the permanganate solution can be less than 18 g NaOH and 3 g KMnO_4 per 100 l water.

Plans for the Future

Experiments with the moving liquid technique are continued, aimed at being finished at the end of 1977.

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

Work Completed

From an undisturbed site, soil samples were taken for Pu-239,240 analysis. Each sample represented a 2 cm thick layer.

The Pu-239 distribution pattern was analysed by checking to a computer model. The mean residence time τ was used as a transport parameter in the model. The validity of τ was proved by comparing the calculated contamination values with the measured amount of contamination in the field.

Essential Results

The migration velocity of the 50% of PuO₂ contamination at the investigated loess loamy site was calculated to be $v_{\text{PuO}_2} = 0,59$ cm/a. In the vicinity of the Pu-sampling site HTO-tracer experiments indicated an average water percolation velocity of $v_{\text{HTO}} = 100$ cm/a. From these values a dimensionless relative PuO₂ migration velocity

$$v_r(\text{PuO}_2) = v_{(\text{PuO}_2)} / v_{\text{HTO}} = 5,9 \cdot 10^{-3}$$

followed.

Plans for the Future

Subsequent investigations will concentrate on the relation of PuO₂-mobility to soil physical properties such as specific surface, ion exchange, porosity, organic carbon content and carbonate content.

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, RBT-IT)

Program of Investigations

1. General Analysis

- Dismounting, crushing - steel/concrete
Conditioning of large components
Auxiliary systems
- Means of reactor component transportation from nuclear
power stations
- Waste conditioning
- Time Schedule for decommissioning
- Special arrangement of reactor components
- New reactor lines
- Typical working program

2. KFK report

- Verification, completion and harmonization of
PNS reports 60/75, 61/75 and 11/76

Work Performed

Investigations relating to 1. were carried on and completed during
the period of reporting.

Work on 2. started by the end of the period of reporting.

Results

The following possibilities are eligible in principle for waste
conditioning:

- Conditioning in the nuclear power station using exclusively
the means available in the nuclear power station (feasible
only for small sized low-level components).

- Conditioning in the nuclear power station with assistance from outside (preferably for decommissionings due to age).
- Conditioning in the nuclear power station of dismantable facilities (both in case of decommissioning due to age and failure and in case of component replacement).
- Conditioning in a central facility (both in case of decommissioning due to age and failure and in case of component replacement; major transport problems might be encountered, depending on the size of the component).

Time scheduling covers all activities required to decommission a nuclear power plant. A subdivision into the following steps of planning is proposed:

- Preliminary planning (selection of concept followed by planning of true-scale decommissioning).
- Detailed planning (choice of individual steps, tools, auxiliaries, safety and health physics program).

The detailed planning must be paralleled by a number of activities as a preparation of decommissioning.

The accessibility of components and the space conditions in the reactor contribute decisively to the amount of radiation doses taken up by the personnel during decommissioning work.

The space conditions in light water demonstration reactors have to be generally classified as insufficient.

In recent light water reactors a tendency can be clearly recognized towards a more favorable arrangement of components and fittings.

It is recommended to take into account more than previously future decommissioning (complete removal) at the planning stage for a nuclear power plant.

These are the problems of major importance:

- Ratio of dimension to space available.
- Ratio of component weight to carrying capacity of lifting devices.
- Increased dose rate.

The following procedure is recommended for decommissioning a nuclear power plant:

- Removal of all inactive components not required for future work.
- Withdrawal and conditioning of all parts having low surface dose rates.
- Withdrawal and conditioning of large components.

DETAILLIERTE

BERICHTE

4100 UMWELTBELASTUNG DURCH KERNKRAFTWERKE UND WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGEN

4110 Spaltjodabtrennung in Kernkraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen

(J.G. Wilhelm, G. Birke, H. Deuber, H.-G. Dillmann, J. Furrer,
R. Kaempfer, H. Pasler, E. Rudolf, A. Weinert, LAF II,
K. Jannakos, RBT/PC)

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

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

Tropfenabscheider für Störfall-Umluftfilter

Die Prüfung eines speziell angefertigten Tropfenabscheiders nach dem Fangrillenprinzip ergab, daß ausreichende Abscheidegrade nur bei Druckverlusten erreicht werden, die bei Störfall-Umluftfiltern wegen der begrenzten zur Verfügung stehenden Antriebsleistung (Notstrom) und der stark beeinträchtigten Thermokonvektion nicht zulässig sind.

Filterelemente aus neuerdings zur Verfügung stehenden Metallfasern von 4 bis 25 µm Durchmesser lassen hohe Abscheidegrade bei geringen Druckabfällen und zusätzlich hohe Beständigkeit gegen Temperatur, Druck und Strahlung erwarten. Aus entsprechenden Fasern sollen Schwebstofffilterelemente und Tropfenabscheider angefertigt werden, die unter Störfallbedingungen einsetzbar sind. Im Rahmen eines Zusammenarbeitsvertrages mit einer Industriefirma werden z. Z. die ersten Prototypen zu Testzwecken konstruiert und gebaut.

Theoretische Berechnungen

Die zur Auslegung von Störfall-Umluftfiltern durchgeführten Parameterstudien wurden unter Berücksichtigung der 1976 durch die Reaktorsicherheitskommission festgelegten Freisetzungswerte, der Strahlenbelastung und Druckabfälle sowie der Reinigungskonstanten neu gerechnet.

Der zu filternde Volumenstrom wurde auf 1/3 des Sicherheitsbehältervolumens in m^3/h festgelegt, bei einem 1300 MW_e Druckwasserreaktor also auf 20.000 m^3/h (bei 60.000 m^3 Bauvolumen).

Die maximalen Störfallfreisetzungen wurden zu 10 % der Halogene, 5 % der leichtflüchtigen und 0,1 % der schwerflüchtigen Isotope in Form von Aerosolen, elementarem und organisch gebundenem Jod angenommen.

Die Abscheidung und Ablagerung von Spaltprodukten im Sicherheitsbehälter wurde nicht berücksichtigt.

Von den leichtflüchtigen Isotopen wurden 20 Einzelisotope gemäß Tab. 4111-1 in Ansatz gebracht.

Aufgrund dieser Annahmen wurden die Rechnungen zur Temperatur- und Strahlenbelastung erneut durchgeführt (H.-G. Dillmann, A. Weinert, J.G. Wilhelm, Störfall-Umluftfilter in Kernkraftwerken - Stand der Entwicklung, Reaktortagung 1977, Mannheim). Es ergaben sich gegenüber den früheren Rechnungen geringfügige Änderungen. In Abb. 4111-1 sind die Temperaturverläufe für den Normalbetrieb in der unteren Kurve und für den Betriebsfall „ausgefallener Ventilator“ für 4 Kaminhöhen angegeben.

Zusätzlich untersucht wurde die Erhitzung der Atmosphäre des Sicherheitsbehälters durch die Zerfallswärme der freigesetzten Spaltprodukte. Nach obigen Annahmen ist 4 Stunden nach Eintreten der Spaltproduktfreisetzung mit einer Gesamtleistung von ca. 300 kW zu rechnen, davon werden ca. 200 kW im Störfall-Umluftfilter freigesetzt.

Mit der konservativen Annahme von 5 W/m^2 grad als Wärmeübergangswert der Stahlhülle von 60 m Durchmesser ergeben sich zusätzliche Temperaturerhöhungen im Sicherheitsbehälter von 6°C .

Entwicklung von Prüfverfahren für Schwebstofffilter unter simulierten Reaktorstörfallbedingungen - Erzeugung von Feststoffaerosolen

Aus Sicherheitsgründen wird der Filterprüfstand TAJFUN anstelle eines Gasbrenners mit einem elektrisch betriebenen Plasmabrenner ausgerüstet. Beim Hersteller einer Plasmaspritzanlage waren 1976 Versuche durchgeführt worden, die gezeigt hatten, daß die Erzeugung geeigneter Prüfaerosole durch Verdampfen von Silberjodid im Argonplasma möglich ist. Zu untersuchen blieb das Verhalten des Plasmagenerators und der Pulverdosiereinrichtung unter erhöhtem Druck.

Um einen Betrieb unter diesen Bedingungen durchführen zu können, wurde ein geeigneter Testbehälter konstruiert und gebaut. Der Behälter wurde für einen Druck von 10 bar ausgelegt und mit einem Sicherheitsventil sowie einem einstellbaren Überströmventil ausgestattet, um den Generator bei verschiedenen Drücken betreiben zu können. Das Aufdrücken des Behälters erfolgte mit Preßluft. Die Plasmapistole wurde mit einer speziellen Halterung an einem Ende des Behälters angebracht.

Bei den Versuchen zeigte sich, daß sowohl die Zündung der Pistole als auch kontinuierlicher, stabiler Betrieb bei allen Drücken bis zu 5 bar möglich ist. Die Strom- bzw. Spannungswerte mußten dabei gegenüber Normaldruck nur unwesentlich erhöht werden, so daß die bei der Aerosolerzeugung einzusetzende elektrische Leistung zwischen 6 und 8 kW liegen wird. Ein großer Teil der entstehenden Wärme (ca. 50 %) wird durch das Kühlwasser der Plasmapistole abgeführt. Die Temperatur der Pistole stieg jedoch nach längerem Betrieb (bei einer Außentemperatur von ca. 22°C) auf etwa 90°C an. Diese Temperaturerhöhung resultiert vor allem aus der Aufheizung des Leitrohres, das unmittelbar vor der Pistolenmündung angebracht ist. Dieses Rohr muß doppelwandig und wassergekühlt ausgeführt werden, um eine noch stärkere Temperaturerhöhung der Plasmapistole zu vermeiden. Die Wärmeabfuhr durch die zusätzliche Kühlung erwies sich zudem als Voraussetzung, um beim Prüfstandsbetrieb Luftfeuchten nahe der Sättigung einstellen zu können.

Nach dem erfolgreichem Abschluß der Druckversuche beim Hersteller konnte die Plasmaspritzanlage endgültig bestellt werden, die Lieferung erfolgt Mitte 1977. Gleichzeitig liefen die Konstruktionsarbeiten für die Integration des Aerosolgenerators in den Kreislauf von TAJFUN an.

Der Einbau des Aerosolgenerators soll im Herbst 1977 erfolgen, so daß in diesem Jahr mit den Prüfstandsversuchen an Schwebstofffiltern begonnen werden kann.

Tab. 4111-1 Für die theoretischen Berechnungen berücksichtigte Isotope.
(Die Leistung ist in Watt angegeben für 100 s Abklingzeit, bezogen auf
3000 MW_{th} und 3 Jahre Vollastbetrieb).

Isotop	Halbwertszeit	Leistung	Leistung
Halogene		β	γ
J 130	12,36 h	$5,6 \cdot 10^{-2}$	$1,6 \cdot 10^{-1}$
J 131	8,04 d	$8,8 \cdot 10^4$	$1,7 \cdot 10^5$
J 132	2,38 h	$3,4 \cdot 10^5$	$1,6 \cdot 10^6$
J 133	20,8 h	$4,1 \cdot 10^5$	$6 \cdot 10^5$
J 134	52,0 min	$5,5 \cdot 10^5$	$2,1 \cdot 10^6$
J 135	6,59 h	$3,6 \cdot 10^5$	$1,3 \cdot 10^6$
leichtflüchtige Isotope			
Se 81 ^m	18 min	$5,71 \cdot 10^2$	$7,5 \cdot 10^{-1}$
Se 83	22,4 min	$1,2 \cdot 10^4$	$6,9 \cdot 10^4$
Rb 88	17,8 min	$9,2 \cdot 10^5$	$4,2 \cdot 10^5$
Rb 89	15,2 min	$5,3 \cdot 10^5$	$1,4 \cdot 10^6$
Sr 89	50,5 d	$3,2 \cdot 10^5$	$4,6 \cdot 10^3$
Sr 90	28,5 a	$9,6 \cdot 10^3$	-
Sr 91	9,5 h	$4,4 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^5$
Sr 92	2,71 h	$1,7 \cdot 10^5$	$9,5 \cdot 10^5$
Ru 103	39,35 d	$3,6 \cdot 10^4$	$2,7 \cdot 10^5$
Ru 105	4,44 h	$1,5 \cdot 10^5$	$2,4 \cdot 10^5$
Ru 106	368 d	$2,5 \cdot 10^3$	-
Te 127	9,35 h	$9 \cdot 10^3$	$3,8 \cdot 10^4$
Te 129	69,6 min	$7,1 \cdot 10^4$	$2,8 \cdot 10^4$
Te 131	25,0 min	$3,1 \cdot 10^5$	$1,5 \cdot 10^5$
Te 133	12,5 min	$2,7 \cdot 10^5$	$9 \cdot 10^5$
Te 133 m	55,4 min	$5,2 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^4$
Te 134	41,8 min	$1,3 \cdot 10^5$	$5,4 \cdot 10^5$
Cs 134	2,06 a	$2,5 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^5$
Cs 137	30,1 a	$1,2 \cdot 10^4$	-

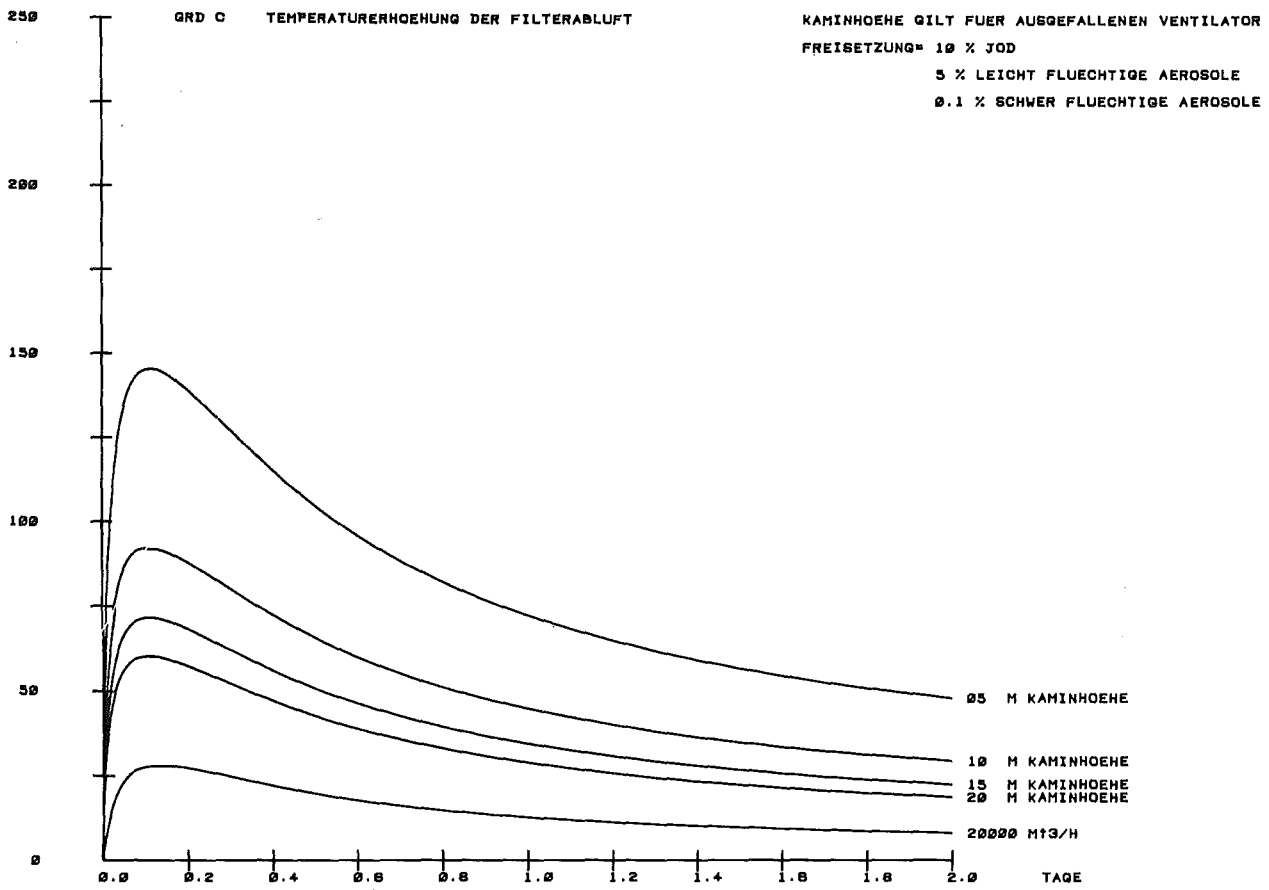


Abb.: 4111-1 Temperaturverläufe für den Normalbetrieb des Störfallumluftfilters mit 20.000 m³ /h (unterste Kurve) und für den Betriebsfall „ ausgefallener Ventilator " für 4 Kaminhöhen (5m, 10m, 15m und 20m).

4112-1 Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen

Prototypische Auflöser-Abgas Filterstrecke PASSAT

(J. Furrer, E. Rudolf, M. Tuzcek, R. Kaempffer)

Um eine Jodabscheidung mit hoher Abscheideleistung ($\geq 99,9\%$) verwirklichen zu können, muß das Abgas vor dem Jod-Sorptionsfilter von Schwebstoffen, insbesondere von Tropfenaerosolen, befreit werden. Die PASSAT-Anlage ist für die experimentelle Erprobung von prototypischen Schwebstoff- und Jodfilter-Komponenten ausgelegt. Die Arbeiten zur Jodabscheidung werden im Rahmen von PNS 4112, die zur Schwebstoff-Abscheidung unter PWA 5152/1 durchgeführt. Um eine geschlossene Beschreibung der PASSAT-Anlage zu ermöglichen, werden an dieser Stelle, soweit notwendig, auch Angaben aus den PWA-Arbeiten aufgeführt.

Der Auftrag zur Errichtung der Anlage wurde erteilt. Die Einleitstrecken für Jod und NO_2 wurden ebenfalls in Auftrag gegeben; die übrigen Einleit- und Probenahmestrecken befinden sich im Anfrage-Stadium (Abb. 4112-1). Versuchs- und betriebstechnische Details waren bereits in der Angebotsphase festgelegt worden. Die für Flüssigaerosolherzeugung und Dampfeinspeisung benötigte Wasseraufbereitungsanlage wurde installiert.

Aufgrund der Entscheidung, für PASSAT fernbedienbare Filterkomponenten mit identischer Deckelkonstruktion zur Flüssigaerosol-, Feststoff- und Jodabscheidung einzusetzen, mußten Neukonstruktionen konzipiert bzw. beurteilt werden.

Zur Flüssigaerosolabscheidung wurde von LAF II in Zusammenarbeit mit RBT/M ein neues Filter entwickelt, das sich insbesondere durch einen weitestgehend außenkontaminationsfreien Filtereinsatz auszeichnet. Die Herstellung und mechanische Erprobung der Jod-Filterkomponenten wird durch RBT/IT verfolgt und durchgeführt. Weitere Verbesserungsvorschläge, die aufgrund der an HAUCH gewonnenen Erkenntnisse ausgearbeitet wurden, betreffen die Beheizung der Filterkomponenten und Probenahmestrecken, ferner die Probeentnahmestellen für aerosolhaltige Prüfgase.

Während der noch andauernden Abwicklungsphase für PASSAT waren durch LAF II ferner die Anschlüsse für Betriebsmittel, Prüfmedien und Probeentnahme zu spezifizieren, ebenso die versuchstechnischen Anforderungen an die Steuerung

(Signalisierung, Verriegelungen etc.).

Die Jod-Einspeisung

Für die Einspeisung von großen mit ^{131}J markierten Jodmengen wurde eine neue Apparatur entwickelt. Die Apparatur wird z. Z. in eine belüftete α -dichte Handschuhbox installiert, die mit Aerosol- sowie mit neuentwickelten Jodfiltern versehen ist. Die Box ist ortsbeweglich und kann zu den entsprechenden Einsatzstellen gefahren werden. Die Hauptkomponenten der Apparatur sind die Chemikalien-Vorratsbehälter, das Reaktionsgefäß, die Chemikalien-Dosierpumpe und die abflanschbaren Abfallgefäße für radioaktive Flüssigkeiten.

Das im LAF II erarbeitete Verfahren zur kontinuierlichen Jodeinspeisung basiert auf der Reaktion von Ammonium-Eisen-III-sulfat in einer Vorlage mit zugespeistem mit ^{131}J markiertem Kaliumjodid in saurer Lösung.

Die NO_2 -Einspeisung und Messung

Da eine Abgabe von hohen NO_2 -Konzentrationen über die Abluftanlage der Technikumshalle nicht zulässig ist, muß ein Verfahren zur NO_2 -Einspeisung in einen geschlossenen Kreislauf angewandt werden, bei dem kein NO_2 -haltiges Abgas auftritt. Mit einer Vakuumpumpe wird dem Kreislauf die Menge Luft entnommen, die später, je nach einzustellender NO_2 -Konzentration, durch NO_2 ersetzt werden soll. Die NO_2 -Einleitung erfolgt aus NO_2 -Druckflaschen, die mit Tauchrohren versehen sind, über eine Dosierpumpe und ein Verdampfergefäß. Zur Ermittlung der im Kreislauf herrschenden NO_x -Konzentration ist eine kontinuierliche NO_x -Messung vorgesehen.

Die Tropfen-Aerosoleinspeisung und Messung

Die Einspeisung wird mit Zweistoffdüsen durchgeführt, wobei Druckluft zusammen mit entsalztem Wasser in den Kreislauf eingespeist wird. Die einzubauenden Düsen haben entsprechend den zu erzeugenden Tropfenspektren verschiedene Durchmesser; die Konstruktion richtet sich nach dem gewünschten Spektrum. Das Tropfenspektrum kann außerdem noch durch Veränderung des Luftdurchsatzes und Vordruckes beeinflusst werden. Zur Überwachung des Tropfenspektrums und zur Ermittlung der Abscheidegrade der Tropfenabscheider ist ein Tropfenmeßgerät, das nach der Streulichtmethode mit weißem Licht arbeitet, zum Einbau in den Kreislauf vorgesehen.

Die Feststoff-Aerosoleinspeisung und Messung

Zur Aerosolerzeugung dient ein Aerosolgenerator, der eine Na-Fluoreszeinlösung versprüht. Das Lösungsmittel wird über eine Trocknungsstrecke verdampft, so daß anschließend annähernd kugelförmige, feste Aerosole von einer Korngröße zwischen 0,1 und 1 μm vorliegen (s. Abb. 4112-2). Die Probenahme wird mit isokinetischen Sonden durchgeführt. Es wird ein Teilstrom aus dem Kreislauf über Kernporenfilter gezogen und wieder in den Kreislauf zurückgespeist. Auf den Kernporenfiltern scheiden sich die Aerosole ab und können anschließend analysiert werden. Die Analyse erfolgt durch spektralfluorimetrische Konzentrationsbestimmung sowie durch elektronenmikroskopische Aufnahmen. Die Analysen an HAUCH haben die gute Übereinstimmung beider Verfahren erbracht.

Messung von organischen Jod-Verbindungen im Abgas der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

(J. Furrer, R. Kaempffer, R. Gerhard)

Während der KWO-VI-Auflösekampagne wurden aus dem Abgas des Auflösers und aus dem Gesamtabgas, das sich aus dem Auflöserabgas, Behälterabgas und HWL-Abgas zusammensetzt, Gasproben entnommen und gaschromatographisch analysiert. Als Detektor diente ein Elektronen-Einfang-Detektor (Ni-63). Die Ofentemperatur wurde über einen Linear-Temperatur-Programmer geregelt. Die Erfassung der Analysenwerte erfolgte mit Hilfe eines programmierbaren Rechners. Zur Trennung der organischen Jodide wurde Silikonkautschuk SE 30 als stationäre Phase auf 60/80 mesh Chromosorb RNAW als Träger verwendet.

In Wiederaufarbeitungsanlagen, in denen die Auflösungen von abgebrannten Brennelementen und Lösungsmittel-Extraktion durchgeführt werden, verwendet man große Mengen an geradkettigen und verzweigten Paraffinen (Kerosin) und Tributylphosphat als Lösungsmittel bzw. Komplexbildner. In intensiven Strahlenfeldern tritt an diesen Verbindungen teilweise Radiolyse auf. Es werden freie Radikale gebildet, die sich mit dem anorganischen Jod der bestrahlten Brennelemente zu organischen Jodverbindungen umsetzen..

Probenahme:

Die Abgabeproben wurden in spezielle im LAF II entwickelten Gefäßen gezogen (Abb. 4112-3). Die Auflöserabgasprobe wird vor dem Jodfilter im

Aerosol- und Jodmeßschrank entnommen. Zur gaschromatographischen Analyse kann über eine Membrane das benötigte Gasvolumen mit einer gasdichten Spritze entnommen werden (Abb. 4112-4).

Die Ergebnisse der Probenahmen vom 7. 5. 1977 sind in Tab. 4112-1 wiedergegeben.

Tab. 4112-1: Ergebnisse der Probenahmen im Abgas der WAK vom 7.5.1977

	CH ₃ I [g/m ³]	C ₂ H ₅ I [g/m ³]	C ₄ H ₉ I [g/m ³]
Auflöserabgas	10 ⁻⁴	10 ⁻³ - 10 ⁻²	10 ⁻⁴
Gesamtabgas	10 ⁻⁷ - 10 ⁻⁶	10 ⁻⁶ - 10 ⁻⁵	-

Im Auflöserabgas wurden Methyl-, Ethyl- und Butyliodid bestimmt. Die Abgasprobe wurde während einer Auflösung vor den Jodfiltern entnommen.

Das Gesamtabgas enthielt neben Methyljodid einen höheren Anteil an Ethyljodid.

Die Messungen werden in der nächsten Auflösekampagne fortgesetzt. Zur Gesamtjodbilanzierung werden z. Z. Versuche durchgeführt, so daß die Menge an anorganischem Jod neben der Konzentration an organischem Jod bestimmt werden kann. Um eine genaue Ermittlung des Ursprungs der organischen Jodide durchzuführen, müßten verschiedene Probenahmen an verschiedenen Stellen der Abgasstränge der WAK durchgeführt werden.

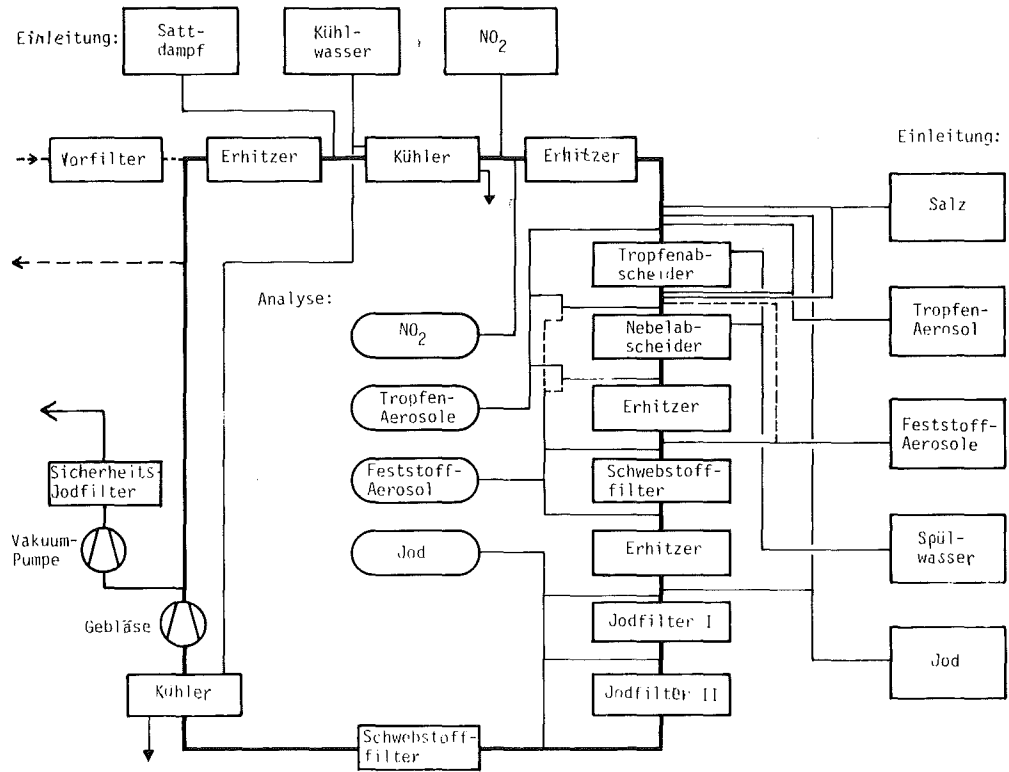


ABB.: 4112-1 Blockfließbild PASSAT
Medieneinleitung und
Analyse

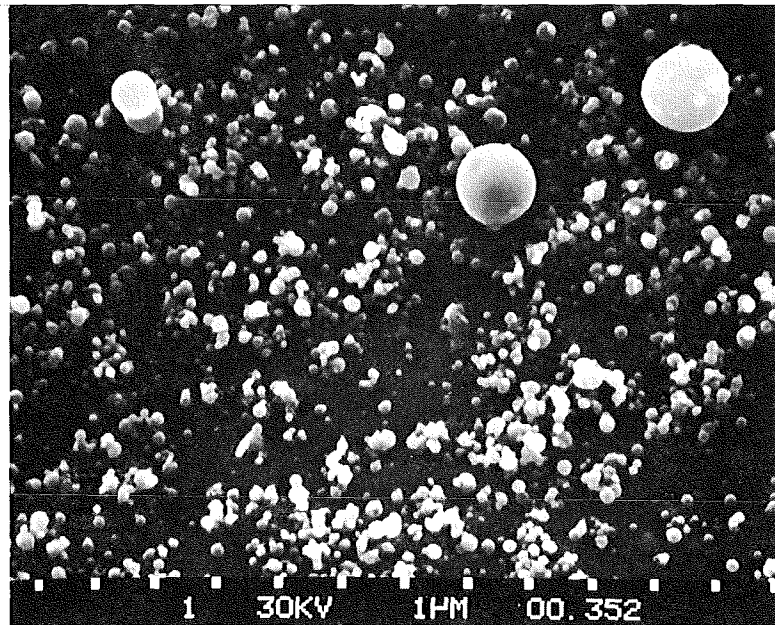


ABB.: 4112-2 Elektronenmikroskopische Aufnahme des rohluftseitigen
Partikelspektrums auf Kernporenfiltern.

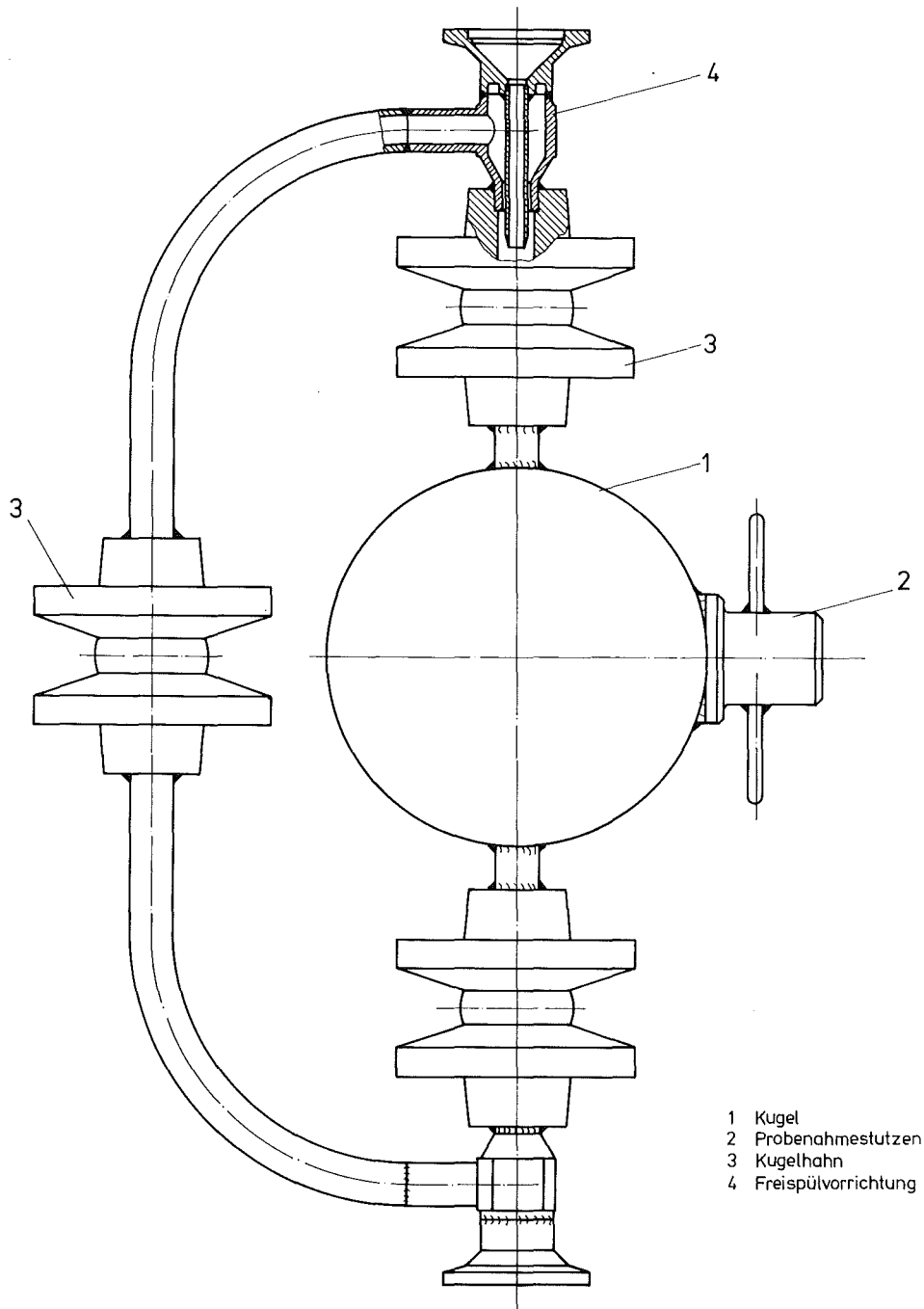


Abb.: 4112-3 Gas - Probennahmegefäß

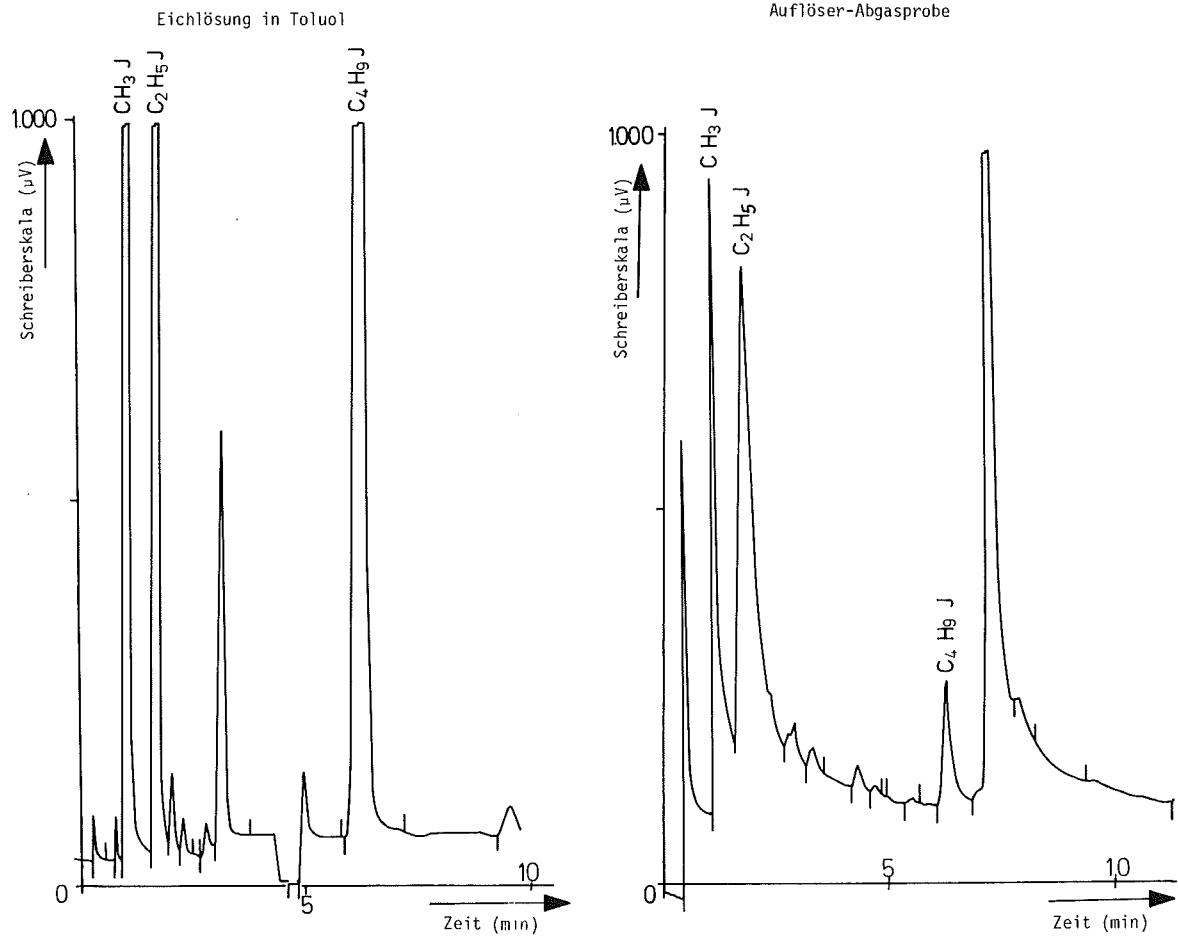


Abb.: 4112 - 4 Gaschromatogramme der Eichlösung in Toluol und der Auflöserabgasprobe

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

K.Jannakos, H.Hoffmann, H.Jochim, W.Lange, H.Mock,
G.Potgeter, G.Zabel - RBT/IT
J.Furrer, J.G.Wilhelm - LAF II

1. Prototyp-Abgasfilteranlage PASSAT

Die PASSAT-Anlage wurde Anfang 1977 bestellt. Im ersten Halbjahr 77 sind die folgenden Arbeiten durchgeführt worden:

Erstellung und Freigabe sämtlicher für die Fertigung der Warte erforderlichen Unterlagen, einschließlich Wartenschränke, Pult und Blindschalbild.

Erstellung und Freigabe der Fertigungsunterlagen für die Beschaffung der Meß-, Regelungs- und Überwachungseinrichtungen.

Berechnung und Beschaffung von Anlagenkomponenten, wie Gaserhitzer, Wärmetauscher, Behälter, Regelventile usw..

Erstellung von Prüfunterlagen für den TÜV.

2. Jodfilter (Kesselbauweise)

Das Jodfilter besteht aus dem Filtergehäuse mit umklappbarem Deckel und der Filtertrommel. Die Filtertrommel dient zur Aufnahme des Jodsorptionsmaterials. Die Zeichnungen und Berechnungen für das fernbedienbare Filtergehäuse und die Filtertrommel sind erstellt. Mit der TÜV-Vorprüfung und der Fertigungsvergabe wurde begonnen.

Für Dichtheits- und Funktionsprüfungen wurde ein Musterfiltergehäuse gefertigt. Die bereits durchgeführten Versuche brachten gute Ergebnisse in Bezug auf Funktionstüchtigkeit und Dichtheit.

3. Faßdeckel-Verschraubungseinrichtung

Das Auswechseln der Filter der PASSAT-Anlage erfolgt mit Hilfe des Rollreifen-Abfallfasses, das für den Auswechselfvorgang dicht an die Schleuse der Filterzelle angekoppelt wird. Für das Ver-

schrauben des Deckels am Rollreifenfaß nach dem Beladen wurde bisher hauptsächlich ein mit Manipulator bedienter Verschrauber verwendet. Der Deckel des Fasses wurde mit Hilfe eines Schwerlastmanipulators oder Kranes vom Faß abgenommen und wieder aufgesetzt.

Für die PASSAT-Anlage wird eine neuartige Einrichtung entwickelt, mit der das Aufsetzen und Verschrauben des Deckels ohne die Hilfe eines Manipulators bzw. Kranes erfolgen kann.

Abb. 4112-5 zeigt die genannte Einrichtung. Die Bedienung dieser Einrichtung erfolgt über eine Bedienungswelle, die gasdicht durch die Wand der Bedienungszelle nach außen geführt wird. Die Zeichnungen für die Faßdeckel-Verschraubungseinrichtung sind erstellt. Mit der Fertigung wurde begonnen.

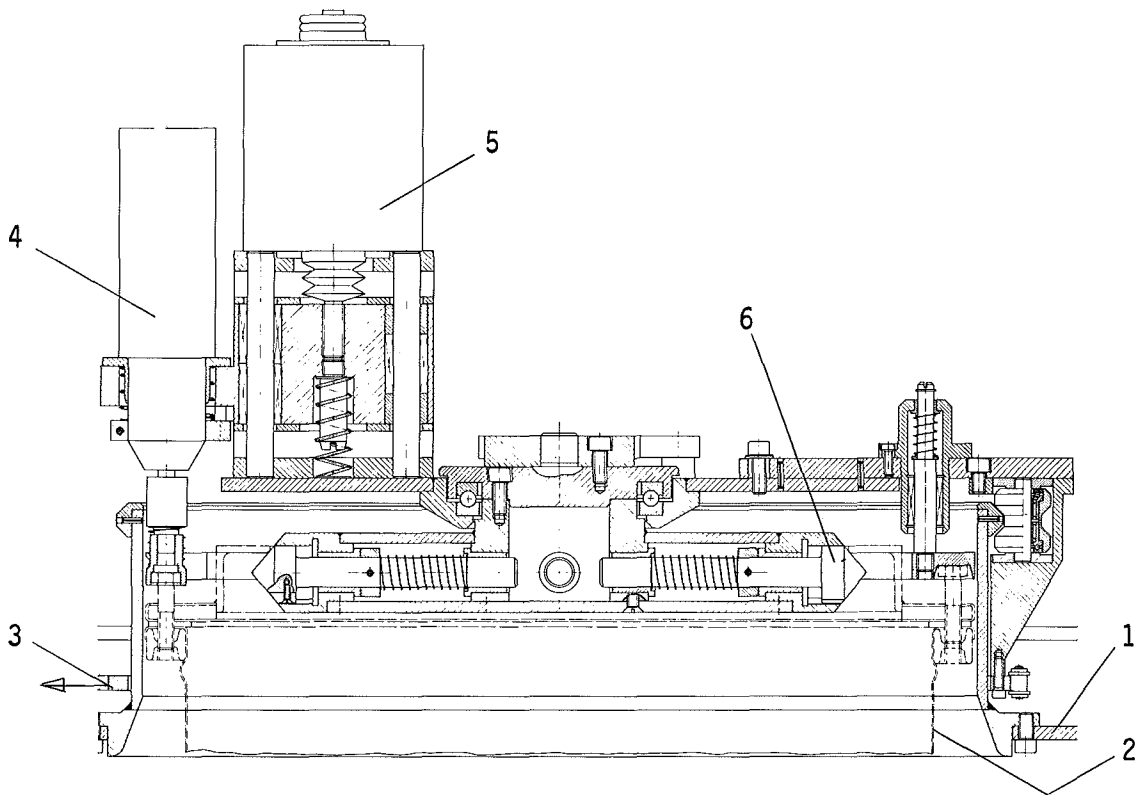


Abb. 4112.5: Faßdeckel-Verschraubungsvorrichtung

- | | |
|-----------------------|-------------------|
| 1 Rahmen | 4 Verschrauber |
| 2 Rollreifenabfallfaß | 5 Magnet |
| 3 Bedienung | 6 Deckelhalterung |

4114 Abluftfilterung an Reaktoren

Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien

(J. Furrer, R. Kaempffer)

Die bisherigen Ergebnisse der experimentellen Arbeiten auf dem Gebiet der Alterung und Vergiftung von Aktivkohlen zur Radiojodabscheidung zeigten, daß eine Vorreinigung der zu filternden Abluft eine wesentlich erhöhte Standzeit erwarten läßt. Als technische Lösung kommen hintereinandergeschaltete Aktivkohlefilter, ggf. in Verbindung mit thermischer Desorption leichtflüchtiger Schadstoffe, in Frage.

Durch eine neuartige konstruktive Lösung kann die bereits zur Jodabscheidung eingesetzte Aktivkohle in einem zweiten Einsatzzyklus für die Vorabscheidung von Schadstoffen benutzt und damit der Aktivkohleverbrauch gesenkt sowie die Sicherheit der Filteranlage erhöht werden (Mehrweg-Sorptionsfilter; MWS-Filter).

Zur Optimierung der Auslegung des MWS-Filters und zur Gewinnung von Vergleichsdaten wurden die in KFK 2195, S. 116 aufgeführten mobilen Filtermaterialprüfstände modifiziert und in einem modernen DWR an die Anlagenraum-Abluft angeschlossen. Das in der Durchführung befindliche Versuchsprogramm umfaßt die qualitative und quantitative Bestimmung der Schadstoffverteilung in der Aktivkohle und die Messung des Abfalles der Abscheideleistung in Abhängigkeit von der Vorfilterung und Beladungsdauer. Außerdem wird der Einfluß regelmäßig durchgeführter Desorptionszyklen zur Austreibung der leichtflüchtigen Schadstoffe aus dem Jod-Sorptionsmaterial mehrstufiger Filter auf die Standzeit untersucht.

Aufgrund der gewonnenen Daten wird die Filterauslegung und Betriebsweise für mehrstufige Aktivkohlefilter zur Abscheidung von Radiojod in KKW festgelegt.

4114/1 Reinigung schadstoffhaltiger Abluft mit dem MWS-Filter

(J.G. Wilhelm, LAF; M. Ohlmeyer, PTA)

Wegen des hohen Gehaltes an Filterschadstoffen in Kernkraftwerken

(J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, Alterung und Vergiftung von Jod-Sorptionsmaterialien in Kernkraftwerken, Kerntechnik, 18 (1976), S. 313-317)

und des dadurch bedingten Verlustes an Abscheideleistung der Radiojod-Filter muß das Jod-Sorptionsmaterial (in Kernkraftwerken z. Z. ausschließlich imprägnierte Aktivkohle) relativ häufig gewechselt werden. Abgesehen von dem Verbrauch an hochwertiger Filterkohle entstehen erhebliche Mengen an kontaminiertem Abfall, dessen Beseitigung einen Aufwand erfordert, der über die Kosten der Filterkohle selbst weit hinaus geht.

Da in den üblichen Jod-Sorptionsfiltern in Kernkraftwerken eine Beladung mit nennenswerten Mengen an Radiojod nicht erfolgt, ist der Verlust an Abscheideleistung praktisch vollständig auf die Beladung der Aktivkohle mit Schadstoffen sowie auf Alterungs- und Verwitterungs-Erscheinungen zurückzuführen. Aktivkohle eines Jod-Sorptionsfilters, die vor der Beladung mit Schadstoffen durch ein Vorfilter geschützt wird, behält während ihres Einsatzes im Jod-Sorptionsteil eines mehrstufigen Abluftfilters weitgehend ihre Beladepazität gegenüber anderen, leicht adsorbierbaren Stoffen. Es liegt also nahe, diese Kohle nach der Entladung aus dem Jod-Sorptionsteil ein zweites Mal in der ersten Filterstufe zur Schadstoffvorabscheidung einzusetzen.

Um ein Umfüllen der kontaminierten Aktivkohle zu vermeiden, wurde ein Filtergehäuse entwickelt, in dem sich die Aktivkohle in einer schachtartigen Filterkammer befindet, durch die der zu reinigende Abluftstrom durch Umlenkung mehrfach durchgeleitet werden kann (Abb. 4114/1-1).

Die im unteren Teil der Filterkammer befindliche Aktivkohle dient zur Schadstoff-Voradsorption. Der obere Teil der Filterkammer stellt das eigentliche Jod-Sorptionsfilter dar. Nach einer bestimmten Betriebszeit, in der die Abscheideleistung der Aktivkohle im oberen Filterkammerteil auf einen unteren Grenzwert abgefallen ist, wird die Kohle aus dem oberen in den unteren Kammerteil abgezogen und dient dort zur Schadstoff-Voradsorption.

Das beschriebene Verfahren setzt einen planparallelen Abzug der Kohle und eine geeignete Strömungsverteilung im Filter voraus. Durch Versuche an einem

Prototypfilter für Kernkraftwerke wurden diese Eigenschaften überprüft. Patentanmeldung und Lizenzvergabe für das MWS-Filter sind erfolgt. (M. Ohlmeyer, J.G. Wilhelm, Filteranlage zum Reinigen von Gas- oder Luftströmen, DT/OS 2540141, 10.3.1977).

Da beim MWS-Filter keine Beeinflussung der Filterbettiefe durch Schütt- und Abzugkegel möglich ist, eine vollständige Ausnutzung von Sorptionsmaterialien bei Aufrechterhaltung einer vorgegebenen Abscheideleistung erreicht wird, mechanische Leckagen mit hoher Sicherheit ausgeschlossen werden und eine Auslegung möglich ist, bei der nur relativ geringer Druckabfall über die Filterschicht auftritt, wird z. Z. an einem weiteren Prototyp für ein Filter gearbeitet, das in Wiederaufarbeitungsanlagen eingesetzt werden soll. Wegen der ca. 10 bis 20 mal höheren Kosten für das in Wiederaufarbeitungsanlagen eingesetzte silberimprägnierte Jod-Sorptionsmaterial, das nach der Beaufschlagung einer zeitlich praktisch unbegrenzten sicheren Endlagerung zugeführt werden muß, erscheint der Einsatz des MWS-Filters hier besonders attraktiv.

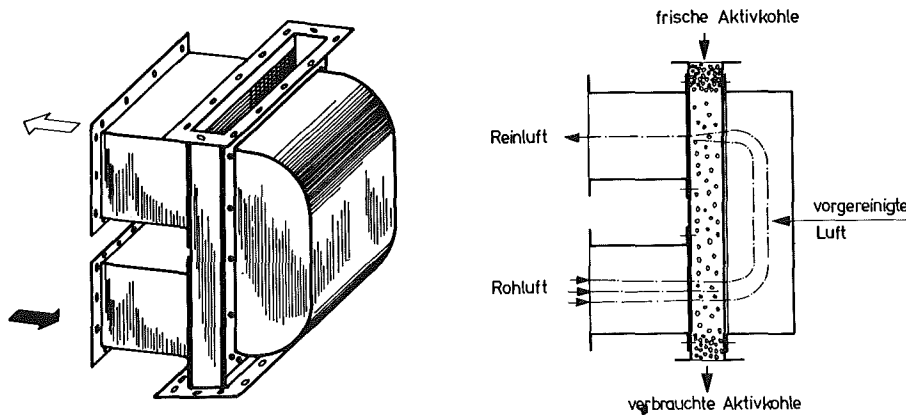


Abb.:4114/1-1 Filtergehäuse und Prinzipskizze des MWS-Filters

4114/2 Bestimmung von Jodkomponenten in der Abluft kerntechnischer Anlagen

Vor-Ort-Versuche

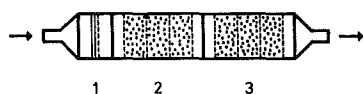
(H. Deuber)

Die Abscheidungsgeschwindigkeiten der Spaltjodkomponenten anorganisches Jod (J_2), aerosolförmiges Jod und organisches Jod (CH_3J) verhalten sich etwa wie 100 : 10 : 1. Zur Gewinnung von Daten für eine realistische Abschätzung der resultierenden 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.

Einige bisher in verschiedenen Raum- und Abluftarten von Kernkraftwerken durchgeführte Messungen hatten die Brauchbarkeit von diskriminierenden Jodsammlern mit DSM 10 bzw. DSM 11 als J_2 -Sorptionsmaterial gezeigt (KFK 2375, S. 147; KFK 2435, S. 127). Allerdings hatte sich auch ergeben, daß bei Verwendung von DSM 10 in bestimmten Fällen (Kaminabluft eines Forschungsreaktors) die Trennung der Jodkomponenten unbefriedigend sein kann. Weiterhin hatte sich gezeigt, daß sowohl bei DSM 10 als auch bei DSM 11 in großer Bettiefe meistens eine Abscheidung einer geringen Menge Radiojod erfolgt, die unter Zugrundelegung von Befunden aus Laborversuchen nicht auf Abscheidung von J_2 oder CH_3J zurückgeführt werden kann.

Im Berichtszeitraum wurden kontinuierliche Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern unter Verwendung von DSM 11 als J_2 -Sorptionsmaterial in der Kaminabluft und Betriebsraumluft eines wegen eines Störfalls abgeschalteten SWR-Kernkraftwerkes (SWR 2), in der Kaminabluft eines DWR-Kernkraftwerkes (DWR 2) bei Leistungsbetrieb sowie in der Kaminabluft des Forschungsreaktors durchgeführt. Im letzten Fall wurden in parallel betriebenen diskriminierenden Jodsammlern weitere J_2 -Sorptionsmaterialien eingesetzt.



- 1 Stufe für Aerosoljod:
2 Schwebstofffilter GF/A
- 2 Stufe für anorganisches Jod:
3 Betten Sorptionsmaterial DSM11
- 3 Stufe für organisches Jod:
3 Betten Aktivkohle CG0,8

 LAF II 4177
Diskriminierender Jodsammler

Abb.: 4114/2-1

Es wurde der in Abb. 4114/2-1 abgebildete diskriminierende Jodsammler (mit ggf. anderem J_2 -Sorptionsmaterial) verwendet. Der Durchsatz betrug 3,6 bzw. 7,2 m^3/h bei einer Verweilzeit von 0,05 s pro Bett. Die Sammelperioden umfaßten 1 Woche.

Auf die Prüfung verschiedener J_2 -Sorptionsmaterialien soll im nächsten Bericht eingegangen werden. Die unter Verwendung von DSM 11 als J_2 -Sorptionsmaterial während der einzelnen Sammelperioden festgestellten Konzentrationen des ^{131}J und Anteile der ^{131}J -Komponenten sind in den Tab. 4114/2-1 bis 4114/2-4 und den Abb. 4114/2-2 bis 4114/2-9 wiedergegeben.

Aus den Messungen im SWR 2, die in der Kaminabluft 1 Woche nach dem Störfall begonnen wurden, ist folgendes zu entnehmen:

1. Abgesehen von Sammelperiode 1 war ein fortlaufender Abfall der Konzentration des ^{131}J und der ^{131}J -Komponenten in der Kaminabluft zu beobachten (Abb. 4114/2-2).
2. Der Anteil des anorg. ^{131}J sank in der Kaminabluft während der ersten 4 Sammelperioden von ca. 50 % auf ca. 10 % und stieg nach einem zwischenzeitlichen Abfall wieder auf fast 50 % an (Abb. 4114/2-3). Der erste Anstieg fällt mit der Entnahme von Brennelementen aus dem BE-Lagerbecken zusammen, der zweite Anstieg mit dem Öffnen des Reaktordruckbehälters.
3. In der Betriebsraumluft (Sicherheitsbehälter-Atmosphäre) fiel in dem untersuchten Zeitintervall die Konzentration des ^{131}J und der ^{131}J -Komponenten ebenfalls fortlaufend ab (Abb. 4114/2-4).
4. Die Anteile der ^{131}J -Komponenten in der Betriebsraumluft entsprachen während des untersuchten Zeitraums in etwa denjenigen in der Kaminabluft (Abb. 4114/2-5). Dieser Befund ist in Einklang mit der Tatsache, daß die Betriebsraumluft die entscheidende Jodquelle war.

Aus den Messungen in der Kaminabluft des DWR 2 geht folgendes hervor:

1. Die ^{131}J -Konzentration verringerte sich anfangs und erhöhte sich in der Sammelperiode 12 wieder auf einen Wert, der in der folgenden Zeit größenordnungsmäßig unverändert blieb (Abb. 4114/2-6).
2. Der Anteil des anorg. ^{131}J , der anfangs zwischen ca. 0 und 20 % schwankte, stieg in der Sammelperiode 12 auf fast 80 % an und sank in den folgenden Wochen auf einen annähernd konstanten Wert von rund 30 % (Abb. 4114/2-7).

Der Anstieg der Konzentration des ^{131}J und des Anteils des anorg. ^{131}J in der Sammelperiode 12 fällt mit einer Zunahme der ^{131}J -Konzentration im Kühlmittel nach einer kurzen zwischenzeitlichen Abschaltung zusammen.

Die Untersuchungen in der Kaminabluft des FR lassen folgendes erkennen:

1. Die ^{131}J -Konzentration war relativ konstant. Die Abnahme in den Sammelperioden 12 und 19 ist auf Abschalten des Reaktors zurückzuführen (Abb. 4114/2-8).
2. Die Anteile der ^{131}J -Komponenten schwankten ebenfalls relativ wenig. Der Anteil des anorg. ^{131}J lag dauernd über 80 %, nur direkt nach Wiederinbetriebnahme des Reaktors (Sammelperioden 13 und 22) war er niedriger (Abb. 4114/2-9).

In der Kaminabluft der untersuchten Kernkraftwerke lag also der Anteil des anorg. ^{131}J mit Ausnahme von 2 Sammelperioden unter 50 %. Bei Verbesserung der Lüftungskonzepte dürfte dieser Anteil weiter zu senken sein. Messungen mit diskriminierenden Jodsammlern in verschiedenen Abluftsträngen eines DWR-Kernkraftwerks während eines repräsentativen Zeitraums sollen zur Klärung der Herkunft des anorg. ^{131}J beitragen.

Tab. 4114/2-1: ^{131}J -Konzentration und Anteil der ^{131}J -Komponenten in der Kaminabluft des SWR 2 nach einem Störfall

Zustand der Luft: schwebstoffgefiltert, nicht jodgefiltert
 Nachweisgrenze (NG) der ^{131}J -Komponenten: < 1 % ⁺)

Sammel- periode ⁺⁺)	^{131}J -Konzentration ⁺⁺⁺⁾ [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}J -Komponenten [%]		
		schweb- stoff. ^{131}J	anorg. ^{131}J	org. ^{131}J
1	4,0 (- 11)	< NG	47	53
2	4,3 (- 11)	< NG	20	80
3	3,6 (- 11)	< 1	15	85
4	1,9 (- 11)	< 1	11	89
5	4,4 (- 12)	4	37	59
6	1,4 (- 12)	1	29	70
7	7,9 (- 13)	< NG	44	56
8	4,2 (- 13)	< NG	45	55

- +) abhängig von insgesamt abgeschiedener Aktivität und Meßzeit
- ++) Länge: 1 Woche
- +++) Zehnerpotenzen durch Exponenten in Klammern wiedergegeben

Tab. 4114/2-2: ^{131}J -Konzentration und Anteil der ^{131}J -Komponenten in der Betriebsraumluft des SWR 2 nach einem Störfall

Zustand der Luft: ungefiltert
 Nachweisgrenze (NG) der ^{131}J -Komponenten: < 1 %

Sammel- periode	^{131}J -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}J -Komponenten [%]		
		schweb- stoff. ^{131}J	anorg. ^{131}J	org. ^{131}J
6	7,2 (- 12)	< 1	24	75
7	3,5 (- 12)	< NG	45	55
8	1,9 (- 12)	2	36	61

Tab. 4114/2-3: ^{131}J -Konzentration und Anteil der ^{131}J -Komponenten in der Kaminabluft des DWR 2 bei Leistungsbetrieb

Zustand der Luft: schwebstoffgefiltert, teilweise jodgefiltert

Sammel- periode	^{131}J -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}J -Komponenten [%]			NG ⁺ [%]
		schweb- stoff- ^{131}J	anorg. ^{131}J	org. ^{131}J	
6	1,8 (- 13)	< NG	7	93	< 1
7	1,9 (- 14)	< NG	23	77	6
8	1,1 (- 14)	< NG	< NG	100	12
9	1,5 (- 14)	< NG	14	86	9
10	3,5 (- 15)	< NG	< NG	100	41
11	1,0 (- 14)	< NG	< NG	100	14
12	5,5 (- 13)	< NG	77	23	< 1
13	3,6 (- 13)	< NG	58	42	< 1
14	2,1 (- 13)	2	45	52	< 1
15	1,9 (- 13)	< NG	34	66	< 1
16	3,8 (- 13)	< NG	42	58	< 1
17	2,7 (- 13)	< NG	27	73	< 1
18	7,8 (- 13)	< 1	39	61	< 1
19	1,8 (- 13)	< NG	31	69	< 1
20	1,5 (- 13)	< NG	31	69	< 1
21	5,4 (- 13)	1	33	66	< 1
22	6,3 (- 13)	< NG	32	68	< 1

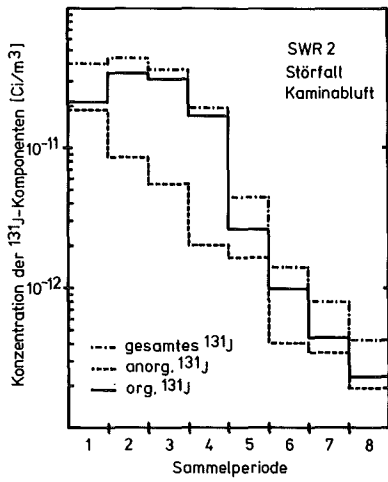
+) Nachweisgrenze der ^{131}J -Komponenten

Tab. 4114/2-4: ^{131}J -Konzentration und Anteil der ^{131}J -Komponenten in der Kaminabluft des FR

Zustand der Luft: schwebstoffgefiltert, nicht jodgefiltert

Nachweisgrenze (NG) der ^{131}J -Komponenten: < 1 %

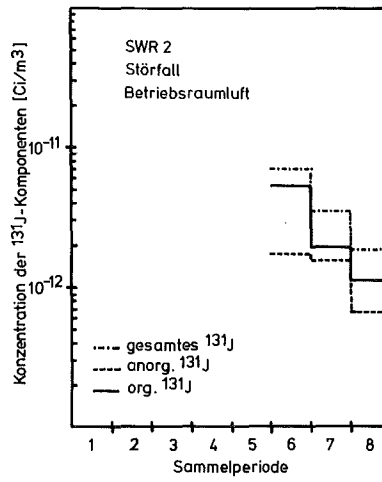
Sammel- periode	^{131}J -Konzentration [Ci/m ³]	Anteil der ^{131}J -Komponenten [%]		
		schweb- stoff. ^{131}J	anorg. ^{131}J	org. ^{131}J
6	3,5 (- 12)	< 1	88	12
7	3,8 (- 12)	< 1	89	11
8	2,7 (- 12)	< 1	88	12
9	3,7 (- 12)	< 1	86	14
10	3,8 (- 12)	< NG	90	10
11	3,6 (- 12)	< 1	90	10
12	9,6 (- 13)	< NG	87	13
13	2,0 (- 12)	< 1	77	22
14	2,6 (- 12)	< 1	82	18
15	3,1 (- 12)	< 1	90	10
16	3,6 (- 12)	< 1	86	13
17	3,6 (- 12)	< 1	88	11
18	4,4 (- 12)	< 1	81	19
19	1,0 (- 12)	< NG	84	16
20	5,9 (- 13)	< NG	94	6
21	1,6 (- 12)	1	91	8
22	5,2 (- 12)	< 1	63	37
23	2,5 (- 12)	< 1	89	11
24	4,1 (- 12)	< 1	83	17
25	4,0 (- 12)	< 1	83	16
26	3,9 (- 12)	< 1	88	12



GfK LAF 114677

Zeitlicher Verlauf der Konzentration der ¹³¹I-Komponenten

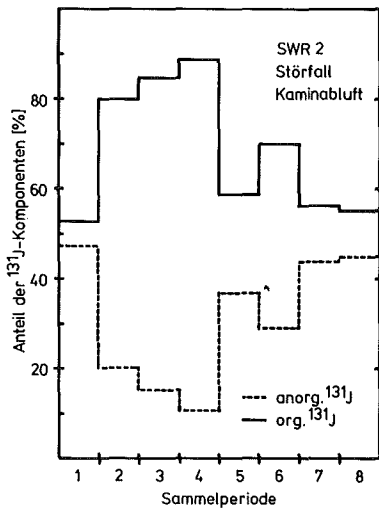
Abb. 4114/2-2



GfK LAF 114677

Zeitlicher Verlauf der Konzentration der ¹³¹I-Komponenten

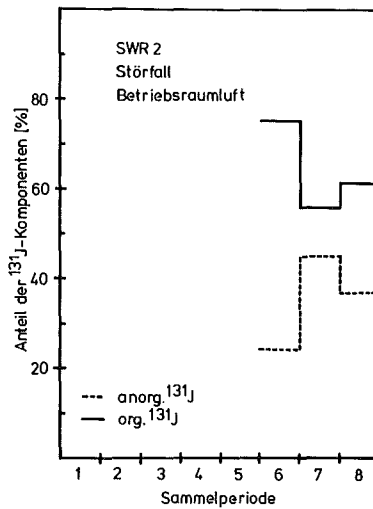
Abb. 4114/2-4



GfK LAF 114677

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ¹³¹I-Komponenten

Abb. 4114/2-3



GfK LAF 114677

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ¹³¹I-Komponenten

Abb. 4114/2-5

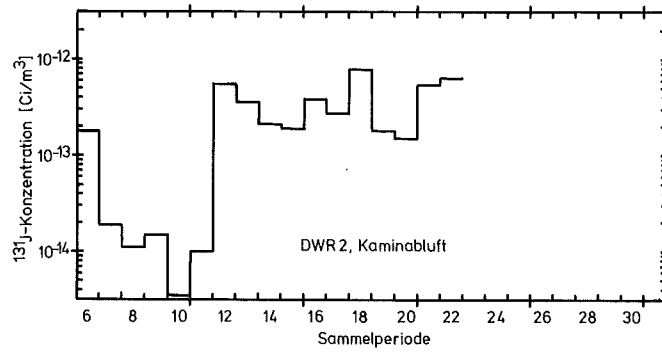


Abb. 4114/2-6

GIK LAF II 14177

Zeitlicher Verlauf der ¹³¹J-Konzentration

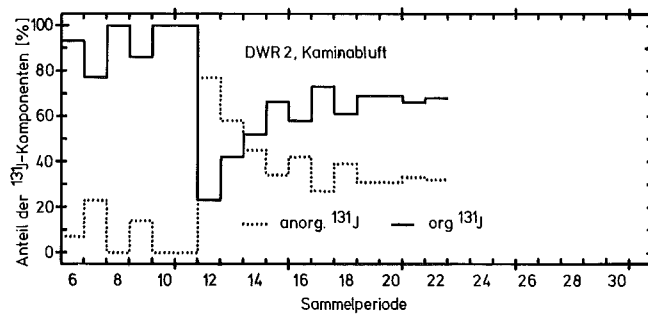


Abb. 4114/2-7

GIK LAF II 14177

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ¹³¹J-Komponenten

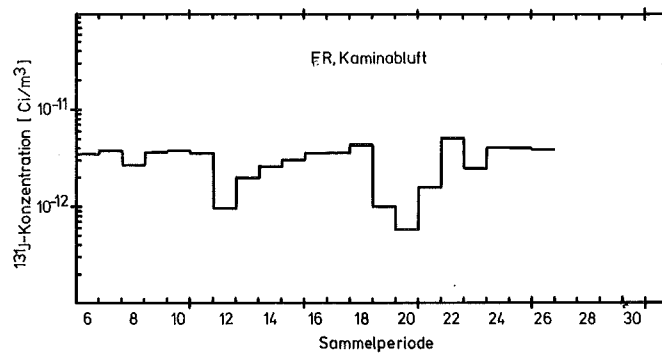


Abb. 4114/2-8

GIK LAF II 14177

Zeitlicher Verlauf der ¹³¹J-Konzentration

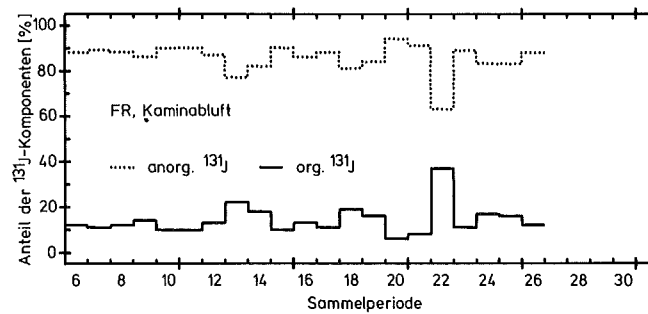


Abb. 4114/2-9

GIK LAF II 14177

Zeitlicher Verlauf des Anteils der ¹³¹J-Komponenten

Laborversuche

Abscheidung von Methyljodid und Jodbenzol an Jod-Sorptionsmaterialien

(H. Deuber)

Abscheidung von Methyljodid

Das Sorptionsmaterial für anorg. Jod DSM 11 war hinsichtlich der Abscheidung von ^{131}J in Form von J_2 und CH_3J nur bei mittlerer Temperatur und Feuchte (40°C , 50 % r. F.) geprüft worden (KFK 2345, S. 127). Es hatten sich günstige Werte ergeben (Abscheidegrad bei 0,1 s Verweilzeit > 99,9 % für J_2 , < 0,1 % für CH_3J).

Im Berichtszeitraum wurde die Abscheidung von CH_3J an DSM 11 im gesamten relevanten Temperatur- und Feuchtebereich geprüft. Außerdem wurde unter denselben Bedingungen die Abscheidung von CH_3J an den Sorptionsmaterialien DSM 17 und AC-HOI bestimmt. DSM 17 ist ein neues Sorptionsmaterial für anorg. Jod in schadstoffhaltiger Abluft. AC-HOI ist als Sorptionsmaterial für hypojodige Säure auf dem Markt.

Die Ergebnisse sind in Tab. 4114/2-5 aufgeführt. Sowohl bei DSM 11 als auch bei DSM 17 liegt der Abscheidegrad bei 0,1 s Verweilzeit unter 1 %. Bei AC-HOI erreicht der Abscheidegrad bei geringer Luftfeuchte jedoch relativ hohe Werte (bis 4 % bei 0,1 s Verweilzeit). Hinsichtlich der Abscheidung von CH_3J weisen DSM 11 und DSM 17 also günstigere Werte auf als AC-HOI. Die Abscheidung von J_2 an diesen Materialien ist noch zu prüfen.

Tab. 4114/2-5: Abscheidegrad verschiedener J (anorg.) -Sorptionsmaterialien für ^{131}J in Form von CH_3J

Trägerkonzentration: 0,001 g/m³
 Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm
 Beaufschlagungszeit: 1 h
 Vorströmzeit : ≥ 20 h
 Nachströmzeit : 2 h

Bett- temperatur [°C]	Luftfeuchte [%]	Abscheidegrad [%] ⁺)		
		DSM 11	DSM 17	AC-HOI ⁺⁺⁾
40	50	$7,2 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-1}$	$1,5 \cdot 10^0$
10	20	$7,0 \cdot 10^{-3}$	$2,2 \cdot 10^{-2}$	$3,0 \cdot 10^0$
	80	$3,2 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$7,0 \cdot 10^{-1}$
70	20	$1,0 \cdot 10^{-1}$	$4,2 \cdot 10^{-1}$	$4,0 \cdot 10^0$
	80	$4,4 \cdot 10^{-1}$	$3,4 \cdot 10^{-1}$	$9,0 \cdot 10^{-1}$

⁺) Verweilzeit: 0,1 s; Mittel aus 6 Werten

⁺⁺⁾ Firma Aircont, West Hill, Kanada

Abscheidung von Jodbenzol

Zur Feststellung des Abscheideverhaltens der großen Gruppe der ring-substituierten aromatischen Jodverbindungen wurden Abscheideversuche mit ^{131}J in Form der Modellsubstanz $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ durchgeführt*. Die Resultate sind in den Tab. 4114/2-6 und 4114/2-7 sowie in den Abb. 4114/2-10 und 4114/2-11 wiedergegeben.

Aus Tab. 4114/2-6 geht hervor, daß $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ an den J_2 -Sorptionsmaterialien DSM 10, DSM 11 und DSM 17 sowie an den Ag-haltigen Jod-Sorptionsmaterialien AC 6120 und LMS 13 X-Ag nur in geringem Maße abgeschieden wird. (Angegeben sind nur maximale Werte, da die differentiellen Abscheidegrade kontinuierlich mit der Bettiefe variierten.) Die bei AC 6120 erzielten Ergebnisse sind in Einklang mit früheren Befunden aus nichtradiochemischen Versuchen (J. Furrer, R. Kaempfer, KFK 2130, S. 93).

Tab. 4114/2-7 und Abb. 4114/2-10 zeigen, daß sich $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ in starkem Maße an der KJ-imprägnierten Aktivkohle CG 0,8 abscheidet. Bei längerer Nachströmzeit (1 Woche) ist bei kleiner Bettiefe jedoch eine geringfügige Desorption festzustellen.

Aus Tab. 4114/2-7 und Abb. 4114/2-11 ist zu entnehmen, daß die mit KJ bzw. TEDA imprägnierten Aktivkohlen SS 207 B $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ in geringerem Maße als CG 0,8 abscheiden. Das geht auch aus Tab. 4114/2-8 hervor, in der die Leistungsindizes der genannten Aktivkohlen für $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ verzeichnet sind. Ein Vergleich mit dem ebenfalls angegebenen Leistungsindex von CG 0,8 für CH_3J unter gleichen Bedingungen zeigt, daß $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ viel stärker als CH_3J von CG 0,8 zurückgehalten wird.

Aus den Resultaten geht hervor, daß $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ in einem diskriminierenden Jodsammler, bestehend aus Schwebstofffiltern, DSM-Betten und CG 0,8-Betten praktisch vollständig auf letzteren, also in der Stufe für org. Jod, abgeschieden und, bei einer Sammelzeit von 1 Woche, festgehalten wird. Durch Einsatz von AC 6120-Betten vor den CG 0,8-Betten ließe sich eine weitgehende Trennung von CH_3J und $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ sowie Verbindungen mit ähnlichem Abscheideverhalten erzielen.

Die Ergebnisse zeigen außerdem, daß $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ und analoge Verbindungen, sofern sie in nicht vernachlässigbaren Anteilen auftreten, die Abscheideleistung von Jodfiltern aus Ag-haltigen Sorptionsmaterialien, wie AC 6120 und LMS 13 X-Ag, stark herabsetzen können.

* Herstellung des $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ ^{131}J durch H.E. Noppel, IRCh

Tab. 4114/2-6: Abscheidegrad verschiedener Jod-Sorptionsmaterialien für ^{131}J in Form von $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$ (Jodbenzol)

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

Bettemperatur [°C] / Luftfeuchte [%]	Material	maximaler Ab- scheidegrad ⁺⁾ [%]
40/50	DSM 10	$3,4 \cdot 10^{-1}$
	DSM 11	$6,1 \cdot 10^{-3}$
	DSM 17	$5,4 \cdot 10^{-3}$
30/70	AC 6120 (7 % Ag)	$1,0 \cdot 10^{-1}$
	LMS 13 X-Ag ⁺⁺⁾ (34 % Ag)	$8,5 \cdot 10^0$

⁺⁾ Verweilzeit: 0,1 s

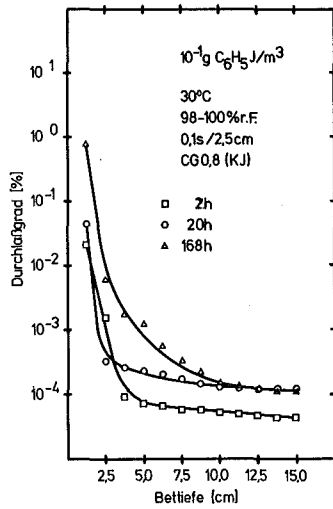
⁺⁺⁾ Linde Molekularsieb 13 X, Ag-Form, 10 - 16 mesh;
 Firma CTi Nuclear, Denver, USA

Tab. 4114/2-7: Abscheidegrad verschiedener imprägnierter Aktivkohlen für ^{131}J in Form von $\text{C}_6\text{H}_5\text{J}$

Trägerkonzentration: 0,1 g/m³ Verweilzeit : 0,1 s/2,5 cm
 Betttemperatur : 30 °C Beaufschlagungszeit: 1 h
 Luftfeuchte : 98 - 100 % Vorströmzeit : \geq 20 h

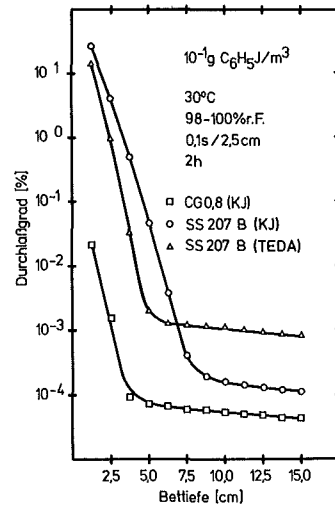
Bettiefe [cm]	Abscheidegrad [%]				
	CG 0,8 (KJ)			SS 207 B (KJ)	SS 207 B (TEDA)
	2 h ⁺⁾	20 h ⁺⁾	168 h ⁺⁾	2 h ⁺⁾	2 h ⁺⁾
2,5	99,99985	99,99968	99,9939	95,8	99,05
5,0	99,999927	99,99977	99,9988	99,953	99,9980
7,5	99,999941	99,99983	99,99967	99,99960	99,9988
10,0	99,999946	99,99987	99,99985	99,99984	99,9989
12,5	99,999952	99,99988	99,99988	99,99987	99,99909
15,0	99,999956	99,99988	99,99989	99,99989	99,99917

⁺⁾ Nachströmzeit



Durchlaßgrad von CG0,8 für ¹³¹J in Form von C₆H₅J bei verschiedenen Nachströmzeiten

Abb. 4114/2-10



Durchlaßgrad von verschiedenen Aktivkohlen für ¹³¹J in Form von C₆H₅J

Abb. 4114/2-11

Tab. 4114/2-8: Leistungsindex verschiedener imprägnierter Aktivkohlen für ¹³¹J in Form von C₆H₅J und CH₃J

Versuche der Tab. 4114/2-7 bzw. unter gleichen Bedingungen durchgeführter Versuch (Nachströmzeit 2 h)

Jodform	Material	Leistungsindex ^{+) [s⁻¹]}
C ₆ H ₅ J	CG 0,8 (KJ)	58
	SS 207 B (KJ)	13
	SS 207 B (TEDA)	20
CH ₃ J ⁺⁺⁾	CG 0,8 (KJ)	8

^{+) Verweilzeit: 0,1 s (Bettiefe 0 - 2,5 cm)}

^{++) Trägerkonzentration: 0,001 g/m³}

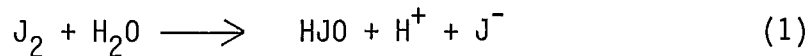
Nachweis und Darstellung von unterjodiger Säure (HJO) im Gaszustand

(G. Birke)

Von verschiedenen Arbeitsgruppen wurde unterjodige Säure (HJO) als ein gasförmig auftretender Bestandteil des Spaltjodes vermutet bzw. nachgewiesen. Die Herstellungsmethoden für HJO zur Untersuchung von Sorptionsmaterialien sowie die erzielten Ergebnisse differieren jedoch stark, so daß Identität und die Eigenschaften dieser Verbindung noch nicht als gesichert angesehen werden können. Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Sicherung der Identität von gasförmigem HJO und die Ausarbeitung eines Darstellungsverfahrens möglichst reiner HJO zur Untersuchung von Sorptionsmaterialien.

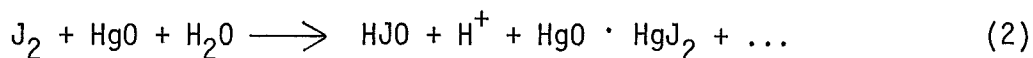
Nichtaktive Versuche bei hohen Jod-Konzentrationen

HJO entsteht bei der in Gleichung (1) angegebenen Hydrolysereaktion von elementarem Jod mit Wasser.



Bei hohen Konzentrationen von Jod ($c_{\text{J}_2} \sim 10^{-2}$ Mol/l) in der Lösung liegt das Gleichgewicht praktisch vollständig auf der linken Seite ($K_{(25^\circ\text{C})} = 5,4 \cdot 10^{-13}$), bei Übergang zu sehr kleinen Konzentrationen ($c_{\text{J}_2} \sim 10^{-9}$ Mol/l) liegt der überwiegende Teil des Jodes als HJO vor. Durch Temperatur sowie pH-Wert der Lösung wird die Gleichgewichtskonstante beeinflusst bzw. das Gleichgewicht verschoben. Experimentell ergab sich bei den Versuchen von H. Deuber (KFK 2262, S. 129) ein Maximum der Ausbeute an "HJO" von ca. 10 % der verflüchtigten Menge bei Verflüchtigung aus alkalischer Lösung bei geringen (10^{-9} Mol/l) Jod-Konzentrationen.

Für den direkten chemischen Nachweis der Verflüchtigung von HJO kommt dieses Darstellungsverfahren deshalb wegen der geringen Ausbeute und der kleinen Konzentrationen nicht in Frage. Dazu eignet sich die Umsetzung von Jod mit HgO in wässriger Lösung ($c_{\text{J}_2} \leq 10^{-4}$ Mol/l, pH = 5-7)



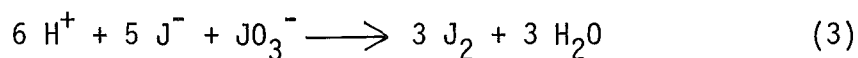
Die Umsetzung verläuft quantitativ; J^- wird komplex an HgO -Überschuß gebunden und ausgefällt. (Bei hohen J_2 -Konzentrationen oder alkalischem pH lassen sich freies Jod bzw. JO_3^- nachweisen).

Solcherart hergestellte HJO-Lösungen sind auch in der Hitze längere Zeit stabil, freies Jod und JO_3^- lassen sich nicht nachweisen (%-Anteil ≤ 1 %).

In Analogie zu Versuchen von J. Keller (CONF-700816 (1970), S. 467) wurden mit diesen HJO-Lösungen in einer einfachen Destillationsapparatur (Kolben, Heizstrecke, Schwebstofffilter, Kühler, Vorlage) Verflüchtigungsversuche durchgeführt. (Luftstrom durch die Lösung: 100 l/h, T: 80°C). In der Vorlage läßt sich bei Abwesenheit von Schwebstofffiltern (Whatman GF/A) HJO nachweisen. (Nachweis des elementaren Jodes durch Ausschütteln mit organischen Lösungsmitteln; Identifizierung von HJO/ JO_3^- bei Abwesenheit von J_2 nach J. Keller (s. obengenanntes Literaturzitat) durch Umsetzung mit Jodphenol). HJO geht also als Aerosol über; ein Nachweis von gasförmigem HJO ist nicht zu erbringen.

Radiochemische Versuche

Da eine weitere Steigerung der Nachweisempfindlichkeit für Jod nicht möglich war, wurden die Untersuchungen mit radiochemischen Methoden fortgesetzt. Die Versuche wurden in der in Abb. 4114/2-12 dargestellten Apparatur durchgeführt. Die Bedingungen entsprechen dabei den im LAF II bisher benutzten Prüfapparaturen. Auf die Besonderheiten der Herstellung und der Umsetzung des elementaren Jodes soll im folgenden eingegangen werden. Im Jod-Generator JG 1 wird elementares Jod nach der Reaktionsgleichung (3) dargestellt



und mit He- oder Argon-Strom (10 l/h) in die Vorlage JG 2 eingegast, die mit sauren oder alkalischen Lösungen bzw. Reagenzien beschickt werden kann. Über eine Heizstrecke wird der Gasstrom der Prüfstrecke bzw. einer Sicherheitsstrecke zugeleitet. Vor Beginn des Beaufschlagens wird der Gasstrom jeweils 1/2 Stunde über diese Sicherheitsstrecke geleitet, um stationäre Bedingungen herzustellen. Die Konzentration an freiem Jod beträgt im JG 1: 10^{-5} Mol/l, im JG 2: ca. 10^{-6} Mol/l. Ungefähr 0,1 bis 2 % der eingesetzten Aktivität (1 mCi ^{131}J) wird auf die Test- und Sicherheitsbetten beaufschlagt.

Die Konzentration des Jodes im Gasstrom beträgt 10^{-2} bis 10^{-4} mg/m³. Die relativ hohe Konzentration von 10^{-5} Mol/l im JG 1 wurde gewählt, um den Anteil an Verunreinigungen und organischem Jod möglichst klein zu halten. Sorptionsmaterial war in allen Fällen AC 6120.

Abb. 4114/2-13 zeigt das Durchlaßprofil von so aus einer Lösung mit pH 8 verflüchtigter Aktivität und die Aufspaltung in die einzelnen Bestandteile der Kurve, die folgenden Jod-Verbindungen entsprechen:

- 1) J₂, 80 %, Halbwerts-Bettiefe: 0,16 cm.
- 2) CH₃J (organisches Jod), 20 %, Halbwerts-Bettiefe: 0,4 cm.
- 3) HJO, 1 %, Halbwerts-Bettiefe: 1,7 cm.
- 4) Nicht identifizierter Rest, 0,2 %, Halbwerts-Bettiefe: 20 cm.

Qualitativ stimmen die Durchlaßprofile mit den früher erhaltenen überein. Die Identifizierung und Trennung der Bestandteile 1, 2 und 3 (HJO) wird über die Durchlaßprofile und die Optimierung der Herstellungs- und Abscheidebedingungen durchgeführt.

Optimierung der Trennung durch Variation der Abscheidebedingungen

In Abb. 4114/2-14 sind die Halbwerts-Bettdicken der Bestandteile 1 - 3 in Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchte ersichtlich. Es lassen sich zwei Schlüsse ziehen:

1. Das Abscheideverhalten der Bestandteile 1 und 2 steht mit den Erfahrungswerten von elementarem Jod und organischem Jod (CH₃J) in Übereinstimmung, die deshalb als solche identifiziert werden.
2. Ein optimaler Nachweis und Unterscheidung des Bestandteils 3 neben 1 und 2 ist im Bereich 50 - 60 % relative Luftfeuchte möglich. Alle weiteren Versuche wurden deshalb in diesem Parameterbereich durchgeführt.

Abhängigkeit der Zusammensetzung der verflüchtigten Jodmenge von der Zeit

Um die Änderung der Zusammensetzung des Jodes im Jod-Generator JG 1 als Funktion der Zeit zu untersuchen, wurde über einen Zeitraum von ca. 20 Tagen unter sonst gleichen Bedingungen wiederholt beaufschlagt.

Die Ergebnisse sind in Abb. 4114/2-15 wiedergegeben.

Es lassen sich folgende Feststellungen treffen:

1. Die Prozent-Anteile von J_2 und CH_3J weisen einen eindeutigen Gang mit der Zeit auf, d. h. das anfänglich erzeugte elementare Jod reagiert mit organischen Verunreinigungen zu CH_3J (und anderen Verbindungen). Dementsprechend die entgegengesetzte Bewegung der Prozent-Anteile von J_2 und CH_3J .
2. Die Prozent-Anteile der Verbindungen 3 und 4 bleiben der Größenordnung nach gleich, bei geringen, nicht eindeutig mit der Zeit korrelierbaren Schwankungen. Da die Bildung von HJO aus J_2 eine Gleichgewichtsreaktion ist, sollte man für HJO ein solches Verhalten erwarten. Das stimmt mit den Eigenschaften von Verbindung 3 überein. Die Schwankungen im Prozent-Anteil von HJO im Bereich 0,2 - 0,7 % lassen sich auf die bei späteren Versuchen geringeren Jod-Konzentrationen zurückführen, die prozentual größere HJO-Anteile erwarten lassen.

Abhängigkeit der Zusammensetzung der verflüchtigten Jodmenge vom pH der Vorlage JG 2

Da nach Gleichung (1) eine Abhängigkeit des Gleichgewichts vom pH besteht und die bisherigen Darstellungsverfahren von HJO auf der alkalischen Hydrolyse von J_2 beruhen, wurde die Abhängigkeit der Zusammensetzung der verflüchtigten Jodmenge vom pH-Wert der Vorlage JG 2 untersucht.

Abb. 4114/2-16 gibt die Ergebnisse wieder. In bezug auf Verbindung 3-HJO- zeigen sich - wie aufgrund des amphoteren Verhaltens von HJO zu erwarten - höhere Prozent-Anteile im alkalischen Bereich, mit einem Maximum bei pH 8 bei den durchgeführten Versuchen. Bei einer Konzentration des Jodes in der Vorlage JG 2 von 10^{-6} Mol/l beträgt die erreichbare Ausbeute an HJO ca. 1 %. (Schwankungsbereich bei verschiedenen Versuchen unter gleichen Bedingungen $\pm 0,2$ %).

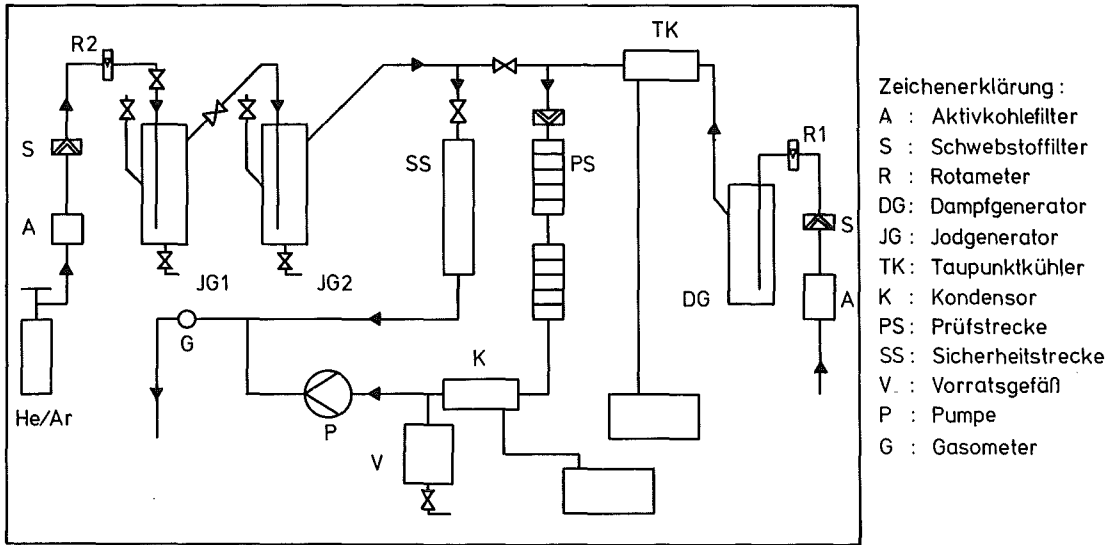
Einsatz von Reagenzien zur Umsetzung von J_2 zu HJO

Die bei den untersuchten Konzentrationen erreichbare Ausbeute an HJO beträgt 1 %. Eine Steigerung der Ausbeute ist nur durch Übergehen zu geringeren Konzentrationen möglich. Dies läßt größere Anteile von organischem Jod und

Verunreinigungen erwarten.

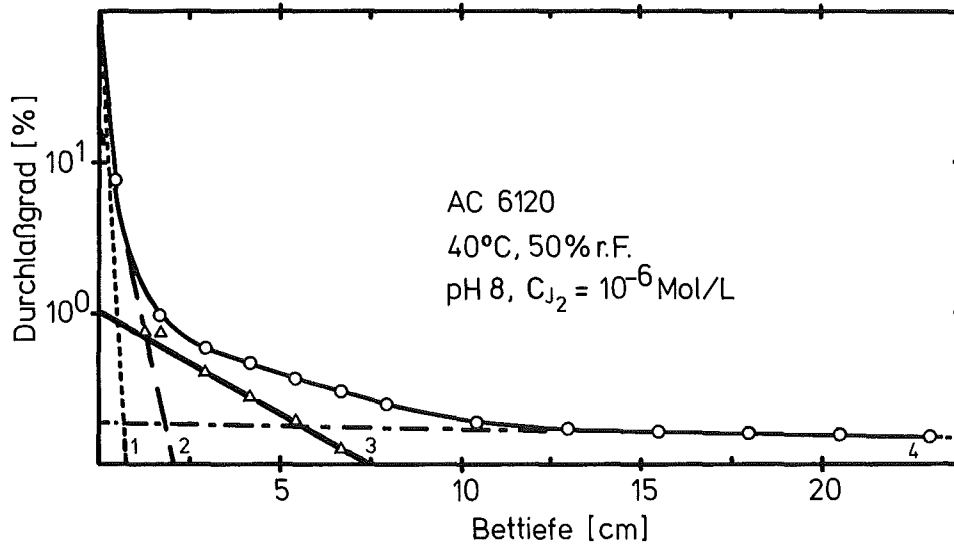
Durch Einsatz von Reagenzien, die das im JG 2 erzeugte Jod zu HJO umsetzen, wurde versucht, auf andere Weise zum Ziel zu kommen. In Abb. 4114/2-17 sind die Durchlaßprofile zweier Versuche wiedergegeben, bei denen HgO und Ag₂O (entsprechend Gleichung (2)) in der Vorlage eingesetzt wurden. (Es wurden auch Gemische mit ähnlichem Erfolg eingesetzt). Der Anteil von HJO beträgt 40 bzw. 50 %. Über eine Bettlänge von ca. 10 cm fallen die Kurven mit einer Halbwerts-Bettiefe von 1,8 cm linear ab, was die Identität mit der vorher festgestellten Verbindung HJO beweist.

Die bisher durchgeführten Versuche zeigen die Existenz von gasförmigem HJO. Weitere Untersuchungen bei niedrigerer Konzentration an J₂ oder trägerfreie Versuche können die Identität von HJO sichern. Durch Änderung der Herstellungsbedingungen muß überprüft werden, inwieweit die Ausbeute an HJO durch Einsatz von Hg-Ag-Reagenzien maximiert werden kann, so daß dieses Verfahren zur Prüfung von Sorptionsmaterialien zur Verfügung steht.



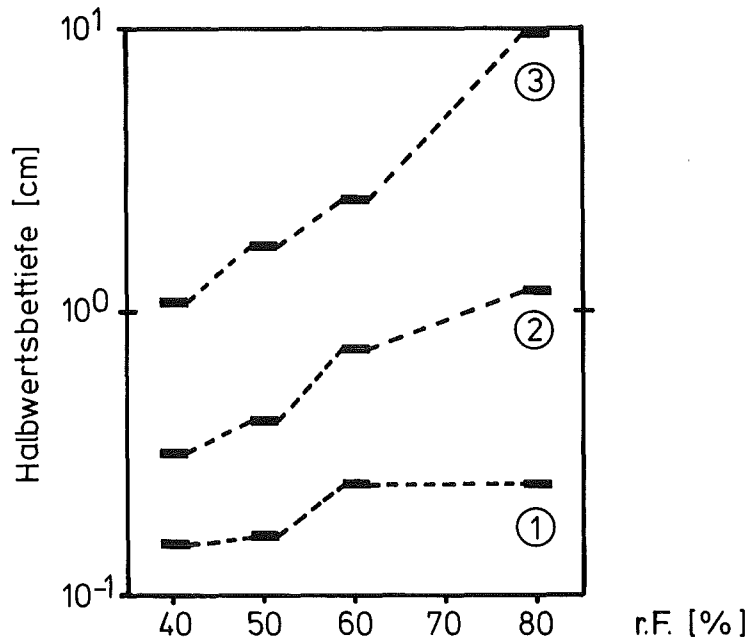
Versuchsapparatur zur Verflüchtigung von Jod

Abb. 4114/2-12



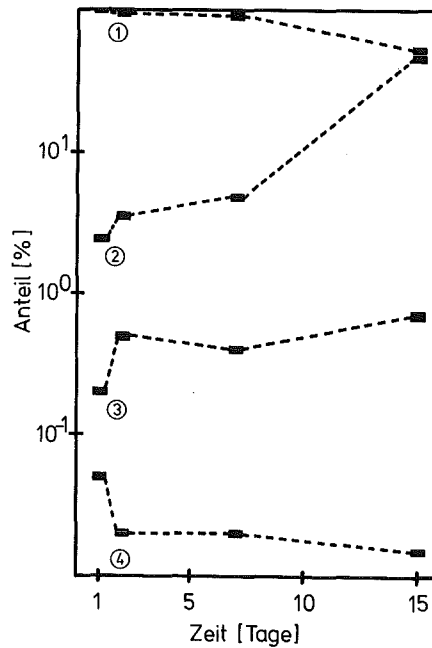
Durchlaßprofil und Aufspaltung in die Bestandteile der Kurve

Abb. 4114/2-13



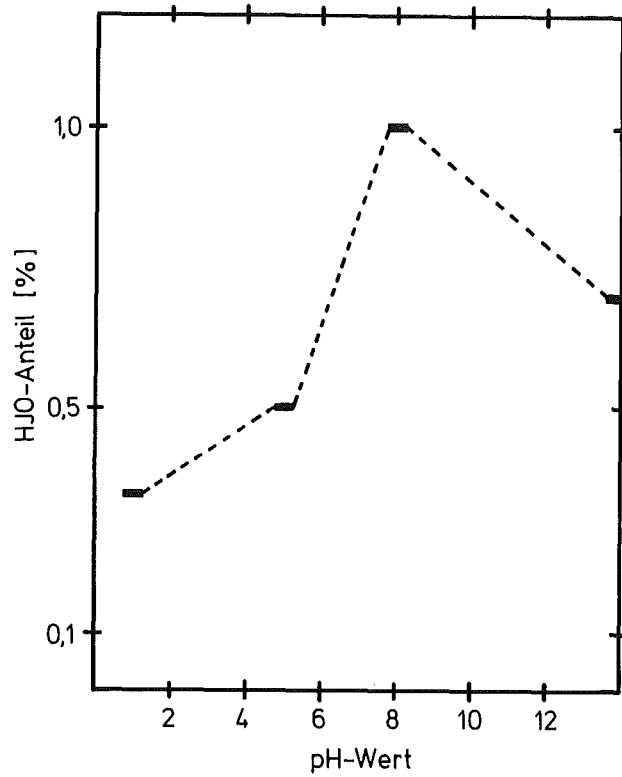
GRK LAF II 145077

ABB.: 4114/2-14 Abhängigkeit der Halbwertsbettiefe von der relativen Luftfeuchtigkeit



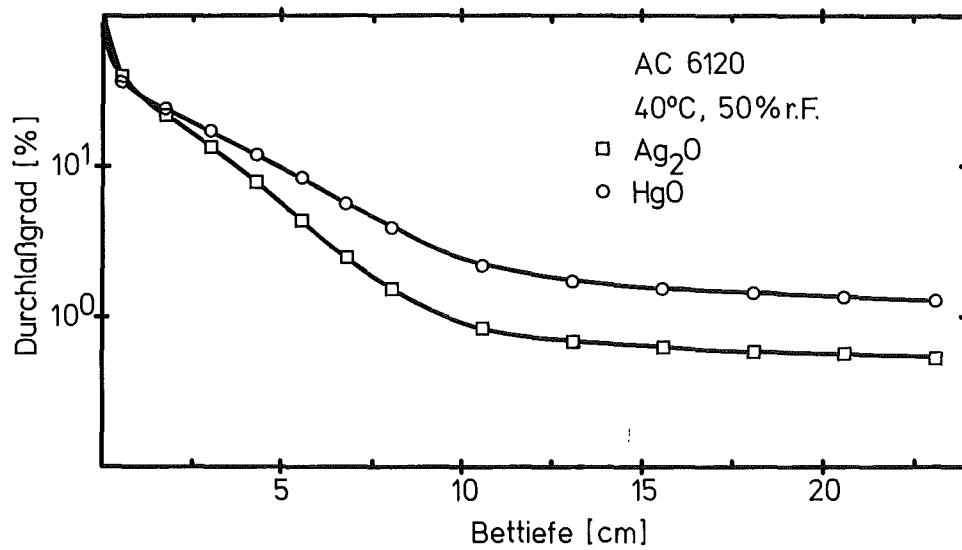
GRK LAF II 145177

ABB.: 4114/2-15 Abhängigkeit der Zusammensetzung des verflüchtigten Jodes von der Zeit



GIK LAFII145277

ABB.: 4114/2-16 pH-Abhängigkeit des Anteils von H₂O an der verflüchtigten Jodmenge



GIK LAFII145477

ABB.: 4114/2-17 Durchlaßprofile bei Einsatz von Ag₂O u. HgO in JG2

4120 Freisetzung, Transport und Ablagerung von Spaltprodukten in Reaktorkreisläufen

4123 Reduktion der Aktivierung und Kontaminierung von Reaktorkreisläufen

(I. Michael, R. Melcher)

Die Untersuchung der Metallabgabe des Dampferzeugerrohrwerkstoffes INCOLOY alloy 800 an Druckwasser bei 340°C und 150 bar in zwei Autoklaven wurde fortgesetzt. Dabei standen die Metallgehalte der Hauptlegierungskomponenten Eisen, Chrom und Nickel in Abhängigkeit von der Konzentration von freiem Sauerstoff im Speisewasser im Vordergrund.

Mit Hilfe der Atomabsorptionsspektrometrie wurden im Bereich der Ultramikroanalyse bei 5,0; 0,5 und 0,05 ppm O₂ die Nickel-, Chrom- und Eisenkonzentrationen der Druckwasserlösungen nach Probenahme direkt aus den Autoklaven und Abkühlung im Probengefäß bestimmt.

Für den Nickel- und den Chromgehalt ergab sich mit abnehmendem Sauerstoffgehalt ebenfalls eine monotone Abnahme, wie dies Abb. 4123-1 zeigt. Dagegen zeigte der Eisengehalt im Druckwasser von 5,0 nach 0,5 ppm O₂ eine mäßige Abnahme, von 0,5 nach 0,05 ppm O₂ jedoch eine deutliche Zunahme. Dieses anomale Verhalten im Metallgehalt in Lösung hat seine Analogie in der Dicke der auf den INCOLOY 800-Proben entstandenen Druckwasserkorrosionsschichten, wie die interferenzoptischen und die physikalischen Oberflächenuntersuchungen der Augerelektronen-Spektroskopie erkennen ließen. Dieses anomale Verhalten wurde auch von Resch (VGB Speisewassertagung 1969, Sonderheft S. 17) beobachtet. Er stellte fest, daß die Korrosionsgeschwindigkeit des ferritischen, hoch-eisenhaltigen Stahls St 35.8 bei Gehalten an freiem Sauerstoff im salzfreiem Wasser bei 75°C unterhalb von 0,2 ppm um etwa den Faktor 10 anstieg.

Es wurde dieser Sachverhalt so gedeutet, daß zur Ausbildung einer geschlossenen Schutzschicht ein bestimmter Sauerstoffgehalt im Wasser nicht unterschritten werden darf. Das Fehlen einer protektiven Oxidschicht bei niedrigsten Gehalten an freiem Sauerstoff im Druckwasser bewirkt eine höhere Eisenauflösung

und damit stärkere Eisenabgabe.

Neben dem Dampferzeugerrohrwerkstoff INCOLOY alloy 800 von HENRY WIGGINS wird der vergleichbar zusammengesetzte Werkstoff NICROFER 3220, Werkstoff Nr. 1.4876 von VDM auf seine Metallabgabeeigenschaften untersucht. Dabei wird sowohl die "neutrale Fahrweise" wie auch der LiOH-Alkalisierungszusatz angewendet. Die Analyse der dabei entstehenden Korrosionsschichten erfolgt mittels physikalischer Oberflächenanalyse.

Literatur:

I. Michael und C. Plog

Dünnschichtanalyse von Druckwasserkorrosionsschichten auf INCOLOY 800-Proben.

Metall, 31. (1977), 252-256

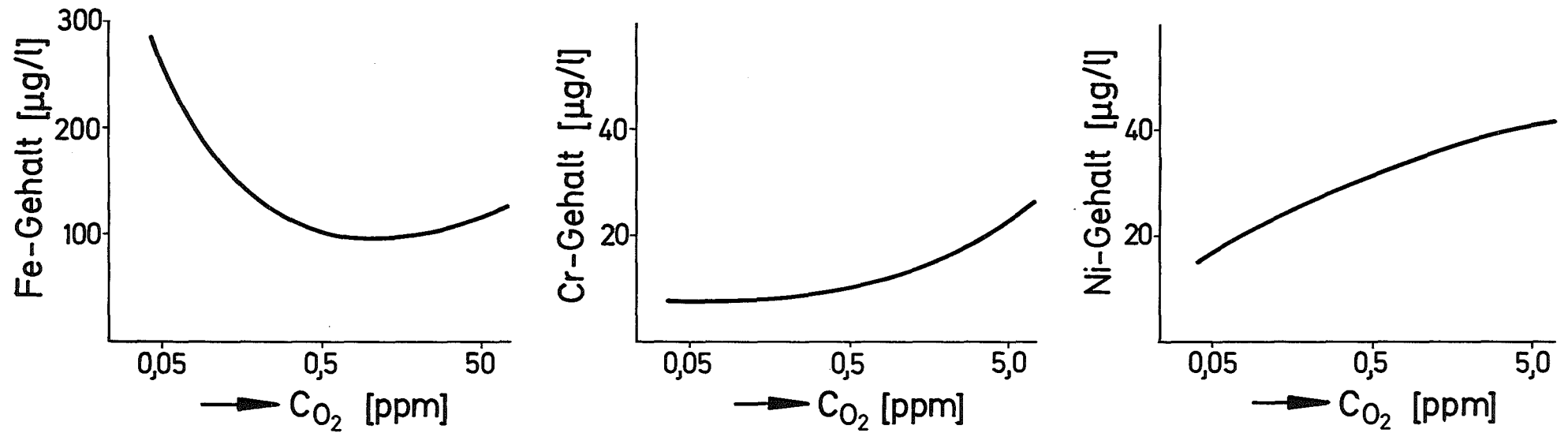


Abb. 4123-1

Fe-, Cr- u. Ni-Gehalte von INCOLOY alloy 800 im Druckwasser (340°C, 150 bar) nach 300 Std., (O₂-Gehalt bei 25°C gemessen)

4130 Langfristige radiologische Umgebungsbelastung

4132 Untersuchungen zur ^{129}J -Radioökologie

(H. Schüttelkopf, ASS)

Im ersten Halbjahr 1977 wurden die Messungen von ^{129}J in Ziegenmilch fortgesetzt. Die Werte zeigen eine fallende Tendenz. Die Ergebnisse liegen zwischen 0,03 und 1,1 pCi/l. ^{129}J wurde getrennt nach Aerosolen und gasförmigen Anteilen in der Umgebungsluft der WAK gemessen. Die Bodenanalysen auf ^{129}J wurden fortgesetzt. Insgesamt wurden 46 ^{129}J -Bestimmungen in Bodenproben durchgeführt. Die Ergebnisse liegen zwischen $\leq 0,3$ und 5,6 fCi/g. Blindwerte ergaben $\leq 0,08$ fCi/g. Da als Ursache der beobachteten Abnahme der ^{129}J -Konzentration in der Ziegenmilch die Abnahme der ^{129}J -Kontamination des Bodens angesehen wird, wurden an den Stellen höchster ^{129}J -Kontaminationen im Juni 1977 abermals Bodenproben genommen.

Die Messung von ^{127}J , getrennt nach Aerosolen und J_2 -Anteil, in der Umgebungsluft des KFZ Karlsruhe wurde fortgesetzt. Insgesamt wurden 13 Proben analysiert. Drei Probenahmegeräte wie sie in Karlsruhe seit September 1976 in Betrieb sind, wurden in Kiel, Stade und Gundremmingen installiert. Die Installation einer weiteren Anlage in Lingen ist geplant. Die ^{127}J -Analytik wurde in mehreren Punkten verbessert. Ergebnis dieser Verbesserungen ist im wesentlichen die jetzt gegebene Möglichkeit über 14 Tage kontinuierlich Proben zu sammeln. Ein Vergleich der Messung von ^{127}J in Milch mit der AgJ-Elektrode, der Neutronenaktivierung und einer spektralphotometrischen Methode fiel zu Gunsten der letzteren aus.

Acht Proben der HAW-Lösungen der WAK wurden auf ^{129}J analysiert. Ebenso wurden 15 Proben der Abluft über mehrere Monate gesammelt und der ^{129}J -Gehalt in der WAK-Abluft bestimmt. Der Anteil des ^{129}J , der an Aerosolen gebunden ist und die Anteile des organischen und anorganischen gasförmigen ^{129}J wurden gemessen.

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

(R.v.Ammon, W.Bumiller, G.Franz, E.Hauß, E.Hutter,
G.Kimmig, G.Knittel, G.Neffe, W.Weinländer)

1. Tieftemperatur-Rektifikation

Im Berichtszeitraum wurden mit der Tieftemperatur-Rektifikationsanlage KRETA zwei Versuchskampagnen von zwei bzw. vier Betriebswochen durchgeführt. Bei dem zweiten Versuch im Mai wurde bereits die inzwischen gelieferte und in Betrieb genommene Adsorptionsanlage ADAMO (CO₂- und H₂O-Vorreinigung) zur Wasserentfernung aus dem Prozeßgas eingesetzt (siehe auch Pkt. 2).

Die Untersuchungen konzentrierten sich auf das Verhalten der ersten Kolonne zur Trennung der Edelgase Krypton und Xenon vom Trägergas Stickstoff mit den Zielen

a) Trennfaktor

Nachweis eines Trennfaktors für Krypton und Xenon in dieser Kolonne von $DF \geq 10^3$;

b) Stationärer Zustand

Erreichen des stationären Konzentrationsprofils für Krypton und Xenon in der ersten Kolonne und Vergleich mit den Berechnungen.

Um den stationären Zustand der Kolonne schneller zu erreichen, als bei Einspeisung mit den aus dem Auflöserabgas zu erwartenden Edelgaskonzentrationen (ca. 500 h bis zum Pkt.3 im Diagramm 1), wurde bei beiden Versuchen anfänglich mit erhöhten Krypton- und Xenon-Konzentrationen eingespeist. Dabei waren zwei Fahrweisen vorgesehen (Diagramm 1), mit denen der Ausfrierbereich für Xenon (schraffiertes Feld) mehr oder weniger weit umgangen werden sollte. (Diagramm 1 bezieht sich auf die Sumpfflüssigkeit).

Fahrweise im 1. Versuch:

Einspeisung Krypton:Xenon = 1:1 bis zum Beginn des Sumpfabzugs bei Pkt.2, danach Einspeisung Krypton:Xenon = 1:5,5

Fahrweise im 2. Versuch:

Voreinspeisung von Krypton bis 40% Kr im Sumpf (Pkt.1) danach Einspeisung Krypton:Xenon = 1:9

a) Trennfaktor

Das Kopfprodukt wurde mit einem Spuren-Gaschromatographen überwacht (Nachweisgrenze: min. 0,1 ppm; max. 100 ppm). Bei stabilem Kolonnenbetrieb wurde die Nachweisgrenze des Chromatographen meist unterschritten, was einem $DF > 10^3$ für beide Edelgase entspricht.

b) Stationärer Zustand

In keinem der beiden Versuche konnte der stationäre Kolonnenzustand erreicht werden, da jeweils bald nach Beginn der Xenon-Zugabe Störungen in der Kolonne auftraten. Dabei sind zwei Arten von Störungen zu unterscheiden:

1. Anstieg der Differenzdruckmessung am Abtriebsteil und/oder Verstärkungsteil der Kolonne über das normale, dem sich ändernden Konzentrationsprofil entsprechende Maß hinaus. Bei diesem Vorgang ist Verstopfen eines oder mehrerer Siebböden durch ausfrierendes Xenon anzunehmen.
2. plötzlich auftretendes entgegengesetzt - gleiches Auseinanderlaufen zweier, durch gemeinsamen Meßschenkel mit der Kolonne verbundenen Differenzdruck-Messungen. Bei diesem Vorgang wurde Verstopfen der gemeinsamen Meßleitung festgestellt und ebenfalls auf ausfrierendes Xenon zurückgeführt.

Diesen Störungen wurde durch Veränderung von Sumpfheizung oder Kondensatorkühlung entgegengewirkt. Sie konnten in jedem Fall nach unterschiedlicher Zeit beseitigt werden. Es wurde jedoch auf diese Weise nicht erreicht, die Kolonne über lange Zeit stabil zu betreiben und in den stationären Zustand zu bringen, da durch die Gegenmaßnahmen die Betriebsparameter der Kolonne nicht mehr dem Gleichgewichtszustand entsprachen.

Folgerungen:

- 1.) Die Trennung der Edelgase Krypton und Xenon aus dem gegebenen Abgas mit dem Verfahren der Tieftemperatur-Rektifikation konnte mit hohem Trennfaktor nachgewiesen werden. Während der aufgetretenen Störungen wie unter b)1. angegeben, wurde jedoch verstärkter Edelgasaustritt im Kopfprodukt gemessen.
- 2.) Die unter b)2. genannten Störungen können durch kleine Veränderung an der Versuchsanlage (Einbau von Heizungen an den Meßleitungen) unterbunden werden.
- 3.) Obwohl nach den neuesten, zur Verfügung stehenden Stoffdaten der Ausfrierbereich für Xenon im Dreistoffgemisch größer anzunehmen ist als in Diagramm 1 gezeichnet (mit idealen Annahmen gerechnet), erklärt sich ein Verstopfen der Siebböden bereits bei geringen Xenonkonzentrationen nicht als Ausfrieren aus der flüssigen Phase.

Mit dem Vorgang des Ausfrierens aus der Gasphase (Desublimation) können die aufgetretenen Erscheinungen besser erklärt werden, wenn man annimmt, daß das mit dem Feedstrom eintretende Xenon sofort mit dem über dem Feed eintritt angeordneten, unter Flüssigstickstofftemperatur stehenden Siebboden in Kontakt kommt. Diagramm 2 zeigt den Betriebspunkt für Xenon an dieser Stelle im Feed der

Kolonne (F) und den Zustand an der Berührungsfläche des Gases mit dem nächsten Boden (B) der jeweils angestrebten Einspeiseenddaten aus beiden Versuchen.

Unter diesen Bedingungen könnte "Trägergassublimation" möglich sein.

Eine ähnlich kritische Stelle ist im Übergang von der Sumpftemperatur zur tieferen Kolonnentemperatur im Bereich des 2. oder 3. theoretischen Bodens zu suchen.

2. Vorreinigung

2.1 Katalytische Reduktion von O_2 und NO_x mit H_2

Nach Beendigung der Laboruntersuchungen zur Auswahl geeigneter Katalysatoren und zur Vergiftung durch Jod und Tributylphosphat (1,2), die an einer einfachen Strömungsapparatur (Durchsatz max. $1 \text{ Nm}^3/\text{h}$) vorgenommen worden waren, wurde eine größere Laboranlage in Betrieb genommen. Diese Anlage ist mit einem Verdünnungskreislauf versehen (Durchsatz max. $10 \text{ Nm}^3/\text{h}$), so daß auch Gasgemische mit O_2 -Konzentrationen bis 20 Vol.-% (Luft) eingesetzt werden können, ohne daß die dafür erforderliche H_2 -Konzentration die Explosionsgrenze (4 Vol.-%) überschreitet. Das Schema dieser Anlage ist in Abb. 4140-3 gezeigt. Das O_2 - und NO_x -haltige Gasgemisch wird vor Eintritt in den Wärmetauscher V1 durch einen Stickstoff-Strom über das Gebläse V1 verdünnt. Die H_2 -Dosierung erfolgt erst danach. Da O_2 - und NO_x -Gehalt starken und schnellen Schwankungen unterworfen sind, andererseits aber kein großer H_2 -Überschuß am Ausgang vorliegen soll ($\leq 1000 \text{ vpm}$) wird die H_2 -Zufuhr geregelt. Die Regelung erfolgt über eine O_2 -Analyse (paramagnetisches Meßprinzip) am Eingang und eine H_2 -Analyse (katalytische Verbrennung) am Ausgang. Das Katalysatorbett ist zweigeteilt (C1,C2), um eine möglichst große Flexibilität zu besitzen; beispielsweise ist daran gedacht, im ersten Bett einen hochaktiven Pt-Kontakt anzubringen, der bei möglichst tiefer Temperatur im wesentlichen nur O_2 umsetzt. Die dabei freiwerdende Reaktionswärme wird als Vorheizung für das zweite Bett benützt. Dieses enthält einen Ru-Katalysator, der bei höherer Temperatur arbeitet und die NO_x sowie den restlichen O_2 umsetzt. Ebenfalls wird hier NH_3 zersetzt, mit dessen Bildung im ersten Bett in beträchtlichem Maß gerechnet werden muß.

Im Wasserkühler W2 wird H₂O abgeschieden. Neben den Meßstellen für O₂ und H₂ sind Probenahmestellen für NO_x und NH₃ vor, zwischen und hinter den Katalysatorbetten angebracht. Erste Versuchsergebnisse mit dieser Anlage zeigten, daß infolge der Sättigung des Kreislaufgases mit H₂O-Dampf die Aktivität des Pt-Katalysators für die O₂-Reduktion gegenüber trockener Atmosphäre sinkt, so daß bei höherer Temperatur gearbeitet werden muß.

2.2 Adsorption an Molekularsieben

Neben den dynamischen Adsorptionskoeffizienten (k_d) der Edelgase interessiert insbesondere die Frage, wie weit sich Kr durch Spülen bei Raumtemperatur vom Adsorbens wieder desorbieren läßt. Von der Effektivität dieses Spülschritts hängt es ab, ob die beim 3. Schritt, dem Regenerieren freigesetzten Gase so weit vom Kr befreit sind, daß sie später an die Atmosphäre abgegeben werden können. Andernfalls müßten sie rezykliert werden.

2.2.1 Labor-Untersuchungen

2.2.1.1 Adsorption

In Tab. 4140-1 sind die mit der Laboranlage für die Adsorbentien Silicagel und Molekularsieb 5A für Kr (markiert mit Kr-85) in trockenen und feuchtem (Taupunkt 5°C) N₂ als Trägergas erhaltenen k_d -Werte angegeben. Sie werden nach der Formel $k_d = t_M F / M$ (t_M = mittl. Durchbruchzeit [min], F = Gesamt-Gasfluß [Nml/min], M = Masse des Adsorbens [g]) berechnet.

Die erhaltenen k_d -Werte entsprechen den Erwartungen nach Literaturdaten (3): Sie sind allgemein sehr niedrig, Molekularsieb adsorbiert etwa dreimal besser als Silicagel; bei Anwesenheit von H₂O verringert sich die Adsorption von Kr etwas.

2.2.1.2 Desorption

Bei der verwendeten Tracer-Methode mit Kr-85 konnte der Spülvorgang genauso wie der Durchbruch bei der Adsorption kontinuierlich verfolgt werden. Die Aktivität war so bemessen, daß 1 Promille der Eingangskonzentration bei der Adsorption noch gut zu messen war. Bei den ersten beiden Versuchen

(Tab. 4140-1) war bei 1 bar und 20°C desorbiert worden, beim 3. Versuch bei 5 bar Gesamtdruck und 20°C. Der Nulleffekt war bereits nach 1,9 min bzw. 5,5 min erreicht.

Daß der Spülvorgang im Rahmen der Meßgenauigkeit quantitativ war, bewies die Tatsache, daß in keinem Fall beim anschließenden Regenerieren (240°C) Aktivität im Desorptionsgas nachzuweisen war.

2.2.2 Halbtechnische Versuche (Anlage ADAMO)

Für diese Versuche mußte ein diskontinuierliches Analysenverfahren angewendet werden, da die kontinuierlich messende Tracermethode nicht zur Verfügung stand. Es wurde eine manuelle Probenahme mit Präzisions-Glasspritzen durch Septomutter-Membranen durchgeführt. Die Auswertung erfolgte gaschromatographisch unmittelbar im Anschluß an die Probenahme. So konnten Meßpunkte in Abständen von 30 sec erhalten werden. In größeren Abständen wurden außerdem Meßwerte mittels automatischer Probenahme durch Prozeßgaschromatographen (Wärmeleitfähigkeits-Detektor) und einen Spurengasanalysator (GC mit Helium-Ionisations-Detektor, Empfindlichkeit 0.1 vpm) gewonnen.

2.2.2.1 Adsorption

Die Ergebnisse von mehreren Durchbruchversuchen von Kr allein sowie Kr + Xe an den hintereinander geschalteten Silicagel- und Molekularsieb-5A-Betten sind in Tab. 4140-1 zusammengefaßt. Die Adsorberbetten waren zum Teil frisch regeneriert, zum Teil vorher während 8 Std. mit feuchtem und CO₂-haltigem N₂ beschickt worden. Nur ein kleiner Teil des vorgeschalteten Silicagel-Bettes dürfte danach jedoch mit H₂O und CO₂ wirklich beladen gewesen sein. Typische Durchbruchkurven sind in Abb. 4140-4 für Kr und in Abb. 4140-5 für Xe gezeigt.

Folgende Feststellungen können getroffen werden:

- ein Vergleich der k_d -Werte für Kr allein mit den entsprechenden Daten der Laborversuche zeigt angesichts des enormen Dimensionsunterschieds (50:1) bezüglich des Gasstroms, 300:1 bezüglich der Adsorbens-Menge) befriedigende Übereinstimmung; die ADAMO-Werte liegen durchweg unter den Labor-Werten (bis zu 38 %);
- die Adsorption von Xe ist rund sechsmal stärker als die von Kr;

- die Adsorption von Kr wird durch die Anwesenheit von Xe an Molekularsieb nicht beeinflusst, an Silicagel jedoch um den Faktor drei verstärkt; sie ist damit etwa gleichstark wie an Molekularsieb;
- die Vorbehandlung mit H₂O und CO₂ hat sich auf die Kr- und Xe-Adsorption am Silicagelbett verringert (bis zu 20 %) ausgewirkt; am Molekularsieb ist demgegenüber kein signifikanter Effekt festzustellen, was angesichts der verschwindend geringen Beladung dieses Betts mit H₂O nicht überrascht;
- das Molekularsieb adsorbiert Kr und Xe rund dreimal besser als Silicagel.

2.2.2.2 Desorption

Der Spülschritt wurde im Gleichstrom mit einer auf 5 Nm³/h reduzierten Gasmenge bei 1 bar und 25°C vorgenommen. Den Verlauf der am Ende des nachgeschalteten Molekularsiebbetts von beiden Betten ausgetragenen Edelgaskonzentrationen zeigt Abb. 4140-6 für einen typischen Fall. Danach ist die Hauptmenge des unter diesen Bedingungen desorbierbaren Kr nach 60 min. entfernt, die Meßgrenze von 0,1 vpm ist nach 220 min. erreicht. Die bis zu diesem Zeitpunkt verbrauchte Spülgasmenge entspricht - bezogen auf 1 g Adsorbens - genau derjenigen, die in den Laborversuchen bis zum Erreichen der Meßgrenze verbraucht wurde (0,11 Nl/g). Im Maximum der Kr-Desorption (nach ca. 5 min) beträgt das Konzentrationsverhältnis $C/C_E = 1.3$ (C_E = Eingangskonzentration bei der Adsorption).

Die Desorption des Xe geht erwartungsgemäß langsamer vonstatten; das Maximum ($C/C_E = 2.6$) ist nach ca. 90 min. erreicht, bei Versuchsbeendigung nach 220 min. enthält das Spülgas noch 22 vpm Xe.

Integriert man die Spülkurven und vergleicht die so erhaltenen desorbierten Kr- und Xe-Mengen mit den bis zur Durchbruchzeit t_M adsorbierten Mengen, so erhält man für Xe Werte nahe 100 %, für Kr jedoch nur rund 50 %.

Falls diese Ergebnisse korrekt wären, müßte sich die Kr-Differenz zu 100 % beim Regenerieren finden, das im Gegenstrom mit 50 Nm³/h bei erhöhter Temperatur (max. 240°C) vorgenommen wurde. Ein Ergebnis zeigt Abb. 4140-7: während der ersten 10 min., als die Temperatur in den Adsorberbetten ca. 40°C betrug, wurde Xe desorbiert (Integral entsprechend 0,25 % der Gesamtmenge), jedoch war kein Kr feststellbar.

Bei insgesamt fünf Versuchen konnte nur einmal Kr im Regeneriergas festgestellt werden. Dieses trat innerhalb der ersten vier min. des Regenerierens aus und entsprach 16.8 % des Gesamt-Kr.

Diese Diskrepanzen lassen darauf schließen, daß ein Teil des Kr bei der Desorption von dem diskontinuierlich arbeitenden Analysensystem nicht erfaßt wurde. Die Versuche sollen daher wiederholt werden, wenn die kontinuierlich messende Tracer-Analytik (Kr-85 und Xe-133) installiert worden ist.

Literatur:

- 1) PNS Halbjahresbericht 1976/1 (KFK-2375)
- 2) R. v. Ammon et al., KFK-2437 (1977)
- 3) S. Kitani und J. Takada, J. Nucl. Sc. Technol. 2, 51 (1965)

Adsorptiv	Adsorbens	F/[Nl/min]	p/[vpm]	t _M /[min]	k _d /[Nml/g]
Kr	5A, 303 g	16.7	100	0.80	43.9
Kr + H ₂ O (Taupkt. 5°C)	5A, 303 g	16.7	200	0.72	39.6
Kr	Silicagel, 310 g	16.7	100	0,28	15.2
Kr	Silicagel, 70 kg	833	172	0.91	10.8
Kr	Silicagel, 70 kg ^{x)}	833	156	0.73	8.7
Kr	5A, 100 kg	833	172	3.25	27.0
Kr	5A, 100 kg ^{x)}	833	156	4.07	33.8
<u>Kr</u> + Xe	Silicagel, 70 kg	833	160	2.73	32.5
<u>Kr</u> + Xe	Silicagel, 70 kg ^{x)}	833	178	2.58	30.7
<u>Kr</u> + Xe	5A, 100 kg	833	160	3.97	33.0
<u>Kr</u> + Xe	5A, 100 kg ^{x)}	833	178	3.62	30.2
Kr + <u>Xe</u>	Silicagel, 70 kg	833	1200	5.93	70.6
Kr + <u>Xe</u>	Silicagel, 70 kg ^{x)}	833	1350	4.93	58.7
Kr + <u>Xe</u>	5A, 100 kg	833	1200	20.1	167.3
Kr + <u>Xe</u>	5A, 100 kg ^{x)}	833	1350	22.1	184.0

Tab. 4140-1: Adsorptionsdaten von Kr und Xe, erhalten in Laborversuchen

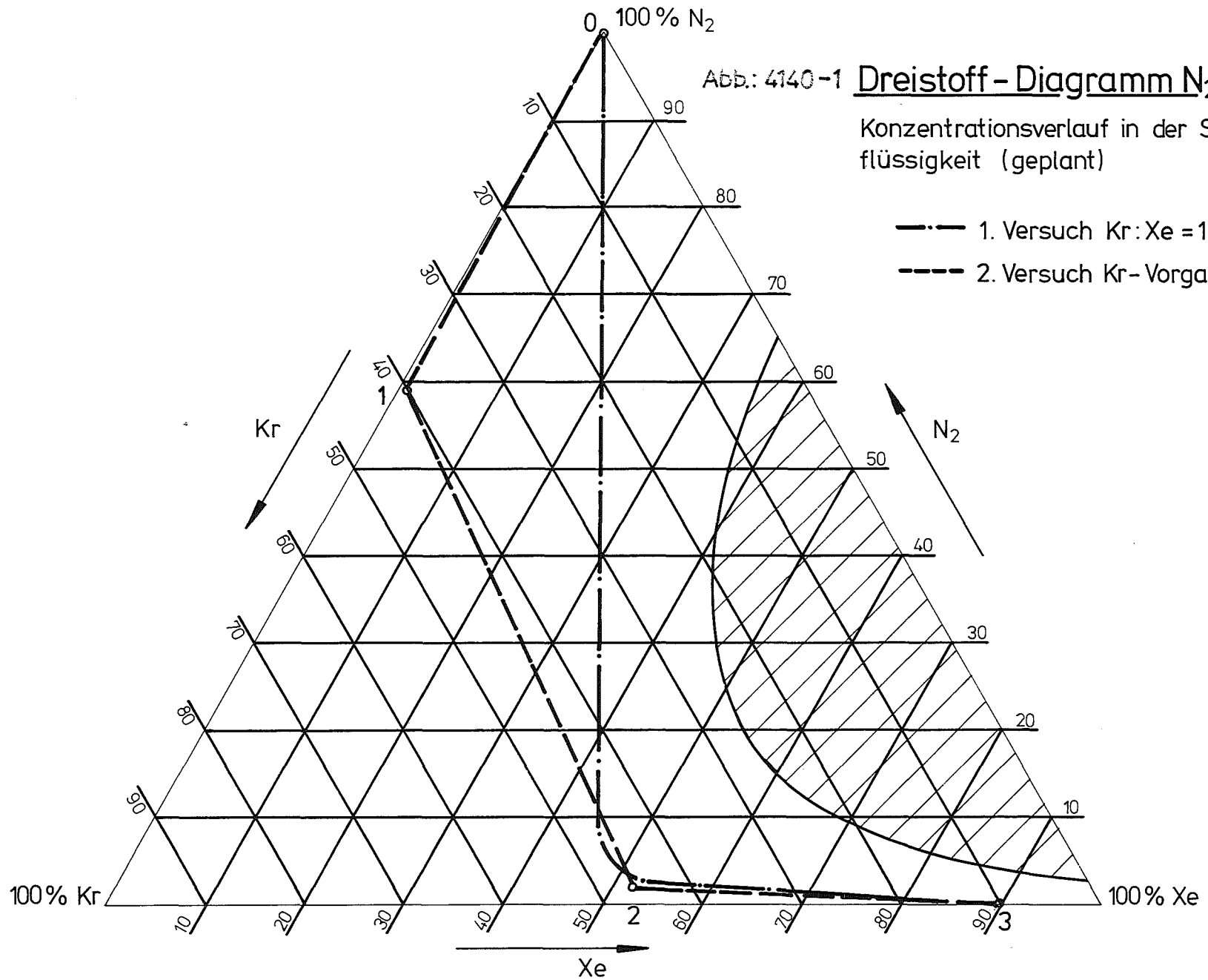
(erste drei Zeilen) und halbtechn. Versuchen,

Gesamtdruck jeweils 5 bar, Raumtemperatur;

x) vor diesen Versuchen war das Adsorbens 8 h lang mit feuchtem (Taupunkt 5°C) und CO₂-haltigem (300 vpm) N₂ beladen worden.

Abb.: 4140-1 Dreistoff - Diagramm N₂-Kr-Xe

Konzentrationsverlauf in der Sumpflüssigkeit (geplant)



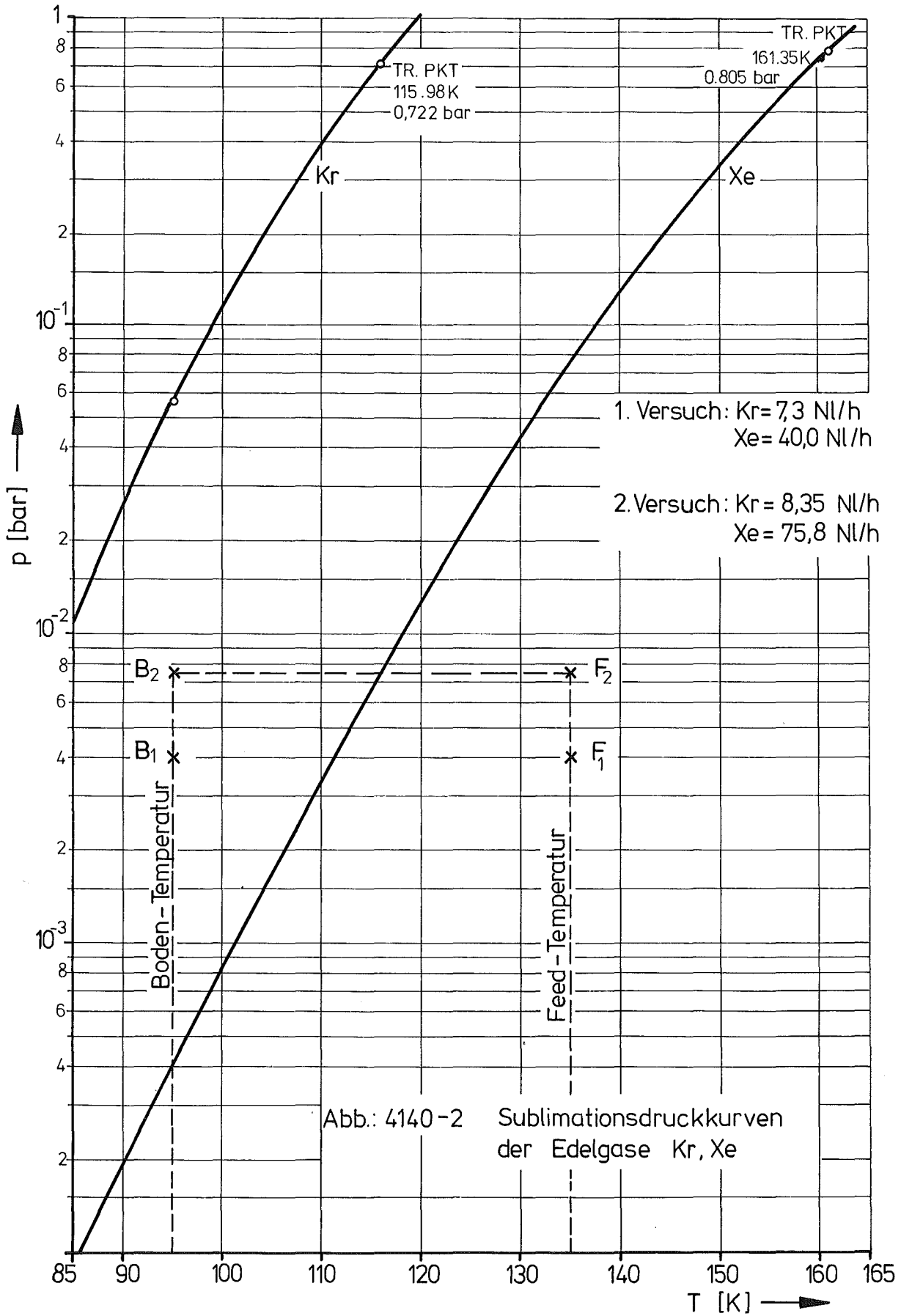
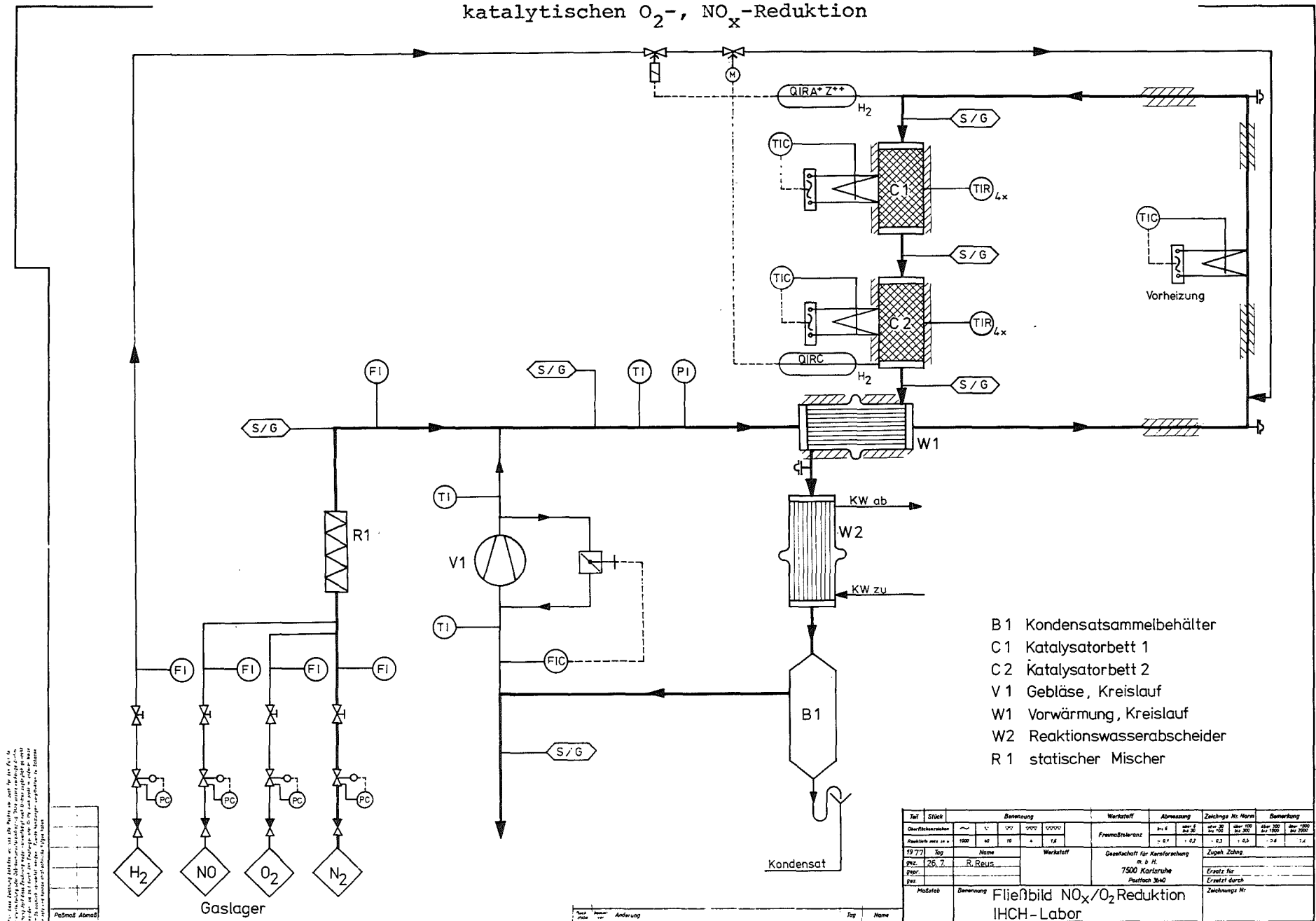


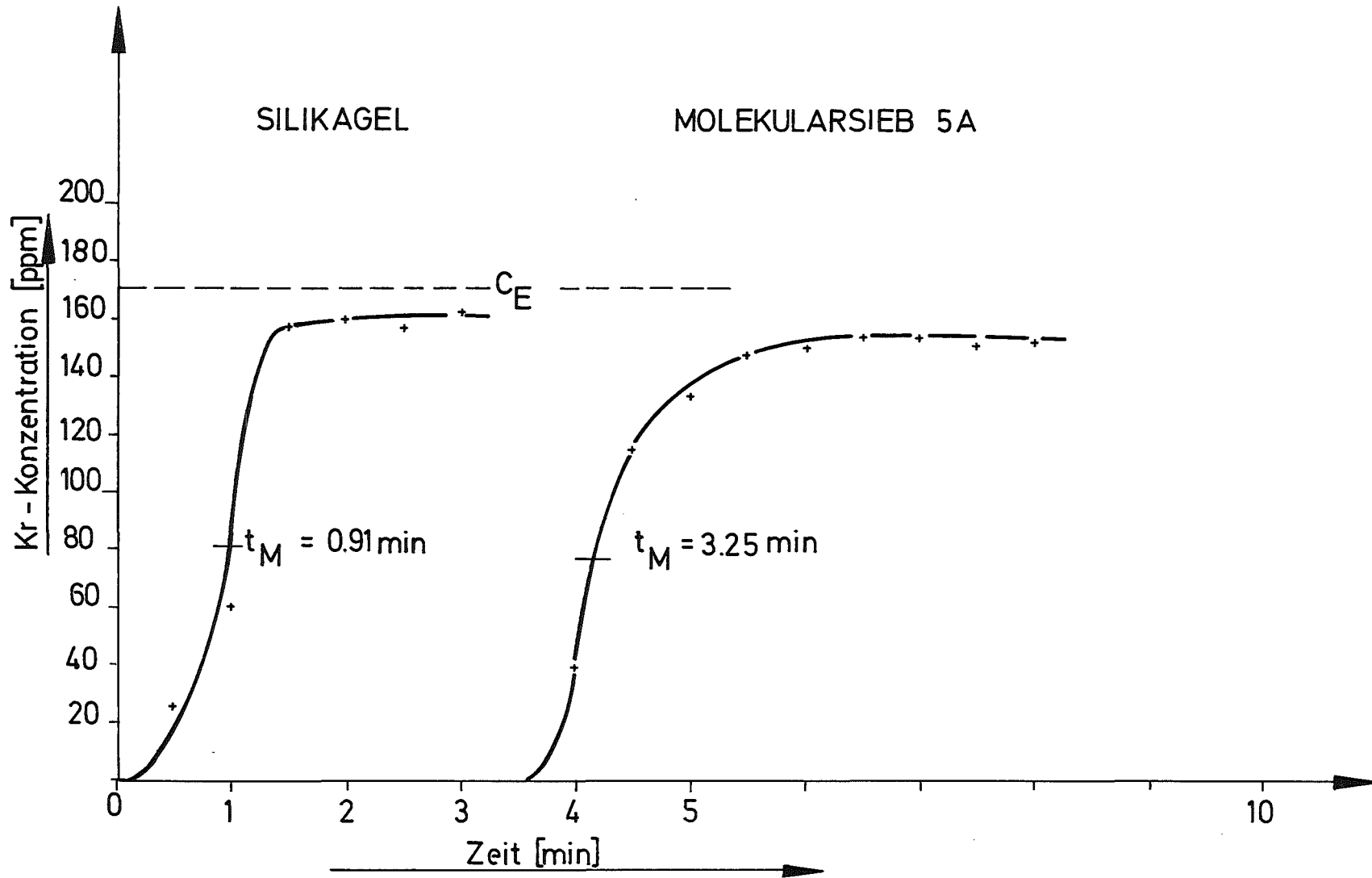
Abb. 4140-3: Fließbild des Labor-Versuchskreislaufs zur katalytischen O₂-, NO_x-Reduktion



- B 1 Kondensatsammelbehälter
- C 1 Katalysatorbett 1
- C 2 Katalysatorbett 2
- V 1 Gebläse, Kreislauf
- W 1 Vorwärmung, Kreislauf
- W 2 Reaktionswasserabscheider
- R 1 statischer Mischer

Teil	Stück	Benennung	Werkstoff	Abmessung	Zeichnungs Nr. Norm	Bemerkung
Überfließbohrloch	~	1"	1"	1"	1"	
Flansch mit 4 x 1/2"	1000	40	19	1,6		
15777	Stg	Name	Werkstoff	Gesamtheit für Karlsruher	Zugeh. Zeichn.	
15777	26, 7	R. Reus		7500 Karlsruhe	Erstellt für	
15777	15777	15777	15777	15777	Erstellt durch	
15777	15777	15777	15777	15777	Zuzeichnung Nr.	

Abb. 4140-4: Kr-Durchbruchskurven durch das Silicagel- und das Molekularsiebbett der Versuchsanlage ADAMO



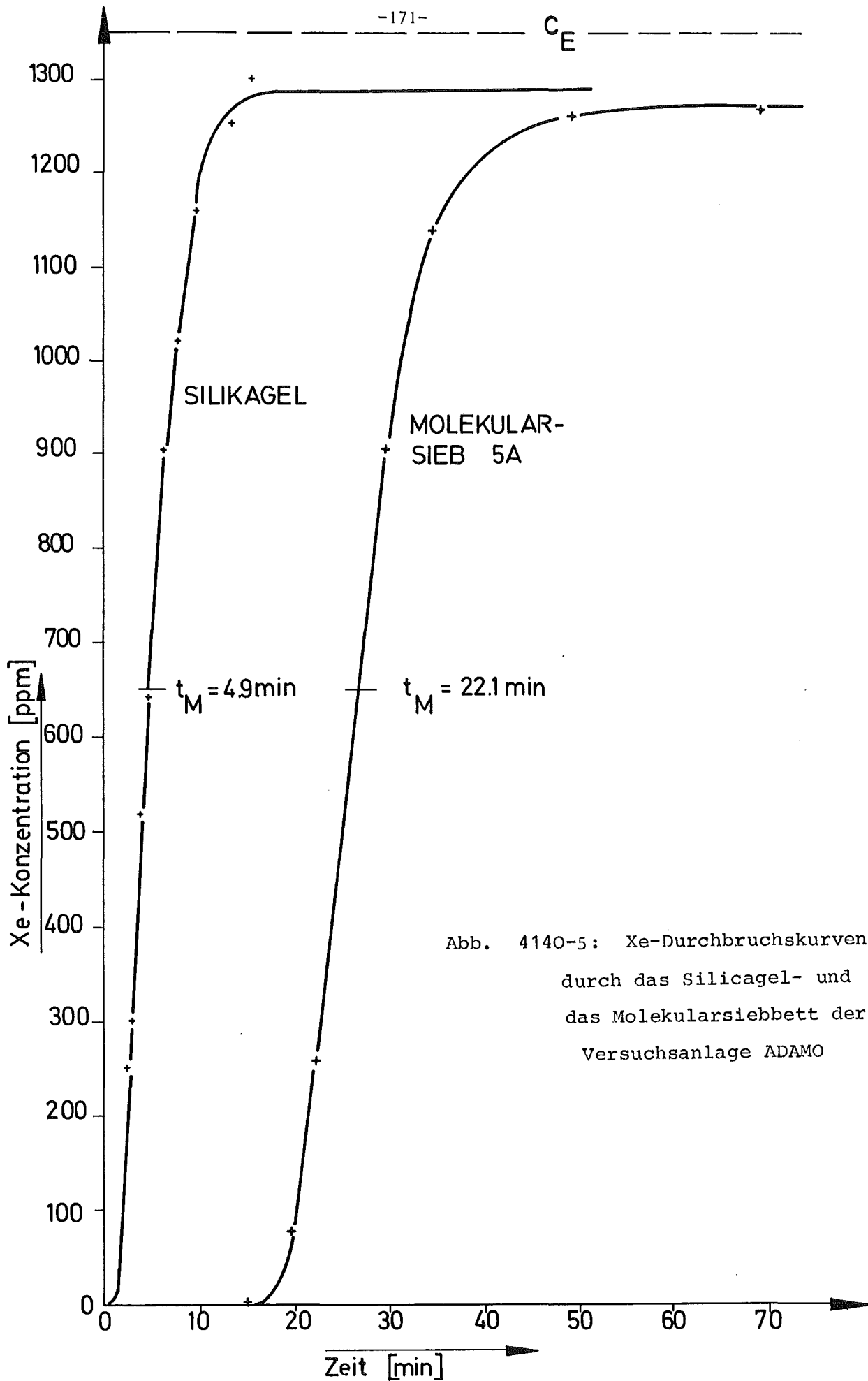


Abb. 4140-5: Xe-Durchbruchskurven durch das Silicagel- und das Molekularsiebbett der Versuchsanlage ADAMO

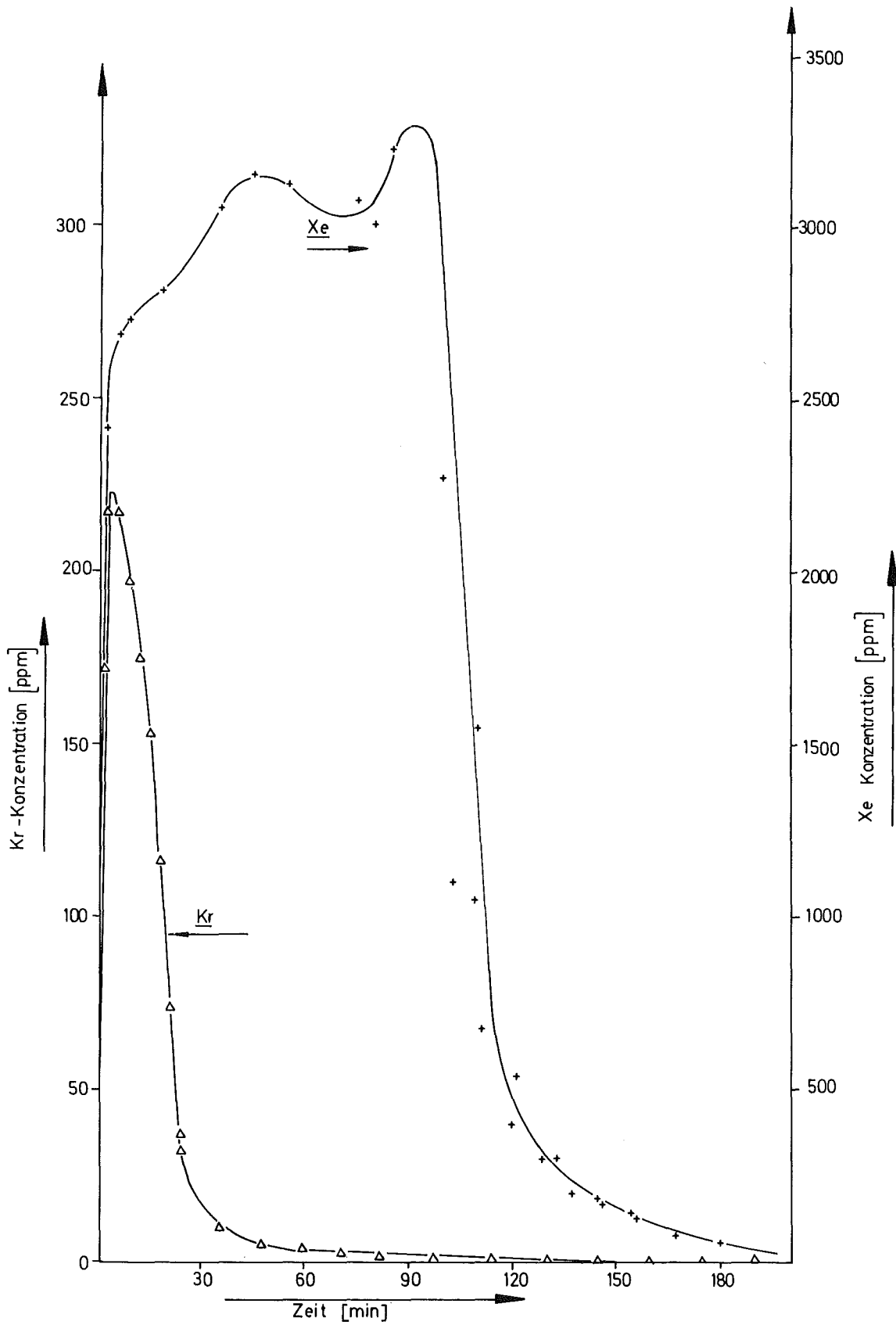


Abb. 4140-6: Desorptionskurven von Kr und Xe bei Spülung der Adsorberanlage ADAMO (Silicagel + Molekularsieb 5A) mit N₂ bei Raumtemperatur im Gleichstrom

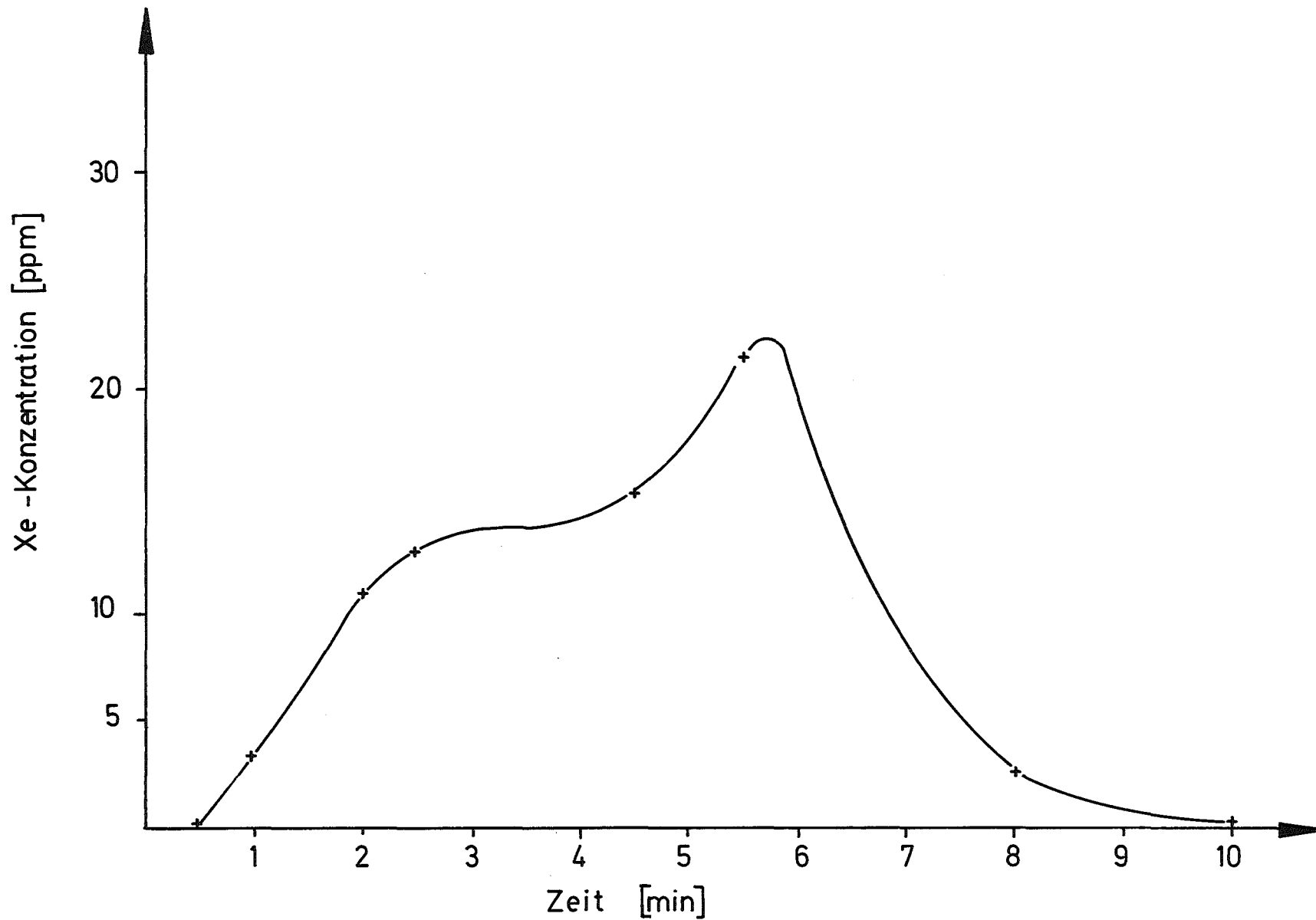


Abb. 4140-7: Desorptionskurve von Xe beim Regenerieren der Adsorberanlage ADAMO (Silicagel + Molekularsieb 5A) mit N_2 im Gegenstrom

3. Bestimmung von Ozon in einer Tieftemperatur-Rektifikationskolonne und Entwicklung eines Verfahrens für dessen Beseitigung (4624)

(R.-D. Penzhorn, P. Schuster, K. Günther, H.E. Noppel, IRCH)

3.1 Einleitung

Vor der eigentlichen Tieftemperatur-Rektifikation (TTR) muß das Auflösergas von allen Komponenten gereinigt werden, die zum Ausfrieren und damit zur Verstopfung von Leitungen, Ventilen oder Kolonnenböden führen können. Trotz seines günstigen Einflusses auf die Löslichkeitsverhältnisse in der TTR ist auch Sauerstoff unerwünscht, da durch β -Strahlen-Einwirkung auf Sauerstoff explosionsgefährliches Ozon gebildet wird. Es ist daher vorgesehen, das O_2 zusammen mit dem im Abgas anwesenden NO_x ($NO + NO_2$) mit Hilfe eines Ruthen-Katalysators zu entfernen. Wird auf die O_2 -Vorreinigung verzichtet oder bei einem Störfall (wie z.B. Lufteinbruch), ist mit beträchtlichen Ozonkonzentrationen im Sumpf der Kolonne zu rechnen. Aufgrund des dynamischen Konzentrationsverlaufs im Sumpf bzw. in den Böden der Kolonne während der Edelgasabtrennung ist auch bei nur wenigen ppm O_2 im TTR-Feedgas eine geringfügige Ozonbildung nicht auszuschließen.

Über Untersuchungen mit einer Vielzahl von Katalysatoren die zur Ozonzerstörung in Frage kommen, wurde bereits in vorangegangenen PNS-Halbjahresberichten geschrieben. Im Berichtszeitraum wurden kupferhaltige Katalysatoren untersucht, um zu prüfen, ob die Ozonzerstörung durch eine darauffolgende Entfernung des Sauerstoffs verbessert werden kann. Die quantitative O_2 -/ O_3 -Entfernung ist auch für die Endlagerung von Krypton von Interesse, da O_2 nachweisbar die Korrosion durch Rubidium, ein Tochter-nuklid des Kr-85, erhöht.

3.2 Apparatur

Für diese Versuche wurde eine Gasströmungsapparatur aus Edelstahl gebaut (s. Abb. 4140-8). Ozon wurde durch stille Entladung in Sauerstoff entweder mit dem Fischer-Ozongenerator Modell 504 (max. $1 \text{ m}^3/\text{h } O_2$ und $35 \text{ g } O_3/\text{h}$) oder dem Modell 501 (max. $0,1 \text{ m}^3/\text{h } O_2$ und $3 \text{ g } O_3/\text{h}$) erzeugt. Die katalytische Ozonzerlegung bzw. die O_2 -Absorption fand in einem 0,2 Liter Edel-

stahlbehälter statt, der mit 5 Fe/Konstantan-Thermoelementen, die an einen "Trendikator"-Anzeiger angeschlossen sind, und einer TOI Miniaturheizleitung versehen ist. Für die kontinuierliche Bestimmung von Sauerstoff wurde ein Magnos-thermomagnetischer Sauerstoffanalysator vom Typ 2T und zur Bestimmung von Sauerstoffspuren ein D5/2000 SIMAC O₂-Analysator im Bypass verwendet. Der kupferhaltige Katalysator konnte sowohl mit CO als auch mit H₂ regeneriert werden. Die Regenerierung mit CO wurde vorgezogen aus Sicherheitsbetrachtungen, der wesentlich einfacheren Analytik und dem Ausschluß von beträchtlichen Mengen an Wasser, die durch die Oxidation des H₂ gebildet werden und nur schwer aus Leitungen, Geräten usw. wieder zu entfernen sind. Die Regenerierung konnte gaschromatographisch mit einer Porapak Q-Säule durch Bestimmung des CO/CO₂-Verhältnisses verfolgt werden. Hierfür wurde ein HP 5700 Gaschromatograph, gekoppelt an einen schreibenden Integrator, eingesetzt.

Die Messung der spezifischen Oberfläche der Katalysatoren wurde nach dem Standardverfahren der Tieftemperatur-Stickstoff-Adsorption nach Brunauer, Emmett und Teller (BET) mit einer von der Fa. Ströhlein hergestellten Apparatur durchgeführt.

3. Sauerstoffabsorption

Zur Auswahl des Kupferkatalysators mit der größten O₂-Aufnahmekapazität wurden vier käuflich erhältliche Katalysatoren: a) BTS (Fluka), b) R-3-11 (BASF) c) Aktimet-13 (Doduco) und einem, von der Fa. Degussa hergestellt, verglichen. Am Beispiel des BTS-Katalysators ist zu sehen, daß die absorbierte O₂-Menge (in N l O₂/kg Katalysator) der Verweilzeit s des sauerstoffhaltigen Gases direkt proportional ist (s. Abb. 4140-9). Als Versuchsparameter galten die He/O₂ Strömungsgeschwindigkeit (zwischen 0,5 und 0,08 m³/h) und die Katalysatormenge (zwischen 0,05 und 0,15 kg); die Zusammensetzung des Gasstromes wurde bei 26,3 % O₂ in He konstant gehalten. Der Sauerstoff konnte nach diesem Verfahren bis auf <1,5 ppm aus dem Gasstrom entfernt werden. Die während der O₂-Absorption erreichte maximale Temperatur ist, wie aus Abb. 4140-10 ersichtlich, bei geringen Durchflüssen stark von diesem abhängig. Bei Durchflüssen über 0,08 Nm³/h konnte kein weiterer nennenswerter Temperaturanstieg festgestellt werden. Eine Beeinträchtigung des Katalysators bei wiederholter Verwendung (Oxid.-Red.) war ebenfalls nicht erkennbar. Die anderen untersuchten Katalysatoren zeigten bezüglich der O₂-Absorption ein ähnliches Verhalten, waren jedoch in ihrer

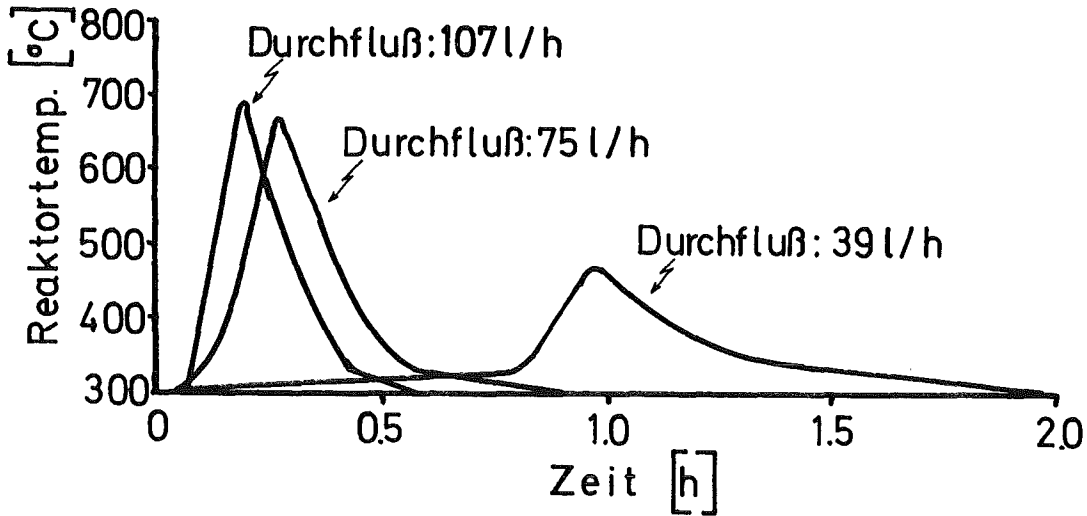


Abb. 4140-10 Temperaturanstieg während der O₂-Absorption auf 150 g BTS-Katalysator

Effektivität geringer (s. Abb. 4140-11). Die absorbierte Sauerstoffmenge ist durch die Gesetzmäßigkeit

$$M_{O_2} = A + B s$$

gegeben, wobei

M_{O_2} = absorbierte O₂-Menge (Nl/O₂/kg Katalysator)

A = Proportionalitätskonstante (1/kg s)

B = Proportionalitätskonstante (1/kg)

s = Verweilzeit (s)

ist. Die Proportionalitätskonstanten A und B sind über die O₂-Absorptionsleistung der Katalysatoren aussagekräftig, sie sind in Tabelle 4624-I zusammen mit den spezifischen Oberflächen und dem Katalysatorträgermaterial der verschiedenen untersuchten Katalysatoren aufgetragen. Abbildung 4140-12 zeigt die Abhängigkeit der O₂-Aufnahmekapazität von der Oberfläche verschiedener Cu/Al₂O₃ Katalysatoren bei Verweilzeiten $s \rightarrow 0$, d.h. bei den höchsten Strömungsgeschwindigkeiten. Das lineare Verhältnis verdeutlicht, daß die Bestimmung der spezifischen Oberfläche ein gutes Kriterium für die Auswahl eines Cu/Al₂O₃-Katalysatoren ist. Wird Cu auf SiO₂ aufgetragen, so ergibt sich selbst bei einer hohen spezifischen Oberfläche wie 258 (m²/g) ein schlechter O₂-Absorber. Offensichtlich ist SiO₂ ein für diese Zwecke ungünstiges Trägermaterial. Aufgrund der obigen Ergebnisse wurden die weiteren Versuche nur noch auf den BTS-Katalysator beschränkt.

Tabelle 414o-2 Vergleich der Sauerstoffabsorptionskapazität verschiedener kupferhaltiger Katalysatoren

Katalysator	Trägermaterial	Mittlere spez. Oberfläche (m ² /g)	A (1/kg s)	B (1/kg)
Actimet 13	Al ₂ O ₃	56	2,7	10
Degussa	SiO ₂	258,1	2,6	15
R-3-11	Al ₂ O ₃	181,6	5,9	27
BTS	Al ₂ O ₃	202,5	4,8	33

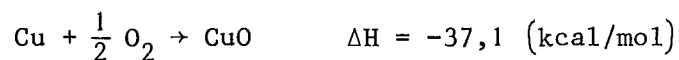
3.4 Ozonzerstörung

Das in einem Fischer-Modell 50l generierte Ozon konnte auch bei maximaler Strömungsgeschwindigkeit und Leistung mit 10 g oxidiertem BTS-Katalysator selbst bei Raumtemperatur 100 %-ig zerstört werden. In einem weiteren Versuch, in dem 10 g oxidiertes BTS-Katalysator 3 1/2 Stunden bei Zimmertemperatur einem 0,4 (m³/h) O₂/O₃ Gasstrom mit insgesamt 23 (g/h) Ozon ausgesetzt wurde (s. Abb.414o-13) konnten nach einer kurzen Anfangsphase von 45 min, in der der Wirkungsgrad des Katalysators um ca. 10 % abnahm, verhältnismäßig stabile Verhältnisse erreicht werden. Die Stabilisierungsphase ist mit einem Temperaturanstieg verbunden, der durch die Zersetzungswärme des Ozons ($\Delta H = -34$ kcal/mol) verursacht wird. Da der Wirkungsgrad des Kupferkatalysators bei Temperaturen unter 60°C merklich abnimmt, ist die beobachtete Anfangsphase verständlich.

3.5 Die O₂-O₃-Absorption

Bei diesen Versuchen stand schwerpunktmäßig ein Vergleich zwischen der Sauerstoffabsorption aus einem O₂/He und einem O₂-/O₃-/He-Gasstrom im Mittelpunkt. Abbildung 414o-14 zeigt, daß bei einer Katalysatorbelastung von 0,02 bis 0,3 N m³/h, einer Temperatur von 300°C und einer Gaszusammensetzung von 26,3 % O₂ und 73,7 % He sowohl O₂ als auch O₂/O₃ (O₃ ca. 1,5 % des O₂) quantitativ und ohne Nebenerscheinungen aus einem Gasgemisch entfernt werden können. Dies ging daraus hervor, daß im Reaktorabgasstrom

spektrophotometrisch kein O_3 und mit der Zirkoniumoxyd-Zelle kein O_2 nachgewiesen werden konnte. Die aus der Reaktion



freigesetzte Wärme ist, aufgrund des kleinen O_3/O_2 Verhältnisses, wesentlich höher als diejenige, welche aus der Reaktion von reduziertem Katalysator mit O_3 entsteht. Demzufolge ist, wie erwartet, keine Änderung im Temperaturanstieg zu beobachten, wenn in dem O_2/He Gasstrom auch O_3 anwesend ist.

3.6 Katalysatorvergiftung durch NO_x

Frühere Versuche haben gezeigt, daß NO_x (Stickoxidmischungen) einen starken vergiftenden Effekt auf die Wirksamkeit von Katalysatoren haben. Die Ergebnisse der zwei Versuchsreihen, die durchgeführt wurden, sind in Tabelle 414o-3 zusammengefaßt. Der Gasdurchsatz wurde etwa konstant gehalten, die NO -Zudosierung zwischen 0 und 5,1 % des Gesamt-Gasstromes variiert. Offensichtlich wird der Katalysator durch das NO_x nicht beschädigt, da er sich nach Ausschalten des NO Partialgasstromes völlig erholt. Weiterhin ist der Vergiftungseffekt, im Vergleich zu anderen Katalysatoren (s. frühere KFK-Halbjahresberichte), gering.

Tabelle 414o-3 Einfluß des NO auf die Wirksamkeit des reduzierten BTS-Katalysators bei $300^\circ C$

Ausgangskonzentrationen (%)			Gasdurchsatz (Nl/h)	Peakfläche (willk. Einheiten)
He	O_2	NO		
74	26	--	56	100
73	26	1	56	98
74	26	--	56	96
74	26	--	55	100
70,2	24,7	5,1	58	95,4
74	26	--	55	99,7

3.7 Schlußfolgerungen

Zusammengefaßt ergeben sich aufgrund der bisherigen Experimente über die O_2 -Absorption bzw. O_3 -Zerstörung mit kupferhaltigen Katalysatoren folgende Schlußfolgerungen:

- Auf Cu-Katalysatoren kann die O_2 -Absorption mit der O_3 -Zerstörung vereinigt werden. Ein Prozeßgas wird mit diesem Katalysator bis zum ppm-Bereich von O_2 befreit. Bei Gasdurchsätzen unter $0,2 \text{ Nm}^3/\text{h}$ kann der Katalysator bei Raumtemperatur betrieben werden, da die Ozonzerfallswärme ausreicht, um den Katalysator bis zur optimalen Temperatur von $\geq 70^\circ\text{C}$ zu erwärmen.
- Für Cu-Katalysatoren ist, hinsichtlich der O_2 -Absorption, Al_2O_3 ein besseres Trägermaterial als SiO_2 . Zur Auswahl eines Cu/ Al_2O_3 -Katalysators ist die Bestimmung der spezifischen Oberfläche ausreichend.
- Der Cu-Katalysator wird durch NO_x nur geringfügig vergiftet. Der Effekt ist reversibel.

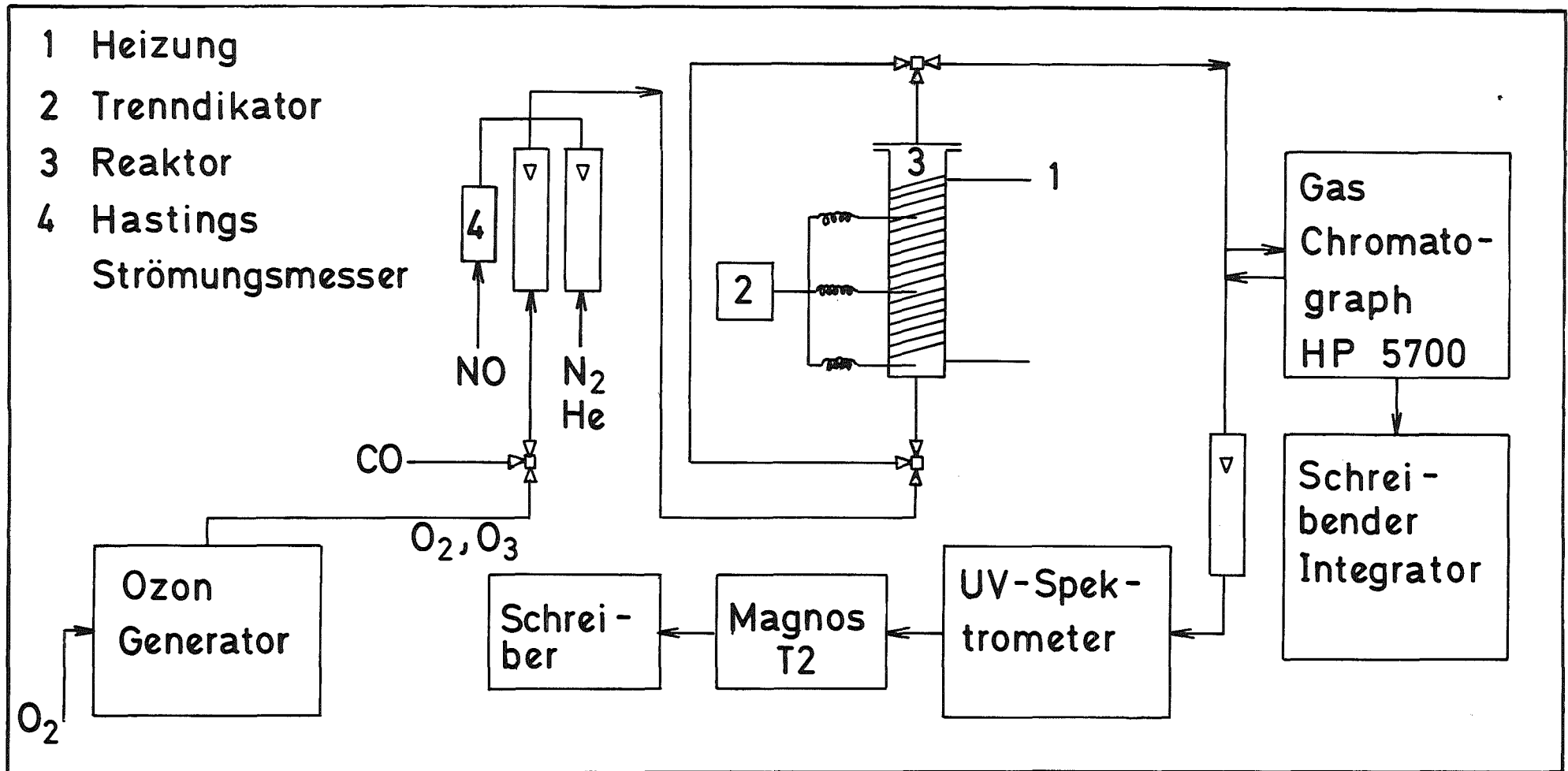


Abb. 4140-8 Versuchsanordnung zur Zerstörung von Ozon mit Cu-haltigen Katalysatoren

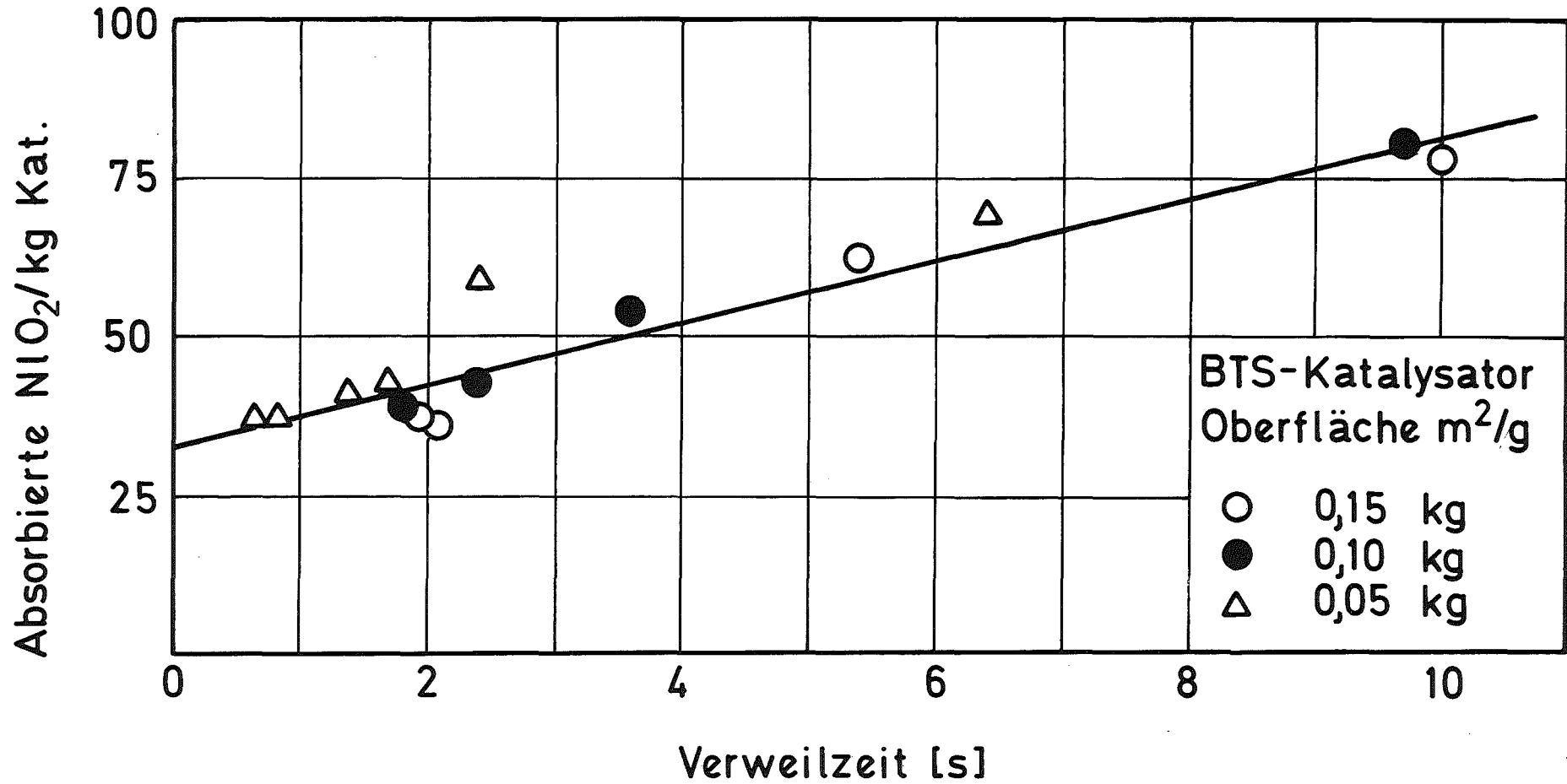


Abb. 414o-9 Einfluß der Strömungsgeschwindigkeit und der Katalysatormenge auf die O_2 -Aufnahmekapazität des BTS-Katalysators

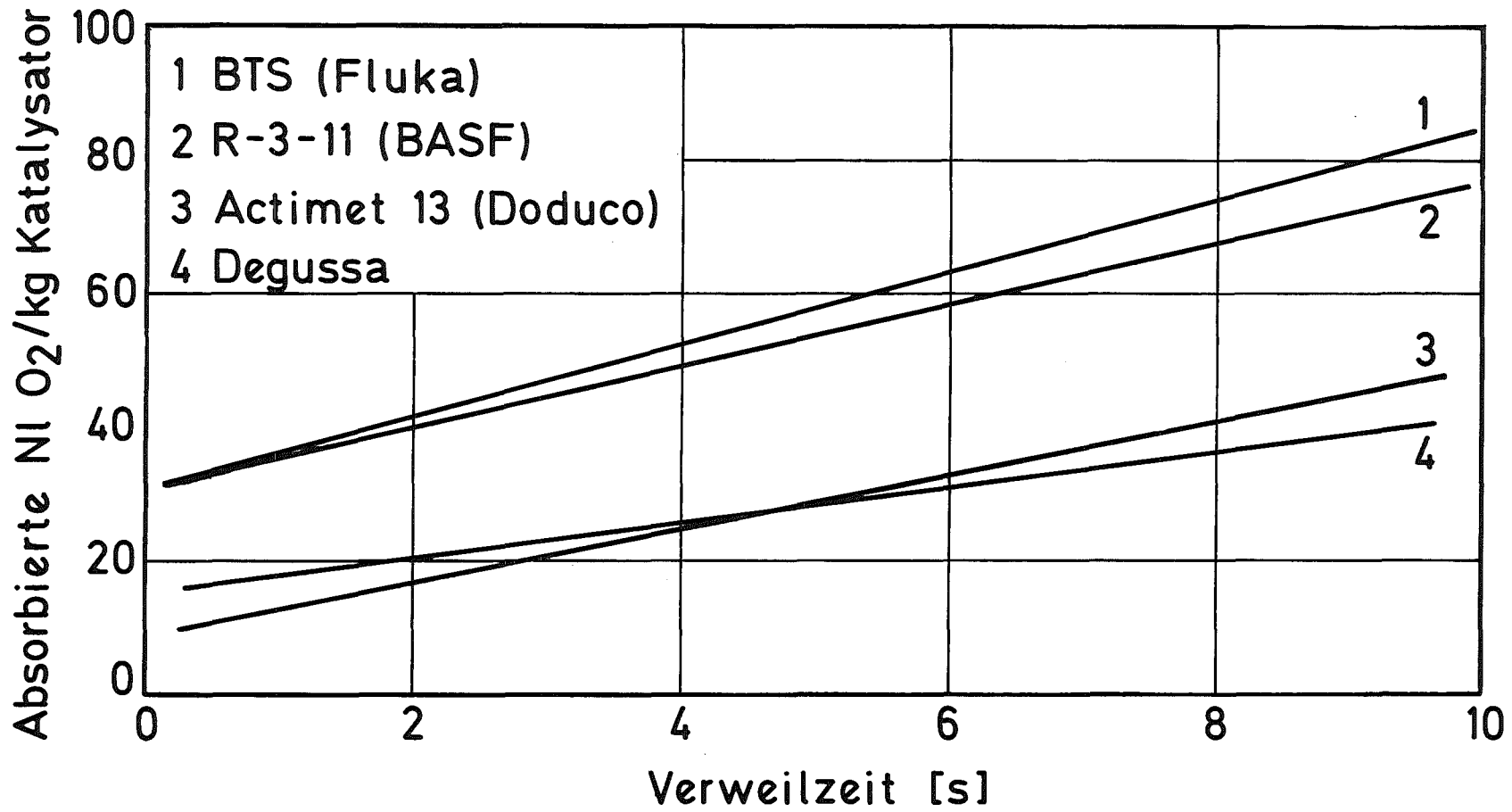


Abb.414o-11 Vergleich der O₂-Absorptionskapazität verschiedener handelsüblicher Katalysatoren

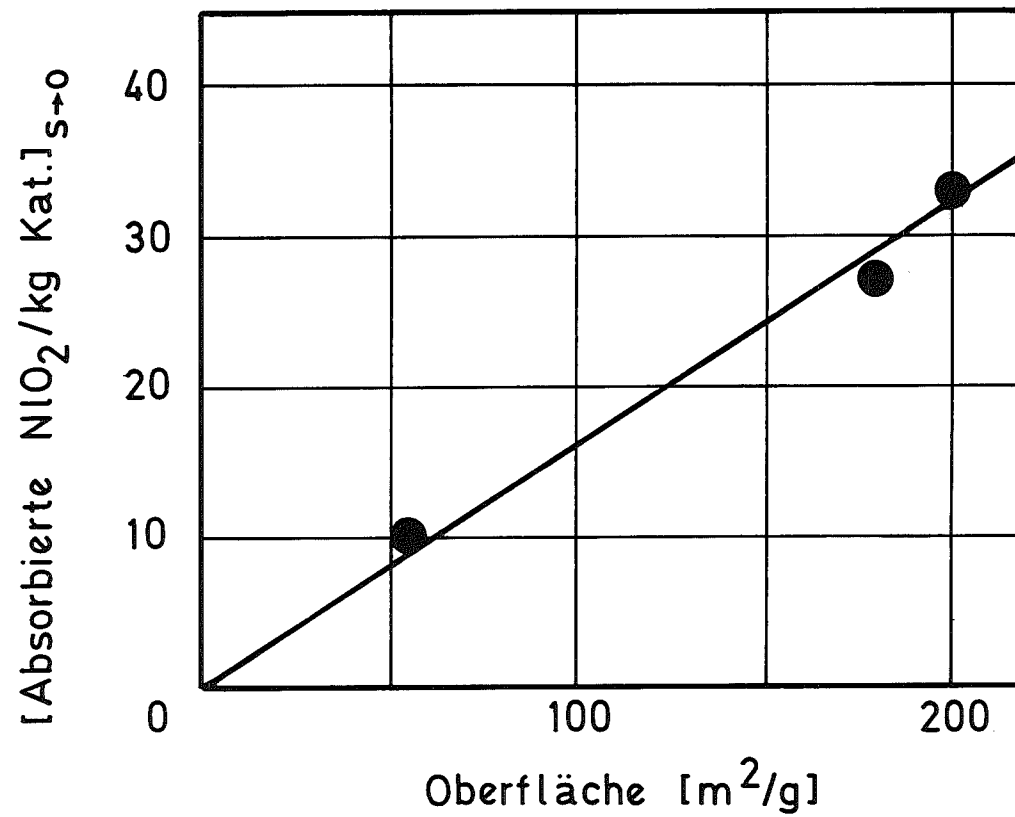


Abb. 4140-12 Abhängigkeit der O₂ Aufnahmekapazität von der Oberfläche verschiedener Cu/Al₂O₃-Katalysatoren bei s→0

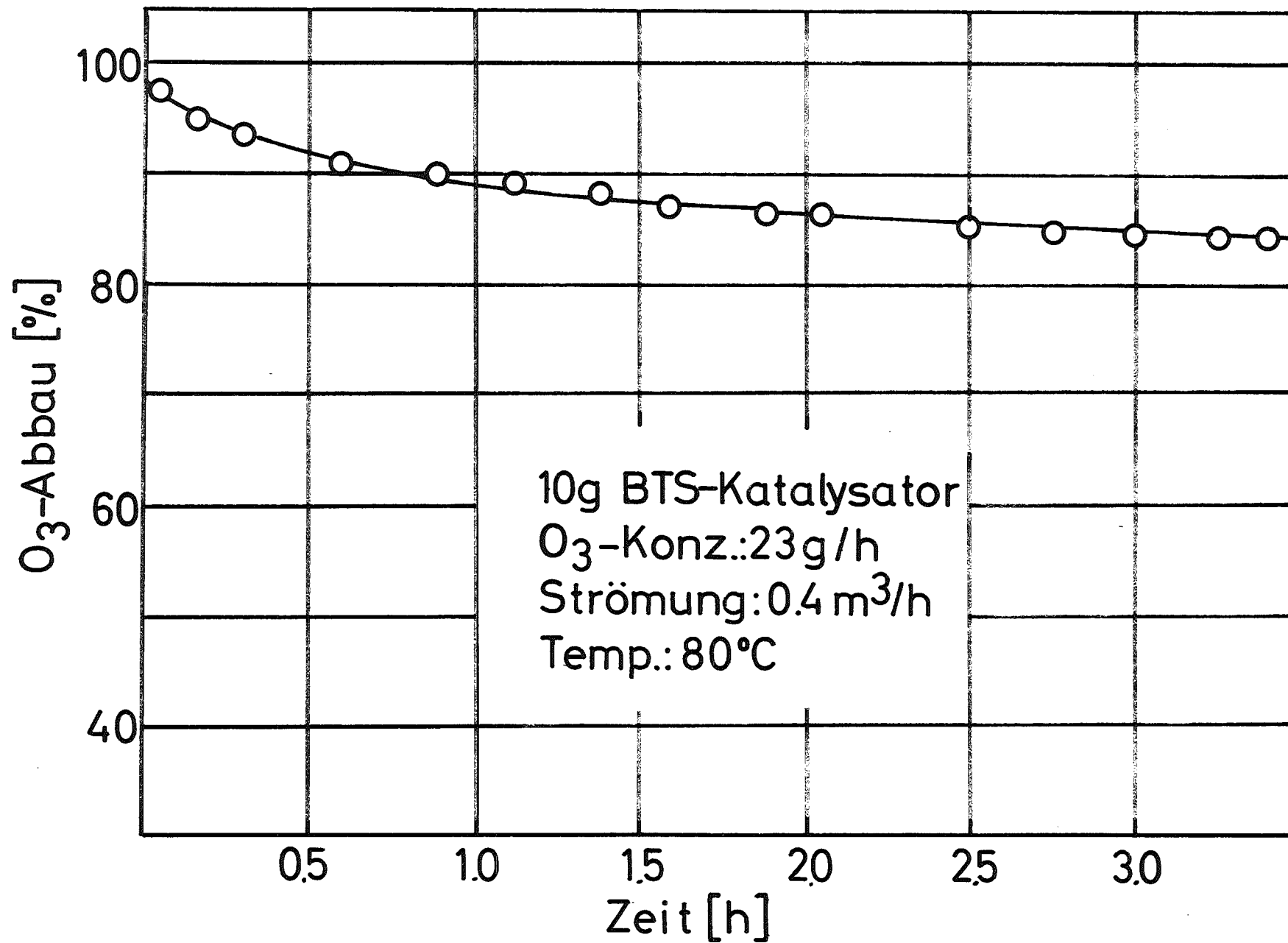


Abb. 414o-13 Ozonzerstörung auf einem BTS-Katalysator

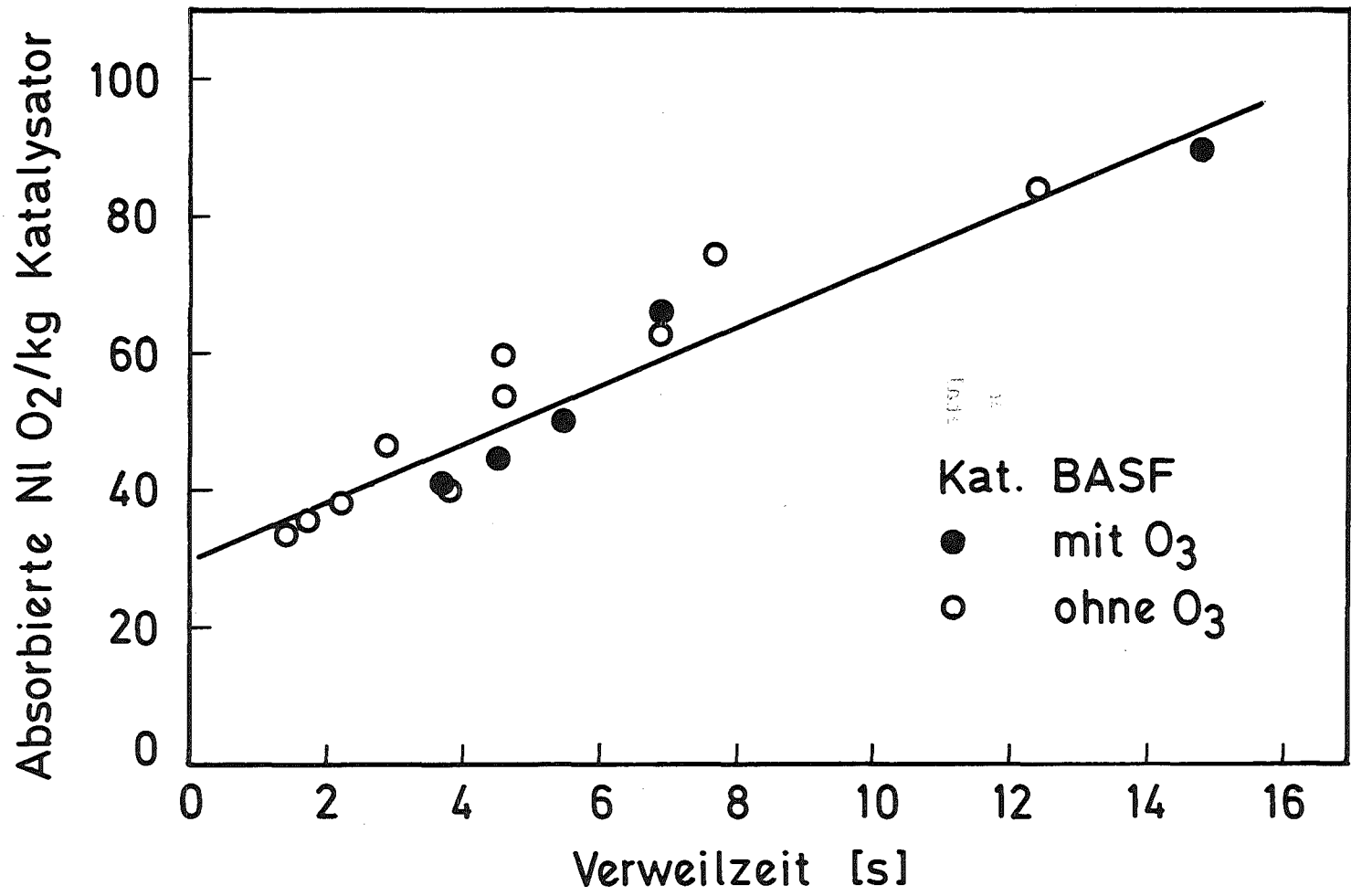


Abb. 4140-14 Sauerstoff- und Ozonentfernung mit 150 g R-3-11-Katalysator

4. Krypton-Endlagerung

(R.-D. Penzhorn, H.E. Noppel, V. Prech, IRCH; E. Hutter, M. Seeber, RBT)

Die wichtige Frage der Kr/Kr-85-Abfüllung und Endlagerung wurde 1977 in Angriff genommen. Als erstes gilt es zu klären, welche von den technisch sinnvoll erscheinenden Verfahren in sicherheitstechnischer und wirtschaftlicher Hinsicht durchführbar sind. In der Literatur 1/ sind eine Vielzahl von Alternativen für die Kr-85-Endlagerung vorgeschlagen worden.

- Abfüllen in Stahlflaschen
- Einschließen in Molekularsieben oder einem Resorber
- Ionenimplantation in einer Metallmatrix
- Chemische Verbindungen
- Unterirdische Speicher
- Versenkung in der Tiefsee
- Clathrate, Hydrate oder Doppelhydrate.

In die engere Wahl kommen nur die ersten drei Verfahren, wobei zumindest in technischer Hinsicht die Aufbewahrung in konventionellen Stahlflaschen die größte Aussicht auf sofortige Realisierung zu haben scheint. Die anderen beiden Varianten müssen zunächst noch im Labormaßstab untersucht werden. Sie sind durch technischen Aufwand gekennzeichnet, was aber möglicherweise durch beträchtliche Erhöhung in der Lagerungssicherheit kompensiert wird. In Tabelle 4624-I sind geschätzte Lagervolumen und, soweit errechnet, Behältertemperaturen der drei Alternativen zusammengestellt.

Tabelle 4140-4 Vergleich ausgewählter Lagerungsmöglichkeiten

Lagerungsverfahren	$\frac{\text{N l Krypton}}{\text{l Behältervol.}}$	Behältertemp. (C)	Literatur
Stahlflaschen 140 bar	170	127	<u>2/</u>
34 bar	41	60	
Zeolith	<168	>127	<u>3/</u>
Zeolith: Harz/Al=1:1	< 64	ca. 80	
Ionenimplantation Al	<224	?	<u>4/</u>
Ni	<340	?	

Der Entwicklungsstand bzw. die noch anstehenden F+E-Arbeiten können wie folgt zusammengefaßt werden:

Lagerung in Stahlflaschen: Die Aufbewahrung von Gasen, auch hochtoxischen, leicht brennbaren oder sehr korrosiven (wie z.B. F_2) unter hohem Druck in Metallflaschen ist eine seit vielen Jahren bekannte und eingehend erprobte Technologie. Die Verflechtungen in der Entscheidungsdynamik, ausgehend von dem Endlagerungsbehälter über die Abfüllstation bis zum Endlager, sind in Abb. 4140-15 aufgezeichnet. Sie sind weitgehend auch für die Einpressung in Zeolithen, die prinzipiell nur eine Weiterentwicklung darstellt, gültig. Zur Konzipierung der Stahlflasche, der Abfüllstation und des Endlagers wird eine Studie angefertigt. Die berechnete, in Abb. 4140-16 aufgetragene Wechselwirkung zwischen Stahlflaschendimensionierung, Gasdruck und Außenwandtemperatur bei natürlicher Luftkonvektion verdeutlicht die Möglichkeit zur Ermittlung von optimalen Lagerungsverhältnissen. In Zusammenarbeit mit der Industrie und dem IMF sind Korrosionsuntersuchungen über die Einwirkung von Rubidium auf die Materialien der Stahlflaschen unter Simulierung von Lagerungsverhältnissen in Angriff genommen worden.

Einpressung in Zeolithen: Die Einpressung von Krypton in verschiedenen Zeolithen ist demonstriert worden. Der Edelgasdruck über dem mit Krypton beladenen Zeolith ist weit unteratmosphärisch, die thermische Stabilität ist selbst bei Temperaturen um $150^{\circ}C$ ausreichend und das Lagerungsvolumen durchaus attraktiv. Diese Variante stellt demzufolge eine beträchtliche Erhöhung der Lagerungssicherheit dar. Eine systematische Suche nach optimalen Zeolithen steht noch aus. Über die Einwirkung von Strahlen, von Rubidium, dem Tochternuklid des Kr-85, und dem Zerfallswärmetransport ist nur wenig bekannt. Ein Verfahren im Prozeßmaßstab muß noch erarbeitet werden.

Ionenimplantation in Metallmatrixen: Mehrere Arbeiten zur Edelgasimplantation in differenten Metallmatrixen liegen in der Literatur vor. Zu den günstigen Eigenschaften dieser Lagerungsalternative zählen das hohe Lagerungsvolumen, die gute Strahlen- und Temperaturstabilität sowie Wärmeleitfähigkeit. Untersuchungen zur Auswahl einer optimalen Metallmatrix über das Langzeitverhalten des implantierten Metalls (mögliche Korrosionsschäden durch Rb) und zur Optimierung der Verfahrensparameter müssen noch durchgeführt werden.

Literatur

- 1/ R.-D. Penzhorn, Alternativen zur Kr-85 Endlagerung, unveröffentlicht
- 2/ B.A. Foster, D.T. Pence, ICP-1044 (1975)
- 3/ R.A. Brown u.a., 14th ERDA Air Cleaning Conference, Sun Valley,
2-4 Aug. (1976)
- 4/ R.S. Nelson u. andere, Offenlegungsschrift 2454796, DT-OS 2454796

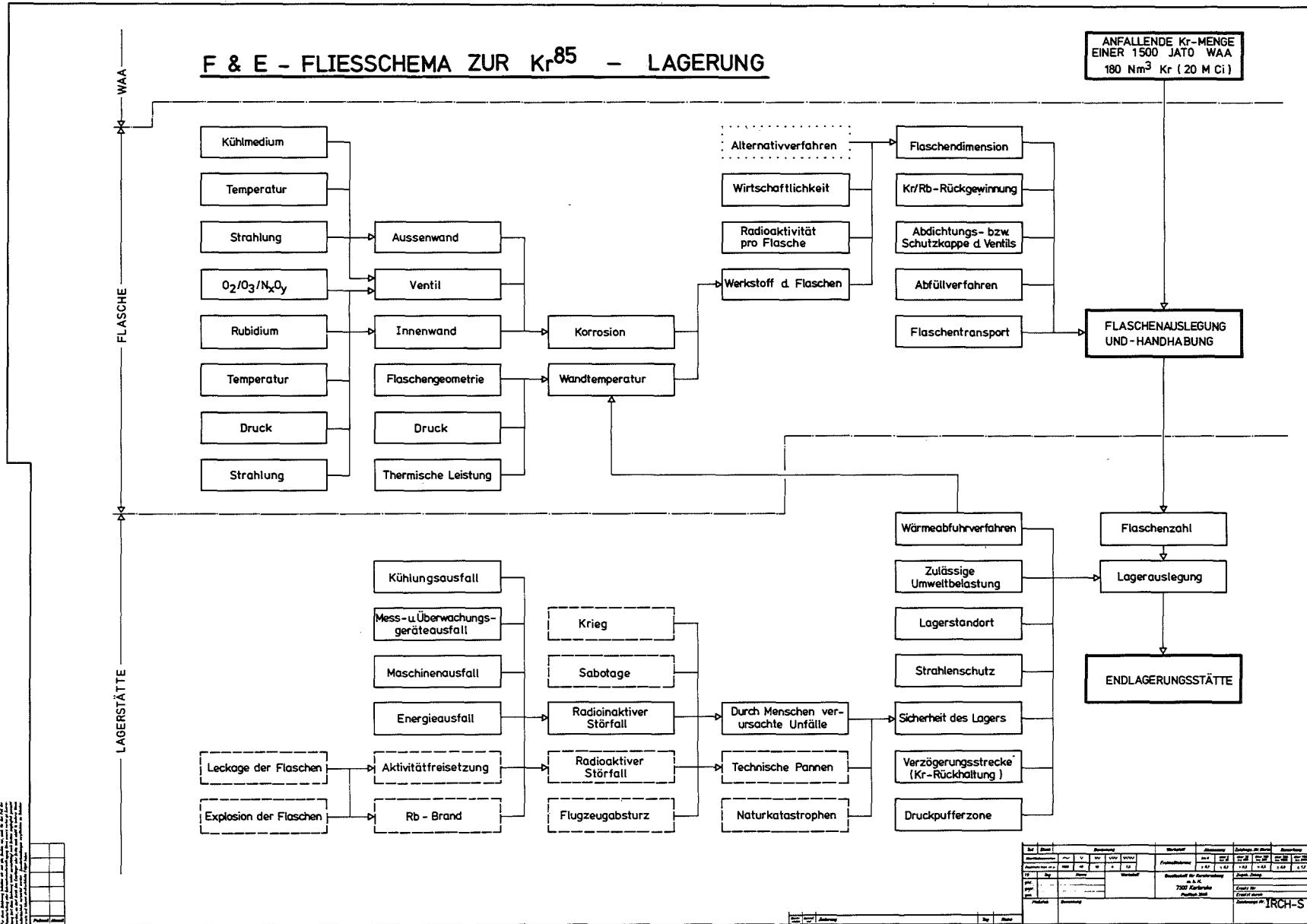


Abb. 4140-15

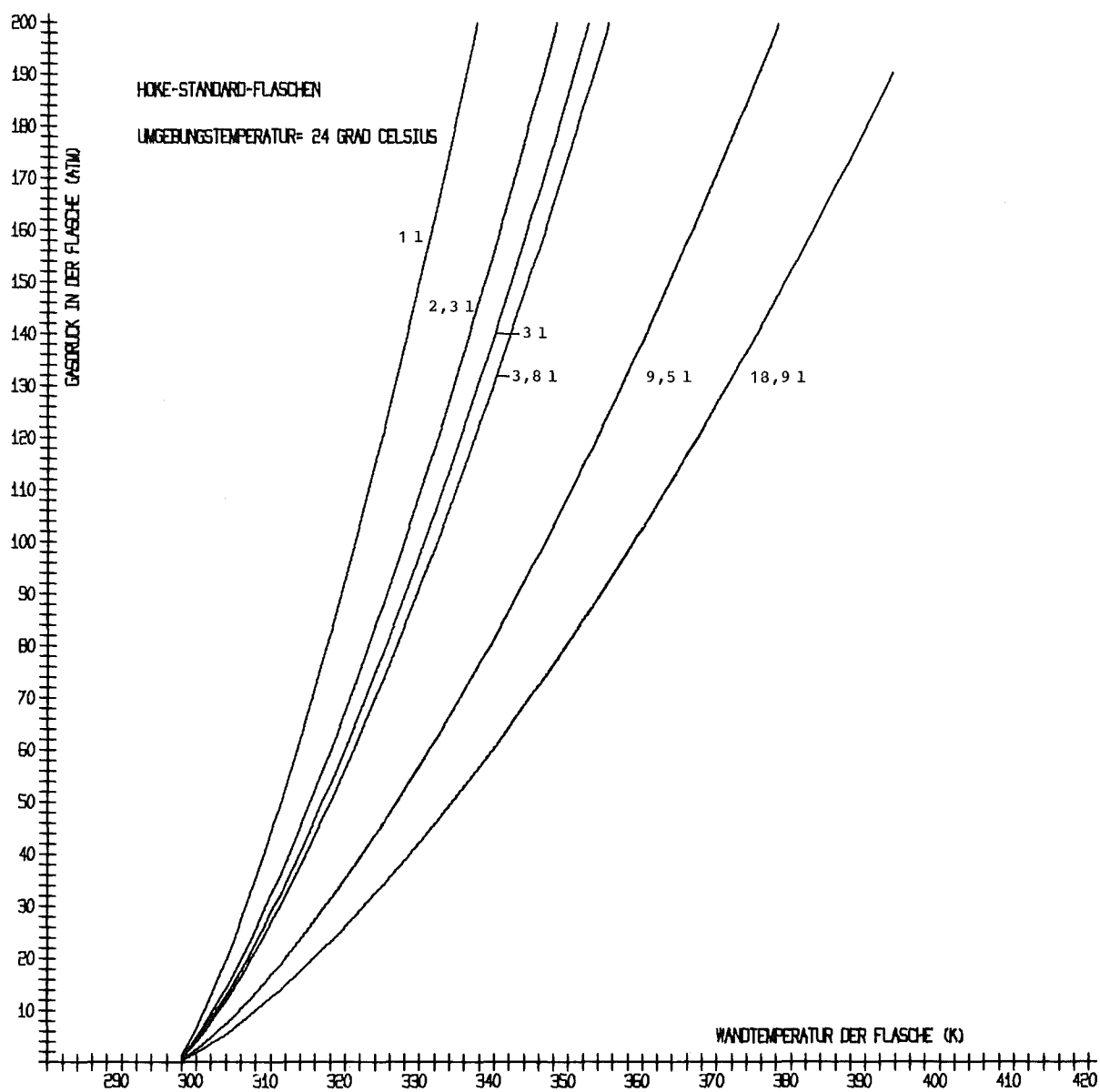


Abb. 4140-16 Berechnung der Abhängigkeit der Stahlflaschtemperatur von dem Stahlflaschenvolumen und dem Kr-Druck (mit 7 % Kr-85) bei Kühlung durch natürliche Luftkonvektion

4200 SYSTEMVERHALTEN NUKLEARER ANLAGEN BEI STÖRFÄLLEN

4210 Dynamische Beanspruchung von Komponenten und Systemen

4211 Dynamische Beanspruchung von LWR-Druckabbausystemen

1. Kontrollmessungen im Großkraftwerk Mannheim

(G.Gering, T.Kuhn, E.Wolf)

Seit Mai d.J. werden vom IRE bei der im Großkraftwerk Mannheim neu angelauften Kondensations-Versuchsserie (GKM II-Versuche) Kontrollmessungen für den TÜV-Baden durchgeführt.

Bei diesem Versuchsvorhaben wird der Einfluß verschiedener Kondensationsrohr-Ausströmgeometrien (Glattrohr, Düsen) in Abhängigkeit der Massenstromdichte und der Pool-Wassertemperatur auf das Kondensationsgeschehen untersucht. Die Kontrollmessungen erstrecken sich auf Drücke und Temperaturen am Boden, an der Wand und im Druckraum des Versuchsbehälters sowie auf die Dehnung (Längskräfte) der Kondensationsrohrverstrebung. Insgesamt sind dazu 6 Druck- und Temperaturlaufnehmer und 1 Dehnmeßaufnehmer installiert.

Die Meßdaten werden auf Magnetband aufgezeichnet und im IRE geplottet. Die Plots für die ersten 4 Versuche sind inzwischen fertiggestellt und dem TÜV zugegangen.

2. Berechnung dynamischer Containment-Beanspruchungen

(B.Göller, G.Hailfinger, R.Krieg)

Aus dem im letzten Halbjahr berechneten Verhalten der kugelschaligen Außenwand der Kondensationskammer wurde ein vereinfachtes Schalengesetz abgeleitet. Das in der Kondensationskammer befindliche Wasser wurde näherungsweise in einer rechteckigen Ringkanal-Geometrie durch die linearisierten fluidodynamischen Gleichungen beschrieben und an die elastische Schale gekoppelt. Die mit diesem analytischen Modell berechneten Eigenfrequenzen (Abb. 4211-1) stimmen gut mit in den Brunsbüttel-I-Experimenten beobachteten Frequenzen überein. Die Rechnungen mit verschiedenen Schallgeschwindigkeiten zeigten, daß der Einfluß der Kompressibilität des Wassers bei den hier vorliegenden elastischen Außenwänden des Pools vernachlässigt werden kann.

Aus den bisher durchgeführten Arbeiten lassen sich folgende Schlußfolgerungen ziehen:

Für die Untersuchung des dynamischen Verhaltens des Containments bei Kondensationsvorgängen reicht die Beschränkung auf den Kondensationskammerpool mit inkompressiblem Wasser und einer elastischen Außenwand aus. Die beim Abblasen auftretenden Kollabierungsstöße können die Kondensationskammer zu Eigenschwingungen anregen; das schwingungsfähige System besteht aus dem inkompressiblen Wasser und der elastischen Außenwand [1]. Die in den Brunsbüttel-I-Experimenten (Nov. 74) beobachteten Frequenzen gehören zu solchen Eigenschwingungen.

Zur Berechnung der Anregungsübertragung von den kollabierenden Blasen auf das schwingungsfähige System wurde eine detaillierte Theorie entwickelt (Singularitätenverfahren für das Fluid, simultane Kopplung mit der Kugelschale). Die numerischen Rechnungen werden zur Zeit durchgeführt.

3. Eigenfrequenzen strömender Medien in starren Kanälen

(E.Wolf)

Eine grundsätzliche Untersuchung des Einflusses der Strömungsgeschwindigkeit auf die Eigenfrequenzen eines strömenden Mediums wurde durchgeführt [2]. Als durchströmtes System wird ein einfaches starres Rohr zugrunde gelegt. Die Behandlung der linearisierten Bewegungsgleichung und des Randwertproblems zur Ermittlung der Eigenfrequenzen erfolgt analytisch.

Die Ergebnisse zeigen, daß mit wachsender Strömungsgeschwindigkeit die Eigenfrequenzen allmählich abnehmen und bei Erreichen der Schallgeschwindigkeit schließlich ganz verschwinden (Abb. 4211-2).

Quantitativ besteht zwischen den Eigenfrequenzen in durchströmten Systemen gegenüber denen mit ruhendem Medium eine relativ einfache Abhängigkeit.

4. Modellrechnungen zum Kondensationsvorgang

(G.Class, F.Eberle)

Die im Auftrag und auf Rechnung des TÜV Baden durchgeführten Parameterrechnungen mit den hierfür entwickelten Rechenprogrammen KONDAS, AKUDYN und WELLA wurden abgeschlossen.

KONDAS behandelt die niederfrequenten Vorgänge der pulsierenden Kondensation und die Ergebnisse stehen in zufriedenstellender Übereinstimmung mit

experimentellen Daten. Daher wurde das Rechenprogramm zur Untersuchung der pulsierenden Kondensation im Vielrohrverband verwendet, wobei sich keine ungünstigen Kopplungseffekte einstellten. Die gewonnenen Ergebnisse fanden sodann zusammen mit direkten Versuchsdaten Verwendung zur Untersuchung der Überlagerungsstatistik in der Reaktoranlage mit Hilfe des Rechenprogrammes WELLA. Dieses Programm behandelt in vereinfachter Form die Wellenausbreitung in der ringförmigen Kondensationskammer, wobei auch die nichtsynchrone Druckwellenentstehung an den einzelnen Kondensationsrohren erfaßt wird. Mit AKUDYN wurden schließlich mit Hilfe eines Ersatzmodelles für die Kopplung zwischen Fluid und Wandstruktur die Auswirkung der in den Experimenten beobachteten sehr kurzzeitigen "Drucknadeln" untersucht. Die Veröffentlichung dieser Modelle ist in Vorbereitung, der Bericht über KONDAS wird als KFK-Bericht 2487 erscheinen. Einen allgemeinen Überblick über diese Berechnungen gibt [3].

Literatur:

- [1] Krieg, R., Zehlein, H.:
"Coupled Problems in Transient Fluid and Structural Dynamics with Application to Nuclear Engineering".
International Symposium on Innovative Numerical Analysis in Applied Engineering Science, CETIM, Paris, May 1977
- [2] Wolf, E.:
Untersuchung der Eigenfrequenzen eines strömenden Mediums in einer starren durchströmten Rohrgeometrie.
(1977, unveröffentlicht)
- [3] Class, G.:
Übersicht über das Verhalten von SWR-Druckabbausystemen beim Kühlmittelverluststörfall.
KFK-Nachrichten 1/1977, 9. Jahrgang

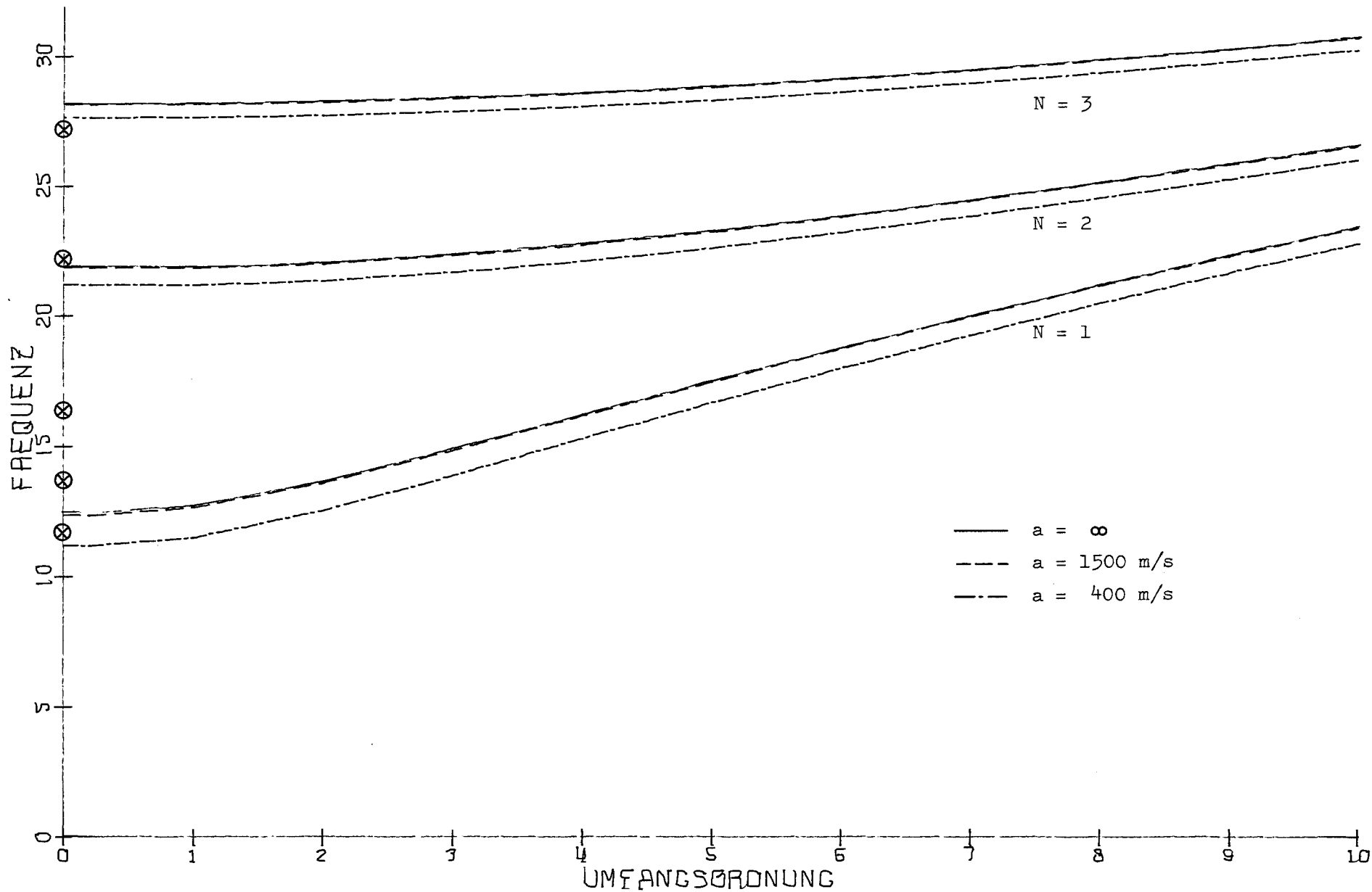


Abb.: 4211-1 Eigenfrequenzen der Kondensationskammer abhängig von der Schwingungsordnung..
 (N= axiale Ordnung für den Wasserbereich der Schale; a= Schallgeschwindigkeit;
 ⊗ in Brunsbüttel beobachtete Frequenzen)

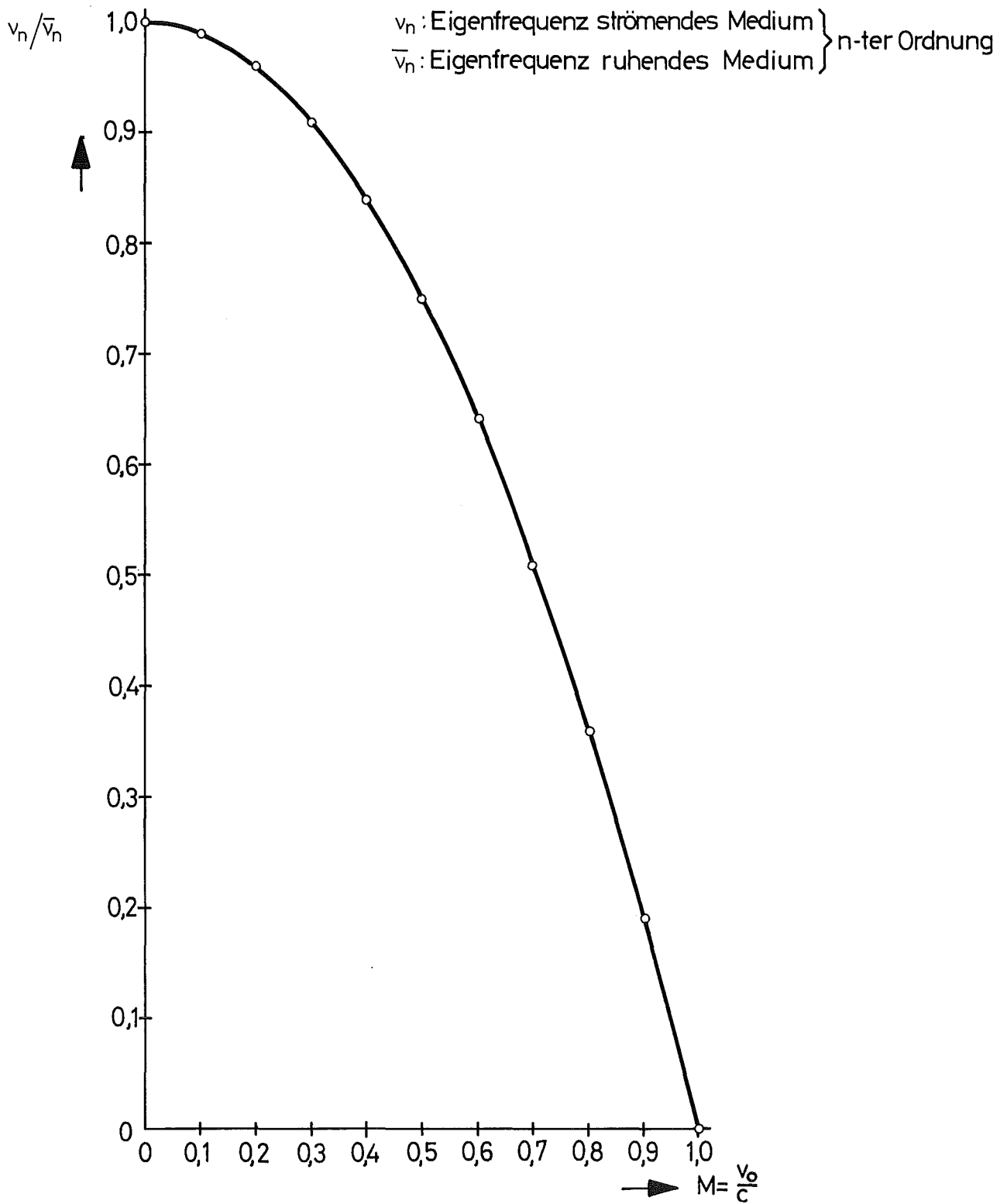


Abb.: 4211-2 Normierte Eigenfrequenz eines strömenden Mediums als Funktion der Machzahl M

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 Auswertung der im Auftrag des Marviken-II-Projekts durchgeführten Gasgeschwindigkeitsmessungen in einem der 4 Abblasekanäle wurde abgeschlossen. Die Ergebnisse sind in den Marviken-Berichten zusammengefaßt, die inzwischen an die am Projekt beteiligten 9 Länder verteilt wurden /1/. Von den zusätzlich im Bruchstutzen durchgeführten Geschwindigkeits- und Dichtemessungen konnten bisher die Blowdowns 21, 23 und 24 ausgewertet werden.

Ende März wurde die Radionuklidmeßeinrichtung am "Gemeinsamen Versuchsstand" (PNS 4215) installiert und in Betrieb genommen. Im 2. Quartal wurden erste Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen durchgeführt.

2. Erzielte Ergebnisse

2.1 Marviken-II-Experimente

2.1.1 Abblasekanäle

Die in den Abblasekanälen gemessenen Geschwindigkeiten lagen zwischen 0 und 50 m/s bei den Blowdowns 19, 21 und 23, zwischen 0 und 60 m/s bei den Blowdowns 17, 18, 20 und 22 und zwischen 0 und 100 m/s beim Blowdown 24.

Ein Vergleich der Geschwindigkeit der Gas- und Flüssigphase (gemessen mit dem Radiotracerverfahren) und der Flüssigphase (gemessen mit dem Infrarotabsorptionsverfahren, das ebenfalls im Rahmen des PNS entwickelt wurde), zeigte gute Übereinstim-

mung der Ergebnisse. Damit ist nachgewiesen, daß in den Abblasekanälen praktisch kein Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase vorlag (Nebelströmung).

2.1.2 Bruchstutzen

Mit den im Bruchstutzen durchgeführten Geschwindigkeits- und Dichtemessungen gelang es erstmals, den Massenstrom des Kühlmittels im Bruchstutzen zuverlässig zu bestimmen. Nachfolgend werden Ergebnisse von den Blowdowns 21 und 24 als Beispiel vorgestellt.

Geschwindigkeitsmessung

Die durch Korrelationsanalyse ermittelte Geschwindigkeit ist in Abb. 4214-1 dargestellt. Sie erhöhte sich in den ersten 1,5 Sekunden auf 32 m/s und nahm danach ab auf ca. 26 m/s. Von 6 bis 85 Sekunden fiel sie geringfügig weiter ab. Die Änderung der Geschwindigkeit zwischen 90 und 100 Sekunden wurde durch das Verstellen des Sicherheitsventils (Querschnittsverringering) ausgelöst. Es wurde ebenfalls kein Schlupf zwischen Flüssig- und Gasphase (Blasenströmung) gefunden.

Dichtemessung

Die Dichte wurde mit einer Zweistrahlmethode gemessen. Die damit erzielten Ergebnisse werden in Abb. 4214-2 für den gesamten Blowdown und in Abb. 4214-3 mit besserer Zeitauflösung für die Anfangsphase des Blowdowns gezeigt. Die Messungen ergaben, daß in den ersten Sekunden nur unterkühltes Medium (Wasser) ausströmte. 8,5 Sekunden nach dem Bruch der Berstscheibe setzte eine Zweiphasenströmung mit stark zunehmendem Dampfanteil ein (vgl. Abb. 4214-3). Ab 101 Sekunden wurde eine Abnahme des Dampfanteils bzw. eine Zunahme der Dichte festgestellt, die durch das Verstellen des Sicherheitsventils ausgelöst wurde. Danach wurde die Strömung unruhiger.

Massenstrom

Der aus der Strömungsgeschwindigkeit und der Dichte ermittelte Massenstrom ist in Abb. 4214-4 zusammen mit den Kenngrößen Voidfaktor, Dichte und Geschwindigkeit dargestellt. Er stieg innerhalb der ersten 1,5 Sekunden von 0 auf 3,2 Tonnen pro Sekunde an und fiel danach wieder ab. Nach dem Verstellen des Sicherheitsventils folgte zunächst wie bei der Geschwindigkeit eine kurzzeitige Abnahme. Anschließend jedoch stiegen Geschwindigkeit, Dichte und Massenstrom stark an. Dieser hier beobachtete überraschende "Drossелеffekt" trat noch wesentlich stärker während des Blowdowns 24 auf, bei dem das Sicherheitsventil noch weiter zugefahren wurde (vgl. Abb. 4214-5).

Der starke Massenstromanstieg nach dem Verstellen des Sicherheitsventils ist zurückzuführen auf eine geringfügige Druckerhöhung und eine damit verbundene Verringerung des Dampfanteils.

2.2 Zweiphasengeschwindigkeitsmessungen am "Gemeinsamen Versuchsstand"

Das wichtigste Ergebnis der ersten am "Gemeinsamen Versuchsstand" durchgeführten Experimente war, daß es erstmals gelungen ist, Schlupf zwischen Gas- und Flüssigphase mit dem Radiotracerverfahren nachzuweisen. Bei den bisherigen Versuchen wurden Schlupffaktoren von 1 bis 4 ermittelt. In den Abbildungen 4214-6 und 7 sind zwei typische Beispiele der bisher erzielten Ergebnisse dargestellt. Im ersten Fall handelte es sich um eine Zweiphasenströmung mit ruhigem und stabilem Charakter, dagegen lag im zweiten Fall eine unruhige, instabile Zweiphasenströmung vor, die mit einer Grundfrequenz von etwa 1/4 Hz "pulsierte".

Ein Vergleich mit den anderen Verfahren ist noch nicht möglich, da noch keine Ergebnisse von diesen vorliegen.

3. Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

Die Experimente am Gemeinsamen Versuchsstand werden im 3. Quartal fortgesetzt mit den Vergleichsmessungen mit anderen vom BMFT geförderten Verfahren wie z.B. dem Dragbody-Verfahren und dem Temperatursignalkorrelationsverfahren /2/. Im 4. Quartal werden das Impedanzsondenverfahren, das Radionuklidverfahren und die in den USA bei LOFT und SEMISCALE entwickelten und angewandten Verfahren gemeinsam getestet und verglichen. Daneben laufen die Vorbereitungen auf die HDR-Blowdown-Experimente.

4. Literatur

- /1/ The Marviken Full Scale Containment Experiments,
Second series,
Joint Reactor Safety Experiments in the Marviken Power
Station, Sweden, (March 1977) unveröffentlicht
- /2/ Berichte über die vom Bundesministerium für Forschung
und Technologie geförderten Forschungsvorhaben auf dem
Gebiet der Reaktorsicherheit, Hrsg.: GRS (ehem. IRS)
der TÜV, 5 Köln 1, Glockengasse 2 (erscheint 1/4jährlich).

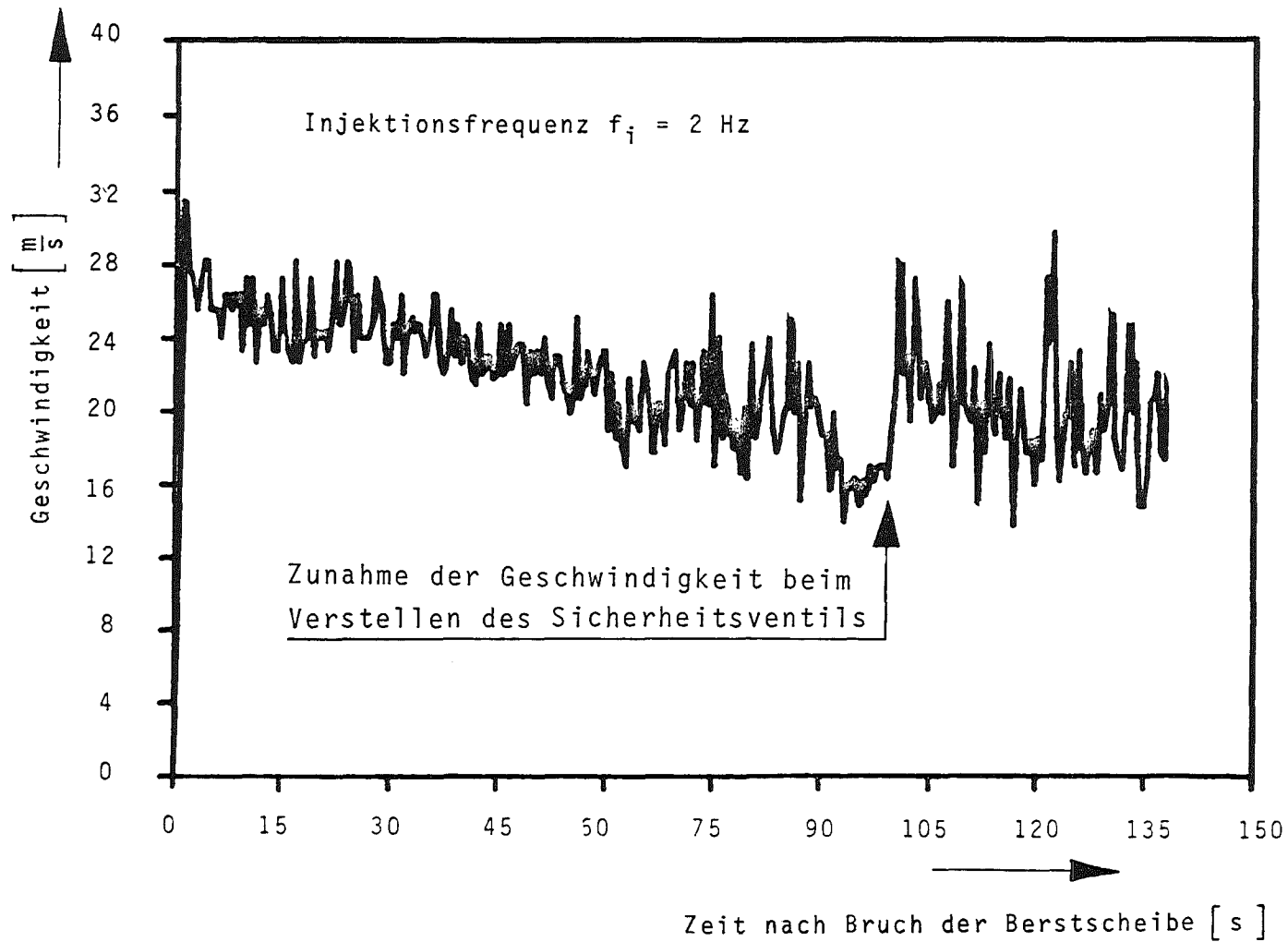


Abb. 4214-1: Geschwindigkeit der Flüssigphase im Bruchstutzen beim Blowdown 21

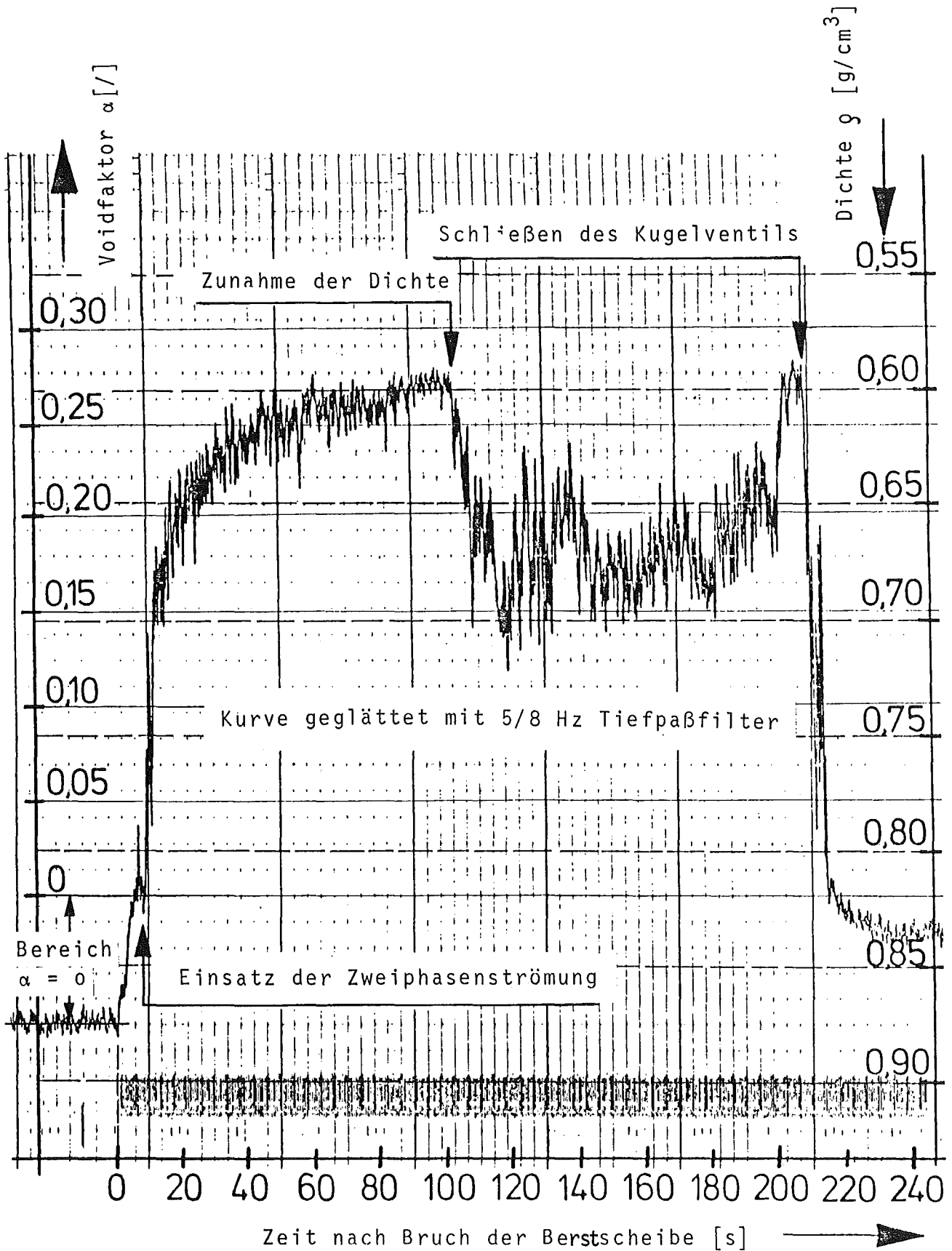


Abb. 4214-2: Dichte und Voidfaktor im Bruchstutzen beim Blowdown 21 während der Zeit von 0 bis 240 Sekunden

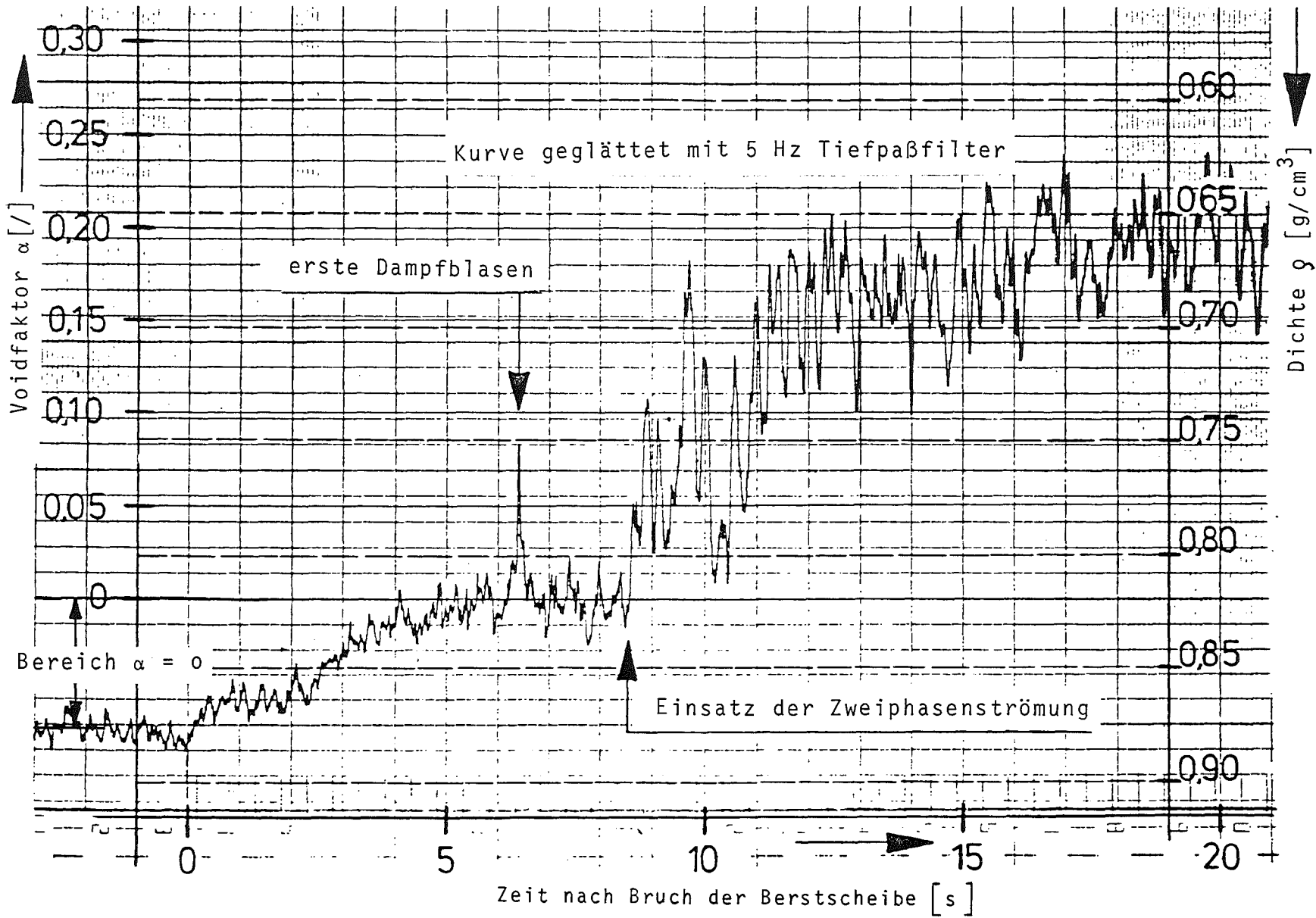


Abb. 4214-3: Dichte und Voidfaktor im Bruchstutzen beim Blowdown 21 während der Zeit von 0 bis 20 Sekunden

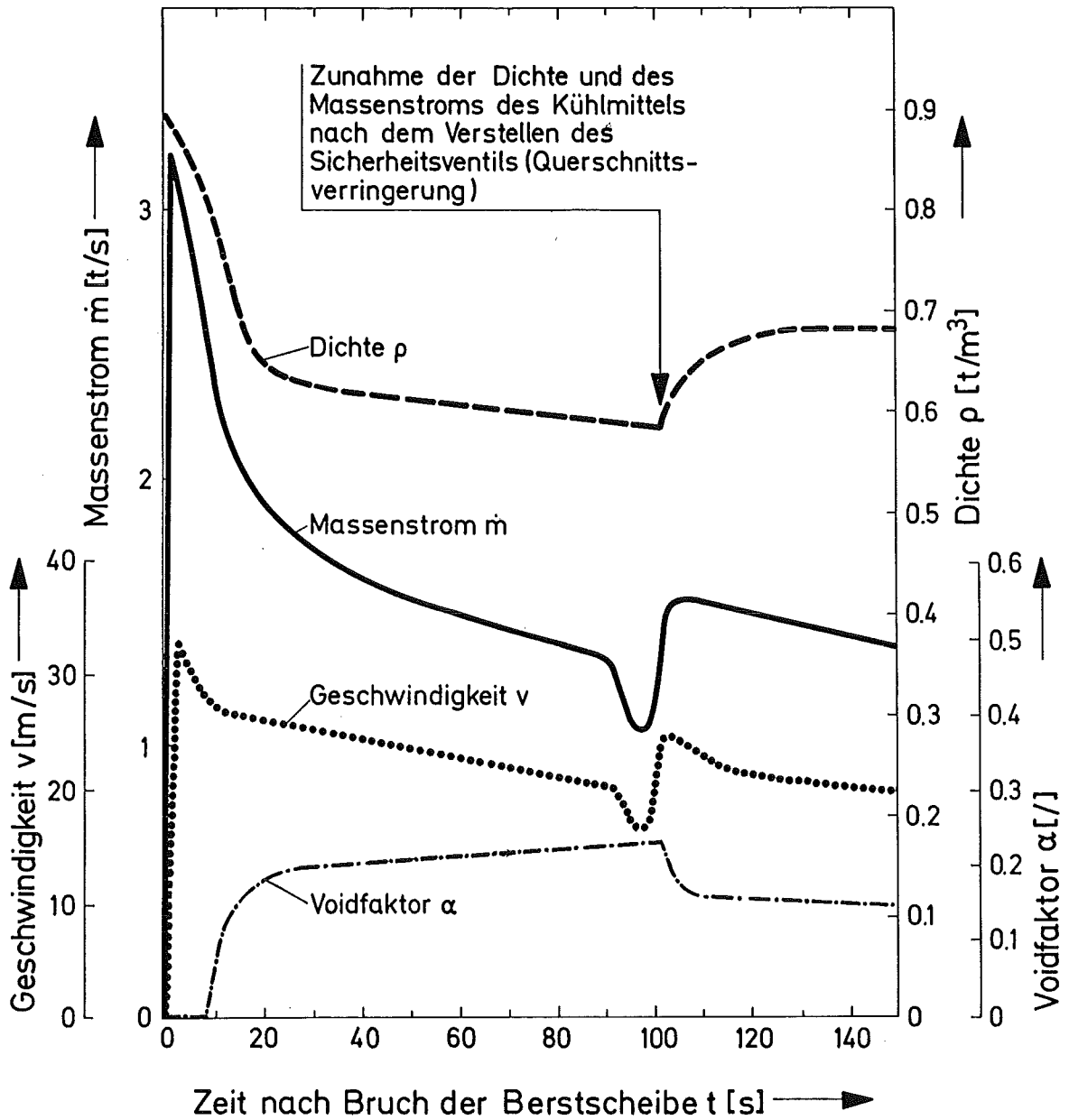


Abb. 4214-4: Dichte, Voidfaktor, Geschwindigkeit und Massenstrom des Kühlmittels beim Blowdown 21 (gemittelter Verlauf)

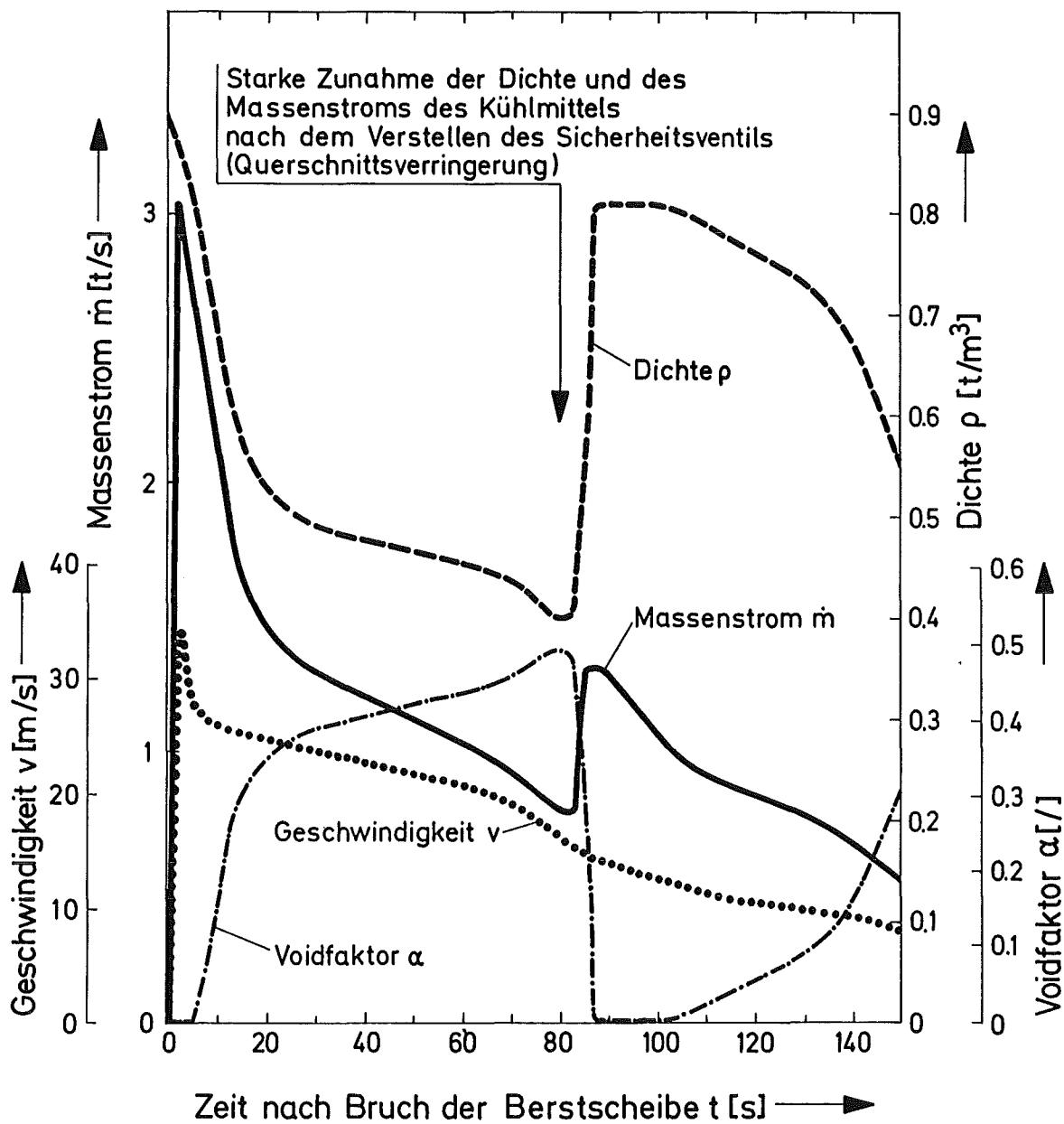


Abb. 4214-5: Dichte, Voidfaktor, Geschwindigkeit und Massenstrom des Kühlmittels beim Blowdown 24 (gemittelter Verlauf)

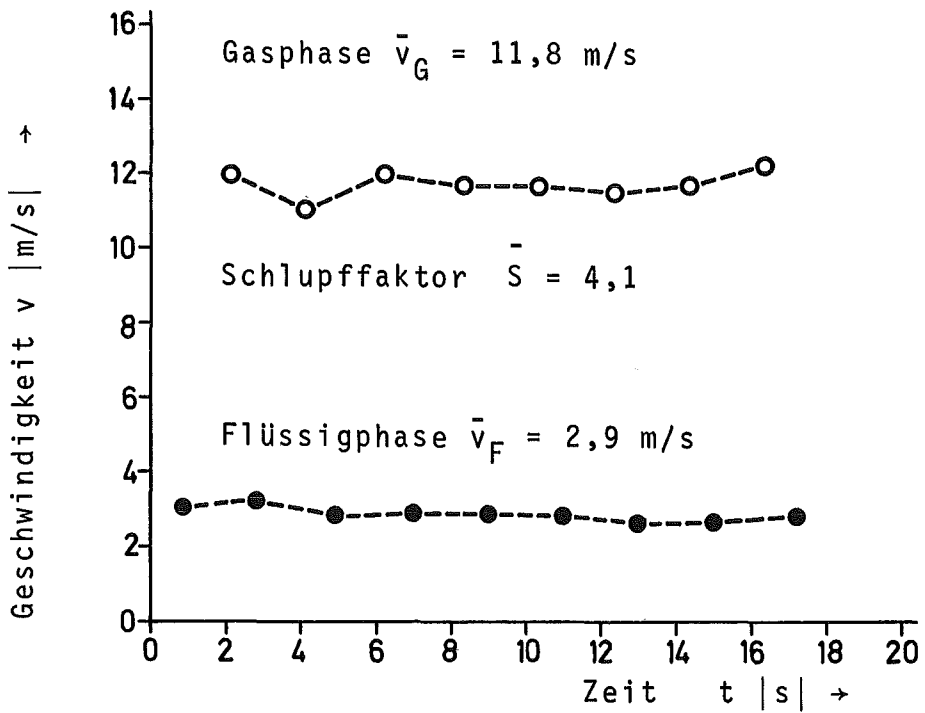


Abb. 4214-6: Geschwindigkeit der Gas- und Flüssigphase (Versuch 11)

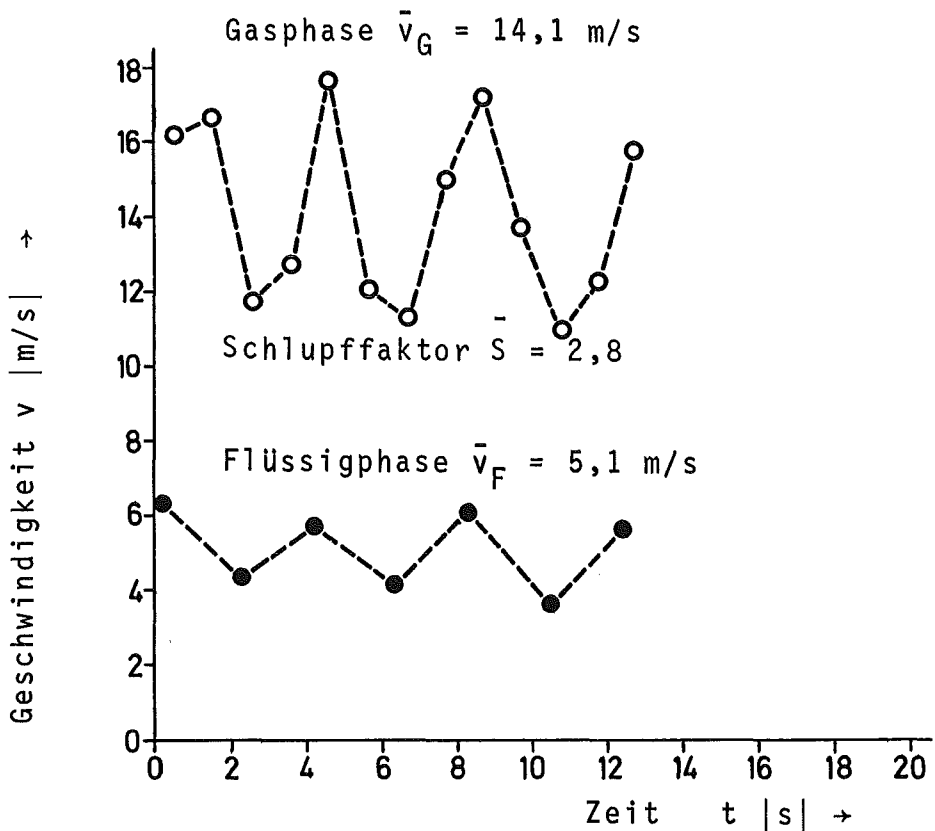


Abb. 4214-7: Geschwindigkeit der Gas- und Flüssigphase (Versuch 12)

4215 Gemeinsamer Versuchsstand zum Testen und Kalibrieren
verschiedener Zweiphasen-Massenstrommessverfahren

(J. Reimann, A. Demski, H. Hahn, U. Harten, H. John,
A. Megerle, St. Müller, L. Pawlak, E. Wanner - IRB)

Bei Experimenten zum Kühlmittelverluststörfall ist die genaue Kenntnis des zweiphasigen Massenstroms von großer Bedeutung. Zielsetzung dieser Arbeit ist der Test, die Kalibrierung und der Vergleich verschiedener Zweiphasen-Massenstrom-Meßverfahren. Im Berichtszeitraum lagen die Schwerpunkte bei der Durchführung folgender Arbeiten:

- Inbetriebnahme des Luft-Wasser-Kreislaufs
- Erweiterung des Betriebsbereichs des Dampf-Wasser-Kreislaufs,
- Fertigstellung der Datenverarbeitung
- Mechanische Fertigstellung des γ -Densitometers
- Experimente zur Bestimmung der Strömungsform in horizontaler Luft-Wasser- und Dampf-Wasser-Strömung
- Erste Tests diverser Meßverfahren im Dampf-Wasser-Kreislauf

1. Luft-Wasser-Kreislauf

Um einen optimalen Vergleich der Luft-Wasser- und Dampf-Wasser-Experimente zu ermöglichen, haben beide Kreisläufe die Teststrecke und Mischkammer gemeinsam. Abb. 4215-1 zeigt die schematische Darstellung des Luft-Wasser-Kreislaufs.

Nach Komplettierung der Meßtechnik wurde der Betriebsbereich des Kreislaufs bestimmt. Bei kleinen "Dampfgehalten" werden um den Faktor 5 höhere Massenströme erreicht als mit dem Dampf-Wasser-Kreislauf. Abb. 4215-2 zeigt den Betriebsbereich, eingetragen in eine Strömungskarte. Koordinatenbezeichnungen sind hier die superficial velocities (Verhältnis aus einphasigem Volumenstrom zu gesamtem Strömungsquerschnitt). Das wichtige Gebiet der dispersen Blasenströmung wird voll erreicht.

2. Dampf-Wasser-Kreislauf

Bei der früheren Betriebsweise der Anlage lieferte ein Kessel leicht unterkühltes Wasser, der andere leicht überhitzten Dampf. Durch Einbau zweier Drosselventile vor der Mischkammer kann durch Drosselung Dampf erzeugt werden. Dadurch kann im Bereich kleiner Dampfgehalte der Gesamtmassenstrom bis zu 35 % erhöht werden. Außerdem werden durch die Drosselung die Schwankungen der Referenz-Massenstrom-Messung stark reduziert.

3. Datenverarbeitung

Die Betriebsdatenerfassung hat die Aufgabe, aus den Temperatur-, Druck- und Differenzdrucksignalen der Wasser- und Dampfmeßstrecken sowie dem Drucksignal der Teststrecke die in der Teststrecke vorhandenen folgenden Größen zu bestimmen: Gesamtmassenstrom, Dampfgehalt bzw. durch Umrechnung die beiden superficial velocities (Verhältnis aus einphasigem Volumenstrom zu Teststreckenquerschnitt) und Dampfvolumenteil, sowie Druck und Temperatur. Die "on line" Berechnung dieser Größen ist erforderlich, um mit der Kesselanlage in möglichst kurzer Zeit einen vorgegebenen Betriebspunkt ansteuern zu können. Als Rechner wird eine PDP 11/40 verwendet.

Zur Erreichung maximaler Genauigkeit werden die Eichkurven für jeden Signalgeber sowie die Wärmeverluste der Anlage in Abhängigkeit von der Kreislaufemperatur berücksichtigt. Zur Berechnung des Gemischzustandes enthält das Rechenprogramm die Zustandsgleichungen für Wasser-Dampf.

Diese Anlage wurde nach anfänglichen Schwierigkeiten mit der Übertragung der Eingangsdaten in Betrieb genommen.

4. Dichtemeßgerät (Zusammenarbeit mit PNS 4214)

Das serielle 5-Strahl- γ -Densitometer wurde mechanisch fertiggestellt und mit der Elektronik bestückt. Es wurden erste statische Eichversuche mit einer Tm-170-Quelle durchgeführt, wobei mit verschiedenen Plexiglaseinsätzen eine Schichten-

strömung simuliert wurde. Die örtliche Bestimmung des Gasvolumenanteils konnte dabei mit einer Genauigkeit von ca. 98 % durchgeführt werden. Damit wurde gezeigt, daß dieses erstmals verwendete Meßprinzip in bezug auf die Art der Kollimation und die Erfassung der Strahlen mit einem einzigen Szintillator für die Dichtemessung geeignet ist.

5. Strömungsform und Phasenverteilung in Luft-Wasser- sowie Dampf-Wasser-Strömung

Von großer Bedeutung für den Test der Massenstrom-Meßverfahren ist die Kenntnis der Strömungsform und darüber hinausgehend die örtliche und zeitliche Verteilung der Phasen in der Teststrecke.

Für Luft-Wasser-Strömungen in horizontalen Rohren gibt es eine Vielzahl von Arbeiten zur Abhängigkeit der Strömungsform von äußeren Parametern; die in Abb. 4215-2 dargestellte Strömungskarte /1/ kann als genügend experimentell abgesichert angesehen werden. Anhand der Luft-Wasser-Experimente konnte daher geprüft werden inwieweit die lokale Impedanz-Sonde zur Identifizierung der Strömungsform geeignet ist. Die im folgenden diskutierten Ergebnisse wurden mit einer traversierbaren Sonde erzielt. Abb. 4215-3 und 4215-4 zeigen bei unterschiedlicher Zeitauflösung Sondensignale verschiedener Strömungsformen. Eine Schwallströmung ist durch eine Schwallfrequenz in der Größenordnung von 1 Hz charakterisiert (Abb. 4215-3); bei höherer Zeitauflösung (Abb. 4215-4) erkennt man die im Schwall vorhandenen Blasen. Viele kleine Blasen, die recht gleichmäßig über den Querschnitt verteilt sind (Abb. 4215-4 links) sind kennzeichnend für eine disperse Blasenströmung; eine Ringströmung ist durch das Vorhandensein von Tröpfchen im Gasstrom (peaks nach unten) charakterisiert; dabei nimmt der Flüssigkeitsanteil im unteren Kanalbereich deutlich zu (Abb. 4215-4 rechts).

Die nach Auswertung aller Luft-Wasser-Experimente bestimmten Grenzen der Strömungsbereiche sind in guter Übereinstimmung mit der in Abb. 4215-2 dargestellten Strömungskarte.

Abb. 4215-5 zeigt einige Profile des lokalen Dampfvolumentanteils α . Während bei disperser Blasenströmung und Ringströmung in einem großen Bereich des Kanalquerschnitts ein nahezu konstanter Dampfvolumentanteil vorhanden ist, ist dies bei anderen Strömungsformen nicht der Fall. Bei der Schwallströmung ist das Profil sehr stark abhängig von den superficial velocities; bemerkenswert ist, daß das horizontale Dichteprofil bei den untersuchten Geschwindigkeiten sehr flach ist. Abb. 4215-6 zeigt die Autokorrelationsfunktion der SONDENSIGNALE von einer Schwallströmung, bei der die Schwälle nahezu den ganzen Querschnitt ausfüllen.

Bei Dampf-Wasser-Strömungen in horizontalen Rohren weiß man noch sehr wenig über die Abhängigkeit der Strömungsbereiche vom Druck. Entsprechende Untersuchungen über die Verteilung der Phasen fehlen vollständig. Abb. 4215-7 zeigt die Phasenverteilung bei einer Schwallströmung bei 25 bar. Abb. 4215-8 eine Ringströmung bei gleichem Druck (die in Abb. 4215-8 links sichtbaren Schwankungen (≈ 10 Hz) wurden durch elektrische Strömung verursacht). In Abb. 4215-9 ist eine Blasenströmung bei 56 bar dargestellt, Blasen treten nur im oberen Bereich der Strömung auf (vgl. Abb. 4215-5). Die Signale bei $p = 77$ bar in Abb. 4215-10 deuten auf eine Ringströmung hin, bei gleichen Werten der superficial velocities ist bei einem Luft-Wasser-Gemisch eine ausgeprägte Schwallströmung vorhanden. Bei 100 bar (Abb. 4215-11) tritt auch bei noch kleineren Geschwindigkeiten keine Schwallströmung mehr auf. Auffällig in Abb. 4215-11 ist, daß der Flüssigkeitsanteil mit wachsendem Abstand recht kontinuierlich zunimmt; bei Ringströmung in Wasser-Luft-Gemischen erfolgt eine starke Zunahme erst im unteren Bereich. Diese Strömung wäre vielleicht besser mit dem Begriff Spritzerströmung charakterisiert.

Die bisherigen Dampf-Wasser-Experimente zeigen, daß der Druck einen starken Einfluß auf Strömungsform und Phasenverteilung besitzt, insbesondere verkleinert sich mit steigendem Druck in einer Strömungskarte mit der superficial velocities als Koordinaten das Gebiet der Schwallströmung.

6. Erste Tests einiger Massenstrommeßverfahren im Dampf-Wasser-Kreislauf

In ersten Versuchsserien wurden folgende Meßverfahren im Dampf-Wasser-Kreislauf eingesetzt:

- Drag-body und Turbosonde (Euratom-Ispra, RS 109)
- Temperaturkorrelation (TU-Berlin, RS 135)
- Drag-body (Battelle, RS 147)
- Radionuklid-Meßverfahren (GfK-LIT, RS 146 bzw. PNS 4214)

Wesentliches Ziel dieser Versuche war es, etwaige Mängel mechanischer oder elektrischer Art kennen zu lernen, um die Verfahren für spätere Versuche evt. zu verbessern. Auch bei diesen Versuchen wurde mit der traversierbaren Sonde die Strömungsform sowie meist ein Profil der Phasenverteilung bestimmt.

In diesem Rahmen kann nur auf Ergebnisse des Vorhabens 4214 (siehe entsprechenden Bericht) eingegangen werden. Für die in Abb. 4215-10 und 4215-11 dargestellten Betriebspunkte wurden die mittleren Flüssigkeitgeschwindigkeiten bestimmt. Abb. 4215-12 zeigt SONDENSIGNALE (S) und synchron Schwankungen des Differenzdrucksignals ($\Delta\rho'_d$) einer ca. 2 m stromab liegenden Drosselstelle für 3 Betriebspunkte bei denen mit der Radionuklidtechnik beide Phasengeschwindigkeiten gemessen wurden. Das $\Delta\rho'_d$ -Signal besitzt den größten Wert (nach unten aufgetragen) wenn ein Schwall die Drosselstelle passiert. Bei den Versuchspunkten mit $C_w = 0.5$ und 1.03 m/s war eine Schwallströmung vorhanden, wobei die Dampfkolben im oberen Beispiel auch im unteren Wandbereich noch detektiert werden konnten, im unteren Beispiel besitzen die Dampfkolben einen kleineren Querschnitt und reichen nicht bis zur Sondenspitze hinab. Beim kleinsten Wasserdurchsatz ($C_w = 0.27$ m/s) ist eine Wellenströmung vorhanden; Selbst bei 10 mm Abstand von der unteren Mantellinie des Rohres ist vorwiegend Dampf vorhanden, unterbrochen durch Wellenberge; in Kanalmitte zeigte die Sonde fast ausschließlich Dampf an. Die

Sondensignale zeigen, daß bei gleichem Dampfdurchsatz und zunehmendem Wasseranteil die Vermischung der Phasen intensiver wird; der Schlupf sollte daher kleiner werden. Diese Tendenz zeigen die Ergebnisse der Radionuklidmethode.

Die Drucksignale zeigen, ebenso wie die Geschwindigkeitsmessungen (vgl. Abb. 4214- 7) bei $C_w = 0.5$ und 1.03 m/s niederfrequente Schwankungen mit Schwingungsdauern von ca. 5 s bzw. 4 s. Derartige Schwankungen wurden auch mit der Sonde bei kleineren Abständen angezeigt. Diese Schwankungen entstehen durch Strömungsseparation in der Rohrleitung ($d = 100$ mm) zwischen Teststreckenende und Druckentlastungsventil falls ein Schieber am Ende der Teststrecke voll geöffnet ist. Bei Drosselung werden die Schwankungen in der Teststrecke unterdrückt.

[1] J. Mandhane, G. Gregory, K. Aziz:

A Flow Pattern Map for Gas-Liquid Flow in Horizontal Pipes
Int. Journal of Multiphase Flow, Vol. 1 (1974), S.537-555.

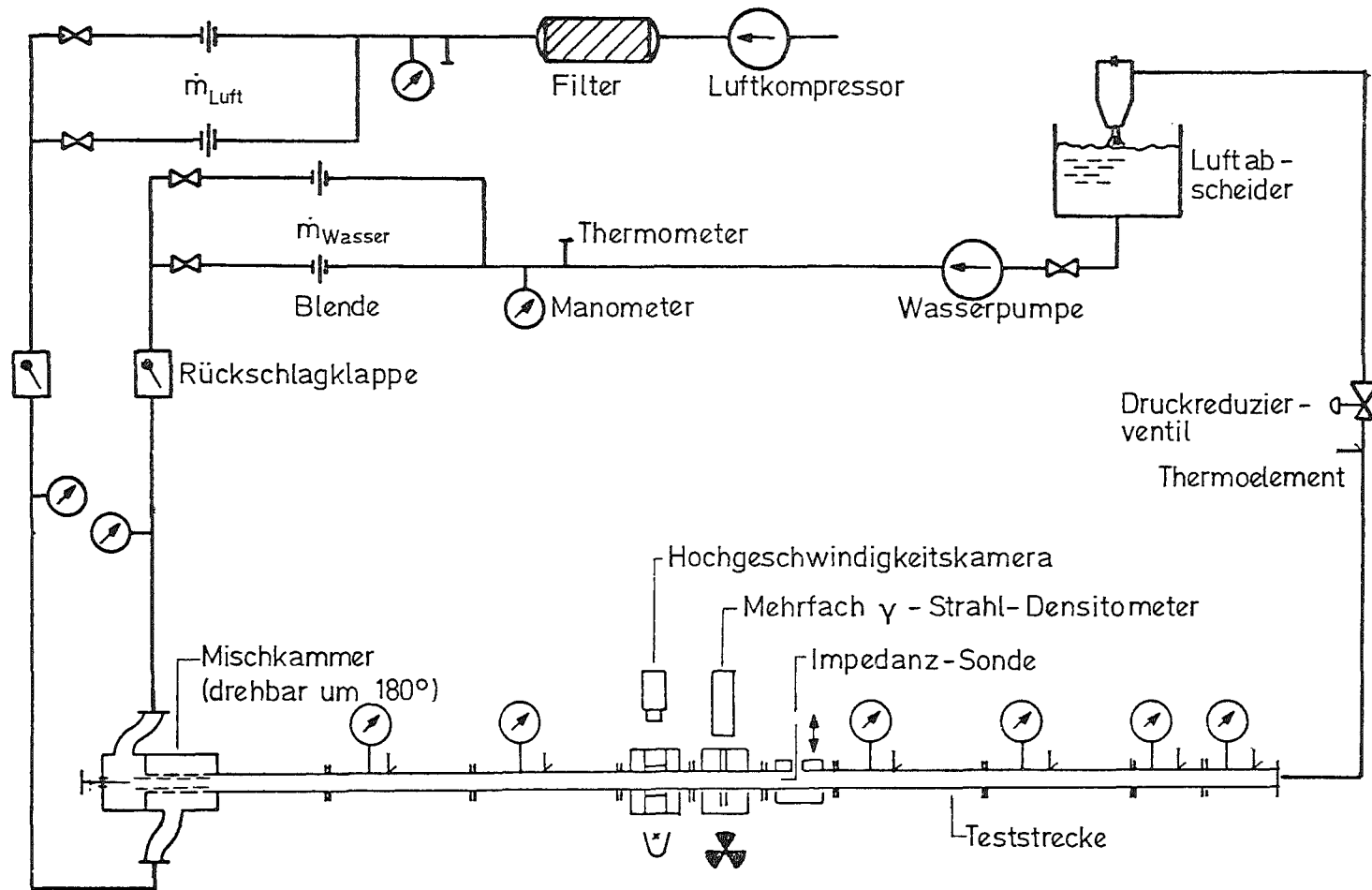
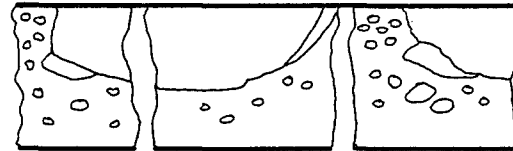


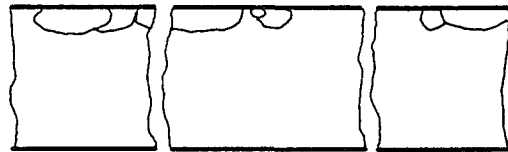
Abb. 4215 -1 Schematische Darstellung des Luft-Wasser-Kreislaufs



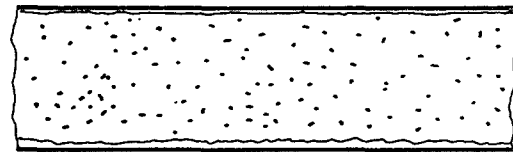
Disperse Blasenströmung
Dispersed Bubble Flow



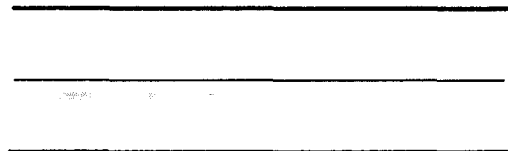
Schwallströmung
Slug Flow



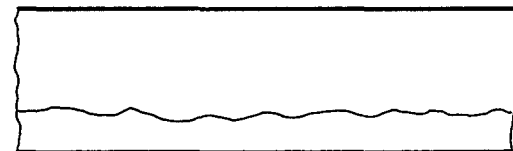
Blasenströmung
Bubble, Elongated Bubble Flow



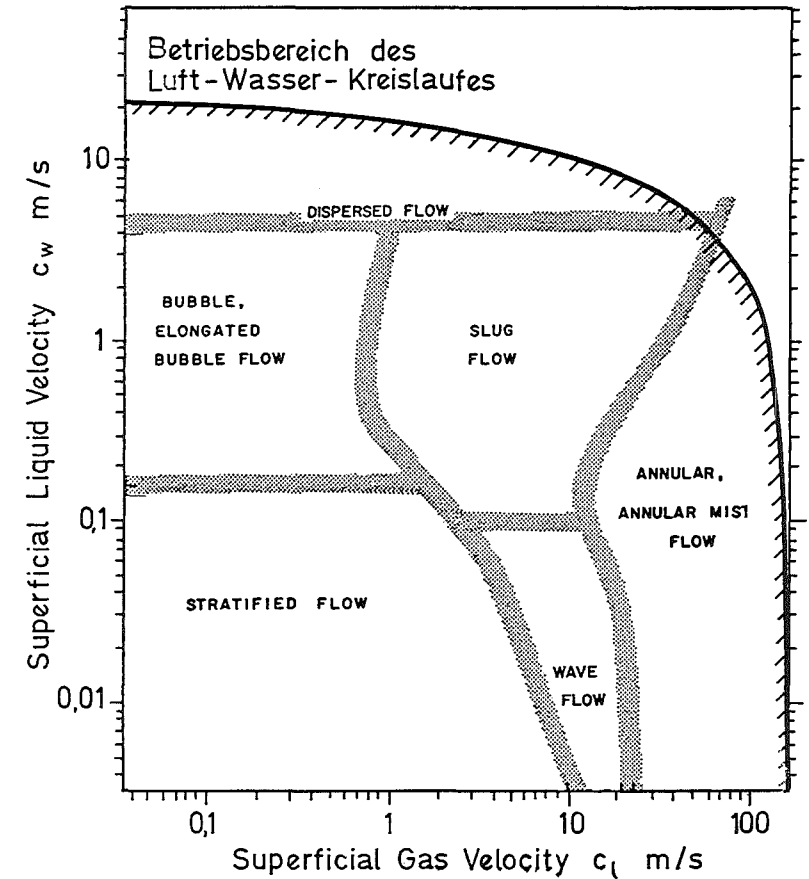
Ring-, Ring-Nebelströmung
Annular, Annular Mist Flow



Schichtenströmung
Stratified Flow



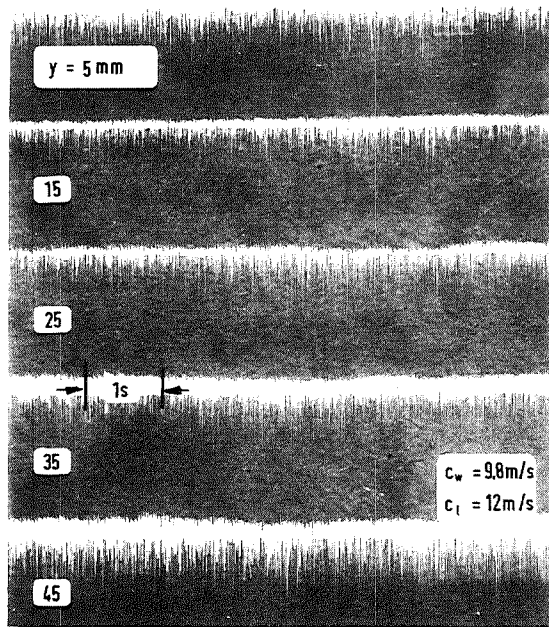
Wellenströmung
Wave Flow



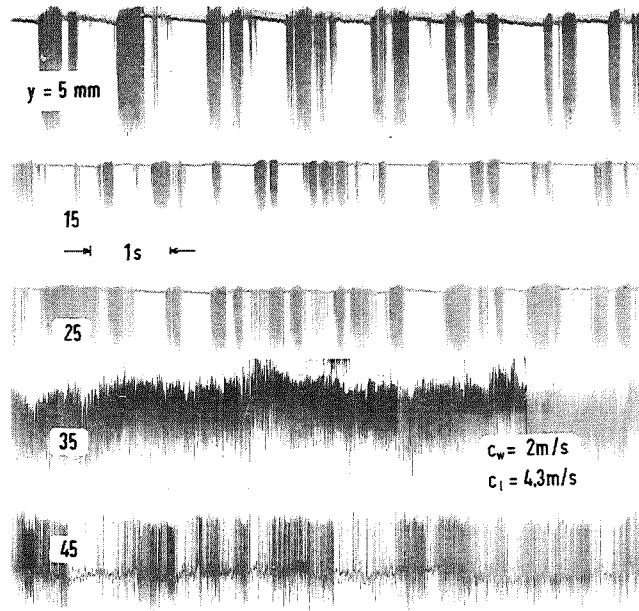
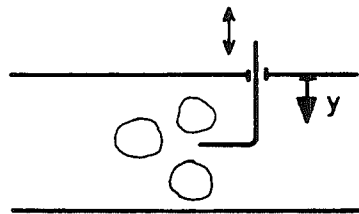
Strömungskarte für horizontale Rohrstr.
(Mandhane, Gregory, Aziz)



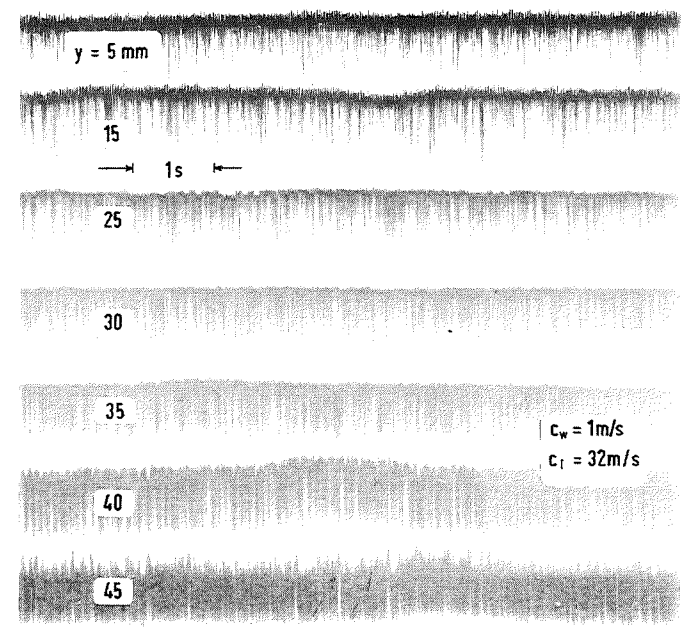
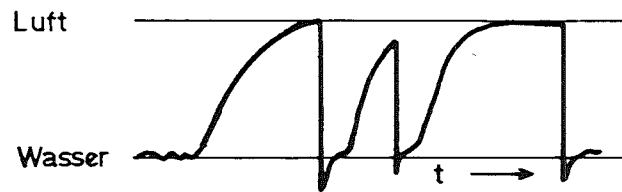
Abb. 4215 - 2 Strömungsformen, Strömungskarte für horizontale Rohrströmung



Disperse Blasenströmung



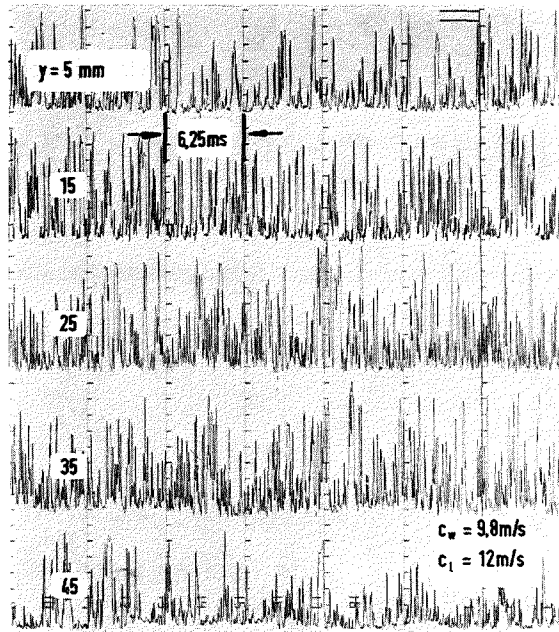
Schwallströmung



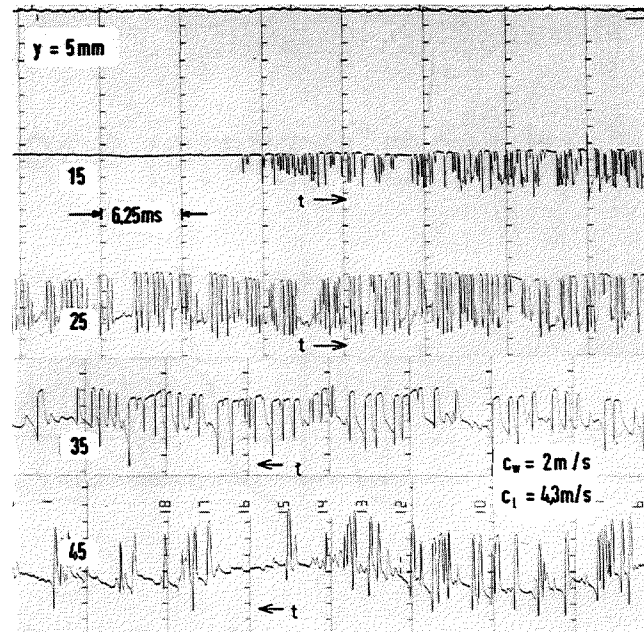
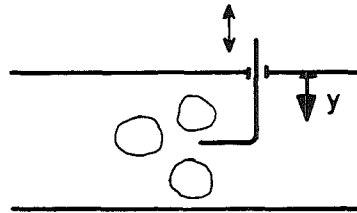
Ringströmung



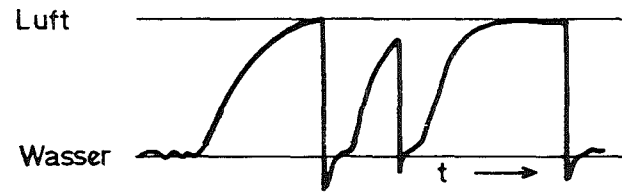
Abb. 4215 - 3 Sondensignale bei verschiedenen Strömungsformen (Luft-Wasser-Strömung, kleine Zeitauflösung)



Disperse Blasenströmung



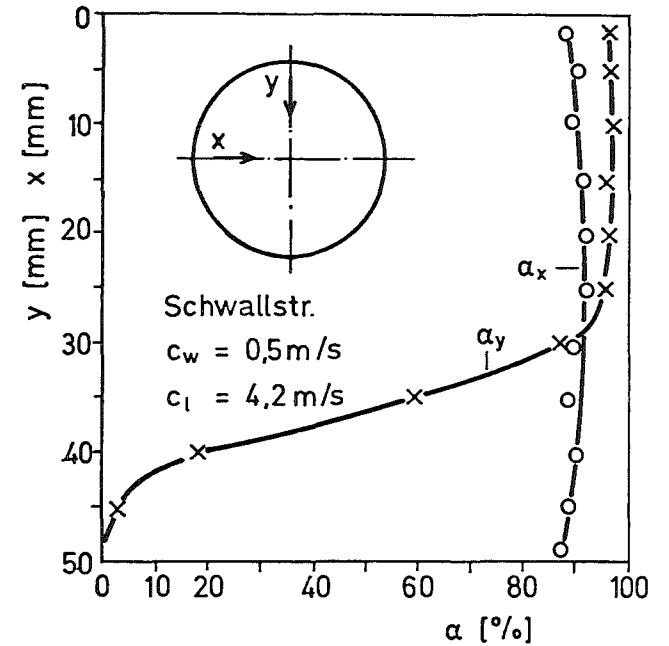
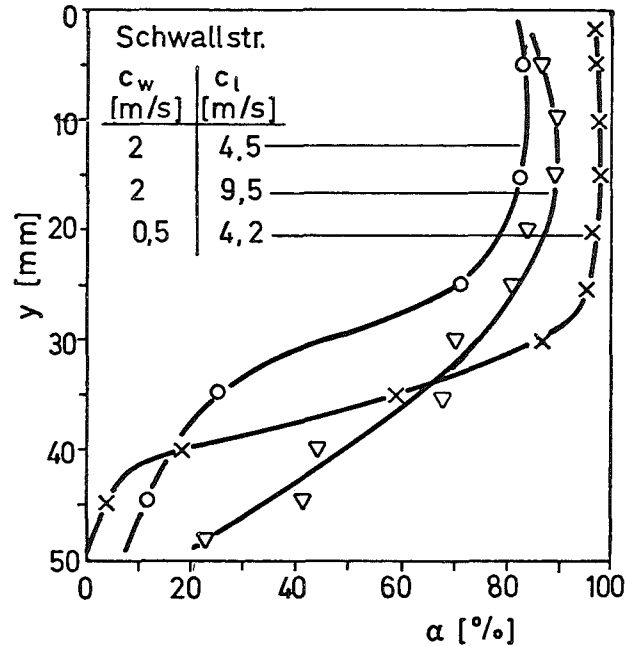
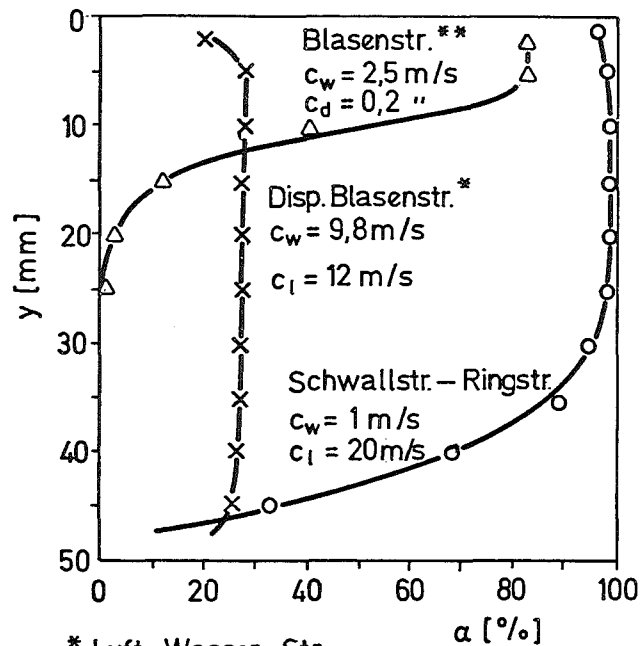
Schwallströmung



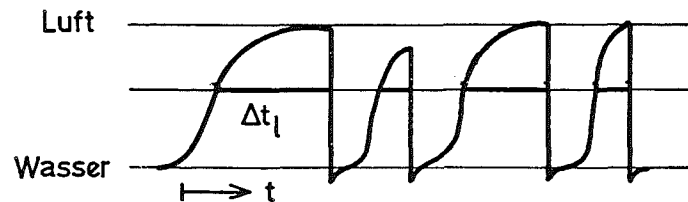
Ringströmung



Abb. 4215 -4 Sondensignale bei verschiedenen Strömungsformen (Luft-Wasser-Strömung, große Zeitauflösung)



* Luft-Wasser-Str.
** Dampf-Wasser-Str.



$$\alpha = \frac{\sum \Delta t_l}{t}$$

GRK

Abb. 4215 - 5 Profil des lokalen Dampfvolumentanteils α

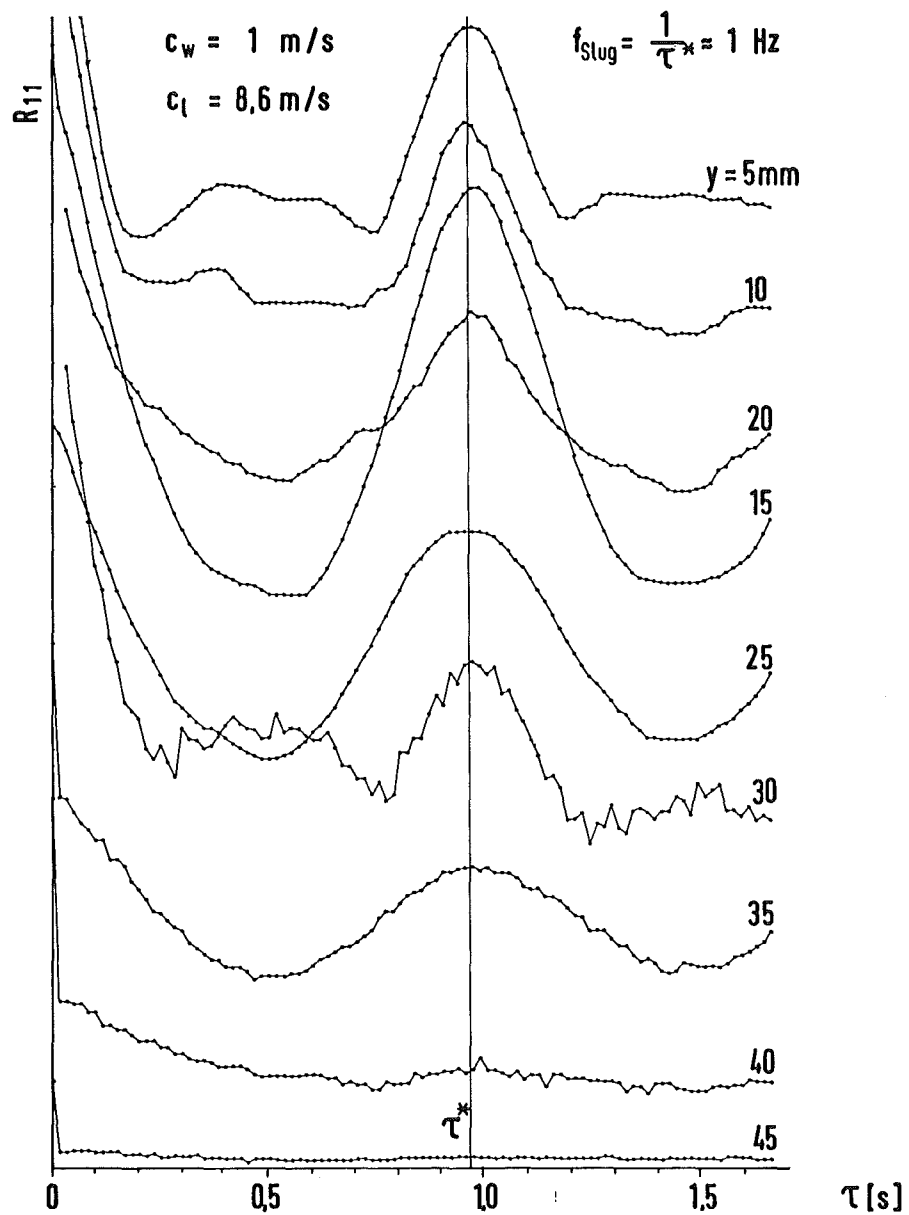


Abb. 4215-6 Autokorrelationsfunktion bei Schwallströmung
($p = 4,3$ ata ; $c_w = 1,0$ m/s ; $c_l = 8,6$ m/s)

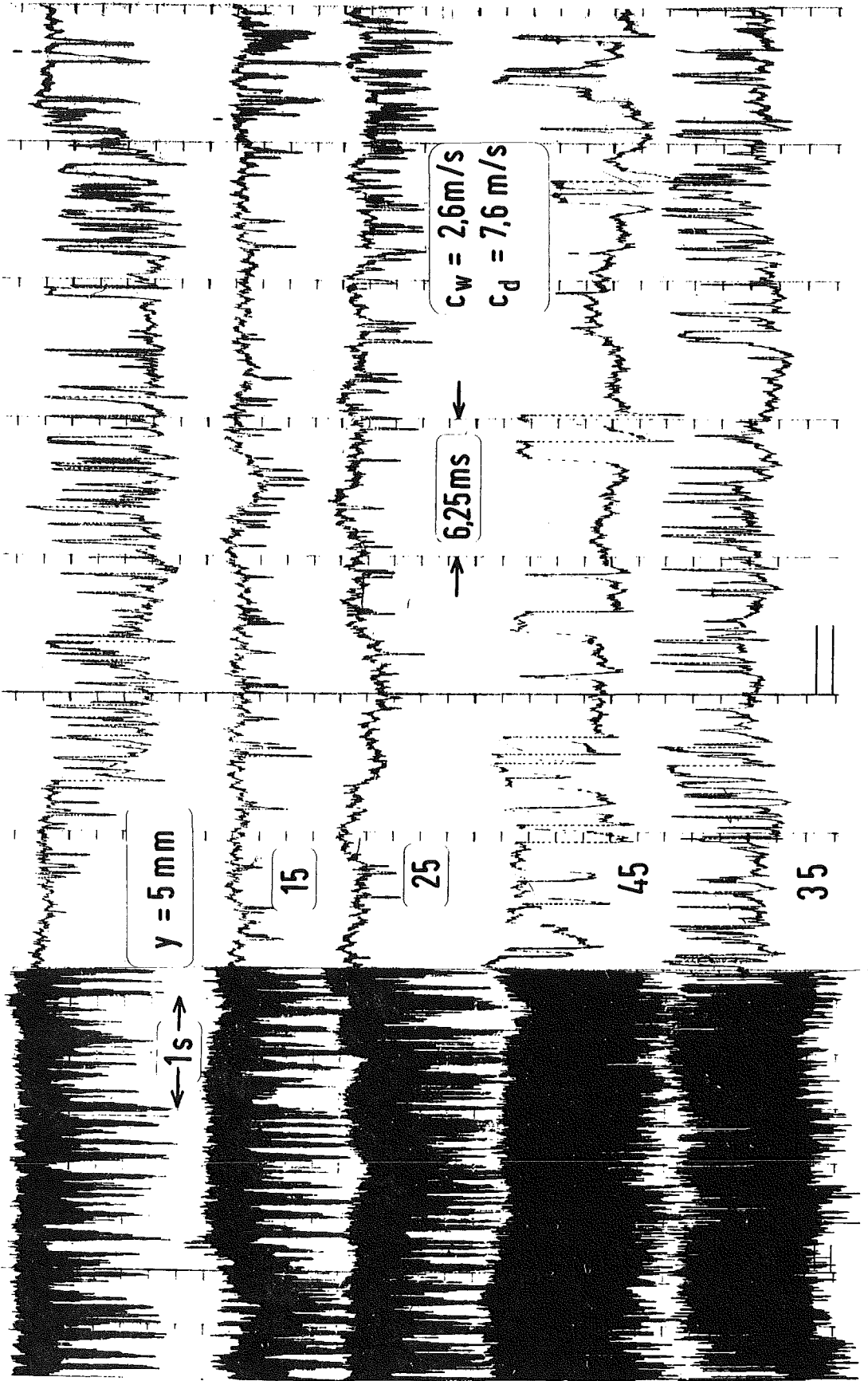


Abb. 4215 - 7 Sondensignale bei Dampf - Wasser - Strömung
($p = 25 \text{ bar}$; $\dot{m} = 2277 \text{ kg / m}^2 \text{ s}$; $x = 4,1 \%$)

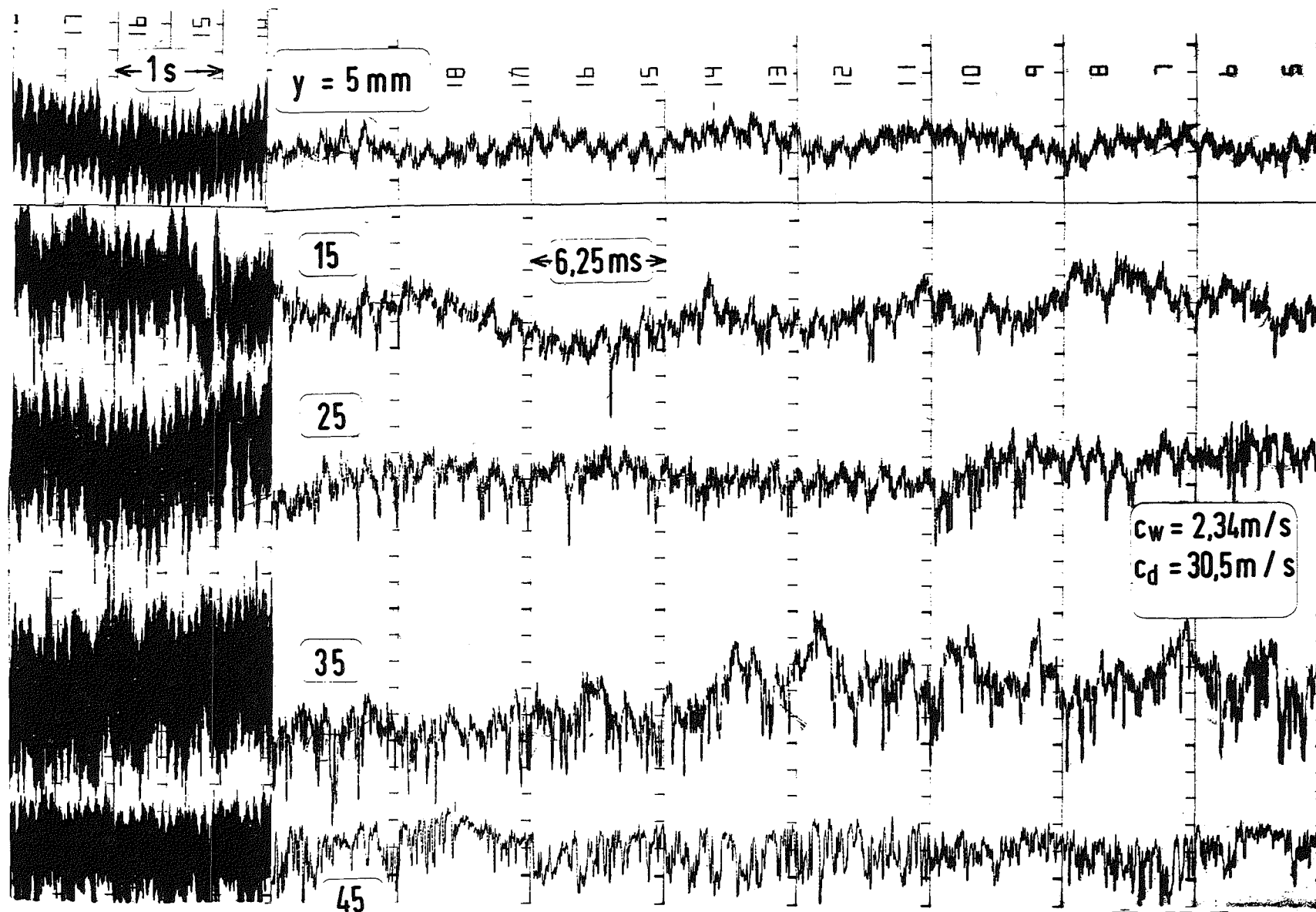
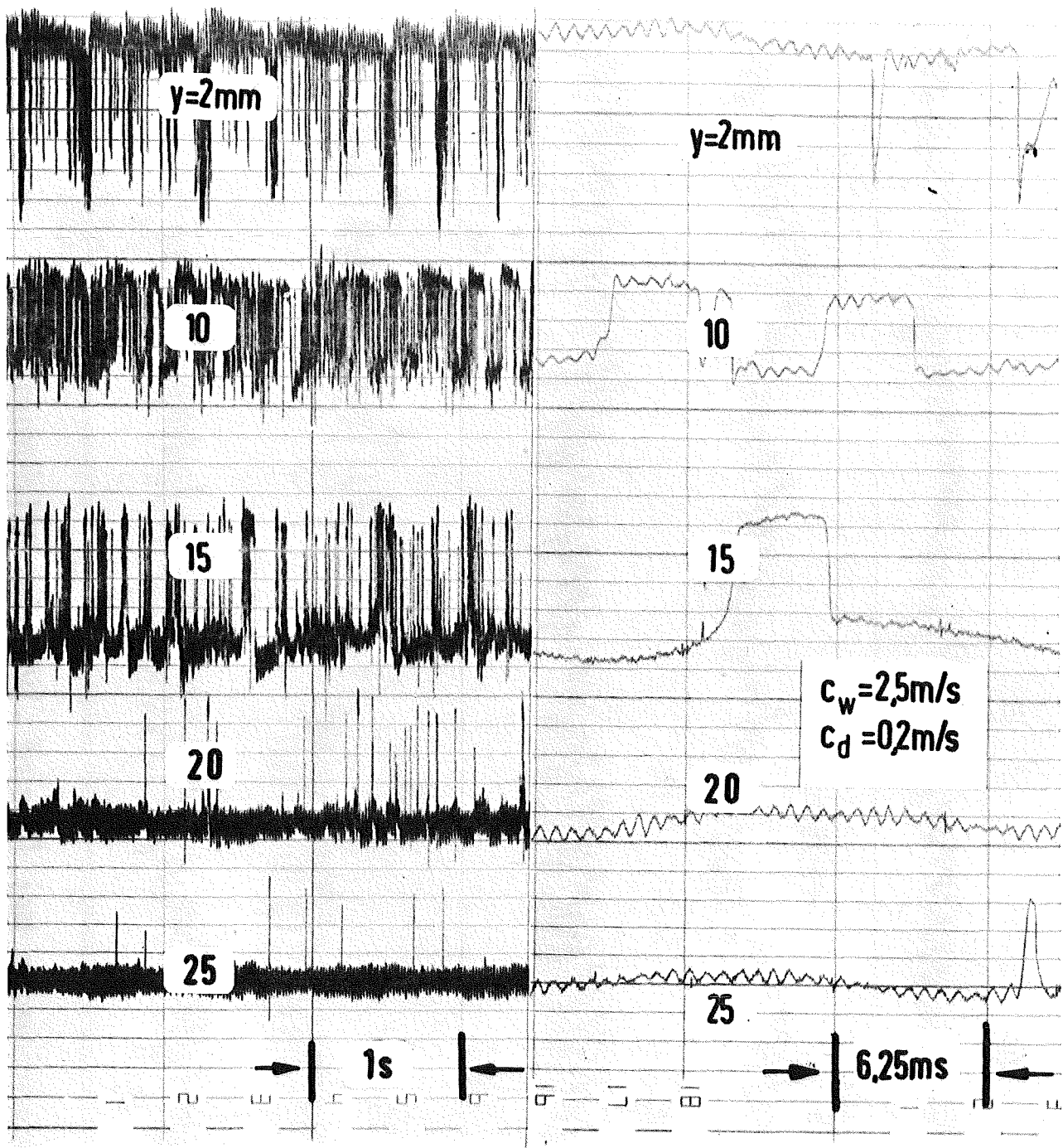
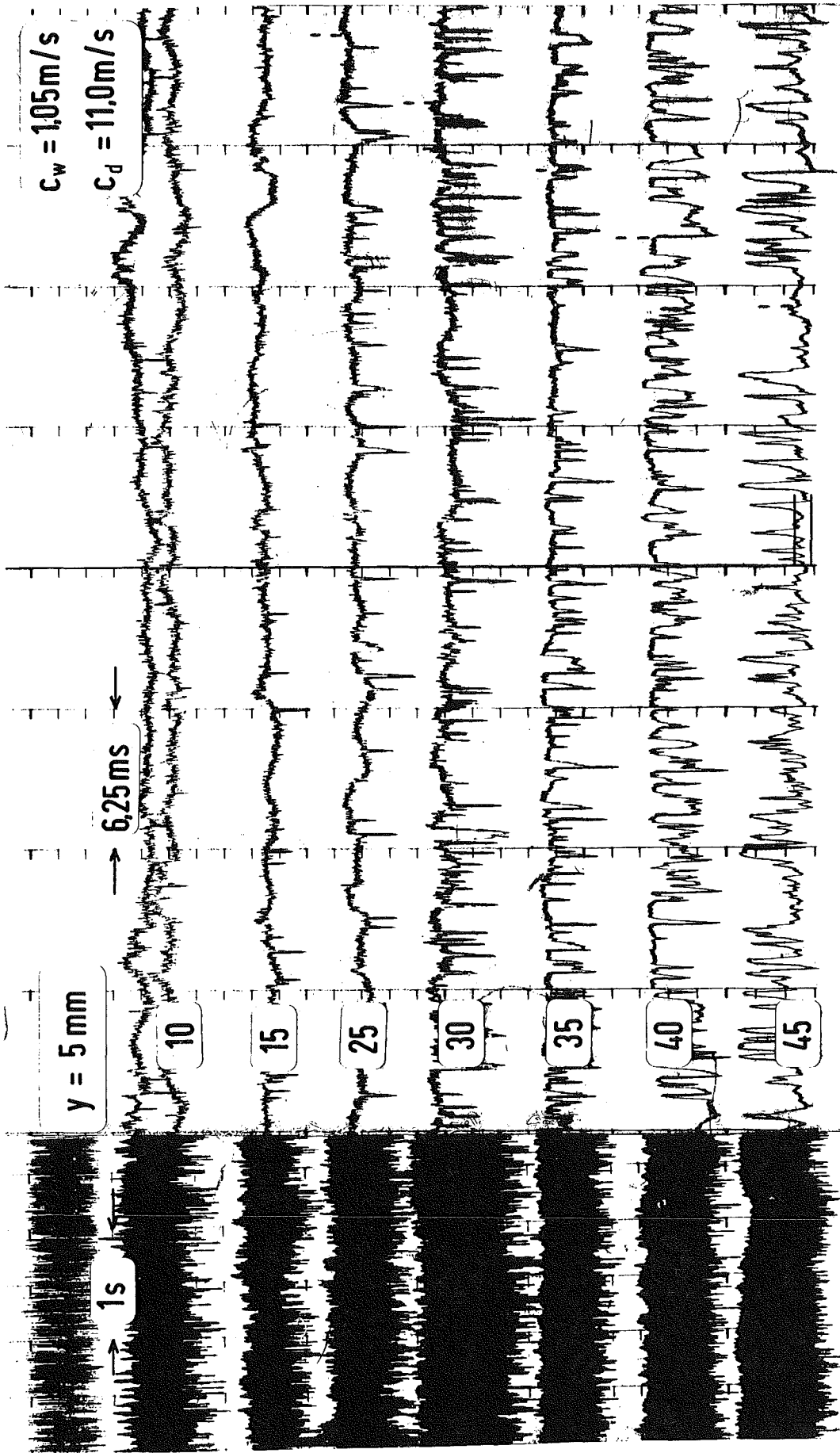


Abb.4215-8 Sondensignale bei Dampf - Wasser - Strömung
 ($p = 25 \text{ bar}$; $\dot{m} = 2334 \text{ kg / m}^2 \text{ s}$; $x = 16 \%$)

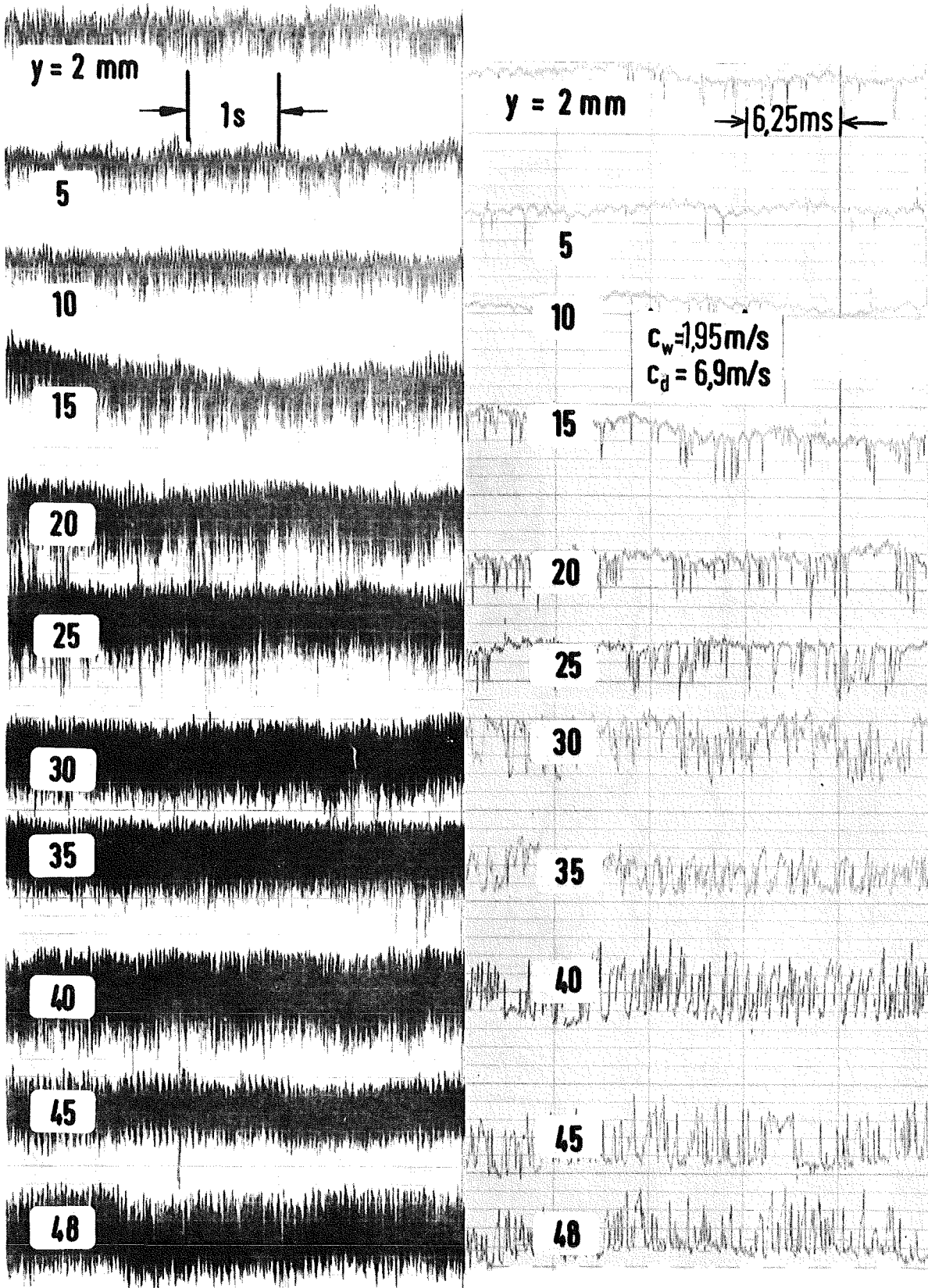


GRK

Abb.4215-9 Sondensignale bei Dampf-Wasser-Strömung
($p = 56 \text{ bar}$; $\dot{m} = 1900 \text{ kg / m}^2 \text{ s}$; $x = 0,26\%$)

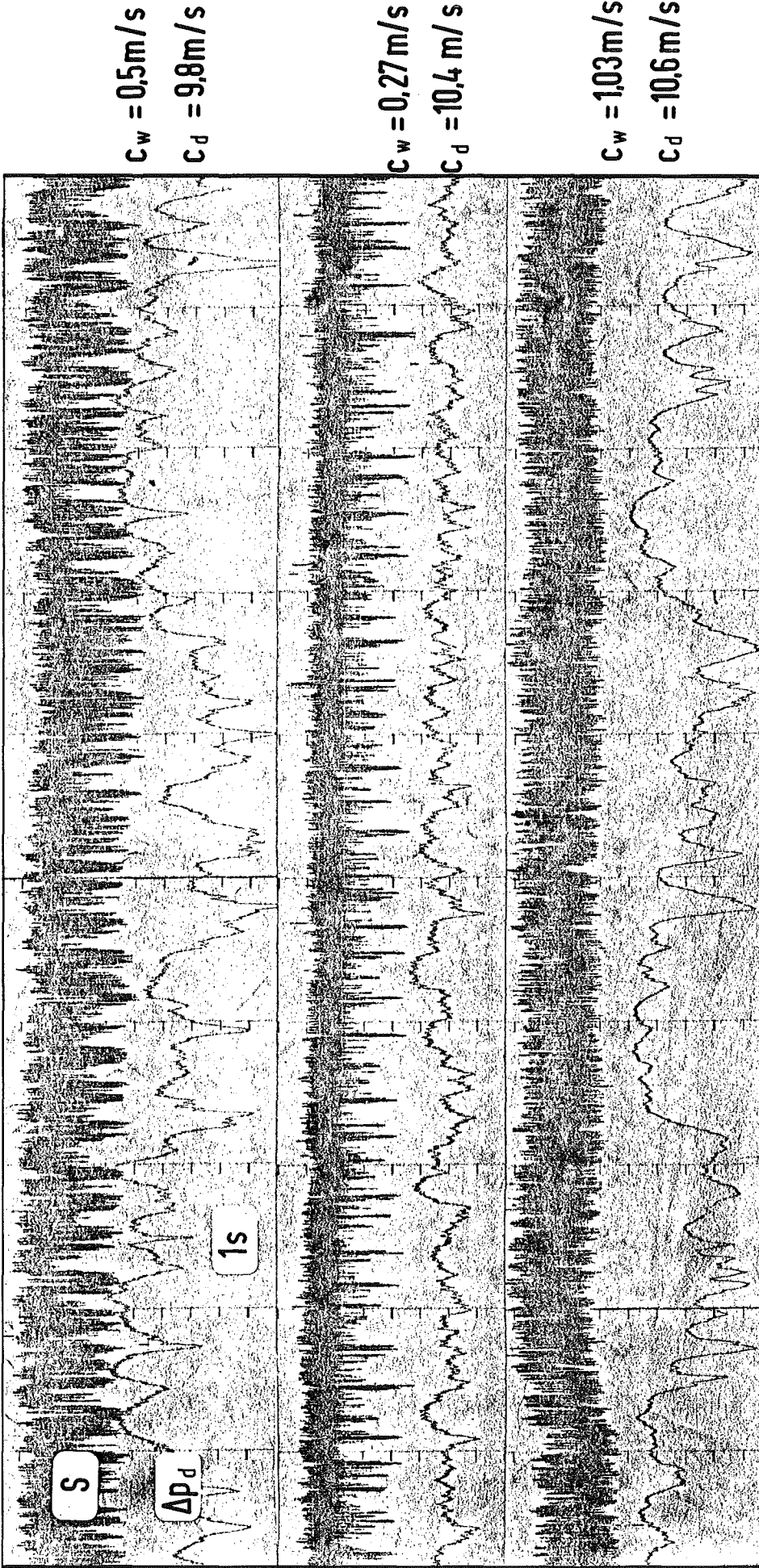


**Abb.4215-10 Sondensignale bei Dampf - Wasser - Strömung
($p = 77 \text{ bar}$; $\dot{m} = 1205 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$; $x = 37 \%$)**



gfk

Abb.4215-11 Sondensignale bei Dampf-Wasser-Strömung
($p = 100 \text{ bar}$; $\dot{m} = 1715 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$; $x = 22 \%$)



**Abb. 4.215-12 Sondensignale ($y = 40 \text{ mm}$) und Δp_d -Signale bei Dampf-Wasser-Str.
($p = 25 \text{ bar}$)**

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

Im Zuge der Vorausberechnungen der HDR-Versuche wurden die Eigenfrequenzen des Kernmantels mit Hilfe des Codes CYLDY2 bestimmt (CYLDY2 basiert auf einem halbanalytischen Strukturmechanik-Modell für den Kernmantel). Die unteren, für das Systemverhalten ausschlaggebenden Eigenfrequenzen stimmen recht gut mit jenen Werten überein, die anlässlich der Versuchsauslegung mit Hilfe des Finite-Elemente-Codes STRUDL/DYNAL erzielt wurden. Die selben Eigenfrequenzen stimmen dagegen nicht mit Werten überein, die vom LRA mittels des Finite-Elemente-Codes SAP IV berechnet wurden. Ein Vergleich der höheren von CYLDY2 gelieferten Kernmantel-Eigenfrequenzen (oberhalb der Ordnung 35-50) mit den Ergebnissen anderer Codes war nicht möglich, da die Finite-Elemente-Rechnungen eine so hohe Auflösung nicht erlauben (Ludwig).

Das Konzept für Versuche zur Strukturmechanik am eingebauten Kernmantel ohne Wasserfüllung, sowie für Versuche zur gekoppelten Fluid-Strukturmechanik am eingebauten Kernmantel mit Wasserfüllung - letzteres jedoch ohne Anregung durch den Blowdownvorgang - wurde ausgearbeitet. Auf die ursprünglich geplante

periodische Systemanregung mit Hilfe eines Shakers wurde wegen des hohen Aufwandes verzichtet. Stattdessen wurden sogenannte Snap-back-Versuche konzipiert, bei denen der Kernmantel an zwei verschiedenen Stellen durch Hydraulik-Zylinder ausgelenkt wird. Das Überschreiten gewisser Grenzlaster führt zum Bruch von Reißbolzen, die in das Hydraulik-System eingebaut sind. Dies stellt eine recht scharfe, sprungförmige Belastungsänderung für den Kernmantel dar. Die hierdurch verursachten dynamischen Verformungen werden gemessen. Der Vergleich mit entsprechenden Ergebnissen von Rechencodes erlaubt die Verifikation der verwendeten Teilmodelle für die Strukturmechanik bzw. für die Fluid-Struktur-Koppelung. Das Teilmodell über die Blowdown-Strömung besonders im Stützenbereich spielt hierbei keine Rolle. Demgegenüber erlauben die eigentlichen Blowdownversuche nur eine integrale Verifikation des verwendeten Gesamtmodells (Beutel).

Die Konstruktion der hydraulischen Auslenkvorrichtung mit Reißbolzen ist in Abb.4221-1 dargestellt.

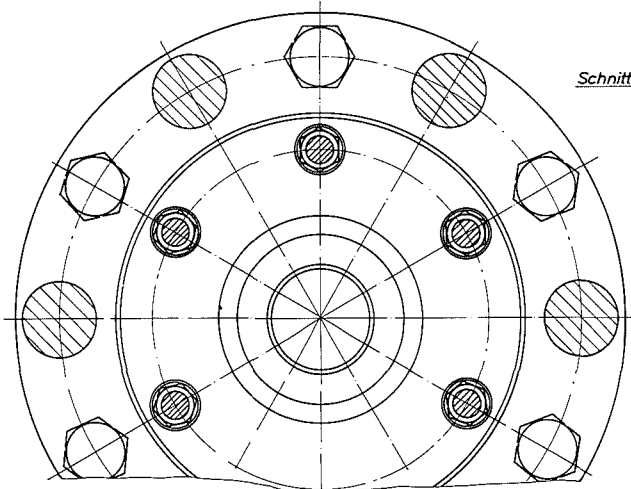
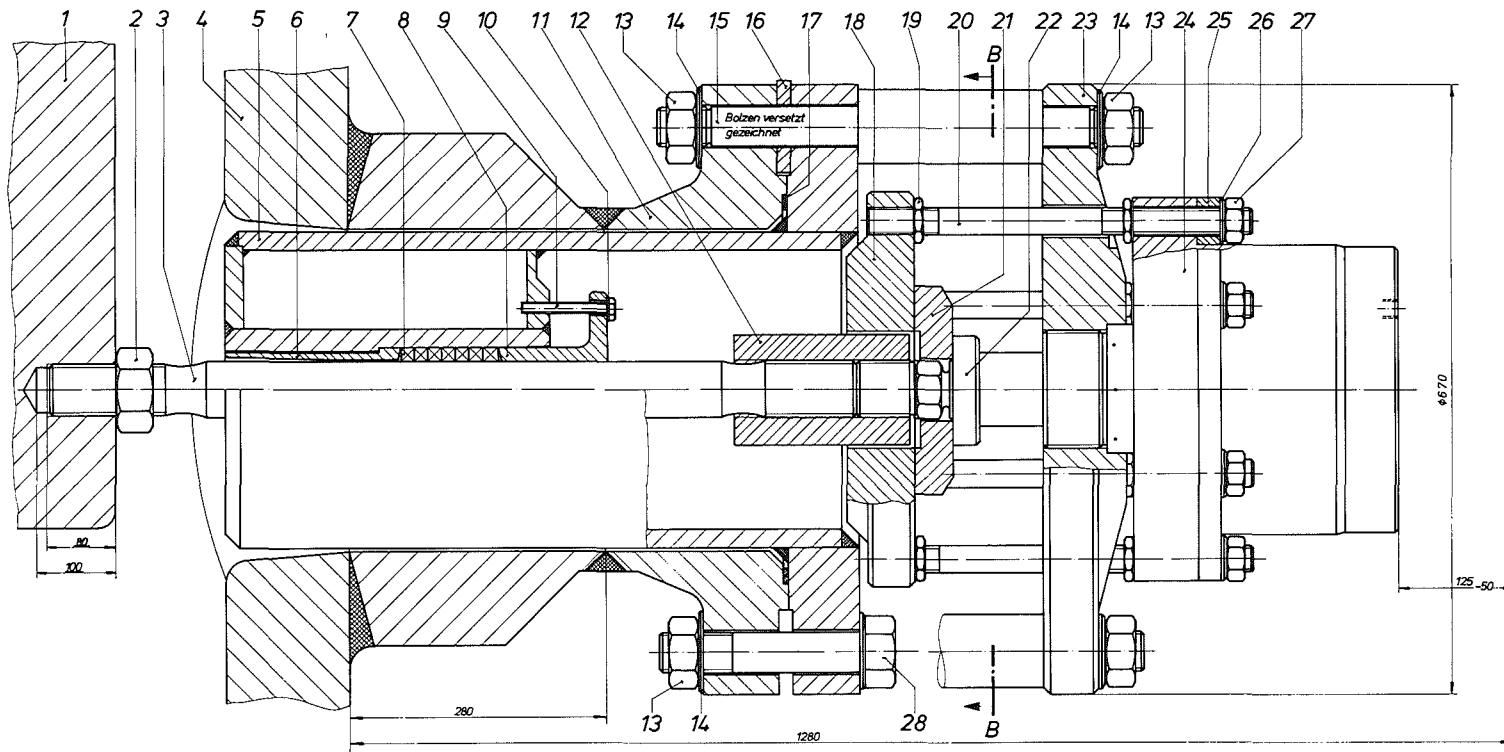
Für den HDR-Referenz-Blowdownversuch wurden Ergebnisse von YAQUIR, WHAMMOD und DAPSY in eine für Vergleiche geeignete Darstellung gebracht. Die Ergebnisse der WHAMMOD-Rechnung wurden vom GRS-IRS(Köln), diejenigen der DAPSY-Rechnungen vom GRS-LRA(Garching) zur Verfügung gestellt. Abb.4221-2a bis c zeigen Druckverteilungen im Ringraum zum etwa gleichen Zeitpunkt. Die größere Ähnlichkeit der YAQUIR- und DAPSY-Ergebnisse ist zum Teil darauf zurückzuführen, daß für YAQUIR die Druckrandbedingungen aus DAPSY übernommen wurden. Ferner wurden die YAQUIR-Ergebnisse erstmals mit Hilfe des Mikrofilmzeichengerätes der Kernforschungsanlage Jülich als Filme (Laufzeit bis zu 1,5 min für 80 msec Echtzeit) dargestellt. Wie erwartet bringt diese Art der bewegten Darstellung ein vertieftes Verständnis der physikalischen Vorgänge (Stöltung).

Die für Vorausberechnungen von Blowdownversuchen erforderlichen Unterlagen wurden zusammengestellt und über die Projektleitungen PNS und PHDR der US-NRC zugeleitet. Diese Unterlagen dienen vor allem LASL zur Durchführung von Rechnungen mit dem Code SOLA-FLXWALL. Erste Absprachen zum Austausch von Rechenergebnissen auf Magnetband zwischen LASL und GfK wurden getroffen (Mösinger, Schlechtendahl).

Für den Enthalpieschichtungsversuch (siehe PNS 4222) wurde ein Fahrtdiagramm erstellt. Die einzustellenden Sollwerte für diesen Versuch wurden berechnet (Mösinger). Die Vorgehensweise für die Auswertung der Enthalpieschichtungsversuche wurde detailliert (Schumann).

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Im Zusammenhang mit der Montage des Kernmantels sind noch einige Abschätzungen und Überprüfungen durchzuführen (Dicke der Kalibrierplatten zwischen Kernmanteleinspannflansch und Behälterdeckel). Die Vorausberechnungen zur Strukturmechanik des Kernmantels werden fortgesetzt und die Abweichungen gegenüber externen Rechnungsergebnissen werden - soweit möglich - untersucht. Die hydraulische Zugeinrichtung für die Snap-back-Versuche wird in Auftrag gegeben. Die Übertragung von Meßwerten vom HDR bis zu den Auswerteprogrammen in der GfK wird bei Probe-Blowdown-Versuchen überprüft. Ebenso wird versuchsweise der Datenaustausch mit Los Alamos aufgenommen werden.



Schnitt B-B

Abb.4221-1

- 1 HDR - Kernmantel
- 3 Zugstange
- 4 HDR - Reaktordruckgefäß
- 5 Flansch mit Füllkörper
- 11 Vorschweißflansch NW350/ND160
- 22 Brechbolzen (Bruch bei ca. 1×10^6 N)
- 24 Hydraulikzylinder $\phi 250 \times 50$ mm Hub
für Betrieb bis 300×10^5 N/m²

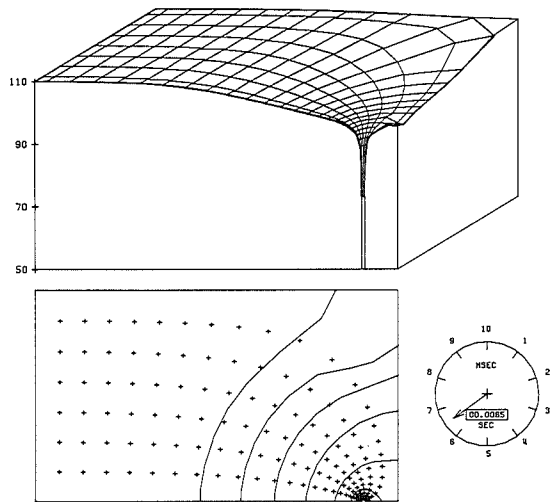


Abb.4221-2a YAQUIR

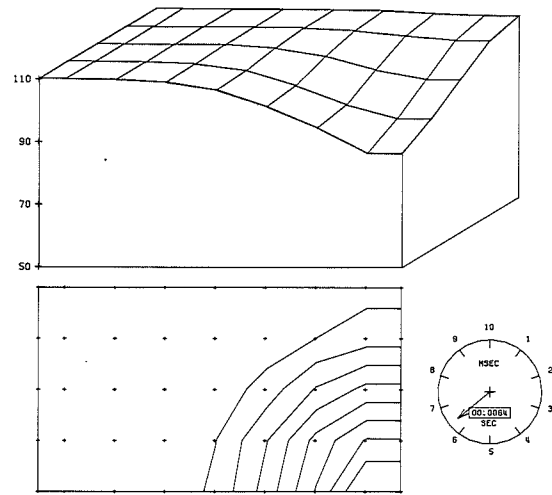


Abb.4221-2b DAPSY

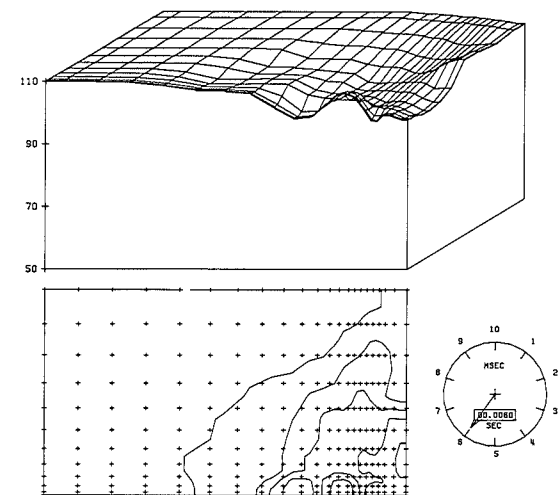
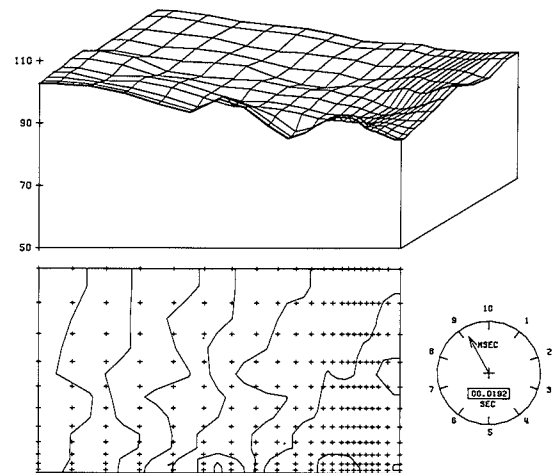
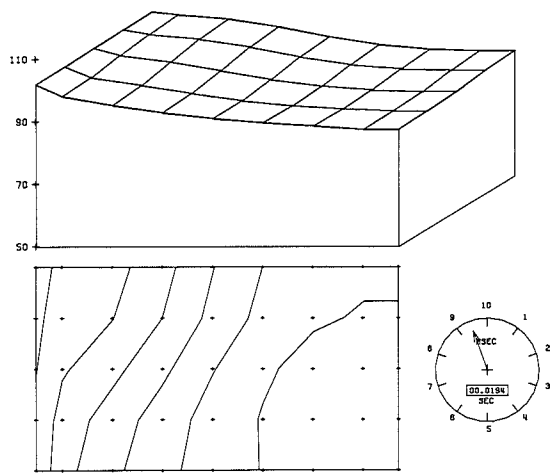
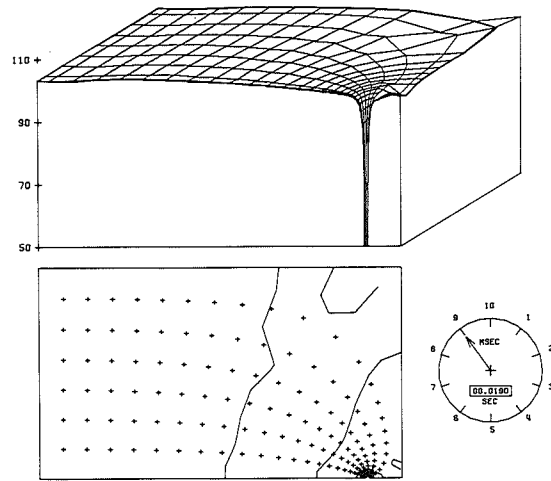


Abb.4221-2c WHAMMOD



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)

Die Testanlage zur dynamischen Untersuchung von Meßwertaufnehmern (unter Blowdown-Bedingungen), bestehend aus einem elektrodynamischen Schwingungserreger (Shaker), einem Autoklaven und einer neu hinzugekommenen Zusatzvorrichtung für dynamische Untersuchungen in Luft und Wasser bei Atmosphärendruck, wurde im IRE fertig installiert und in Betrieb genommen. Die Abb. 4222-1 und 4222-2 zeigen ein Foto und ein Schema dieser Anlage.

Das Betriebsverhalten der Gesamtanlage (von Autoklav, Shaker und Zusatzvorrichtung) wurde ermittelt und notwendige Verbesserungen vorgenommen. Weiter wurden entsprechende Verfahren zur Ermittlung der notwendigen Daten über das thermohydraulische und dynamische Verhalten der Meßwertaufnehmer entwickelt und praktisch erprobt.

Dazu wurden erste Untersuchungen von Beschleunigungsaufnehmern und vor allem von induktiven Wegaufnehmern mit dem Shaker und dem Autoklav durchgeführt. Sie lieferten erste Ergebnisse hinsichtlich des dynamischen Verhaltens der Aufnehmer und der Aufnehmerreaktion auf die thermohydraulischen Belastungen beim Blowdown. Diese Ergebnisse waren bisher positiv und lassen noch vor Abschluß des gesamten Versuchsprogramms erwarten, daß sich die Aufnehmer für den HDR qualifizieren werden.

Die Abb. 4222-3 und 4222-4 zeigen den Frequenzgang eines Aufnehmers und das Temperaturdriftsignal eines induktiven Wegaufnehmers beim Blowdown.

Im Berichtszeitraum wurde auch der Arbeitsbericht [1] über ein Meßfehlerkorrekturverfahren für transiente Meßsignale fertiggestellt.

Die Untersuchungen zum Verhalten der Prototyp-Aufnehmer werden gemäß dem Versuchsprogramm fortgeführt, wobei vor allem die Langzeittests im Autoklav bei kombinierter mechanischer und thermohydraulischer Belastung beim Blowdown über 10 bis 15 Blowdown-Zyklen durchgeführt werden. Daneben sind noch detailliertere Untersuchungen zum Temperaturverhalten von Beschleunigungsaufnehmern

sowie zum dynamischen Verhalten von Dehnmeßstreifen geplant.

Neu hinzugekommen ist die Betreuung der Entwicklung eines Hochtemperatur-Druck- und Differenzdruckaufnehmers auf induktiver Basis. Der entsprechende Prototypaufnehmer sollte ebenfalls im IRE untersucht werden.

Literatur:

[1] Eberle, F.:

"Beitrag zur Entwicklung von Meßfehlerkorrekturverfahren für transiente Meßsignale." (1976, unveröffentlicht)

Appelt, K.D.:

"Aufbau und Übertragungsverhalten der verschiedenen Meßketten der HDR-RDB-Instrumentierung nach dem derzeitigen Kenntnisstand".
(1976, unveröffentlicht)

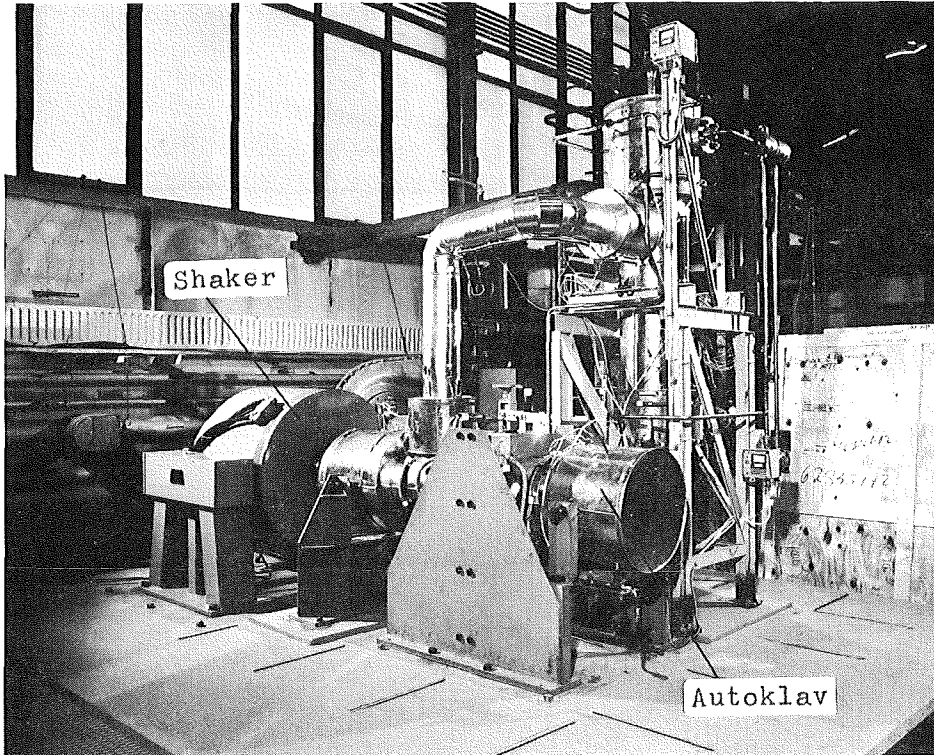


Abb. 4222-1: Testanlage der Meßwertaufnehmer

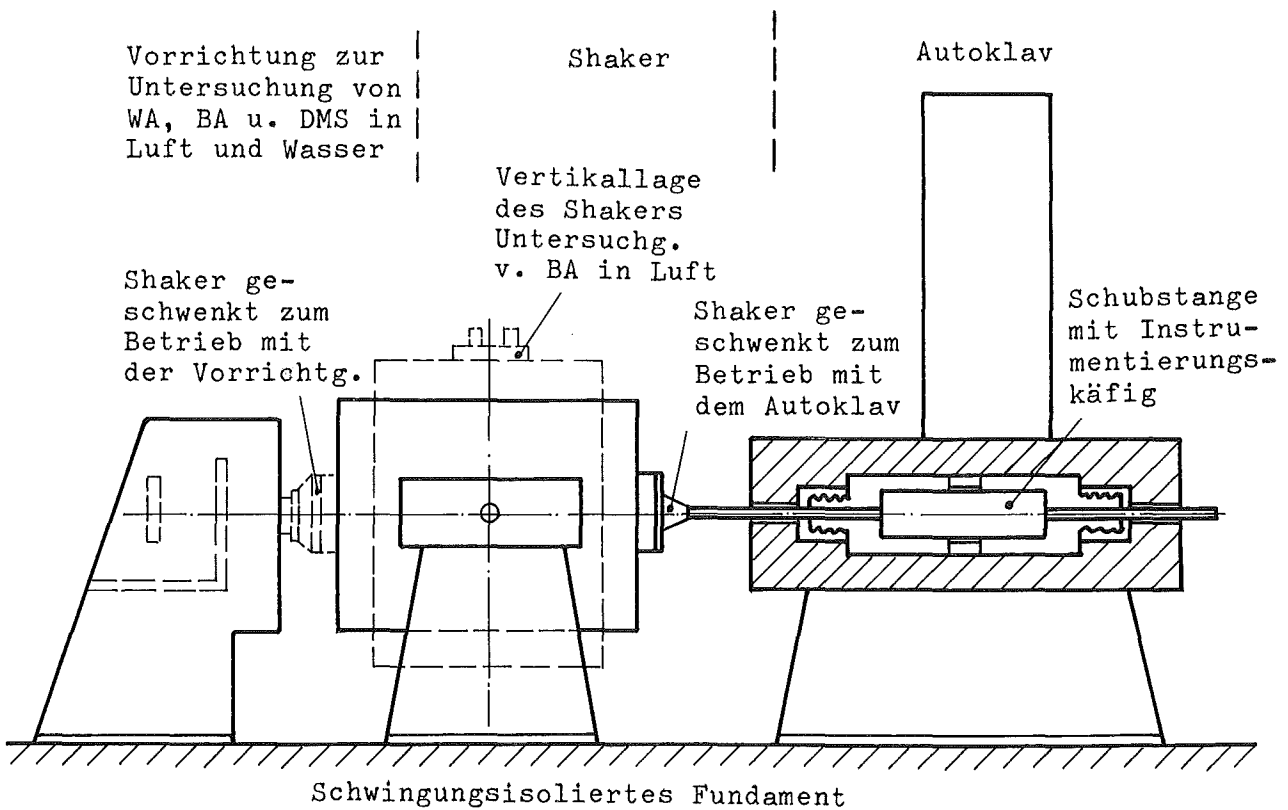


Abb. 4222-2: Schema der Meßwertaufnehmer- Testanlage

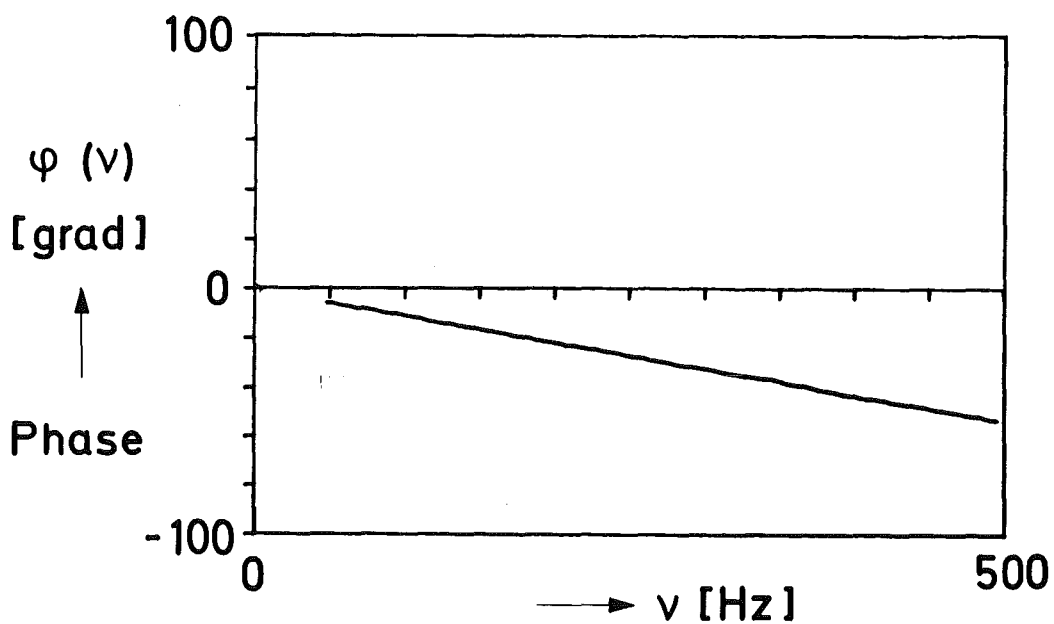
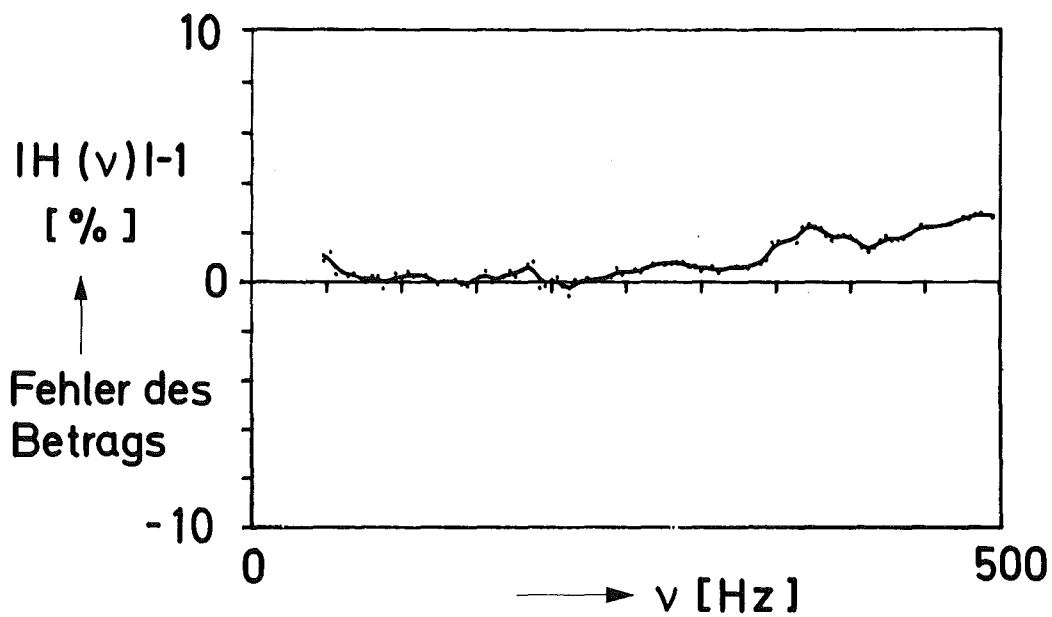
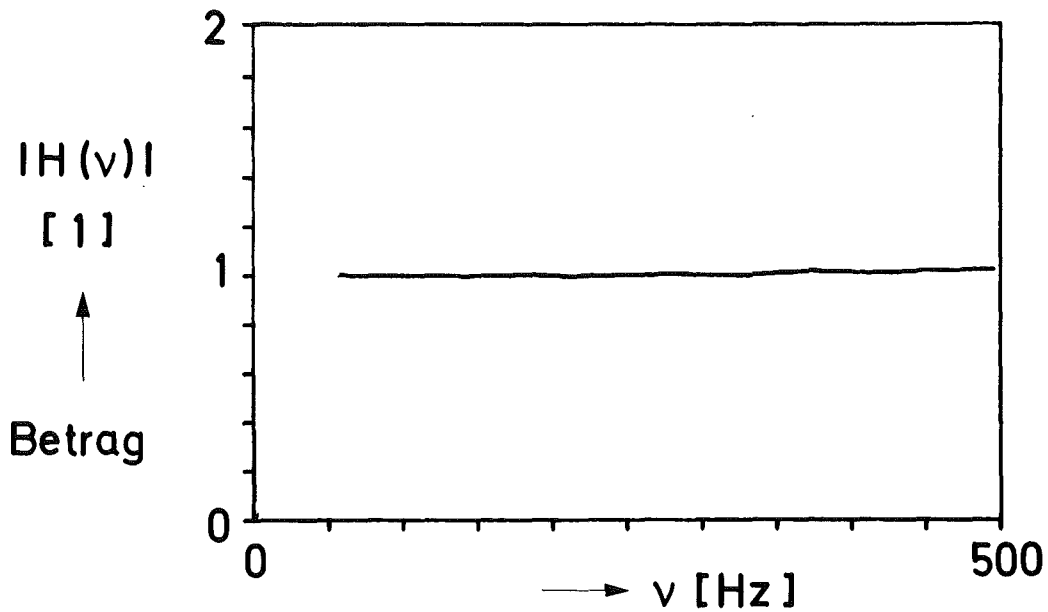


Abb. 4222-3: Gemessene Frequenzgangfunktion des Wegaufnehmers W10SS
Ser.-Nr. 11182 (Fa.Hottinger) in Luft
KWS/II, Kalibrierkonst.: 2,66 mm/V, $p \approx 1$ bar, $\vartheta \approx 20$ °C
Meßbereich 50-500 Hz, randome Anregung

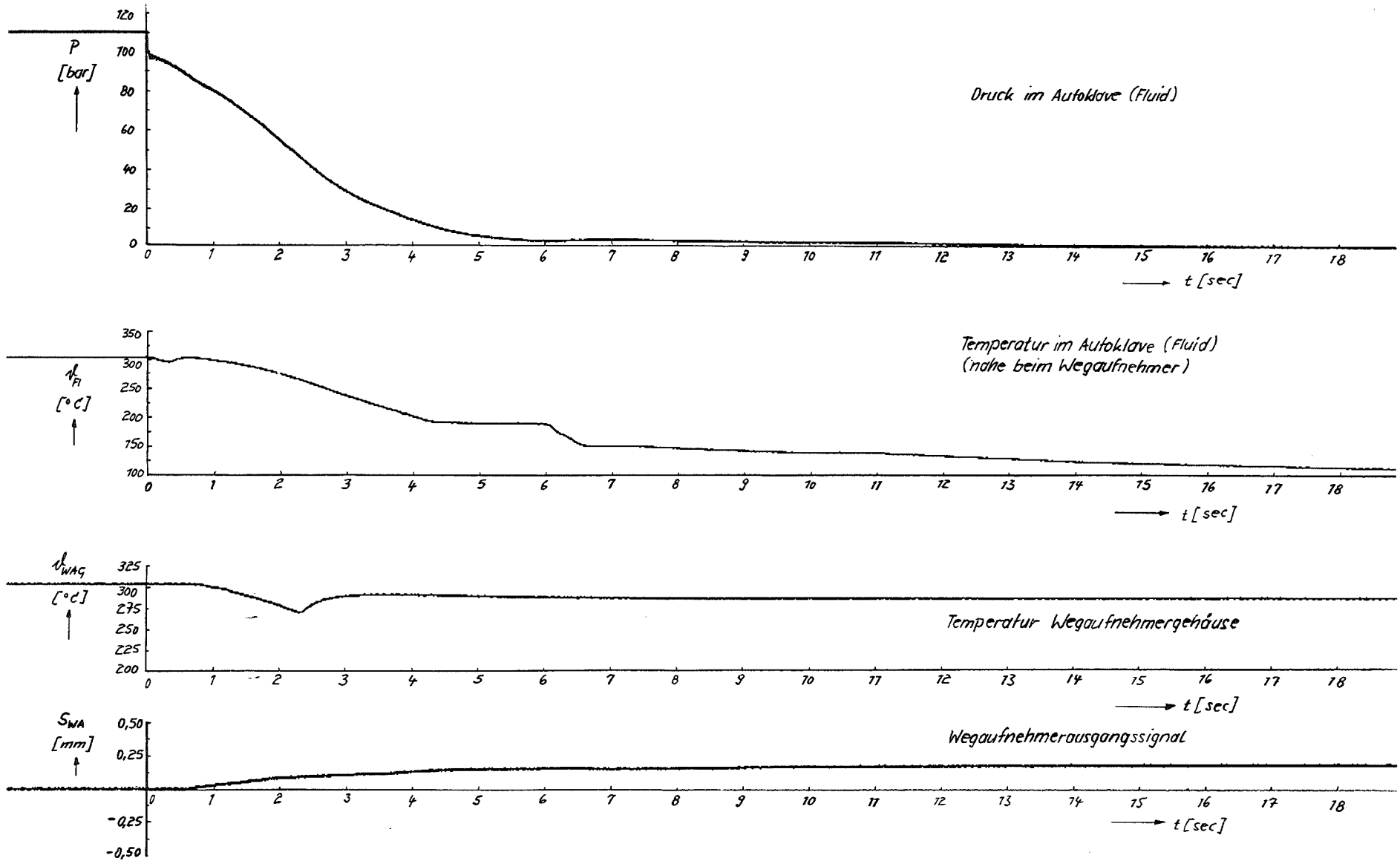


Abb. 4222-4: Verhalten des Wegaufnehmers W10TS während des Blowdowns im Autoklav, Versuch Nr. 4
(Wegaufnehmer im Gehäuse mechanisch arretiert)

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

Hinsichtlich der Fluidodynamikrechnungen auf der Basis des Codes YAQUIR lag der Schwerpunkt bei der Verbesserung der Ergebnisdarstellung und beim Vergleich von Ergebnissen der Codes YAQUIR, WHAMMOD und DAPSY für einen Referenzblowdownversuch. Siehe auch PNS 4221. Mit YAQUIR wurden Blowdownrechnungen für einen großen Druckwasserreaktor durchgeführt und mit Ergebnissen aus LECK-Rechnungen der KWU verglichen. Das Ergebnis bestätigt die Anwendbarkeit von YAQUIR auch für diesen Fall (Enderle).

Ferner wurden die YAQUIR-Ergebnisse erstmals mit Hilfe des Mikrofilmzeichengerätes der Kernforschungsanlage Jülich als Filme (Laufzeit bis zu 1,5 min für 80 msec Echtzeit) dargestellt. Wie erwartet bringt diese Art der bewegten Darstellung ein vertieftes Verständnis der physikalischen Vorgänge (Stölting).

Die Koppelung des Strukturmodells CYLDY2 mit dem Fluidmodell im Code STRUYA wurde erfolgreich durchgeführt. Es hatten sich zunächst große Schwierigkeiten ergeben, die aufgrund des raschen Erfolges mit den einfacheren, für Testzwecke benutzten Strukturmodellen (Kesselformel und Biegebalken) nicht zu erwarten waren. Folgende Probleme, die sich als Instabilitäten äußerten,

wurden gefunden und gelöst:

- a) die Struktur ist bei höheren Modes sowohl leicht wie auch schlaff (im Verhältnis zum Wasser). Daher wurde eine Unterrelaxation erforderlich.
- b) Die Struktur zeigt in der Nähe des Ringes bei bestimmten Zeitschritten ein sonderbares Verhalten: sie kommt der Last entgegen. Es ist noch ungeklärt, ob dies eine echte Struktureigenschaft oder eine Eigenschaft des CYLDY2-Modells ist. Das Verhalten führt zu monoton instabiler Rückkopplung über das Fluid. Die Instabilität wurde behoben durch Unterrelaxation im modalen Bereich mit Faktoren, die für jeden Mode gesondert berechnet werden. Diese Umstellung auf modale Unterrelaxation erbrachte in Fällen, die zuvor schon stabil waren, eine über vierfache Lösungsbeschleunigung.
- c) Das für CYLDY2 benutzte Integrationsverfahren (Superposition der statischen Lösungen und einer Menge dynamischer Lösungen der Form $\sin \omega_n t$) ergab in der Koppelung Instabilitäten. Sie wurden dadurch behoben, daß für Modes mit Frequenzen über einer Grenzfrequenz nur die statische Lösung benutzt und für darunter liegende Frequenzen die Integrationsformel (konsistent mit dem Fluidmodell) linearisiert wurde.

Ergebnisse für maximal 30 Modes (5 axiale mal 6 azimutale) bei Fluidmaschinen von maximal ca 70 mal 70 cm Größe (insgesamt 90 Maschen) erwiesen sich bei Schrittweiten bis zu 0,5 msec als stabil und kaum abhängig von Variation einiger Modellparameter wie Genauigkeitsschranken, Schrittweite etc. Dagegen war es noch nicht möglich, die Integrationsschrittweite auf 1 msec (instabile Schwingungen) zu erhöhen oder die Fluidmaschen radial zu verdoppeln (Druckiteration konvergiert nicht). Abb.4223-1 zeigt den Druckverlauf in Stutzennähe und genau gegenüber für flexiblen und starren Kernmantel (Schlechtendahl). Mit der Erstellung von Programmen für graphische Ausgabe von STRUYA-CYLDY2-Ergebnissen wurde begonnen (Katz). Für den Systemcode FLUST für geometrisch komplexe Fluidbereiche wurden alle Routinen für zweidimensionale Modelle codiert. Einige Testrechnungen (meist Stoßrohrprobleme in unterschiedlicher Modellierung) und Effektivitätsmessungen wurden erfolgreich durchgeführt (Enderle). Mit der Erstellung graphischer Ausgabeprogramme für FLUST-Ergebnisse wurde begonnen (Bechler).

Das speziell für Leichtwasserreaktoren zugeschnittene Programm FLUX zur gekoppelten Analyse der Fluid- und Strukturdynamik unter Erfassung der drei-

dimensionalen Geometrie wurde weiterentwickelt.

Die inkompressible Version, in der die virtuelle Fluid-Massenmatrix aufgrund einer Potentialströmungstheorie numerisch berechnet und damit die Eigenfrequenzen und Eigenschwingungsformen der Kernmantelstruktur bestimmt werden, wurde anhand von analytisch überprüfbaren Sonderfällen erfolgreich getestet. Solch ein Sonderfall ist der Balkenschwingungsmodus (Umfangsordnung $n=1$, axiale Ordnung $m=1$). Hierfür ergeben sich folgende virtuelle Massenanteile der einzelnen Komponenten an der gesamten schwingenden Masse:

Kernmantel-Schale	3,4%
translatorische Trägheit des Masseringes	11,8%
rotatorische Trägheit des Masseringes	0,05%
Fluid im Innenraum	8,7%
Fluid im Ringraum	76,1%

Obwohl das Innenraumvolumen wesentlich größer als das Ringraumvolumen ist, hat also das Fluid im Ringraum die größere virtuelle Masse. Dies folgt aus den geometrisch erzwungenen relativ großen Fluidbewegungen im Ringraum bei vorgegebener Strukturbewegung. Die Vorgehensweise von STRUYA, in der der Innenraum nur näherungsweise erfaßt wird, wird hierdurch als angemessen bestätigt.

Abb.4223-2a zeigt die genannte Strukturschwingung $m=1$, $n=1$ (mit stark vergrößerter Amplitude) und das zugehörige Eigendruckfeld in Form von Isobaren. Die Eigenfrequenz beträgt 9,8 Hz (20,3 Hz in Vacuum). Abb.4223-2b zeigt die Eigenschwingung für den Modus $n=5$, $m=1$ in einer anderen Ebene (35,4 Hz in Wasser, 72,3 Hz in Vacuum).

Im vergangenen halben Jahr wurde mit der Erstellung einer FLUX-Version für kompressibles Fluid begonnen. Diese Version erfaßt nach wie vor die komplette dreidimensionale Geometrie, setzt Potentialströmungen voraus und benutzt sehr effektive numerische Verfahren. Darüberhinaus wird eine endliche aber konstante Schallgeschwindigkeit des Fluids zugelassen. Die Integration der dynamischen Gleichungen in der Zeit erfolgt hier nach einem impliziten Differenzenverfahren mit einer Genauigkeit zweiter Ordnung. Die Stabilität der gekoppelten Rechnung für das linearisierte Problem (ohne kinetische Energie) konnte sowohl theoretisch als auch anhand erster Testrechnungen nachgewiesen werden. Die Nichtlinearitäten werden im nächsten Entwicklungsschritt berücksichtigt (Schumann).

Für die graphische Darstellung der FLUX-Ergebnisse wurde ein REGENT-Subsystem FLUXPLOT erstellt. Eines der ersten Ergebnisse zeigen die Abbildungen 4223.2a und b (Olbrich).

Auf dem Gebiet der Nichtgleichgewichtszweiphasenströmung wurde aufbauend auf dem SOLA-DF-Modell von Los Alamos ein eigener SOLA-DF-Code entwickelt. Erste Testrechnungen mit Stoßrohrproblemen und für das Standard-Problem $\neq 1$ wurden im Kurzzeitbereich erfolgreich durchgeführt. Im Langzeitbereich treten bei einigen Parameterkonstellationen noch Instabilitäten auf (Mösinger).

Experimente zur Überprüfung der in SOLA-DF enthaltenen Modelle sowie der dort eingehenden empirischen Parameter wurden im Detail geplant. Die Versuche werden am Wasser-Dampfkreislauf des IRB durchgeführt. Hinsichtlich der Dichtemessung stellt das LIT Erfahrung und Geräte zur Verfügung. Das Kernstück der Teststrecke besteht aus einer Düse gemäß Abb. 4223-3. In ihrem ersten Teil dominiert die Beschleunigung, in ihrem zweiten Teil die Reibung. Die Düsenform wurde aufgrund von Rechnungen ermittelt, die mit einem dem Düsenexperiment angepaßten stationären Code auf der Basis des SOLA-DF-Modelles durchgeführt wurden. Abb. 4223-3 zeigt den Einfluß der Nichtgleichgewichtsverdampfung auf den Druckverlauf (Kedziur).

Die Versuche zur Verifikation von YAQUIR mit der Flachwasseranalogie wurden abgeschlossen und ausgewertet. Die Übereinstimmung zwischen Messung und YAQUIR-Rechnung ist sehr gut. Abb. 4223-4a und b zeigen die berechnete und gemessene Bahn von Fluidpartikeln bzw. Korkstückchen. (Moussiopoulos).

Der Code CYLDY2 zur Strukturmechanik des Kernmantels wurde durch einen Modul zur Bestimmung der transienten Spannungsverteilung erweitert. An einem Testbeispiel für HDR-ähnliche Geometrie wurde CYLDY2 mit dem Finite-Elemente-Code STRUDL/DYNAL verglichen. Wie Abb. 4223-5 zeigt, stimmen die CYLDY2-Eigenfrequenzen im unteren Bereich gut mit den STRUDL/DYNAL-Ergebnissen überein. Die Bestimmung der höheren Eigenfrequenzen ist mit STRUDL/DYNAL nicht möglich (Hailfinger, Ludwig).

Der Code CYLDY2 enthält im Bereich des Balkenmodes einige als unwesentlich eingeschätzte Vereinfachungen. Inzwischen vorliegende Ergebnisse ließen jedoch die Frage aufkommen, ob gewisse unerwartete transiente Verformungen nahe am unteren Gewichtsring nicht doch von diesen Vereinfachungen herrühren. In einer geringfügig erweiterten Code-Version CYLDY3 sollen diese Vereinfachungen deswegen durch detailliertere Ansätze ersetzt werden. Vorar-

beiten hierzu wurden aufgenommen. Außerdem wurde ein Kleinversuch an einer Zylinderschale mit Endmasse zur Untersuchung dieser Problematik vorbereitet (Beutel, Ludwig).

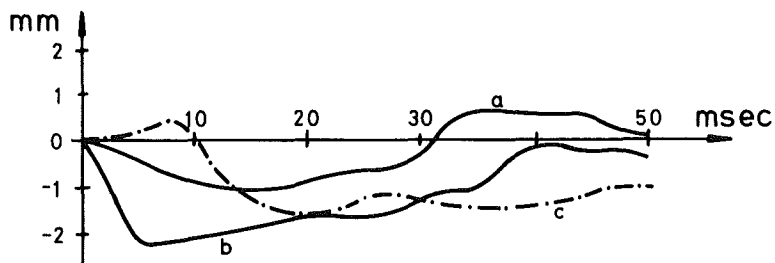
Sowohl bei den HDR-Blowdown-Versuchen als auch bei den bisher angeführten theoretischen Modellen wurde das Reaktor-Core nicht berücksichtigt. Das Innere des Kernmantels ist vielmehr ausschließlich mit Wasser gefüllt. Die hierdurch verursachten Diskrepanzen zwischen Modell und Realität sollen mit Hilfe der bereits konzipierten Laborversuche sowie unter Verwendung geeigneter theoretischer Verfahren untersucht werden. Hierfür soll der Computercode SING1 eingesetzt werden. Er basiert auf einem fortgeschrittenen Singularitätenverfahren (es sind auch die Bezeichnungen "Boundary-Integral-Equation-Method" oder "Panel-Verfahren" üblich) und erlaubt die Analyse hochtransienter, inkompressibler Potentialströmungen in weitgehend beliebiger, dreidimensionaler Geometrie. So dürfen beispielsweise dünne, beidseitig vom Fluid beaufschlagte Wände vorhanden sein. Stäbe oder Stabbündel können simuliert werden. Die Entwicklung von SING1 wurde abgeschlossen. Testrechnungen wurden erfolgreich durchgeführt. Es ergab sich, daß Druck- und Geschwindigkeitsfelder in der Nähe von Kanten sehr viel besser beschrieben werden können als bei den in der Aerodynamik bekannten Singularitätenverfahren. Eine besondere Eigenschaft der Singularitätenverfahren ist, daß das zu lösende mathematische Problem auf die Fluidränder transformiert wird. Da diese Fluidränder weitgehend mit den Flächen der umgebenden Schalen (Strukturmechanik) identisch sind, eignet sich SING1 ganz besonders zur Behandlung gekoppelter fluidstrukturmechanischer Probleme. Ein entsprechendes simultanes Integrationsverfahren wurde entwickelt und befindet sich im Teststadium (Hailfinger, Krieg).

Geplante Weiterarbeit

Beim Code STRUYA sollen die Ursachen für die festgestellten Anwendbarkeitsgrenzen lokalisiert und behoben werden. Mit FLUX werden Anwendungsrechnungen für kompressibles Fluid durchgeführt. Der Code FLUST wird zur Berechnung der HDR-Blowdownversuche (einschließlich Stützen und Innenraum) herangezogen. Für alle Codes wird die graphische Ausgabe weiterentwickelt. Die Versuche zur Nichtgleichgewichts-Zweiphasenströmung werden im Detail vorbereitet, so daß sie im ersten Halbjahr 1978 durchgeführt werden können.

Die modifizierte Code-Version CYLDY3 zur Strukturmechanik des Kernmantels wird entwickelt. Die Kleinversuche an einer Zylinderschale mit Endmasse werden durchgeführt. Erweiterungsmöglichkeiten für CYLDY2 oder CYLDY3 zur

Berücksichtigung nichtlinear elastischen Werkstoffverhaltens werden untersucht. Die Laborversuche zum Studium des Einflusses der Core-Struktur auf die Blowdown-Vorgänge werden im Detail spezifiziert. Begleitende Rechnungen erfolgen mit SING1. Die simultane Integration für gekoppelte Fluid-Struktur-dynamik-Probleme unter Verwendung von SING1 wird getestet.



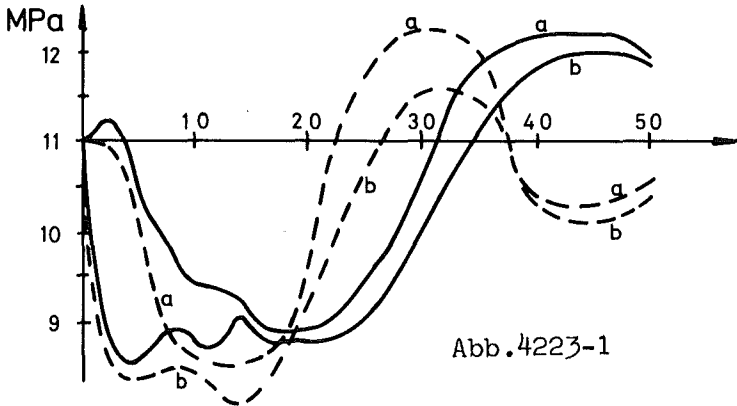
radiale Kernmantel-Verformung

+ = vom Stützen weg

a: gegenüber Stützen, ca. 60cm unter Stützen

b: Stützenseite, ca. 60cm u.St.

c: unteres Ende



Druck

a: gegenüber Stützen

b: in Stützennähe, ca. 30 cm seitwärts

— gekoppelte Fluid/Struktur-dynamik

--- starrer Kernmantel

Abb.4223-1

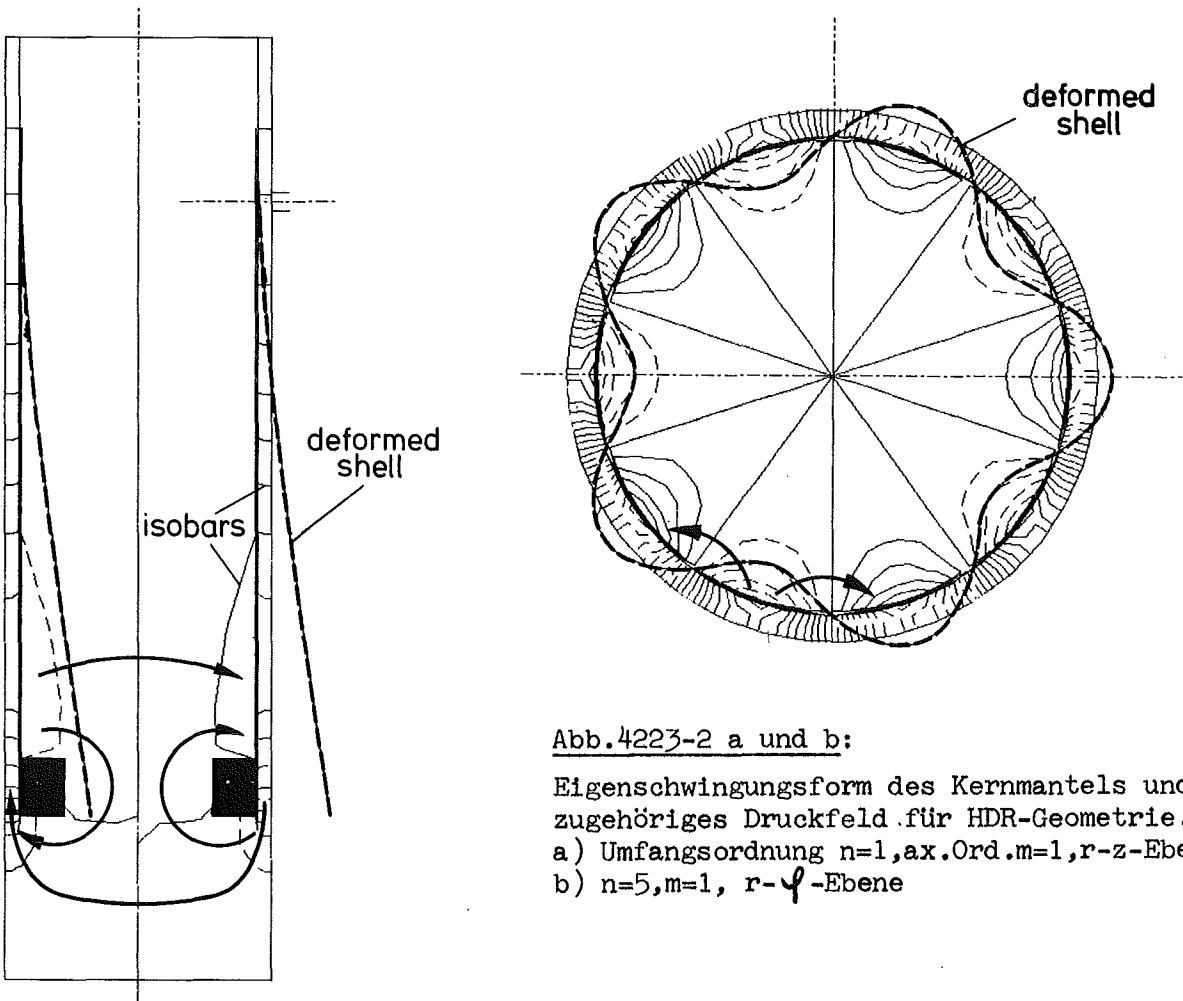


Abb.4223-2 a und b:

Eigenschwingsform des Kernmantels und zugehöriges Druckfeld für HDR-Geometrie.

a) Umfangsordnung $n=1$, ax.Ord. $m=1$, r-z-Ebene

b) $n=5, m=1$, r- φ -Ebene

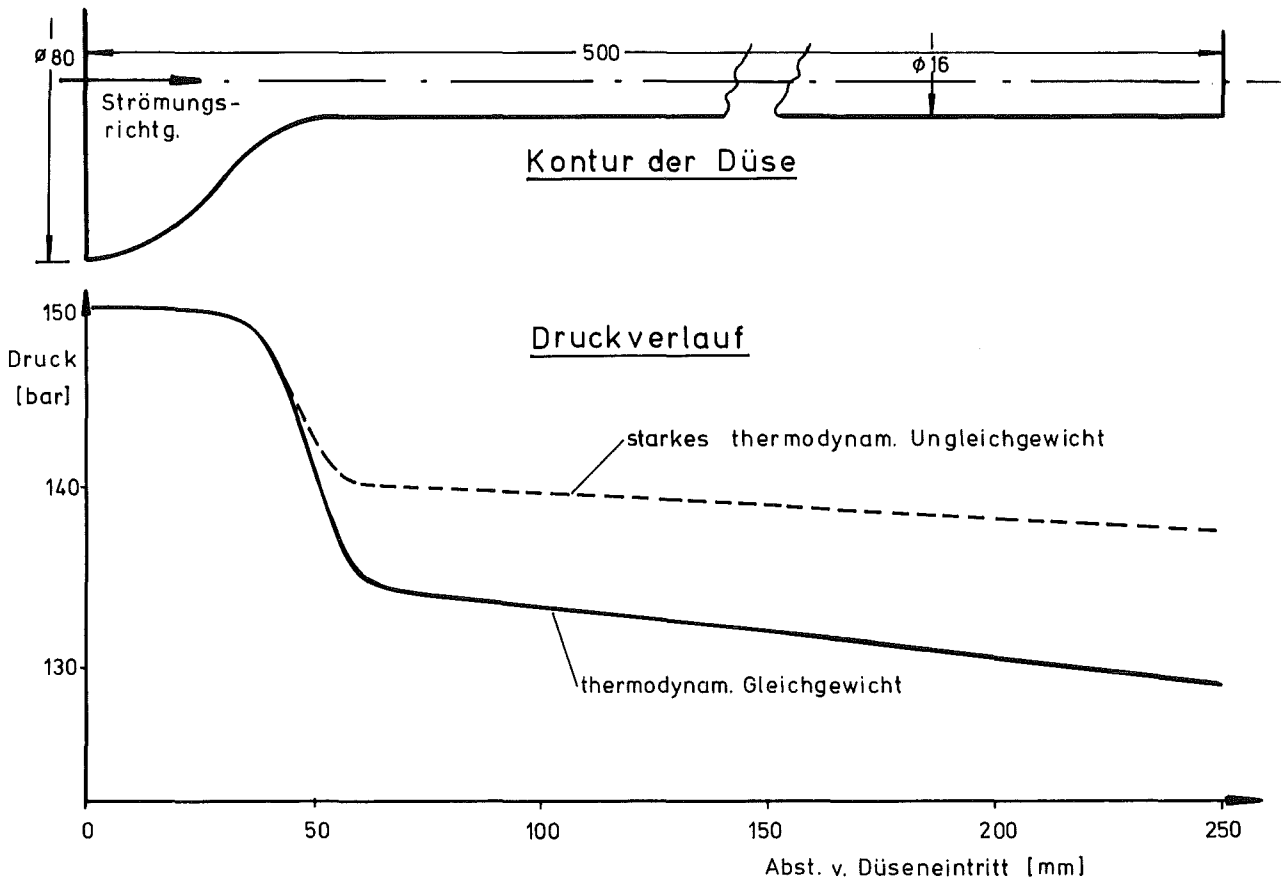
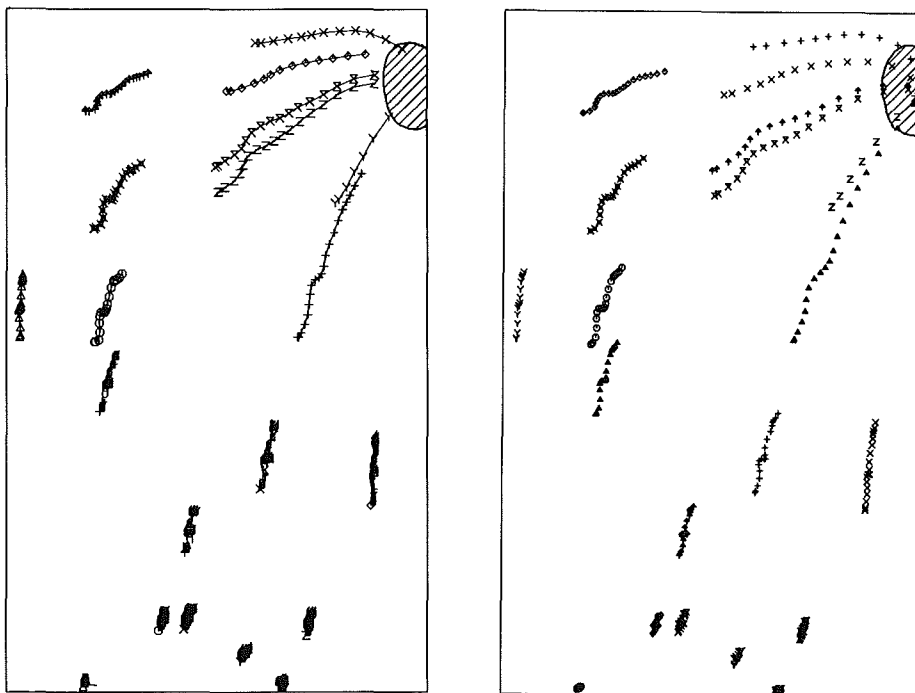


Abb.: 4223-3



GEMESSENE PARTIKELBAHNEN

PARTICLES
*** YAQUI AUSFLUSS-SIMULATION ***

Abb.: 4223-4

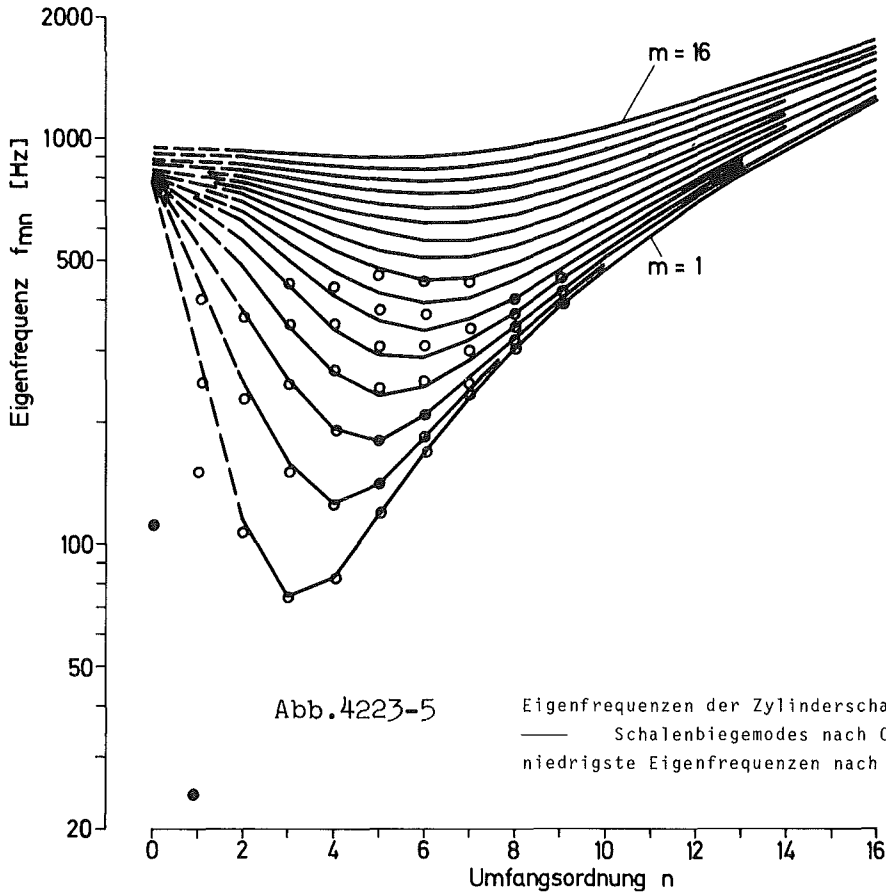


Abb. 4223-5

Eigenfrequenzen der Zylinderschale bei den Testrechnungen.
— Schalenbiegemodes nach CYLDY2 bis 2000 kHz; o 50
niedrigste Eigenfrequenzen nach STRUDL.

- 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 und Störfällen ohne Schnellabschaltung
(R. Meyder, IRE; H. Unger, IKE Stuttgart)

Die Zielsetzung der theoretischen Untersuchungen zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall von Leichtwasserreaktoren ist in KFK 1787 beschrieben. Die vorliegenden theoretischen Arbeiten werden in enger Zusammenarbeit mit dem Institut für Kernenergetik der Universität Stuttgart (IKE) durchgeführt.

Im Berichtszeitraum wurde die Verifikation von SSYST-1 weiter vorangetrieben. Parallel dazu wurden Modellverbesserungen und Weiterentwicklungen von SSYST-Moduln durchgeführt. Zur Erfassung des stationären Ausgangszustandes wurde FRAP-S an SSYST angekoppelt.

1. Verifikation von SSYST-1

Im Berichtszeitraum wurden mit SSYST drei Standard-Probleme gerechnet und mit FRAP-T-Ergebnissen verglichen: SSYST-Standard-Problem 1, das sich auf einen PNS 4238-Versuch /1/ bezieht und zwei FRAP-T-Standard-Probleme (TREAT und PCM).

1.1 Verifikationsrechnungen und Parameterstudien zu PNS 4238

Bearbeiter: M. Schindler

Im experimentellen Programm PNS 4238 /1/ wurde ein elektrisch beheizter Brennstabsimulator in Luft aufgeheizt. Da die Wärmeübergangsverhältnisse an der Staboberfläche nicht gemessen wurden, wurde diese Größe parametrisiert. Abb. 1 zeigt z.B. den Verlauf der Hüllrohrtemperatur für ver-

schiedene Wärmeübergangsbedingungen vom Brennstab an die umgebende Luft. Der Referenzkurve liegt eine mit der Temperatur von 50 auf $150 \text{ W/m}^2/\text{K}$ ansteigende Wärmeübergangszahl zugrunde. Zum Vergleich sind Wärmeleitrechnungen ohne Deformation mit festen Wärmeübergangszahlen von 100 bzw. $150 \text{ W/m}^2/\text{K}$ sowie für adiabate Aufheizung eingetragen. Der mit den Wärmeübergangsverhältnissen der Referenzkurve berechnete Temperatur- und Dehnungsverlauf wurde mit den Versuchsergebnissen verglichen. Es zeigte sich eine befriedigende Übereinstimmung.

1.2 Nachrechnung eines TREAT-Experiments mit SSYST

Bearbeiter: R. Schützle

Im Rahmen der Verifizierung von SSYST wurde das TREAT-Experiment FRF-2, ein FRAP-T-Standard-Problem, nachgerechnet. Unter Einsatz der verschiedenen Moduln wurde gleichzeitig der Einfluß einzelner Phänomene untersucht. Die Ergebnisse zeigten eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den experimentellen Daten und mit den Ergebnissen von FRAP-T.

1.3 Nachrechnung eines PCM- (Power-Cooling-Mismatch)- Experiments (FRAP-T-Standard-Problem PCM) mit SSYST

Bearbeiter: L. Ehnis, M. Mesina

Das Verhalten eines Teststabs im PBF-Reaktor (2. FRAP-T-Standard-Problem /2/) während einer Leistungsexkursion wurde mit SSYST nachgerechnet. Nach Behebung verschiedener numerischer Probleme /3/ wurde eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von FRAP-T-Rechnungen erzielt, sofern die thermohydraulischen Daten von FRAP-T übernommen wurden.

Da dieses 2. FRAP-T-Standard-Problem eine Leistungsexkursion simuliert, bei der alle während eines Blowdown auftretenden Unterkanal-Zustände durchlaufen werden, eignet es sich gut zur Überprüfung der thermodynamischen Modelle im SSYST-Modul HYDRA bzw. ZETHYD /6/.

Im Bereich der Zwangskonvektion und des Blasensiedens stimmten die Ergebnisse gut überein. Die von FRAP-T berechnete kritische Wärme-

stromdichte konnte nicht verifiziert werden. Diese Größe wurde in FRAP-T durch verschiedene Faktoren an das Experiment angepaßt. Bei entsprechender Erhöhung der Wärmeströme (\sim Leistung) konnte mit SSYST die kritische Wärmestromdichte überschritten werden. Weitere Verbesserungen im Bereich der Wärmeübergangszahlen und kritischen Wärmestromdichten sind notwendig.

1.4 Rechnungen zur Thermo- und Fluidodynamik der Blowdown-Phase

Bearbeiter: W. Sengpiel

Bisherige Rechnungen mit der im PNS (GfK) eingesetzten Version RELAP4- mod 2(17) haben gezeigt, daß die Anfangsphase eines Blowdown bis zum Erreichen des Sättigungsdruckes aufgrund eines unzureichenden Modells für kritische Strömung im unterkühlten Bereich schlecht simuliert wurde. Vergleiche von Rechenergebnissen zum Blowdown eines 1300 MW_{e1} - DWR mit Ergebnissen der GRS und der KWU sowie ein Vergleich mit experimentellen Daten im Rahmen der Nachrechnungen des Standardproblems 2 (Semiscale), ergaben, daß die Leckmassenströme während der unterkühlten Blowdown-Phase zu stark "gechoked" wurden. Das hat bisher bei den Rechnungen für die Blowdown-Phase eines großen DWR dazu geführt, daß die für die Anfangsphase des Blowdown (ca. 1.5 sec) charakteristische Strömungsumkehr im Core nur wenig ausgeprägt war. Deshalb sind die Leckraten in der unterkühlten Anfangsphase nur mit dem Impulsatz berechnet worden. Das führte jedoch zu starken numerisch bedingten Oszillationen der Leckmassenströme, die nur bei Wahl sehr kleiner Rechenzeitschritte ($\sim 10^{-6}$ sec) nicht zum Rechenabbruch führten. Aus den genannten Gründen ist in RELAP4- mod 2(17) eine Tafel für kritische Strömung im unterkühlten Bereich nach dem extrapolierten Modell von Henry eingebracht worden, die RELAP4- mod 5 entnommen wurde. Rechnungen mit diesem Modell ergeben zufriedenstellende Übereinstimmungen im Core-Massenstromverlauf mit bekannten Ergebnissen der Genehmigungsbehörden. Darüberhinaus ist in der best estimate-ähnlichen Version RELAP4- mod 2(17) eine Option für den Wärmeübergang Brennstaboberfläche-Kühlmittel eingebracht worden, die es gestattet,

- a) den DNB-Zeitpunkt in den Corezonen festzulegen,
- b) das Wärmeübergangsmodell nach DNB auf die Korrelation für Film-

sieden von Groeneveld /11/ und für niedrige Drücke von Dougall-Rohsenow /12/ zu beschränken. (kein Rücksprung nach pre-DNB-Korrektur, entsprechend konservativen Genehmigungsrechnungen).

Mit folgenden charakteristischen Daten (Optionen) ist mit RELAP4- mod 2(17) eine Heißstabanalyse für den Blowdown eines 1300 MW_{e1} - DWR durchgeführt worden:

- 2F-Bruch im kalten Strang (zwischen Druckbehälter und Pumpe)
- Moody-Faktor: 1
- $F_{xy} = 1.35$, $F_{axial} = 1.60$, $F_q = 2.16$
cos-förmiges Leistungsprofil, 106 % Anfangsleistung
- kritische Strömung im unterkühlten Bereich mit extrapoliertem Henry-Modell, kritische Strömung im gesättigten Bereich nach Moody
- nach berechnetem DNB-Zeitpunkt kein Rücksprung in pre-DNB-WUE-Modelle (Filmsieden nach Groeneveld bzw. Dougall-Rohsenow)

Einige der charakteristischen Ergebnisse zeigen die Bilder 3 bis 7.

2. Berechnung des stationären Zustands

2.1 Berechnung des stationären Anfangszustandes mit FRAP-S

Bearbeiter: M. Mesina

Zur Berechnung des Brennstab-Anfangszustandes als Ausgang für die transiente Rechnung unter Berücksichtigung der Abbrand-Geschichte existieren einige Programme, von denen lediglich das am INEL entwickelte Programm FRAP-S innerhalb von PNS verfügbar ist /4/. Um dessen Leistungsfähigkeit zu testen, wurden mehrere Vergleichsrechnungen durchgeführt (siehe z.B. auch /5/, IFA 226, EPRI-CASE D, Phase II).

Die Nachrechnung eines von der KWU spezifizierten Testbeispiels, das einen Vergleich der Programme FRAP-S und CARO /10/ ermöglichen soll, machte eine Erweiterung der Zahl der möglichen axialen Leistungsprofile in der verwendeten FRAP-S-Version von 5 auf 18 erforderlich. Erste Vergleichsrechnungen lassen eine befriedigende Übereinstimmung erwarten.

2.2 Anschluß des Rechenprogramms FRAP-S an SSYST

Bearbeiter: W. Gulden

Bei den innerhalb von PNS entwickelten SSYST-Moduln wurde davon ausgegangen, daß der stationäre Brennstabzustand (z.B. Temperaturverteilung, Brennstabgeometrie einschließlich Spaltbreite usw.) unmittelbar vor dem zu betrachtenden postulierten Störfall bekannt ist; die in SSYST enthaltenen Modelle beziehen sich primär auf schnell ablaufende transiente Vorgänge.

Trotzdem ist es möglich, mit den vorhandenen Moduln näherungsweise den stationären Ausgangszustand eines Brennstabes zu berechnen, jedoch ohne Berücksichtigung abbrandabhängiger Effekte, wie z.B. "Relocation" oder "Cracking".

Seit einiger Zeit steht innerhalb von PNS das Rechenprogramm FRAP-S /4/ zur Verfügung, das eine detaillierte Berechnung des Brennstabzustandes während des normalen Reaktorbetriebes als Funktion z.B. des Betriebszustandes und der Leistungsgeschichte erlaubt und damit einen genauen Ausgangszustand für das transiente Störfallverhalten liefert.

Um nun dem SSYST-Anwender, der den Brennstab-Ausgangszustand mit FRAP-S rechnen möchte, die Erstellung der SSYST-Eingabe für die transiente Rechnung so weit wie möglich zu vereinfachen, wurde FRAP-S an SSYST unter Verwendung des "FRAP-S - FRAP-T - Link" - Datenfiles lose gekoppelt.

Zwei Hilfsmoduln, FRAPDR und FRASSY, die im Anschluß an eine FRAP-S-Rechnung aufzurufen sind, übernehmen automatisch alle diejenigen Ergebnisdaten, die von SSYST als Eingabedaten benötigt werden. Der Modul FRAPDR schreibt alle wichtigen FRAP-S-Ergebnisdaten als SSYST-Datenblöcke auf die zentrale Datei, so daß sie mit der vorhandenen Software ausgedruckt und geplottet werden können. Der Modul FRASSY bildet diese Daten auf die für die transiente SSYST-Rechnung gewünschte Brennstabgeometrie ab.

Diese lose Kopplungsart über Hilfsmoduln wurde aus zwei Gründen gewählt:

- FRAP-S konnte ohne Änderung übernommen werden und läuft nach wie vor als separates Programm.
- Falls gleichwertige Stationärcodes verfügbar werden sollten, wurde hier die entsprechende Datenschnittstelle bereits definiert. Bei einer Kopplung kann analog vorgegangen werden: Entweder Schreiben eines identisch aufgebauten Datenfiles vom zu koppelnden Programm oder Programmieren eines Hilfsmoduls, der ähnlich aufgebaut ist wie FRAPDR.

3. Modellverbesserungen

3.1 Verbesserung der Berechnung des transienten Spaltgasdrucks

Bearbeiter: M. Schindler

Im Modul ODRUSPA /6/ zur Berechnung des Drucks im Gasspalt wird ein nichtlineares Gleichungssystem für die drei unbekannt Drücke in der Beule, dem oberen und dem unteren Plenum iterativ gelöst. Besonders bei großen Zeitschritten traten bei dem bisher verwendeten Lösungsverfahren gelegentlich Instabilitäten auf.

Die grundlegenden Gleichungen wurden deshalb so umformuliert, daß ein Iterationsverfahren zweiter Ordnung ermöglicht wurde, das für einfache Nullstellen immer konvergiert.

3.2 Berechnung der Wärmeübergangszahl im Gasspalt

Bearbeiter: L. Ehnis

Beim Vergleich von FRAP-T- und SSYST-Rechnungen hat sich der große Einfluß der Wärmeübergangszahl im Gasspalt wiederholt gezeigt /7/. Um diesen Einfluß bei der Verifikation von anderen Modellen auszuschalten, wurde ein Modul erstellt, der, entsprechend den SSYST-Konventionen, die Wärmeübergangszahl im Gasspalt nach Mc Donald-Broughton berechnet /8/.

4. Weiterentwicklung von SSYST

4.1 Der Deformationsmodul STADEF2

Bearbeiter: M. Schindler

Durch Einbau einer modulinternen Zeitsteuerung, die den erforderlichen Stabilitätsbedingungen Rechnung trägt, konnten die Entwicklungsarbeiten am Deformationsmodul für SSYST2 /9/ vorläufig abgeschlossen werden.

4.2 Weiterentwicklung des Flutmoduls ZETHYF

Bearbeiter: R. Schützle

Im Berichtszeitraum wurde für ZETHYF eine Logik zur Bestimmung von Wärmeübergangskoeffizienten in den verschiedenen Strömungsbereichen entwickelt. Für den Wärmeübergang werden darin folgende Modelle unterschieden:

- Laminare bzw. turbulente Konvektion an Wasser bzw. Dampf
- Unterkühltes bzw. gesättigtes Blasensieden
- Übergangssieden
- Filmsieden
- Filmsieden bei Tropfenströmung

Die Wärmeübergangskoeffizienten werden bei der aktuellen Wandtemperatur bestimmt, d.h. Wandtemperatur und Wärmeübergang müssen iteriert werden. Wichtig ist dies insbesondere für den Wechsel von Übergangssieden in Blasensieden, da beim Blasensieden eine starke Temperaturabhängigkeit besteht.

Nach dem Einbau des Wärmeübergangsmodells in das Programm ergab sich die Notwendigkeit, das Fortschreiten des Wasserspiegels vorzuschätzen, um den Kühlmittelzustand für den Wärmeübergang richtig zu definieren. Dies wurde realisiert durch Einschleusen einer Front kalten Notkühlwassers an der Kernunterkante und entsprechendem Anstieg des Wasserspiegels sowie der Anpassung der Enthalpieverteilung. Nach Berechnung des neuen Kühlmittelzustandes wird der richtige Wasser-

spiegel ermittelt, der sich infolge von Dichteunterschieden geringfügig unterscheiden kann.

Erste Testrechnungen im Berichtszeitraum ergaben zufriedenstellende Ergebnisse.

4.3 Bereitstellung von Wasser-Dampf-Stoffwerten

Bearbeiter: R. Schützle

Da die Hydraulikmoduln in SSYST die Zustandsgrößen von Wasser sowie einige Stoffgrößen benötigen, erschien es zweckmäßig, für alle Moduln denselben Datensatz und dieselben Aufbereitungsmoduln einzusetzen. Als Basis dienten die in RELAP3 benutzten Dampftafeln mit den zugehörigen Unterprogrammen sowie für einige Stoffwerte das Programm TAF aus WAK.

Die Unterprogramme werden auf der Bibliothek zentral bereitgestellt und können von jedem Modul aufgerufen werden.

Eine weitere Version steht als Modul zur Verfügung und ermöglicht die Berechnung einzelner Stoffwerte.

4.4 Datenaufbereitung (Modul ZWERG)

Bearbeiter: M. Schindler

Der Modul ZWERG zur Aufbereitung von Zwischenergebnissen wurde für SSYST2 überarbeitet, um die Definition der aufzubauenden Datenblöcke flexibler handhaben zu können und die Eingabe benutzerfreundlicher zu machen.

4.5 Arbeiten zur Aufstellung eines Zry-Hüllrohrmaterialmodells

Bearbeiter: S. Raff

4.5.1 Organisation der Datenbasis

Ziel der Arbeiten ist ein Materialmodell, das im Rahmen der Hüllrohrmodellvorstellungen von SSYST in der Lage ist, das Werkstoffverhalten quantitativ zu beschreiben. Als Grundlage für die Datenanalyse, Modell-

synthese und Modellverifizierung wurde eine Datenbibliothek auf der EDV-Anlage organisiert. In ihr werden Versuchsdaten für das Dehn- und Bruchverhalten von Zircaloy abgespeichert.

Dadurch wird

- 1.) ein schneller Zugriff für Modellanalyse, Modellsynthese und Modellverifizierung auf unterschiedliche Versuchsdaten, sowie
- 2.) die Möglichkeit zu statistischen Auswertungen bezüglich der Streuung der Versuchsdaten

gegeben.

Im Einzelnen werden folgende Datentypen aufgenommen:

Zugversuche
Kriechversuche
Rohrberstversuche.

Das Auffüllen der Bibliothek wurde mit eindimensionalen Zugversuchen begonnen, die zunächst in erster Linie zur Aufstellung des Materialmodells herangezogen werden sollen.

4.5.2 Auswerteprogramme

Sowohl zur Datenkontrolle als auch zur Weiterverarbeitung der Daten ist es von großem Vorteil die Ausgangs- und Ergebnisdaten in Diagrammen automatisiert graphisch darstellen zu können. Deshalb wurden zur Datenverwaltung, - Kontrolle und -Auswertung Rechenprogramme aufgestellt, die eine graphische Datenausgabe ermöglichen. So ist es z.B. bei der Modellverifizierung möglich, Daten des Experimentes und der Modellvorhersage in einem Diagramm zum direkten Vergleich darzustellen.

4.5.3 Analyse von Zugversuchsdaten

Die Materialmodellentwicklung soll sich zunächst zur Erfassung der wesentlichen Verformungsmechanismen auf die relativ einfachen und gut parametrierbaren Zugversuche an Flachzugproben abstützen.

Zur Zeit sind in der Datenbank ca. 150 Versuche des IMF (GfK) (PNS 4235) an Flachzugproben abgelegt (Atmosphäre: Luft und Vakuum; Winkel zur Walzrichtung: 0 Grad, Versuchsparameter: Temperatur, Maschinengeschwindigkeit; Dehngeschwindigkeitsbereich: $10^{-4} \leq \dot{\epsilon} \leq 3 \cdot 10^1$; Temperaturbereich: 600-1100 °C). Diese Versuchsdaten wurden unter der Annahme der Gleichmaßdehnung in einem $\ln\sigma/\ln\dot{\epsilon}$ - Diagramm dargestellt.

Eine qualitative optische Analyse ergibt dabei folgendes Bild:

- sowohl die Versuche in Luft, als auch die in Vakuum liegen wenigstens zu Beginn der plastischen Verformung auf Nortongeraden mit temperaturabhängiger Steigung (d.h. der Spannungsexponent beim Verformungsbeginn ist unabhängig von der Dehngeschwindigkeit).
- Versuche in Luft:
größere Teile des Sekundärbereichs liegen auf der Nortongeraden bei Temperaturen $\leq 700^\circ\text{C}$ im gesamten Dehngeschwindigkeitsbereich, sowie bei ca. 900°C (Phasenumwandlungsbereich) bei Dehngeschwindigkeiten $\dot{\epsilon} < 10^{-3}$ 1/s. Die restlichen Versuche fallen nach Verformungsbeginn im Vergleich zur Nortongeraden steiler ab. Mit wachsender Temperatur (und damit auch größerer Oxidschichtstärke) kommt es dabei zu einem Spannungseinbruch und anschließender Stabilisierung vor dem Einschnürbereich.
- Versuche in Vakuum:
Bei Temperaturen $\leq 900^\circ\text{C}$ ergibt sich ein ähnliches Bild wie bei den Versuchen in Luft. Die Streuung der Meßwerte ist in diesem Bereich jedoch größer. Ab Temperaturen $\geq 1000^\circ\text{C}$ sind die Meßkurven im gesamten Sekundärbereich mit einer Nortongeraden darstellbar.
- Unterschiede zwischen Versuchen in Luft und Vakuum:
Im α - Bereich unterhalb 750°C ist die Bruchdehnung in Luft deutlich größer als in Vakuum. Im β - Bereich ist die Bruchdehnung in Vakuum deutlich größer als in Luft. Im Phasenum-

wandlungsbereich sind die Enddehnungen etwa gleich.

Das Spannungsniveau wächst bei den Versuchen in Luft relativ zu den Vakuumversuchen mit wachsender Temperatur (wachsender Einfluß der Oxidation).

Die Abgrenzung zwischen Sekundär- und Tertiärbereich (Einschnürbereich) ist in Luft wesentlich ausgeprägter.

Die Nortonexponenten in Vakuum sind kleiner als in Luft.

Die Abb. 8 und 9 zeigen den Vergleich der Zugversuche in Vakuum und Luft. Spannung (SIGW) und Dehngeschwindigkeit (EPSPW) wurden unter der Annahme der Gleichmaßdehnung aus den Meßwerten bestimmt. Die Kurven werden von rechts nach links durchlaufen: elastischer Anstieg, Sekundärbereich, rascher Abfall im Tertiärbereich.

Für die Modellentwicklung ergeben sich daraus folgende Konsequenzen:

- a.) Der Verformungsbeginn (d.h. bis zum Erreichen der Maximalspannung) kann im gesamten Temperatur- und Dehngeschwindigkeitsbereich mit einem Nortonansatz beschrieben werden, dessen Parameter Funktionen der Temperatur und der oxidativen Durchdringung, nicht aber der Verformungsgeschwindigkeit sind.
- b.) Der weitere Verlauf ist sowohl von der Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$, als auch der Verformung ϵ abhängig. Inwieweit dabei die Effekte der Nichtgleichmaßdehnung (Einschnürung) oder die infolge der Verformung sich ändernden Verformungsmechanismen ausschlaggebend sind, ist noch unklar.
- c.) Die festhaftende dünne Oxidhaut ($\leq 10 \mu\text{m}$) wirkt im α -Bereich durch eine Behinderung der makroskopischen Einschnürung stabilisierend, so daß durch eine gleichmäßigere Dehnung des duktilen Probenkerns größere Endverformungen im Vergleich zu Vakuumversuchen erreicht werden. Größere Oxidschichtstärken, beim vorliegenden Versuchsmaterial bei Temperaturen über 900°C gegeben, wirken versprödend. Bezüglich des Oxidationsgrades ist das vorliegende Versuchsmaterial über 950°C nicht LOCA-typisch, da bedingt durch die Versuchsführung die Oxidationszeit zu groß ist.

Das Ergebnis einer ersten quantitativen Analyse bezüglich der Spannungsexponenten für die Maximalspannung in der Spannungsdehnungskurve (für den Nortonsatz $\dot{\epsilon} = \kappa \sigma^n$) ist in Abb.10 dargestellt. Bereits ab Temperaturen von 750°C fällt der Exponent n in Luft von $n \approx 8$ bis auf $n \approx 4$ bei 900°C ab. Für Versuche in Luft steigt er dann infolge der starken Oxidation steil an. Die Werte der Vakuumversuche, die bis 900°C etwas unterhalb derjenigen in Luft verlaufen, fallen im β -Gebiet mit geringer Steigung weiterhin ab.

4.5.4 Verifizierung der Werkstoffkoeffizienten aus Zugversuchen an Rohrzeitstandversuchen

Bereits im Halbjahresbericht 76/2 wurde über die Nachrechnung eines Berstversuches (PNS 4238) berichtet. Eine Nachrechnung von Zeitstandrohrversuchen der KWU mit denselben Koeffizienten war ebenfalls zufriedenstellend (Abb. 11). Dies zeigt, daß zumindest in diesem Temperaturbereich, eine Übertragung der aus Zugversuchen gewonnenen Stoffdaten auf Verformungen am Rohr möglich ist.

4.6 Statistik des Brennstabverhaltens

Bearbeiter: W. Sengpiel

Die Arbeiten konzentrierten sich auf die Bereitstellung von Programmen zur Durchführung und Auswertung von Simulationsexperimenten im Rahmen von "Response Surface"-Analysen. Das Ziel der Arbeiten zur Statistik des Brennstabverhaltens unter den Bedingungen eines LOCA ist im PNS-Halbjahresbericht 2/76 beschrieben worden.

Für die Durchführung von "Response Surface"-Analysen an zunächst zwei Testbeispielen, anhand derer das Vorgehen einer statistischen Analyse zur Berechnung von Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen einer Antwortgröße als Funktion der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen der Input-Variablen konsequent durchgeführt werden soll, sind Rechenprogramme für das "experimental design" und für Regressionsanalysen erstellt worden.

4.6.1 "Experimental Design"

Als "experimental design" ist das sogenannte "Hypercube Sampling" gewählt worden, das Conover in /14/ beschrieben hat. Es hat als randomes Verfahren den Vorteil, daß die Häufigkeitsverteilungen der Input-Variablen berücksichtigt werden, d.h. daß die Dichte der Punkte auf der "Response Surface" die statistische Verteilung der Antwortfunktion charakterisiert (um so besser, je größer die Zahl der Simulationen ist).

Zusätzlich zur randomen Auswahl von Kombinationen von Input-Variablen können vom Programmbenutzer selbst Input-Vektoren zusammengestellt werden, z.B. dann, wenn begrenzte Unterbereiche der "Response Surface" durch zusätzliche Experimente genauer erfaßt werden müssen.

4.6.2 Regressionsanalyse - Programm

Es ist ein Regressionsanalyse-Programm auf der Basis eines von Efrogmson /15/ vorgeschlagenen Verfahrens für eine multiple schrittweise lineare Regressionsanalyse erstellt worden. Bei diesem Verfahren werden nach jedem Schritt statistische Informationen gewonnen, mit deren Hilfe nacheinander signifikante Variable in die Regressionsgleichung aufgenommen bzw. nicht-signifikante entfernt werden, so daß schrittweise die größtmögliche Verbesserung der Approximation (im Sinne der kleinsten Fehlerquadratsumme) bewirkt wird. So enthält die Schlußregression schließlich nur noch signifikante Variable.

Es ist vorteilhaft, anstelle eines globalen Fit, der den ganzen Gültigkeitsbereich der zu approximierenden Funktion auf der "Response Surface" umfaßt, lokal über Teilbereiche der "Response Surface" zu approximieren. Dieses Vorgehen verspricht eine Steigerung der Qualität der Approximation bei insgesamt weniger Simulationen. Grundsätzliche Aufgabe dabei ist es, eine Einteilung der gesamten "Response Surface" in Teilbereiche derart zu finden, daß innerhalb der Teilbereiche die unbekannte, im allgemeinen nicht lineare, Systemantwort durch einfache Funktionen approximiert werden kann. Das heißt, auf der Basis einer "Response Surface"

$y_i = y_i(x_1^i, x_2^i, \dots, x_k^i)$, $i=1, \dots, n$, mit den n Input-Datenvektoren $(x_1^i, \dots, x_k^i)_{i=1 \dots n}$ soll eine optimale Einteilung des Input-Raumes in r Unterräume B_1, \dots, B_r gefunden werden, zu denen r sich nicht überlappende Teilapproximationen F_1, \dots, F_r auf der "Response Surface" gehören. Dann ist die Systemantwort darstellbar als

$$F(x_1, \dots, x_k) = F(\bar{x}) = \sum_{j=1}^r \epsilon_j \cdot F_j(\bar{x})$$

$$\epsilon_j = \begin{cases} 1, & \text{wenn } \bar{x} \in B_j \\ 0, & \text{wenn } \bar{x} \notin B_j \end{cases}$$

Die Teilapproximationen $F_j(\bar{x})$ werden über Regressionsanalysen mit (im allgemeinen) Polynomansätzen der Form

$$F_j(\bar{x}) = a_j^0 + \sum_{i=1}^k a_j^i x_i + \sum_{i=k+1}^p a_j^i x_1 x_m \quad \begin{matrix} l=1 \dots k \\ m=1 \dots k \end{matrix} +$$

(+ höhere Glieder)

gewonnen.

Über die Vorgehensweise bei der automatischen Klassifizierung von Unterräumen B_j innerhalb des Raumes der Input-Variablen und damit von Teilbereichen auf der "Response Surface" mit Hilfe von Methoden des "Pattern Recognition" berichtet Dorofeyuk /16/.

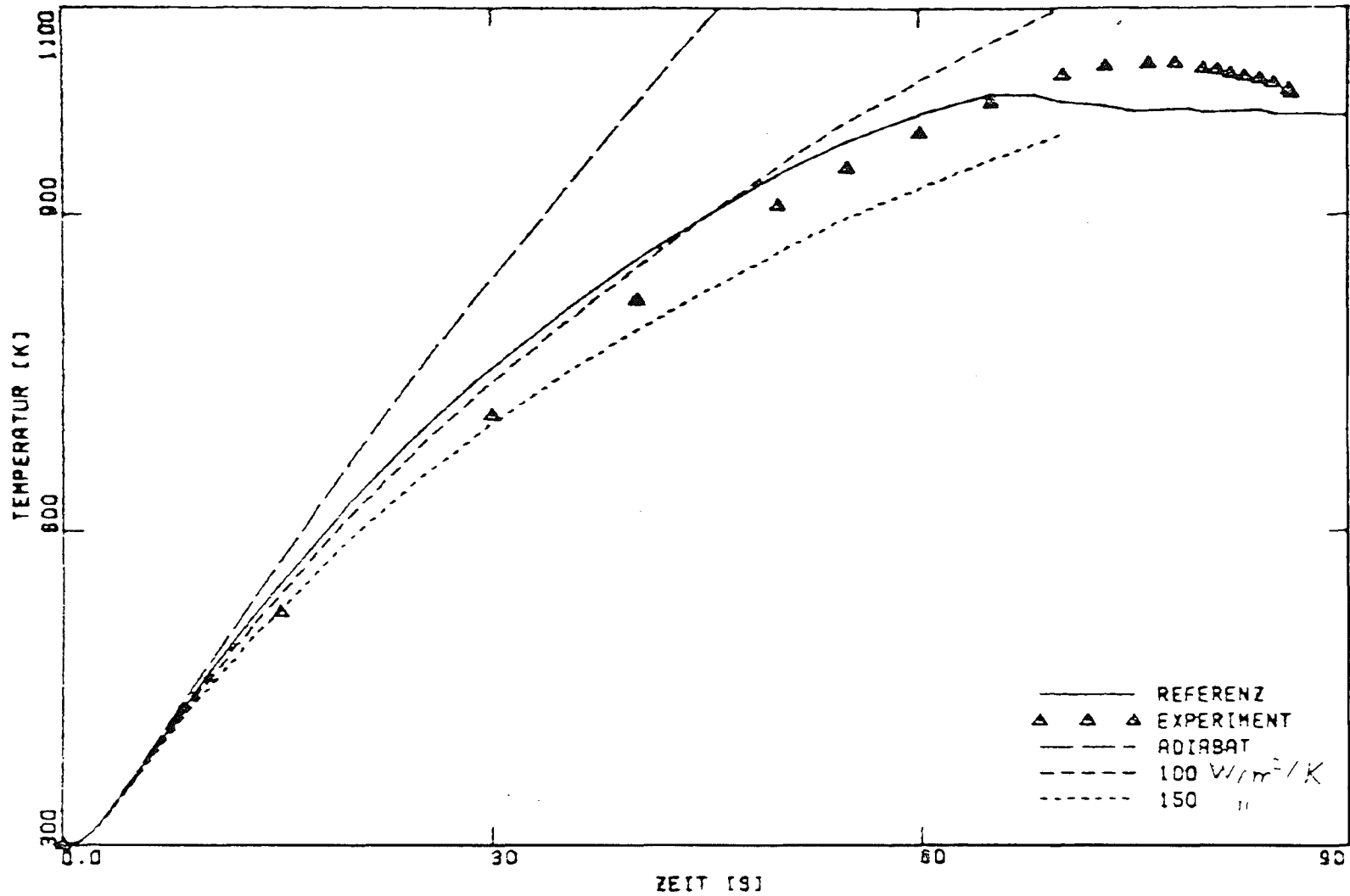
Zur Zeit werden "Response Surface"-Analysen mit lokalen Approximationen an zwei Testbeispielen mit 2 bzw. 7 Input-Variablen durchgeführt. Über die Ergebnisse wird in PNS-Halbjahresbericht 2/77 berichtet werden.

Literatur

- /1/ Erbacher, F., H.J. Neitzel, M. Reimann, K. Wiehr:
Out-of-pile Experiments on Ballooning in Zircaloy Fuel
Rod Claddings in the Low Pressure Phase of a Loss-of-
Coolant Accident
Specialist's Meeting on the Behaviour of Water Reactor
Fuel Elements Under Accident Conditions, Spatind, Nord-
Torpa (Norway), Sept. 1976
- /2/ Dearian, J.A.:
Transmittal of Standard Problems to Germany
Technische Notiz (unveröffentlicht)
- /3/ Bericht über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit
der GfK für den Zeitraum Januar bis März 1977
Institut für Kerntechnik und Energiewandlung e.V.,
Stuttgart, April 1977 (unveröffentlicht)
- /4/ Dearian, J.A. et al.:
FRAP-S, A Computer Code for the Steady-State Analysis
of Oxide Fuel Rods
INEL, Interim Report, I-309-13.1
- /5/ Broughton, J.M. et al.:
Comparison of Results from the Steady-State Fuel Behaviour
Codes GAPCON-THERMAL, LIFE-LW and FRAP-S
Workshop on Code Verification - Fuel Behaviour Research
Fourth Water Reactor Safety Research Inf. Meeting,
Washington, D.C., Sept. 1976
- /6/ Gulden, W. et al.:
Dokumentation von SSYST-1. Ein Programm zur Berechnung
des Brennstabverhaltens bei einem Kühlmittelverlust-
unfall
KFK Bericht in Vorbereitung

- /7/ Gulden, W., Ehnis, L., Mesina, M. et al.:
Synopsis of the Basic Models Implemented in the Fuel Rod
Behaviour Codes FRAP-T and SSYST
Spatind, 1976
- /8/ Mac Donald, P.E., Thompson, L.E.:
MATPRO - A Handbook of Material Properties for Use in the
Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behaviour
ANCR-1263, NRC-5, 1976
- /9/ Bericht über Arbeiten zum Projekt Nukleare Sicherheit der
GfK für den Zeitraum Juli bis September 1976
Institut für Kerntechnik und Energiewandlung e.V.,
Stuttgart, (Oktober 1976) unveröffentlicht
- /10/ Private Mitteilung von Eberle/KWU an GfK, Dez.1976
- /11/ Groeneveld, D.C.:
An Investigation of Heat Transfer in the Liquid De-
ficient Regime
AECL-3281, Revised August 1969
- /12/ Dougall, R.S., Rohsenow, W.M.:
Film-Boiling on the Inside of Vertical Tubes with
Upward Flow of the Fluid at Low Qualities
MIT-TR-9079-26 (1963)
- /13/ Weidinger, H.G., Cheliotis, G.:
LOCA Fuel Rod Behaviour of KWU-Pressurized Water
Reactors
CSNI-Meeting Spatind 1976
- /14/ McKay, M.D., Conover, W.J., Whiteman, D.E.:
Report on the Application of Statistical Techniques
to the Analyses of Computer Codes
LA-6479-MS (1976)

- /15/ Efroimson, M.A.:
Multiple Regression Analysis
In A. Ralston und M.S. Wilf: Mathematical Methods
for Digital Computers; page 191
John Wiley & Sons, 1965
- /16/ Dorofeyuk, A.A. et al.:
Use of the Criterion of Statistical Equivalence
of Models in a Piecewise Approximation Problem
Automation and Remote Control, Vol. 37, No. 7/2 (1976)



PNS 42238 HUELLROHRTEMPERATUREN

Abb. 4231-1: Zeitlicher Verlauf der errechneten Hüllrohrtemperaturen bei verschiedenen Wärmeübergangsbedingungen und Vergleich mit dem Experiment

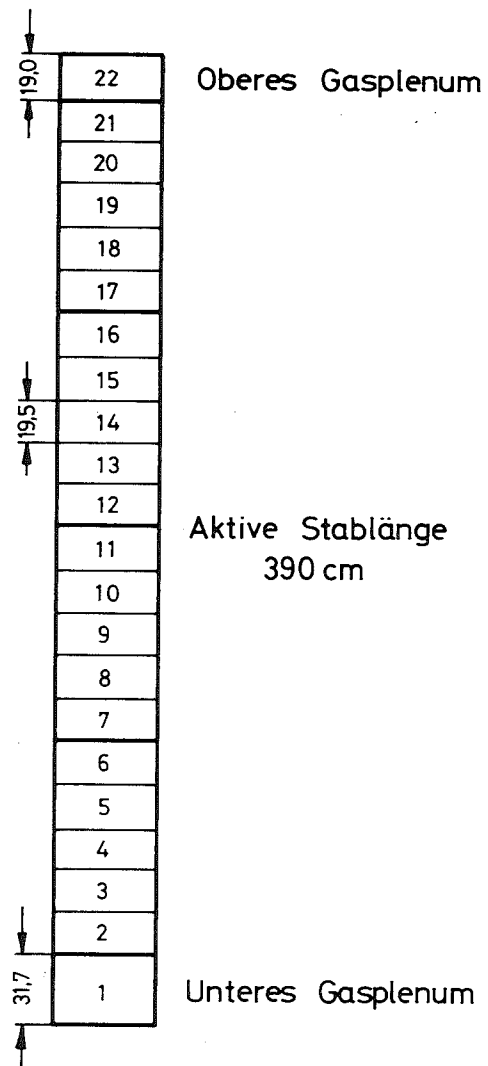
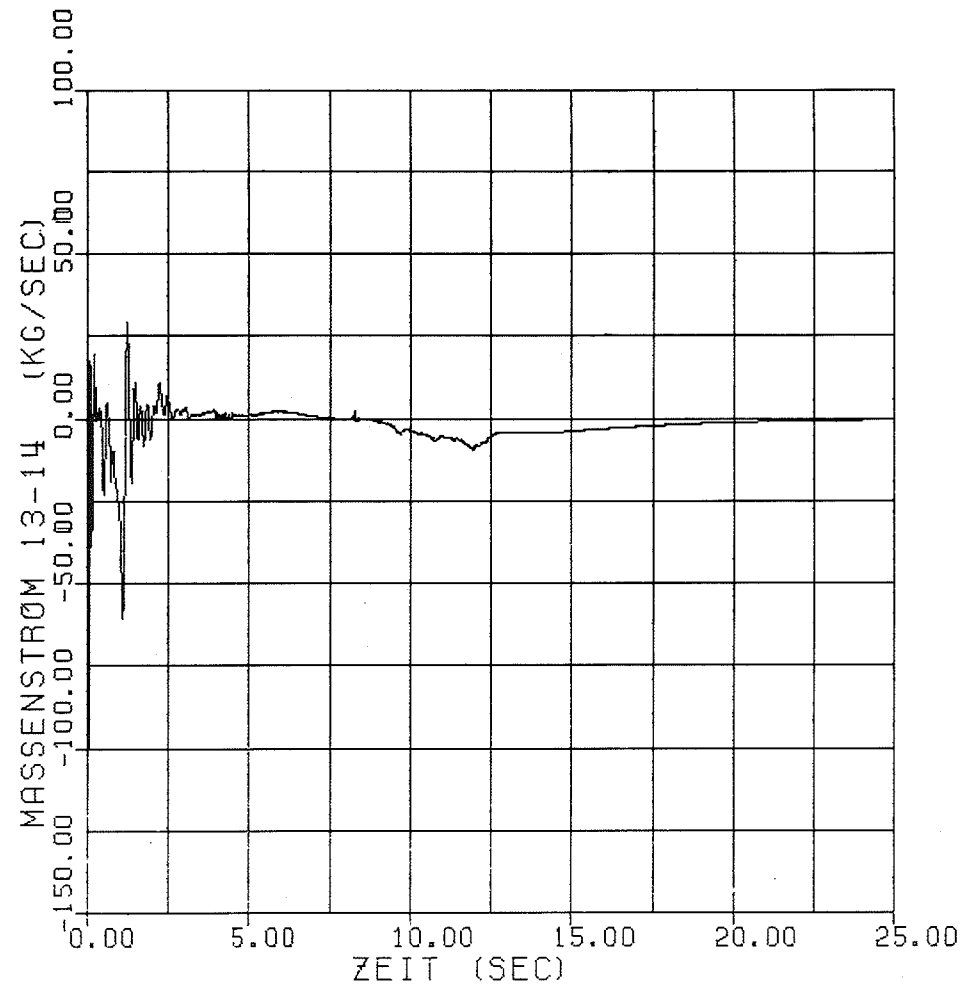
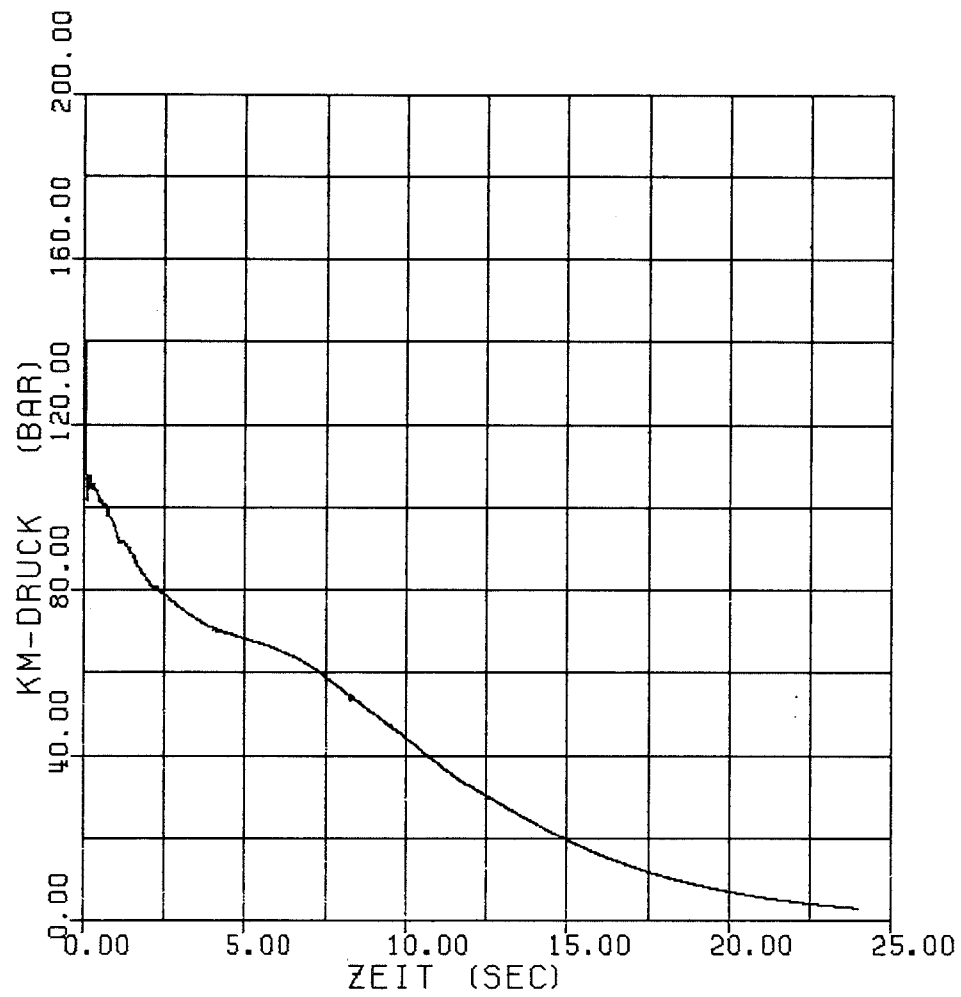


Abb. 4231-2: Schema der Einteilung des betrachteten DWR-Heißstabes in Kontrollzonen



HOT ROD FAX=1.60, FRAD=1.35

Abb. 4231-3: Verlauf des Kühlmittel-Massenstromes zwischen den Zonen 13 und 14 während des Blowdown



HOT ROD FAX=1.60,FRAD=1.35

Abb. 4231-4: Verlauf des Kühlmittel-Druckes
in Zone 14

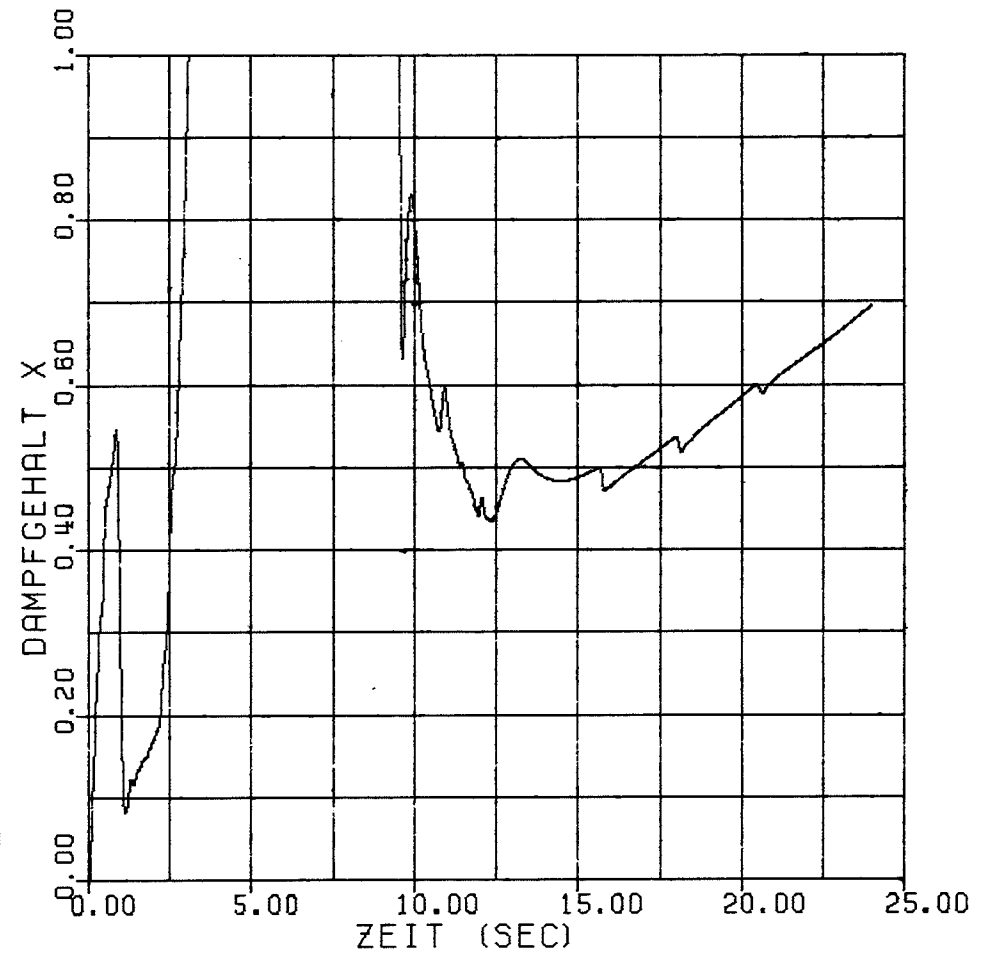
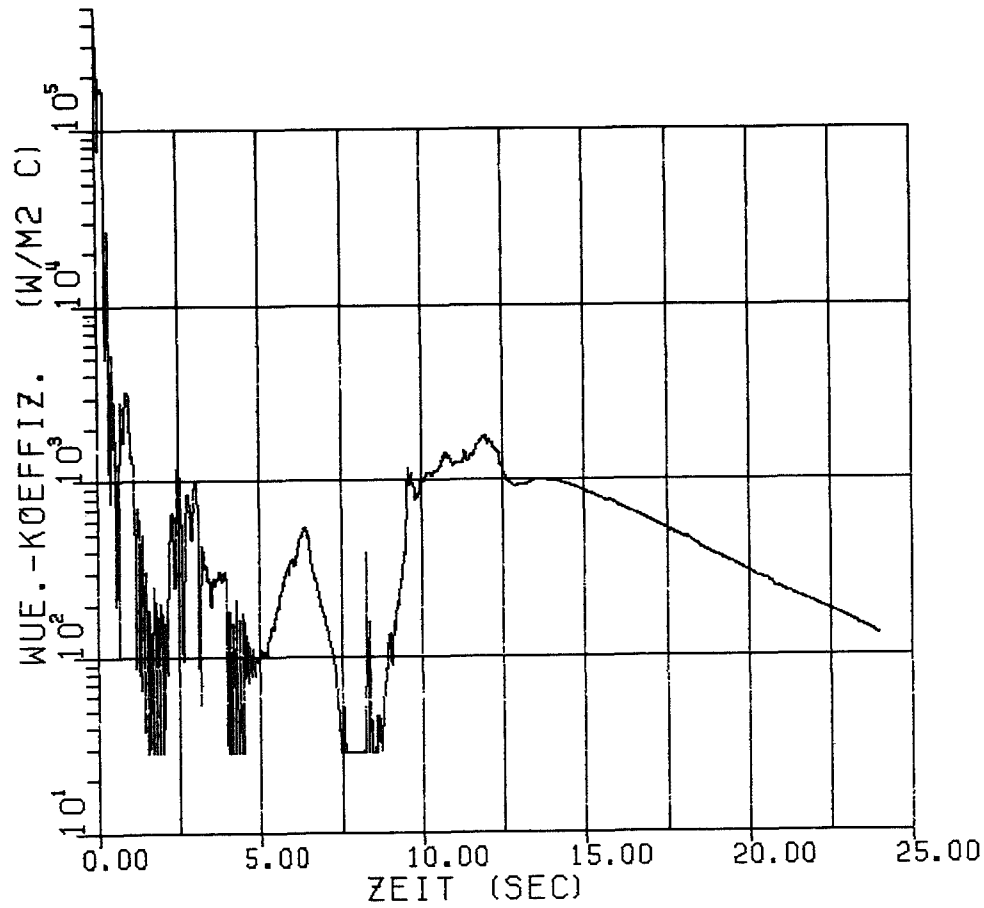
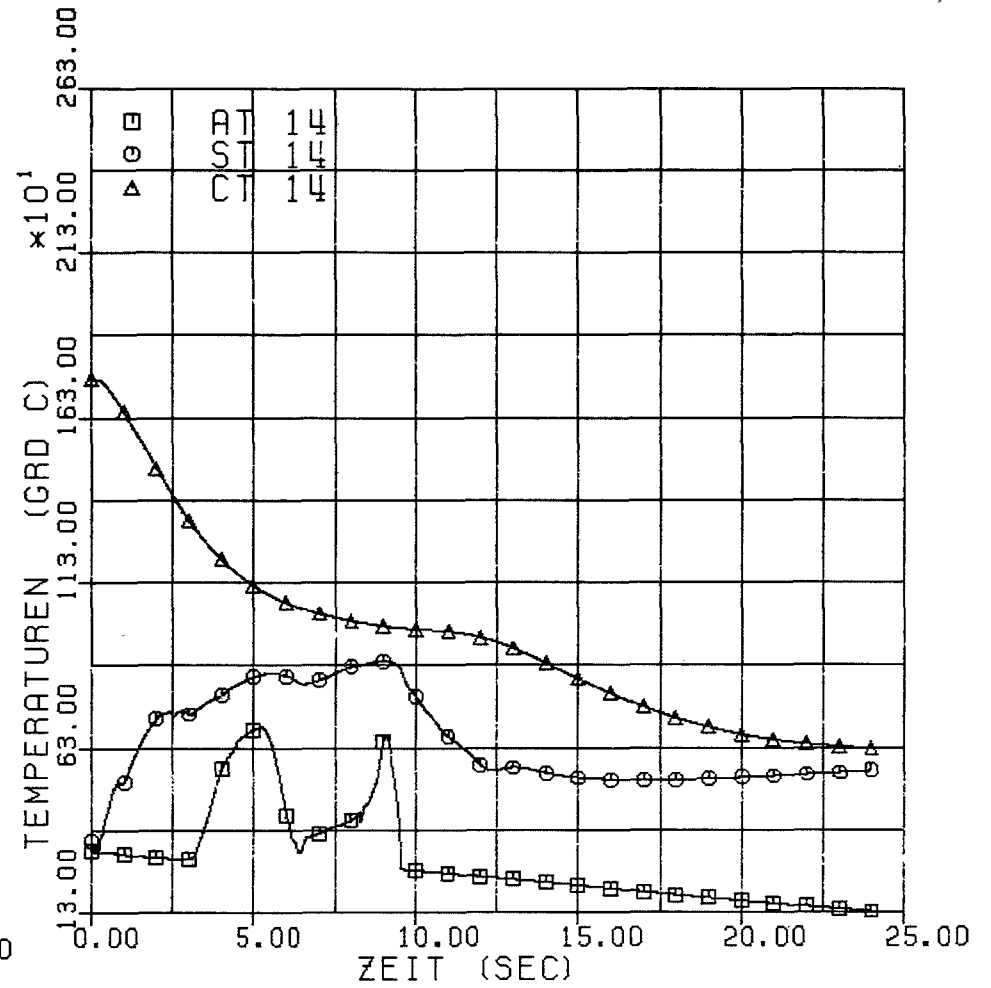


Abb. 4231-5: Verlauf des Kühlmittel-Dampfgehaltes
in Zone 14



HOT ROD FAX=1.60, FRAD=1.35

Abb. 4231-6: Verlauf des Wärmeübergangskoeffizienten Brennstab/Kühlmittel in Zone 14



HOT ROD FAX=1.60, FRAD=1.35

Abb. 4231 -7: Kühlmittel-, Brennstaboberflächen- und Brennstabzentraltemperaturen in Zone 14

ZA

ZUGVERSUCHE: 700-1100 C Y=20MM/MIN ATM=VAKUUM

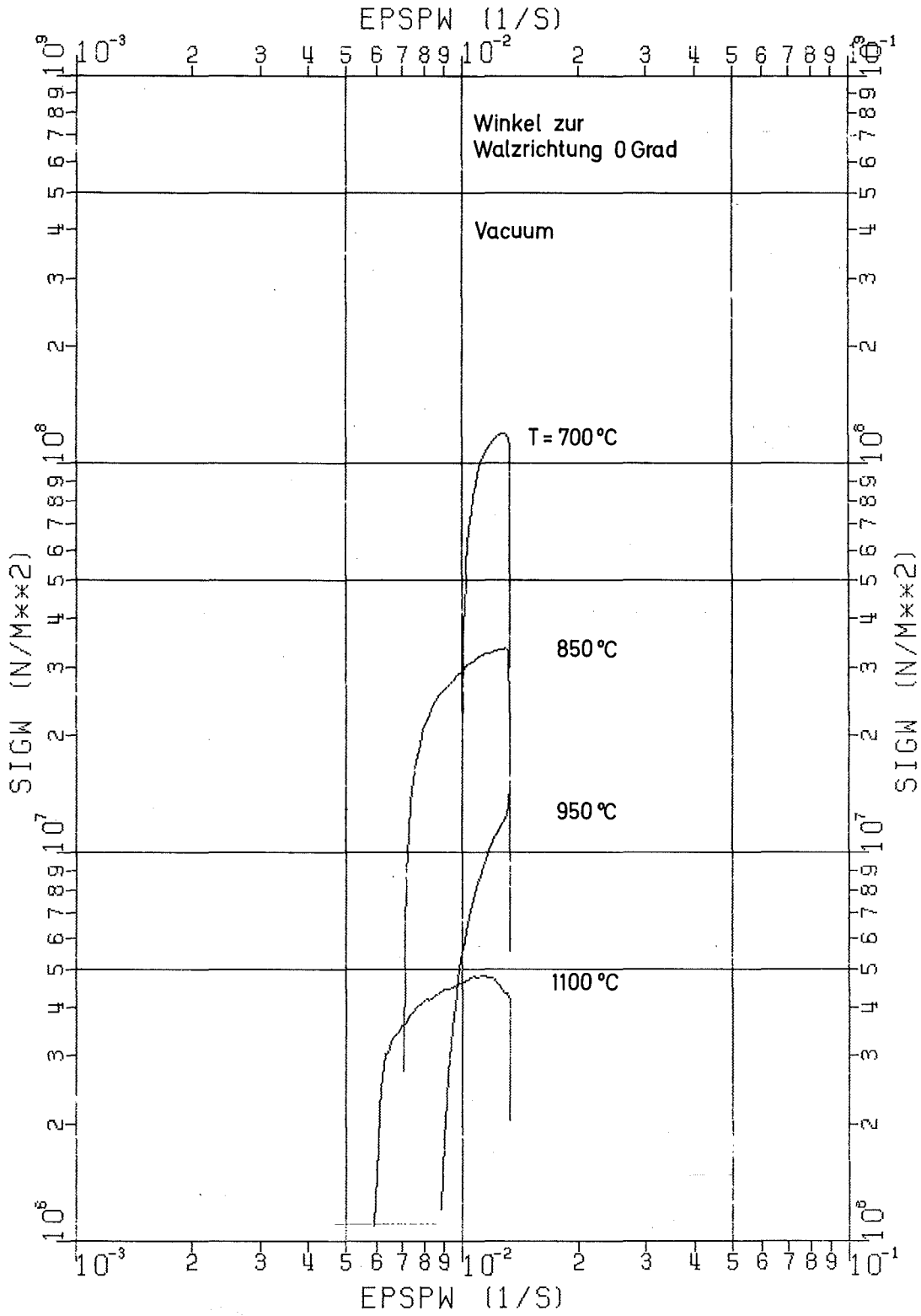


Abb. 4231-8: Zugversuche Zry-4

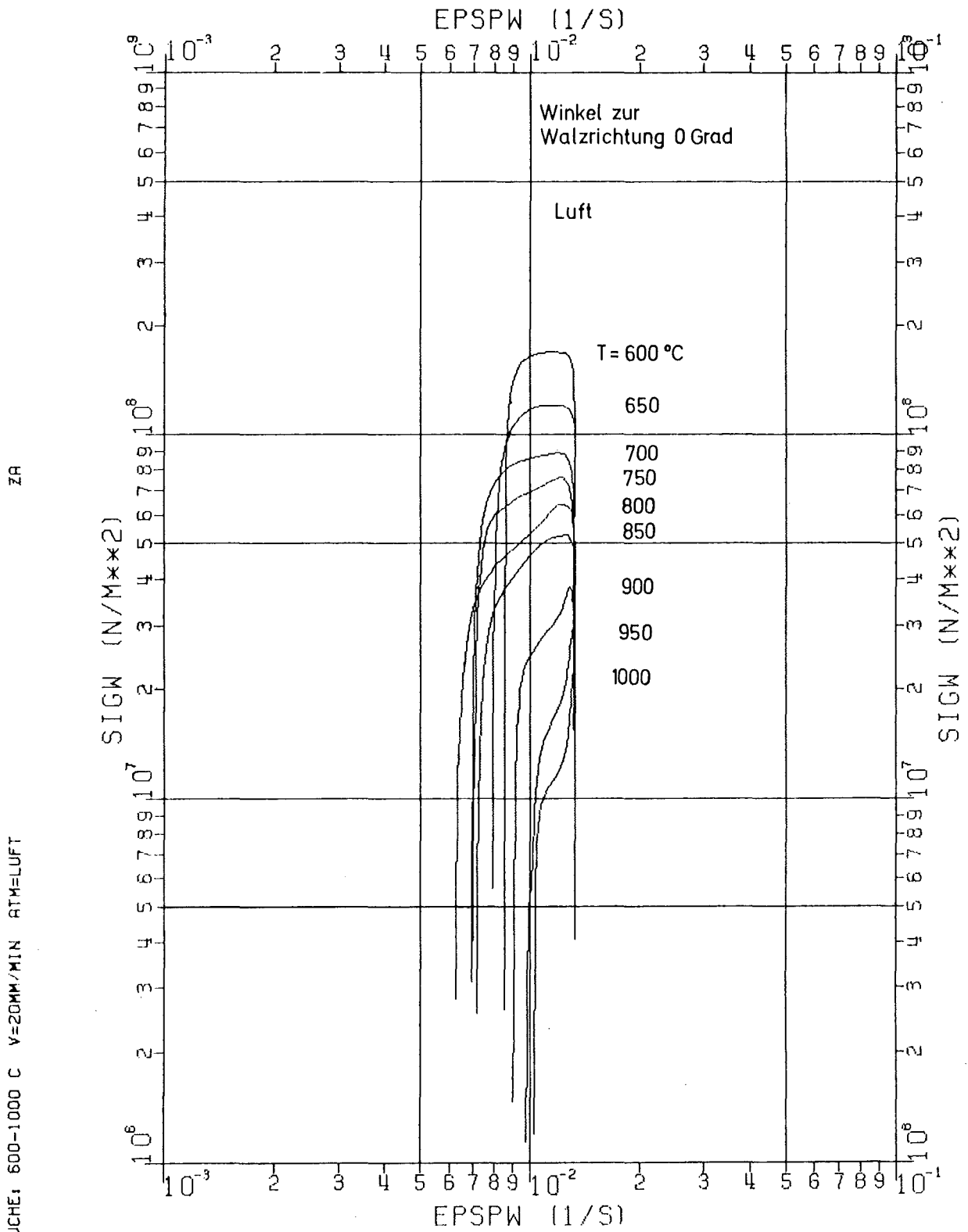


Abb. 4231-9: Zugversuche Zry-4

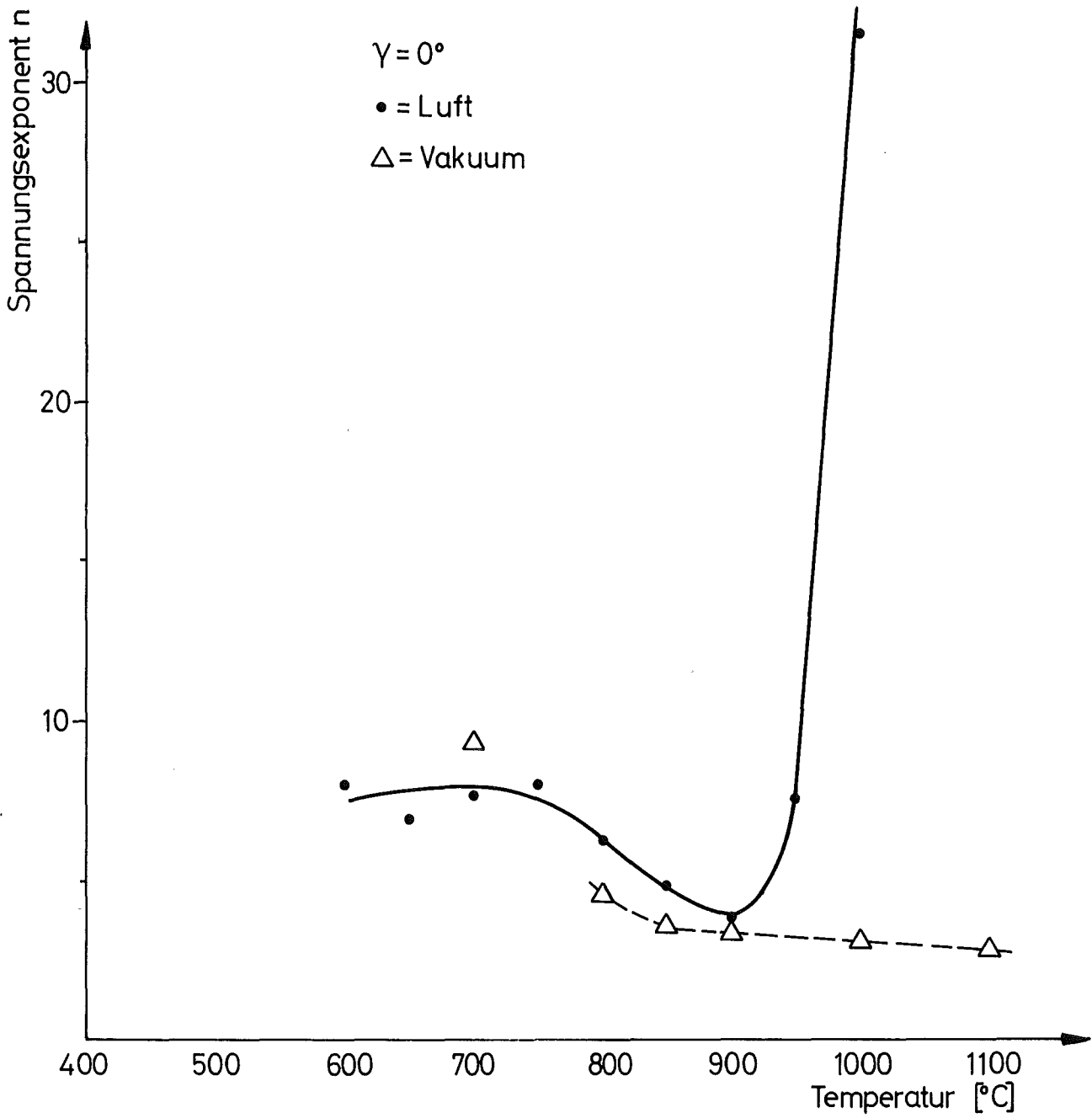
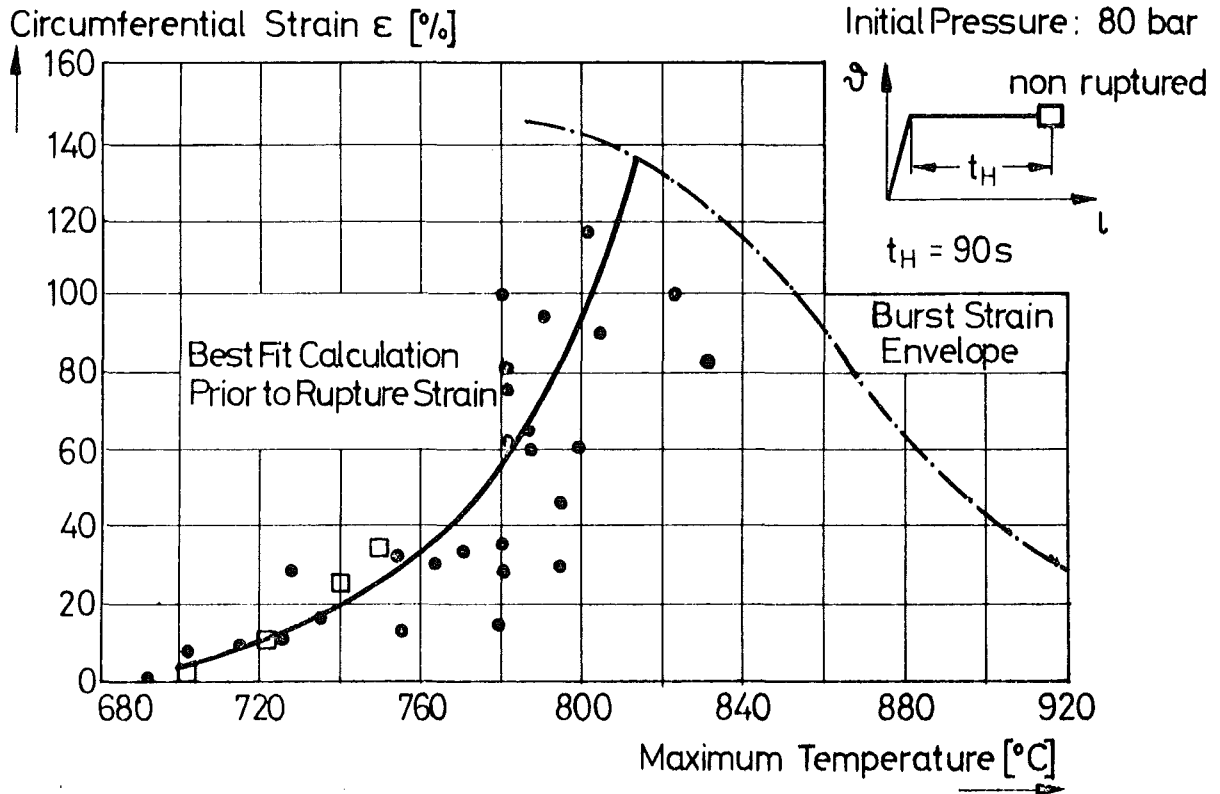


Abb. 4231-10: Spannungsexponent für die Maximalspannung in der Spannungsdehnungskurve nach Auswertung von Zry-4 Flachzugproben des IMF (GfK)



Circumferential strain vs. maximum temperature from creep rupture tests with constant gas inventory / 13 /.

- Rechnung mit Norton-Parametern aus Zugversuchen (Temperaturbereich 600 - 750°C)

Nortonparameter: $(\dot{\epsilon} = A \sigma^n e^{-Q/RT})$

$$\left. \begin{aligned} n &= 7,14 \\ Q &= 3,175 \cdot 10^5 \quad \left[\frac{\text{Ws}}{\text{mol}} \right] \\ A &= 0,77 \cdot 10^{-42} \quad \left[\left(\frac{\text{m}^2}{\text{N}} \right)^n \frac{1}{\text{s}} \right] \end{aligned} \right\} 600 \leq T \leq 750$$

Abb. 4231-11: Nachrechnung von Berstversuchen /13/ mit Norton-Parametern aus Zugversuchen

4234 Bestimmung der Nachzerfallswärme von ^{235}U im Zeitbereich
10 - 1000 sek

(K. Baumung, INR)

Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse:

Im Berichtszeitraum wurde die Versuchsapparatur sowie das Meßprogramm für den Kleinrechner erstellt, mit dem die Meßwerte erfaßt werden und das Kalorimeter gesteuert wird. Zuvor hatten sich bei Tests folgende Schwierigkeiten ergeben, deren Beseitigung zu Verzögerungen führte und einen Großteil der Aktivität band:

1. Rohrposteinsatz:

Die ursprünglich vorgesehene Bestrahlungsstation, die aus insgesamt sechs Aluminium - bzw. AlMg₃-Teilen zusammengeschweißt war, erwies sich als problematisch. Die Schweißnähte zwischen den drei Flanschen aus Drehalu und den Verbindungsstücken aus AlMg₃ waren rissig und konnten auch durch Nachschweißen nicht auf die geforderte Dichtigkeit von 10^{-5} torr 1/sek gebracht werden. Deshalb wurde die Bestrahlungsstation neu konstruiert und diesmal aus einem einzigen Block aus AlMg₃ gefertigt. Auch die daran anschließende Flansche des Fahrrohrs und der Kühlgasableitung wurden durch AlMg₃-Flansche ersetzt. Zusammen mit den anstelle der geplanten Bleischeibendichtungen neuen Schneidendichtungen aus Reinaluminium konnte schließlich eine ausgezeichnete Dichtigkeit erzielt werden. Bei der Besprechung des Sicherheitsberichtes wurde festgestellt, daß die vorgesehene Abschirmung gegen γ -Strahlen und verzögerte Neutronen die Anforderungen erfüllt und vermutlich auch für die Spaltneutronen während der Bestrahlung ausreichend sei. Eine genaue Rechnung zeigte aber, daß die durch das zunächst gerade ausgelegte Fahrrohr austretenden Spaltneutronen in der Reaktorhalle ohne Abschirmung eine Dosisleistung bis zu 10 rem/h verursachen könnten. Obwohl der Strahl eng kollimiert gewesen wäre, hätte wegen der höheren Energien der Spaltneutronen die Abschirmung des Kalorimeters wesentlich verstärkt werden müssen. Es schien daher sinnvoller, das Fahrrohr mit einer Etage zu versehen. Dadurch konnte ein 40 cm langer Polyäthylenstopfen in den direkten Flugweg der Spaltneutronen gesetzt werden. Darin werden die meisten Neutronen gestreut

und noch innerhalb der biologischen Abschirmung absorbiert. Ein weiterer Stopfen von 40 cm Dicke, der bis auf die Rohrleitungen den ganzen Querschnitt des Einsatzes ausfüllt, sorgt zusammen mit mehreren Cadmiumschichten dafür, daß nur noch ein Bruchteil der Spaltneutronen aus dem Reaktor austreten kann, der von der äußeren Abschirmung des Kalorimeters absorbiert wird. Der so geänderte Rohrposteinsatz konnte inzwischen getestet und in die thermische Säule des FR2 eingebaut werden.

2. Meßwerterfassung und Kalorimetersteuerung

Beim Testen des zunächst erstellten Steuerprogramms, das über einen 8K-Kleinrechner und einen CAMAC-Datenweg die Temperaturmessung sowie die Steuerung des Kalorimeters ausführt, wurde festgestellt, daß die Steuerung durch die Rückkopplung Temperaturänderung - Meßbereichswahl in gewissen Situationen zu Schwingungen neigte. Um diese auszuschalten und auch in unvorhersehbaren Situationen (z.B. Ausfall eines Temperaturwertes durch Meßbereichüberschreitung des Digitalvoltmeters) eine optimale Datenerfassung durch geeignete Bereichswahl des Voltmeters und der stufenweise abstimmbaren Wheatstone-Brücke sicherzustellen, war es nötig, das Meßprogramm erheblich zu erweitern.

Dadurch ergaben sich schließlich sovieler Rechner- und Datenwegoperationen, daß die für die Temperaturerfassung vorgesehene Taktzeit von 500 msek mit der langsamen Programmiersprache BASIC nicht mehr eingehalten werden konnte. Der Vorteil der einfachen Kontrolle der CAMAC-Operationen in BASIC mußte der wesentlich kürzeren Rechenzeit bei Verwendung eines FORTRAN-Programms geopfert werden. Es wurde daher ein FORTRAN-Meßprogramm erstellt und erfolgreich getestet, das sowohl die vorgegebenen 500 msek unterschreitet als auch jedem beliebigen Temperaturverlauf im optimalen Meßbereich zu folgen vermag.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Mit dem Aufbau der Meßapparatur am FR2 ist schon begonnen worden, so daß nach der Sommerabschaltpause die Bestrahlungen aufgenommen werden können.

4235 Untersuchungen zum Materialverhalten von Zircaloy bei Reaktorstörfällen

4235.1 Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohrmaterial

(M. Boček^V, C. Petersen, H. Schneider, W. Schweiger, B. Seith und K. Dindorf, IMF/II)

1. Einfluss von ZrO₂-Oberflächenschichten auf das Dehnungsverhalten von Zry-4 Flachzugproben

Des öfteren wird beobachtet, daß Zry-4 im Warmzugversuch im α -Phasenbereich unter oxidativer Atmosphäre eine im Vergleich zu inertem Medium erhöhte Duktilität aufweist. Zur Illustration zeigt die Abb. 4235.1 die Temperaturabhängigkeit der Bruchdehnung von Zry-4 Flachzugproben für zwei Versuchsmedien (Luft, Vakuum). Ähnliche Verhältnisse können auch Rohrberstversuchen entnommen werden (s. schematische Darstellung in Abb. 4235.2).

Im folgenden werden Ergebnisse metallographischer Untersuchungen zunächst an zugverformten Proben erläutert, die Aufschluss geben sollten über dieses unerwartete Verhalten. Die Abb. 4235.3 zeigt metallographische Aufnahmen von ungeätzten Längsschliffen, angefertigt an 3 Zry-4 Flachzugproben, die alle bei 700°C mit einer Anfangsgeschwindigkeit von $\dot{\epsilon}_0 = 1,3 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ verformt wurden. Die Versuchsbedingungen der einzelnen Proben waren:

Abb. 4235.3a: Blanke Oberfläche, Verformung erfolgte im Vakuum $\approx 10^{-6}$ Torr.

Abb. 4235.3b: Probe wurde in Luftatmosphäre bei 700°C voroxidiert. Die Oxidationszeit t_{ox} wurde so gewählt, daß t_{ox} , der Gesamtversuchsdauer t_v jener Probe entsprach, die in Luftatmosphäre verformt wurde (Abb. 4235.3c). Die eigentliche Zugverformung erfolgte im Vakuum.

Abb. 4235.3c: Probe mit ursprünglich blanker Oberfläche wurde in Luftatmosphäre verformt. Die mittlere ZrO₂-Schichtdicke betrug

am Ende des Versuchs etwa $1\pm 3 \mu\text{m}$, und ist vergleichbar mit jener der voroxidierten Probe.

Die wesentlichen Beobachtungen:

- Metallographisch nachweisbare ausgeprägte Porenbildung (Cavitation) während der Verformung von blanken Proben (ohne ZrO_2 -Schicht).
- Stark reduzierte Cavitation durch ZrO_2 -Schichten. Erhöhte Duktilität auch durch Voroxidation.
- Einfluß von ZrO_2 -Schichten auf die Bruchmorphologie.
- Je ausgeprägter die Cavitation umso kleiner die Bruchdehnung ϵ_B .

Die Abb. 4235.4 zeigt den Einfluß der ZrO_2 -Schichten auf die Cavitation bei unterschiedlichen Verformungstemperaturen. Abgesehen vom Einfluß der Verformungsatmosphäre auf die Probenformänderung ist hier der cavitationshemmende Einfluß der ZrO_2 -Schicht auch bei 600°C zu erkennen, wengleich in diesem Fall (~ 100 x kleinere Verformungsgeschwindigkeit) für Luftverformung bei 700°C die Poren noch metallographisch nachweisbar sind. Die metallographisch erkennbare Cavitationsgrenze liegt in diesem Fall bei $\sim 850^\circ\text{C}$. Für diese und höhere Temperaturen können in beiden Fällen (mit und ohne ZrO_2 -Schicht) mit diesem Verfahren keine Hohlräume mehr ausgemacht werden. Versuche wurden eingeleitet, in denen Dichtemessungen quantitative Aussagen über verformungsbedingte Volumenänderungen ermöglichen sollen.

Aus der Abb. 4235.5 ist zu entnehmen, dass der cavitationshemmende Einfluß der ZrO_2 -Schicht ebenfalls von der Verformungsgeschwindigkeit und somit auch von der angelegten Spannung abhängt, in dem die Tendenz zur Hohlraumbildung an Proben mit ZrO_2 -Schichten (bei gegebener Versuchstemperatur) mit wachsender Verformungsgeschwindigkeit (bzw. wachsender angelegter Spannung σ_a) zunimmt. (Beachte die wiederum kleineren Bruchdehnungen für Proben ohne ZrO_2 -Schicht bei 600°C und 700°C (Abb. 4235.4)).

Diese Beobachtungen führen zur wesentlichen Erkenntnis, daß die hier behandelte Duktilitätserhöhung durch die protektive (d. h. "bruchverzögernde") Wirkung von ZrO_2 -Schichten zustande kommt. Aus noch zu klärenden Ursachen bleibt diese cavitationshemmende Wirkung offensichtlich auf den α -Phasenbereich beschränkt (Änderung des Verformungsmechanismus im 2-Phasenbereich). Die protektive Wirkung dieser Schicht hängt im α -Be-

reich stark von der angelegten Spannung ab und kommt zur Geltung für bereits sehr dünne Schichten ($\approx 1 \mu\text{m}$). Die cavitationshemmende Wirkung ist bei Verformung in oxidativer Atmosphäre (ständig sich erneuernde Schichten) am stärksten.

Die Erklärung dieses Phänomens geht von der am Mg experimentell nachgewiesenen Tatsache aus [1], daß der Kriechbruchmechanismus durch Überlagerung von Zugspannung und hydrostatischem Druck beeinflusst ist.

Im gegebenen Fall wird die im Metall wirksame hydrostatische Druckspannungskomponente aufgrund des großen Bedworth-Pilling Verhältnisses von der ZrO_2 -Schicht aufgebaut. Wie zahlreiche Messungen und Rechnungen gezeigt haben [2], liefern bereits dünne Schichten bei höheren Temperaturen $T \gtrsim 600^\circ\text{C}$ Spannungen an der Grenzfläche Oxid-Metall von der Größenordnung der Fließspannungen von Zry-4 ($\sigma \approx 10 \div 100 \text{ MPa}$). In den erwähnten Kriechversuchen am Magnesium konnte durch einen hydrostatischen Druck P , der einer dem Betrag nach gleichen Zugspannung σ_a überlagert wurde, die Cavitation vollständig unterdrückt und die Bruchdehnung verdreifacht werden. Das Modell beruht auf der Vorstellung des spannungsinduzierten Wachstums von Poren [3]. Man geht dabei von einer bereits vorhandenen Pore mit dem Radius r aus und stellt eine Bilanz der Energiebeträge auf, die beim Einbau einer einzelnen Leerstelle in die Pore aufzubringen ist. Es kann gezeigt werden, daß für eine endliche, angelegte Spannung σ_a stabile Poren existieren und unter Energiegewinn wachsen können, wenn gilt:

$$\sigma_a > \sigma_c = \frac{2 \gamma}{r \cdot \sin \lambda} \quad (1)$$

Wo γ die spezifische Oberflächenenergie und λ der Winkel zwischen der Korngrenzspur und der Zugrichtung ist. (In der Regel wird davon ausgegangen, daß die Leerstellen aus dem Bereich der Korngrenze stammen). Für "90°-Korngrenzen" ist

$$\sigma_a > \sigma_c = 2\gamma/r \quad (1a)$$

Aufgrund der Bedingung (1) bzw. (1a) liegt es nahe, eine zum Porenwachstum erforderliche effektive Spannung σ_p zu definieren, nämlich

$$\sigma_p = \sigma_a - 2 \gamma/r \quad (2)$$

bzw.

$$\sigma_a - \sigma_p > 2 \gamma/r = \sigma_c > 0 \quad (2a)$$

Übertragen auf das Experiment besagt Gl. (2a): Falls eine hydrostatische Druckkomponente P während des Zugversuchs aufgebracht wird, für die gilt $\sigma_p = P = \sigma_a$, so ist ein Porenwachstum nicht möglich. Entlastet man schließlich die Probe ($\sigma_a = 0$), so würden bereits vorhandene Poren unter dem Einfluß von P schrumpfen, indem sie Leerstellen abgeben (siehe Sintervorgang).

In der Abb. 4235.6 ist schematisch veranschaulicht, unter welchen Temperatur- und Geschwindigkeitsbedingungen ein Porenwachstum (Cavitation) in einem Spannungs- Dehnungsversuch zu erwarten ist, für Prüflinge, die unter einer vorgegebenen simultanen hydrostatischen Druckbeanspruchung P stehen. Die Darstellung entspricht den Befunden in Abb. 4235.4 und Abb. 4235.5. So nimmt die Cavitation an Proben mit ZrO_2 -Schichten ab, wenn bei konstanter Verformungsgeschwindigkeit die Temperatur erhöht (s. Abb. 4235.4) und bei konstanter Temperatur die Verformungsgeschwindigkeit erniedrigt wird (s. Abb. 4235.5). Die Frage, wie weit diese Vorstellungen auf die Rohrrinnendruck-Verformung übertragbar sind, ist Gegenstand weiterer Untersuchungen.

2. Kriechversuche unter konstanter Last an Zry-4 Flachzugproben

Isotherme Vakuum-Zug-Kriechversuche wurden im Temperaturbereich zwischen $600^\circ C$ und $1100^\circ C$ durchgeführt. Zwei Arten von Kriechapparaturen wurden verwendet:

- die Instron-Anlage Type 1251, In-Last-Steuerung
(weiter nur: IA)
- Hebel-Anlagen, mit gesteuerter konstanter Hebellage
(weiter nur HA)

Die Qualität des Vakuums ist in beiden Anlagen unterschiedlich. Betriebsdrücke von $\approx 10^{-6}$ Torr können in der IA erreicht werden. Im Vergleich dazu ist der Grenzdruck in den HA im Versuchsraum höher als 10^{-4} Torr. Die Qualität des Vakuums konnte in den HA durch Gettern (Ti-Spanne) ver-

bessert werden. Der Anfangsspannungsbereich $\sigma_{uni}(0)$ reichte von 5,0 bis 78 MPa (entsprechend einem Innendruck P_i von 0,8 bis 12,7 MPa für Rohr-abmessungen "Biblis A").

Aus den originären $l(t)$ -Kurven (l ist die Probenlänge, t ist die Zeit) wurden neben der Standzeit t_B die Dehngeschwindigkeiten $\dot{\epsilon}_0 = \dot{l}/l_0$ als Funktion der Zeit bzw. der Dehnung $\epsilon_0 = l - l_0/l_0$ ermittelt. Anhand dieser Größen erfolgte die Auswertung weiterer, für den Verformungsablauf maßgebender Größen. Ein Bericht darüber erfolgt nach Abschluß der nun laufenden Auswertungen.

Hier werden zunächst an Hand der Abb. 4235.7 das Zeitstandverhalten von Zry-4 Flachzugproben veranschaulicht. Die Versuchsergebnisse werden in der $\log \sigma(0) - \log t_B$ Darstellung als Geraden abgebildet, deren Neigung bekanntlich ist:

$$-\frac{d \log \sigma(0)}{d \log t_B} = \frac{1}{n} \quad (3)$$

wobei n der Spannungsexponent im "Kriechgesetz" $\dot{\epsilon} \sim \sigma^n$ ist. Abgesehen davon, daß die Zeitstandlinien für 600°C und 700°C einen durch die Rekristallisation bedingten Knick aufweisen, kann aus der Abb. 4235.7 geschlossen werden, daß n (für größere Standzeiten) im untersuchten Temperaturbereich von 600°C bis 950°C nahezu temperaturunabhängig ist, wie der nachstehenden Tabelle zu entnehmen ist.

T °C	$n_{t_B > 100 \text{ min}}^{*)}$ V a k u u m	$n_{t_B < 10 \text{ min}}^{*)}$	$n_{GWV}^{***)}$		$n_{GWV}^{****)}$ Vakuu m	
			Luft ^{x)}	Vak. ^{xx)}	EQ	AC
600	5.4	10.6	12.8	17.2	10.0	14.3
700	5.3	8.8	8.8	9.8	8.3	8.3
800	5.2	5.2	6.0	5.6	5.8	5.1
900	4.7	4.7	2.2	2.0	2.9	4.9

*) aus Zeitstandkurven

****) aus Geschwindigkeitswechselfersuchen

Wechsel im Bereich $\dot{\epsilon}_0 \approx 10^{-4} \text{ s}^{-1}$

***x) Aus H. M. Chung et al., ANL-76-49, S. 34

Wechsel zwischen $\dot{\epsilon}_0 = 3.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ und $\dot{\epsilon}_0 = 3.3 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$.

x) Aus M. Boček et al., KFK 2262, S. 216.

xx) Vorliegende Untersuchung.

Die obige Tabelle macht deutlich, wie stark der n -Wert abhängig ist von den Versuchsbedingungen und offensichtlich auch vom Gefügestand des Werkstoffes. So interferiert im T-Bereich $600 \div 700^\circ\text{C}$ die Rekristallisation mit dem Kriechvorgang. Im β -Phasenbereich übt möglicherweise die Phasenkomposition einen empfindlichen Einfluß auf das Kriechverhalten aus. So wäre zu verstehen, warum bei 800°C die n -Werte weniger von den Versuchsbedingungen abhängen. Im übrigen ist die Methode der n -Wertbestimmung Gegenstand weiterer Untersuchungen. Die an HA gewonnenen Ergebnisse zeigen bei gleichen n -Werten für 800°C und 900°C eine größere Kriechfestigkeit, was u. U. auf Unterschiede in der Qualität des Vakuums zurückzuführen ist.

In Abb. 4235.8 sind Zeitstandkurven wiedergegeben, in denen Ergebnisse von isothermischen Zeitstandberstversuchen an Zry-4 "Biblis A"-Rohren verglichen werden mit Ergebnissen aus Zug-Kriechversuchen an Flachproben. Diese bereits vor längerer Zeit durchgeführten Berstversuche erfolgten an etwa 50 mm langen Prüflingen. Sie wurden zunächst in einem Rohrofen im Vakuum auf Versuchstemperatur gebracht und anschließend mit einem konstanten Innendruck (Argon) beaufschlagt. In dieser Versuchsserie wurde neben der Standzeit nach dem Versuch die maximale Umfangsdehnung erfaßt. Die für die Rohrverformung maßgebende Tangentialspannung σ_{hoop} wurde mittels der Beziehung

$$\sigma_{\text{uni}} = \frac{\sqrt{3}}{2} \sigma_{\text{hoop}} \quad (4)$$

auf die Zuspaltung umgerechnet. Die Übereinstimmung der Ergebnisse ist besonders mit denen der HA gewonnen für 800°C sehr gut (vergleichbare Qualität des Vakuums). Wesentliche Abweichungen bestehen bei 900°C . Bei dieser Temperatur ist allerdings auch die Messwertstreuung in Zugversuchen bemerkenswert größer als bei niedrigen Temperaturen.

In der Abb. 4235.9 ist die Temperaturabhängigkeit der Kriech-Bruch-Dehnungen ϵ_B wiedergegeben. Die wesentlichen Feststellungen sind folgende:

- Für $T = 800^\circ\text{C}$ werden im "schlechteren" Vakuum größere Bruchdehnungen erreicht.
- Die Bruchdehnungen nehmen (bei gegebener Temperatur) mit wachsender angelegter Spannung ab (erhöhte Cavitation bei wachsender Spannung?)
- Für Versuche im "schlechten" Vakuum ist die T-Abhängigkeit von ϵ_B im Vergleich zu Ergebnissen aus Spannungs-Dehnungsversuchen weniger stark. Vergleichbare Ergebnisse liefern hingegen Versuche im "guten" Vakuum.

3. Spannungs- Dehnungs-Versuche an Zry-4 Flachzugproben im Vakuum (Vergleich zu Versuchen in Luftatmosphäre)

Auf eine Wiedergabe der Spannungs-Dehnungs-Kurven wird an dieser Stelle verzichtet. Alle primären Daten (hier Kraft über der Zeit) sind in einer Datenbank gespeichert und werden über Auswerteprogramme analysiert (s. P4231). Hier werden einige Ergebnisse der Analyse von Spannungs-Dehnungsversuchen in Vakuum wiedergegeben und mit solchen aus "Luft-Versuchen" verglichen.

Die Abb. 4235.10 veranschaulicht die Temperaturabhängigkeit der Fließspannung σ_y ($\hat{=}$ Spannung am Ende des Hookschen Bereichs) für Anfangsverformungsgeschwindigkeiten $\dot{\epsilon}_0 = (6.6 \times 10^{-5} \div 1.0 \times 10^{-1}) \text{ s}^{-1}$.

Hauptergebnis: Für Temperaturen $T \lesssim 700^\circ\text{C}$ sind - unabhängig von der Verformungsgeschwindigkeit - die Fließspannungen aus Vakuum-Versuchen größer als jene aus Luftversuchen. Der Verlauf von $\sigma_y(T)$ ist für $T \gtrsim 700^\circ\text{C}$ steiler für Vakuum-Versuche - die Kurven zeigen bei 700°C einen deutlichen Knick - dabei nimmt unterhalb 700°C $d\sigma_y/dT$ mit wachsendem $\dot{\epsilon}_0$ zu. Diese Tendenz ist für Luft-Versuche wesentlich schwächer ausgeprägt (auch fehlt der "Knick" in den $\sigma_y(T)$ -Kurven).

Die Erklärung für die beobachteten Fließ-Spannungs-Differenzen steht aus; möglicherweise spielen dabei die durch die ZrO_2 -Schicht im Metall hervorgerufenen Druckspannungen eine Rolle.

Die Abb. 4235.11 zeigt die Abhängigkeit der Fließ-Spannung von der Verformungsgeschwindigkeit für verschiedene Temperaturen ("Temperatur-Schnitte" von $\sigma_y(T)_{\dot{\epsilon}_0}$). Die ungewöhnlichen $\sigma_y(\dot{\epsilon}_0)_T$ -Verläufe für $T < 800^\circ\text{C}$ sind

offensichtlich die Folge von Rekristallisation.

Die Temperaturabhängigkeit der Bruchdehnungen für unterschiedliche Verformungsgeschwindigkeiten ist in Abb. 4235.12 dargestellt. Zu beobachten ist ein ausgeprägtes Dehnungsmaximum bei Verformung in Vakuum im Temperaturbereich von $800 \div 850^{\circ}\text{C}$. Bei tieferen Temperaturen werden in Luft durchweg höhere Bruchdehnungen erreicht. Dieser Sachverhalt kann auch bei den Kriechbruchdehnungen für Versuche im Vakuum $> 10^{-4}$ Torr beobachtet werden. Eine Deutung für diese Beobachtung könnten wiederum die durch die ZrO_2 -Schicht hervorgerufenen Druckspannungen und damit eine Unterdrückung der Cavitation sein. Eine eindeutige Abnahme der Bruchdehnung mit zunehmender Verformungsgeschwindigkeit ist nicht festzustellen.

In der Abb. 4235.13a ist die Temperaturabhängigkeit des Geschwindigkeits-exponenten m für verschiedene Verformungsgeschwindigkeiten $\dot{\epsilon}_0$ dargestellt. Die m -Wertbestimmung erfolgte mittels Geschwindigkeits-Wechsel-Versuchen (GWV) [4] (an Flachzugproben mit $\gamma = 0^{\circ}$, wo γ den Winkel zwischen der Walz- und Zugrichtung bedeutet). Die so ermittelten m -Werte erwiesen sich (wie Abb. 4235.14 zeigt), für Temperaturen $T \geq 800^{\circ}\text{C}$, als verformungsabhängig. Die in Abb. 4235.13 a angeführten $m(T)_{\dot{\epsilon}_0, \epsilon}$ -Kurven sind für $\epsilon = 0.02$ dargestellt. Die Ausbildung eines Maximums für $T = 900^{\circ}\text{C}$ für kleine $\dot{\epsilon}_0$ -Werte, ist für Vakuum-Versuche deutlich erkennbar (Abb. 4235.13a (a)). Für "Luft-Versuche" ist diese Tendenz nur für $\dot{\epsilon} \approx 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ausgeprägt (Abb. 4235.13a (b)). Ein Vergleich mit aus Zeitstand-Kurven ermittelten ($1/n = m$) m -Werten (s. Abschnitt 2 dieses Berichts) ergibt für $T > 700^{\circ}\text{C}$ und kleine $\dot{\epsilon}_0$ -Werte beachtliche Differenzen deren Ursache wahrscheinlich in der Bestimmungsmethode für m zu suchen ist.

Die Abb. 4235.13b zeigt die Abhängigkeit der m -Werte von der Verformungsgeschwindigkeit. Erkennbar ist die Ausbildung eines Maximums für "Luft-Versuche" (Abb. 4235.13b (b)) bei $\dot{\epsilon}_0 \approx 3 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ und höheren Temperaturen. Für Vakuum-Versuche (Abb. 4235.13b (a)) findet man dieses Verhalten nur bei $T = 850^{\circ}\text{C}$ und 900°C wieder.

Die Abb. 4235.14 zeigt die Verformungsabhängigkeit der m -Werte gemessen bei unterschiedlichen Temperaturen. Relativ konstante m -Werte folgen aus "Vakuum-Versuchen" für $T \leq 800^{\circ}\text{C}$. Ein starker, in der Tendenz durch die Versuchsatmosphäre bestimmter Verformungseinfluss tritt bei höheren Temperaturen zutage.

In der Abb. 4235.15 ist in einer "quasi - 3-dimensionalen" - Darstellung der Einfluß der Verformungstemperatur und -Geschwindigkeit auf die m-Werte (aus GWV) halbschematisch wiedergegeben. Hervorzuheben ist daraus das Auftreten hoher m-Werte (> 0.3) im α -Bereich bei sehr hohen $\dot{\epsilon}_0$ -Werten ($\approx 10^{-1} \text{ s}^{-1}$).

4. Analyse von Berstversuchen an Zry-4 Hüllrohren

Es wird versucht, durch Sichtung eines ständig sich mehrenden Versuchsmaterials die Haupteinflußgrößen auf die Hüllrohrverformung zu eruieren. Die Schwierigkeiten einer solchen vergleichenden Betrachtung sind offensichtlich. Bereits die Ermittlung der primär wichtigen Spannungskomponenten, sowie deren Änderung und Verteilung über das Versuchsobjekt während der plastischen Verformung ist in der Regel kaum möglich. Ähnliches gilt z. T. auch für die Versuchstemperatur.

Als Basis für unsere Analyse wählten wir die Darstellung: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur. Zwei Größen werden darin verknüpft, von denen die eine (Berstdehnung) nach Beendigung des Versuchs genau ermittelt werden kann. Hingegen bedarf der Begriff der Bersttemperatur T_B erst noch einer Festlegung durch die Versuchsanordnung. So kann im Prinzip T_B direkt gemessen werden. In der Praxis ist dies an ohmisch beheizten Rohren in isothermer Versuchsführung am ehesten realisierbar. Bereits bei nicht-isothermer Versuchsführung treten hier Schwierigkeiten auf. Darum kann in diesem Fall eine indirekte T_B -Bestimmung mittels Heizrate und Standzeit u. U. vorteilhafter sein. Ohne direkte Messungen ist die Ermittlung von T_B besonders in Versuchen mit azimuthaler Temperaturverteilung (betrifft in der Regel innenbeheizte Rohre) kaum möglich. Stellt man die Fehlerquellen, verursacht durch die T-Messung selbst auch noch in Rechnung, so scheinen Vergleiche in der hier angestrebten Analyse innerhalb von Versuchen einer Beheizungsart eher angebracht, als solche zwischen Versuchen mit unterschiedlicher Beheizungsart. In den nun folgenden Darstellungen Abb. 4235.16 bis Abb. 4235.22 wurde auf eine Wiedergabe der Messpunkte selbst verzichtet. Die Kurven wurden z. T. durch Mittelwertbildung gewonnen. Sie vermitteln trotz aller Einschränkungen die "betragskorrekten" Tendenzen.

i) Der Einfluß der Beheizungsart kann in der Tendenz der Abb. 4235.16 entnommen werden.

Hauptergebnis: Ohmisch beheizte Rohre zeigen insbesondere im α -Bereich größere Berstdehnungen als innen beheizte Rohre.

Den Untersuchungen von F. Erbacher et al. (Reaktortagung 1977) [5] zufolge kann dieser Unterschied auf die bei innenbeheizten Rohren in der Regel vorliegende azimutale Temperaturverteilung zurückgeführt werden. Sorgt man für koaxiale Wärmeverteilung, sowie für vergleichbare adiabate Bedingungen in beiden Versuchsarten, so schwinden auch die Unterschiede in den erreichbaren Berstdehnungen.

Nebenergebnisse: Unterschiedliche Dehnungs-Temperaturverläufe ergeben sich, wenn von der maximalen Bersttemperatur auf die an der Bruchstelle herrschende extrapoliert wird. Die letztgenannte Darstellung (s. Kurve [25b]) führt zur guten qualitativen Übereinstimmung der aus isothermen Zugversuchen ermittelten Abhängigkeit der Bruchdehnung von der Versuchstemperatur.

ii) Den Einfluß der Heizrate zeigt die Abb. 4235.17.

Hauptergebnis: Kleinere Heizraten führen im α -Bereich zu größeren Berstdehnungen. Das Dehnungsmaximum verschiebt sich mit wachsender Heizrate zu höheren Temperaturen. Möglicherweise ist für dieses Verhalten die zwischen 600°C und 700°C ablaufende Rekristallisation verantwortlich

iii) Den Einfluß der Aussenatmosphäre veranschaulicht die Abb. 4235.18.

Hauptergebnis: Die Umfangsdehnungen sind für Rohre, die im α -Bereich versagen, in oxidativer Atmosphäre größer als in inerter. Daß dieser Effekt ähnlich, wie im Falle der Zugverformung (s. Abschnitt 1 dieses Berichts), durch die ZrO_2 -Schicht bedingt wird, zeigt die Abb. 4235.19. Die mit einer ZrO_2 -Schicht versehenen und im Vakuum verformten Rohre zeigen im α -Bereich größere Berstdehnungen als solche ohne ZrO_2 -Schicht.

- iv) Den Einfluß der "Rohrfüllung" zeigen die Abb. 4235.20 und Abb. 4235.21. Hauptergebnis: Im Falle ohmisch beheizter Rohre wird durch Rohrfüllung (Pellets bzw. Dorn) die Berstdehnung im α -Bereich vermindert. Die Ursache dafür dürfte ähnlich der sein, die zu kleineren Dehnungen an innenbeheizten Rohren Anlaß gibt. Jodide als Spaltproduktsimulatoren [19] (ofenbeheizte Rohre, Außenatmosphäre Argon) verringern die Berstdehnungen (Spannungsrißkorrosion) ganz erheblich. Nebenergebnis: Der Einfluß der Heizrate (s. Abb. 4235.17) ist im Prinzip der gleiche wie für Rohre, die im Vakuum und ohne Füllung geborsten waren.
- v) Der Einfluß geometrischer Restriktionen ist in der Abb. 4235.22 veranschaulicht. Im vorliegenden Fall bestand die Restriktion in der Behinderung der mit dem Blähvorgang einhergehenden axialen Rohrverkürzung. Die in diesem Fall allgemein kleineren Berstdehnungen werden mit den damit verbundenen Abweichungen von der Spannungs-Biaxialität in Zusammenhang gebracht (s. [17] in Abb. 4235.22).

Abschließend ist in der Abb. 4235.23 in schematisierter Darstellung der Einfluß der Beheizungsart und der äußeren Versuchsatmosphäre wiederholt veranschaulicht. Sie zeigt z. B., daß die versprödende Sauerstoffeinwirkung erst im β -Bereich dominiert.

Zum Einfluß der Beheizungsart ist zu vermerken, daß, obzwar die in Abb. 3235.23 gezeigte Darstellung im allgemeinen für die Einzelstabversuche zutrifft, für innenbeheizte Stäbe, wie in den obigen Ausführungen angedeutet, im Fall von Bündelversuchen (Homogenisierung der thermischen Umgebung) durchaus Berstdehnungen erreicht werden können, die oberhalb des Bandes für Einzelstabversuche liegen. Bemerkenswert ist ferner die relativ sehr geringe Bandbreite der Berst-Dehn-Werte bei 900°C. Die Ergebnisse von Zugversuchen sind damit nicht kompatibel. Zu ergänzen wäre diese Darstellung noch insofern, als mit wachsender Heizrate und Abweichungen von der "Biaxialität" die Berstdehnungen im allgemeinen abnehmen.

Die das Berstverhalten im β -Bereich beherrschenden Umstände sind z. Z. weniger gut überschaubar (weitere Dehnungsmaxima) und eine entsprechende Analyse benötigte zusätzliches Versuchsmaterial.

5) Zur Berechnung von Kriechkurven aus dem $\dot{\epsilon} \sim \sigma^n$ -Ansatz

Das mechanische Verhalten eines Werkstoffs kann beschrieben werden durch Gleichungen, in denen der Tensor der Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_{ij}$ in Beziehung steht: zum Spannungstensor σ_{ij} , zu dessen Rate $\dot{\sigma}_{ij}$, zur Temperatur T und zu einer Reihe weiterer Größen, sog. "Zustandsparameter" ϕ_k , die im allgemeinen selbst wiederum Funktionen der obigen Variablen sein können. Als Zustandparameter sind Größen zu verstehen wie: Korngröße, Legierungs- und Phasenzusammensetzung, Dichte von Gitterfehlern, etc.. Werkstoffe mit gleichen $\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_k$ sind im gleichen Zustand.

In differentieller Form beschreibt das System von simultanen Differentialgleichungen

$$d\epsilon_{ij} = G(\sigma_{ij}, \dot{\sigma}_{ij}, T, \phi_1, \phi_2, \dots, \phi_k) dt \quad (5)$$

$$d\phi_1 = H_1(\sigma_{ij}, \dot{\sigma}_{ij}, T, \phi_1, \phi_2, \dots, \phi_k) dt$$

$$\cdot$$

$$\cdot$$

$$\cdot$$

$$d\phi_k = H_k(\sigma_{ij}, \dot{\sigma}_{ij}, T, \phi_1, \phi_2, \dots, \phi_k) dt \quad (6)$$

das mechanische Material-"Verhaltens-Gesetz" (Constitutive Law). Es besteht aus dem "Fließgesetz" (Gl. (5)) und den "Zustandsparameter-Beziehungen" (Gl. (6)).

Während der plastischen Verformung ändern sich im allgemeinen auch einige der Zustandsparameter.

Das bedeutet aber: die Verformung $\epsilon_{ij}(t)$ kann aus den Gleichungen (5) und (6) nur durch simultane Integration ermittelt werden.

Ein sog. stationärer Verformungszustand setzt voraus, daß alle Zustandsparameter unabhängig sind von der Zeit t. Dann reduziert sich das Gleichungssystem (6) zu

$$\phi_1 = F_1(\sigma_{ij}, T, \phi_2, \dots, \phi_k)$$

$$\cdot$$

$$\cdot$$

$$\cdot$$

$$\phi_k = F_k(\sigma_{ij}, T, \phi_1, \dots, \phi_{k-1}) \quad (6a)$$

Dies ist ein System gewöhnlicher Simultan-Gleichungen. Aus deren Lösungen (eingesetzt in Gleichung (5)) und durch Integration von Gleichung (5) folgt schließlich die gesuchte Funktion $\varepsilon_{ij}(t)$. Die Ermittlung von $\dot{\varepsilon}_{ij}$ für konstante Zustandsparameter ist zwar die einfachste aber den praktischen Belangen meist entferntere Stufe des überaus komplizierten Problems.

Die Erstellung von Fließgesetzen und Zustands-Parameter-Beziehungen erfolgt an Hand von Experimenten. Diese werden Auskunft geben darüber, ob evt. eine vereinfachende Näherung an stationäre Verhältnisse wenigstens bereichsweise (d. h. für bestimmte Spannungs- und Temperaturbereiche) möglich ist.

Als einen konkreten Fall wählten wir das für Temperaturen $T \geq 0.4 T_s$ (wobei T_s die absolute Schmelztemperatur bedeutet) und "mittlere" Spannungen bewährte "Norton'sche"-Fließgesetz der stationären Verformung

$$\dot{\varepsilon}_0 = A(T) \sigma^n \quad (7)$$

darin ist $\dot{\varepsilon}_0$ die auf die Ausgangslänge l_0 der Zugprobe bezogene Verformungsgeschwindigkeit, σ die wahre Spannung und $n > 1$ (der sog. Spannungsexponent). Die Funktion $A(T)$ soll allein der Temperaturabhängigkeit von $\dot{\varepsilon}_0$ Rechnung tragen. Die Integration von Gleichung (7) erfolgt für $T =$ konstant unter den Voraussetzungen:

i) daß im Zugversuch unter konstanter Last gilt:

$$\sigma = \sigma(o) (1 + \varepsilon_0) \quad (8)$$

ii) daß die Zustandsparameter ϕ_k während der Verformung konstant und unabhängig von der Zeit (d. h. im gegebenen Fall auch unabhängig von der Spannung) sind.

Gleichung (8) eingesetzt in Gleichung (7) liefert

$$\int_{\varepsilon_{0,p}}^{\varepsilon_0} \frac{d\varepsilon_0}{(1 + \varepsilon_0)^n} = \int_{t_p=0}^t \dot{\varepsilon}_0(o) dt \quad (9)$$

wobei $\dot{\varepsilon}_0(o) = A(T) \sigma(o)^n = \dot{\varepsilon}_0(\varepsilon_0=0)$ die Anfangsverformungsgeschwindigkeit (im Augenblick nach dem Aufbringen der Last) bedeutet. Die Integration

selbst, erstreckt sich auf den stationären Bereich, d. h. für Dehnungen $\epsilon_o \geq \epsilon_{o,p}$ wobei $\epsilon_{o,p}$ den Primär-Dehnbereich bedeutet. Die obere Grenze für ϵ_o wird durch den Gültigkeitsbereich von Gleichung (8) (Volumenkonstanz) und somit von dem Stabilitätskriterium des Zugversuchs bestimmt (s. weiter unten). Die Integration liefert

$$\epsilon_o = \frac{1}{[(1 + \epsilon_{o,p})^{-(n-1)} - (n-1) \dot{\epsilon}_o(o) t]^{\frac{1}{n-1}}}, \quad (n > 1) \quad (10)$$

Für endliche Dehnungen muß sein $t \leq t_{\max}$ und gilt näherungsweise $t_{\max} \approx t_B$, wo t_B die Standzeit bedeutet, so folgt aus Gleichung (10):

$$t_{\max} \cdot \dot{\epsilon}_o(o) \approx t_B \cdot \dot{\epsilon}_o(o) = \frac{1}{(n-1) (1 + \epsilon_{o,p})^{n-1}} \quad (11)$$

Ein Ausdruck der an die Monkman-Grant-Beziehung erinnert, nämlich

$$t_B \cdot \dot{\epsilon}_{o,\min} = \text{konst.} \quad (12)$$

wo $\dot{\epsilon}_{o,\min}$ die minimale Kriechgeschwindigkeit bedeutet.

Untersuchungen haben gezeigt [6], daß die minimale Kriechgeschwindigkeit proportional ist zur stationären Kriechgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_s$ (gemessen im Kriechversuch unter konstanter Spannung). Übertragen auf den Kriechversuch unter konstanter Last für den $\dot{\epsilon}_{\min} = \dot{\epsilon}_s$, folgt:

$$\frac{\dot{\epsilon}_o(o)}{\dot{\epsilon}_{o,\min}} = B = \text{konst.} \quad (13)$$

Dies eingesetzt in Gleichung (11) ergibt die Monkman-Grant-Beziehung:

$$t_{\max} \cdot \dot{\epsilon}_{o,\min} \approx t_B \cdot \dot{\epsilon}_{o,\min} = \frac{1}{B (n-1) (1 + \epsilon_{o,p})^{n-1}} = \text{konst.} \quad (14)$$

Die Kombination der Gleichung (10), (11) und (12) ergibt schließlich

$$\epsilon_o = \frac{1 + \epsilon_{o,p}}{(1 + t/t_B)^{\frac{1}{n-1}}} - 1 \quad \text{für } t < t_B \text{ und } n > 1 \quad (15)$$

Daraus folgt für $\epsilon_{o,p} \ll 1$ das Fließgesetz in der Form:

$$\dot{\epsilon}_0 = \frac{\dot{\epsilon}_0(o)}{\left[1 - \frac{t}{t_B}\right]^{\frac{1}{1-1/n}}} \quad \text{für } t < t_B \text{ und } n > 1 \quad (16)$$

mit

$$\dot{\epsilon}_0(o) = B \dot{\epsilon}_{0,\min} = A(T) \sigma(o) \quad (17)$$

Die Gleichungen (15) und (16) können ebenfalls für den "biaxialen" Rohr-Berst-Versuch verwendet werden, indem die Dehn-Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_0$ durch die tangentielle Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_{0,\theta}$ und n durch $2n$ ersetzt wird.

Die Zeit t_{\max} könnte etwa aus den gemessenen Kriechkurven abgeschätzt werden, indem aus diesen der (endliche!) $\dot{\epsilon}_0(t_B)$ -Wert für t_B bestimmt wird.

Dieser wird dann zusammen mit t_B in Gleichung (16) eingesetzt und daraus $t = t_{\max} < t_B$ ermittelt. Ein Vergleich der gemessenen und der gemäß Gleichung (15) berechneten Kriechkurve wird letztlich zeigen, inwieweit ein solches Vorgehen im Rahmen der obigen Voraussetzungen überhaupt gerechtfertigt ist. In diesem Zusammenhang scheinen die nachfolgenden Bemerkungen angebracht:

A) Zur Stabilität des Zugversuchs

Die mit Gleichung (8) gemachte Annahme setzt eine gleichförmige Probendehnung voraus, d. h. ist y die Koordinate der Probenachse in Zugrichtung, so ist für gleichförmige Verformung $\epsilon_0 \neq \epsilon_0(y)$. Selbst für Proben, die zu Beginn der Verformung keinerlei Schwankungen des "äußeren" Querschnitts aufweisen und für die demzufolge die angelegte Spannung σ entlang der Probenachse (d. h. $\sigma \neq \sigma(y)$) konstant ist, erfolgt im allgemeinen die Dehnung ungleichförmig. "Innere" Ursachen (z. B. Veränderung des effektiven Querschnitts durch Cavitation) sind der Grund dafür. Im Realfall bewirken "äußere" und "innere" Ursachen diese Ungleichförmigkeit. Die mit der $\epsilon_0(y)$ -Verteilung verbundene Spannungsverteilung $\sigma(y)$ bewirkt eine Geschwindigkeitsverteilung $\dot{\epsilon}_0(y)$. Diese Verteilungen - da abhängig von der aktuellen Probenform und dem "inneren" Zustand - sind verformungs- und damit auch zeitabhängig. Dies bedeutet, daß $\sigma(\epsilon)$ mittels Gleichung (8) nicht mehr adäquat beschrieben wird.

Die Theorie des Zugversuchs [7] liefert Kriterien, an Hand derer die "Gleichförmigkeit" der Dehnung beurteilt und somit letztlich der Integrationsbereich

in Gleichung(9) abgesteckt werden kann. Im folgenden wird darauf kurz eingegangen.

Ausgehend vom "Fließ-Gesetz" in der Form

$$\sigma = B(T) \epsilon^\alpha \dot{\epsilon}^m \quad (18)$$

wobei ϵ die wahre Dehnung und $\dot{\epsilon}$ die wahre Dehngeschwindigkeit bedeuten.

$B(T)$ beschreibt die Temperaturabhängigkeit der wahren Spannung σ , α und m sind Konstanten.

Aus Gleichung (18) folgt für $T = \text{konst.}$:

$$d \ln \sigma = \frac{d\sigma}{\sigma} = \alpha d \ln \epsilon + m d \ln \dot{\epsilon} \quad (19)$$

daraus

$$\alpha \equiv \left(\frac{\partial \ln \sigma}{\partial \ln \epsilon} \right)_{\dot{\epsilon}} \quad (\text{logarithmischer Verfestigungskoeffizient}) \quad (20)$$

und

$$m \equiv \left(\frac{\partial \ln \sigma}{\partial \ln \dot{\epsilon}} \right)_{\epsilon} = \frac{1}{n} \quad (\text{Geschwindigkeitsexponent}) \quad (21)$$

i) Für den Kriechversuch unter konstanter Spannung d. h. $d\sigma = 0$ folgt aus Gleichung (19)

$$0 = \frac{\alpha}{\epsilon} + m \cdot \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon} = \gamma + m \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon} \quad (22)$$

und daraus

$$\frac{1}{m_s} = n_s = - \frac{1}{\gamma} \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon} > 0 \quad (23)$$

wobei n_s der Spannungsexponent für den Kriechversuch unter konstanter Spannung ist und

$$\gamma = \frac{\theta_{\dot{\epsilon}}}{\sigma} = \frac{1}{\sigma} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \dot{\epsilon}} \right)_{\epsilon} \quad (24)$$

Aus der Theorie des Zugversuches [7] folgt, daß die Dehnung gleichförmig, d. h. ohne makroskopische Einschnürung verläuft (Verformung ist stabil), solange gilt:

$$\frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon} = 1 \quad (\text{Stabil}) \quad (25)$$

Das Ergebnis einer, anhand der Gleichung (23) und Gleichung (25) durchgeführten Analyse ist in der Abb. 4235.24 wiedergegeben.

- ii) Für den Kriechversuch unter konstanter Last L folgt aus Gleichung (19) mit dem Ansatz $\sigma(\epsilon) = \sigma_0 (1 + \epsilon_0)$, und für $\epsilon \ll 1$ die Bedingung:

$$\frac{1}{m_L} = n_L = \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon} \left(\frac{1}{1-\gamma} \right) > 0, \quad (\gamma \neq 1) \quad (26)$$

Das Ergebnis der Analyse anhand des Stabilitätskriteriums kann der Abb. 4235.24 entnommen werden.

Die in diesem Zusammenhang wesentlichste Schlußfolgerung lautet:

Die Auswertung von Zugkriechversuchen unter konstanter Last gemäß der Abb. 4235.25 führt zu Spannungsexponenten, die in der Regel größer sind als eins. Dies bedeutet auf Grund obiger Analyse, daß (unabhängig von der Versuchsführung) für Dehnungen $\epsilon \geq \epsilon_p$, d. h. bereits im "stationären" Bereich, die Zugverformung instabil wird. Davon zeugt z. T. auch die Tatsache, daß in vielen Fällen der Proportionalitätsbereich $\ln \dot{\epsilon}_0 \sim \epsilon$ fehlt. In Fällen, in denen ein solcher Bereich existiert (wobei $n > 1$), ist die $\dot{\epsilon}_0(\gamma)$ -Verteilung offensichtlich sehr "flach" und zunächst kaum verformungsabhängig, so daß in dieser Darstellung die Instabilität nicht ausgeprägt zur Geltung kommt. In solchen Fällen dürfte die Gleichung (8) in 1. Näherung z. T. auch für die Dehnungen oberhalb ϵ_p gültig sein. (Kriechversuche mit gleichlaufender Untersuchung der Probenformänderung sind in diesem Zusammenhang wünschenswert).

B) Zum Einfluß der Zustandsparameter

Die bei höheren Temperaturen ($T > 500^\circ\text{C}$) ablaufenden Zustandsänderungen sind:

- die Rekristallisation im T-Bereich $600-700^\circ\text{C}$
- die Phasenumwandlung oberhalb 820°C

- das Kornwachstum oberhalb 900°C.

Die Kenntnis der Einflußnahme dieser Vorgänge auf die plastische Verformung ist insbesondere im Hinblick auf den temperaturtransienten Charakter eines Störfallablaufs von grundsätzlicher Bedeutung.

Die Untersuchung des Einflusses der Rekristallisation bereitet versuchstechnisch die relativ geringsten Schwierigkeiten. Die beiden restlichen Prozesse versuchstechnisch zu "entkoppeln", dürfte wohl nur in schmalen Grenzen möglich sein.

In Hinblick auf die Rechenmodell-Entwicklung und Verifizierung sind Versuche mit zeitkonstanten Zustandsparametern ϕ_k zunächst vorzuziehen. Dazu sollten - dem obigen zufolge - Verformungsversuche im α -Phasenbereich an rekristallisierten Proben besonders geeignet sein.

6. Geplante Weiterarbeit

1. Untersuchung des Verformungsverhaltens von ZrO₂-Schichten (Verbund-Werkstoff Zry-4/ZrO₂).
2. Untersuchungen zur Bruchmorphologie.
3. Durchführung von isothermen Kriechversuchen
 - a) in oxidierender Atmosphäre
 - b) mit voroxidierten Proben im Vakuum.
4. Durchführung von temperaturtransienten Zug-Kriechversuchen
5. Isotherme Rohrberstversuche an voroxidierten Prüflingen.

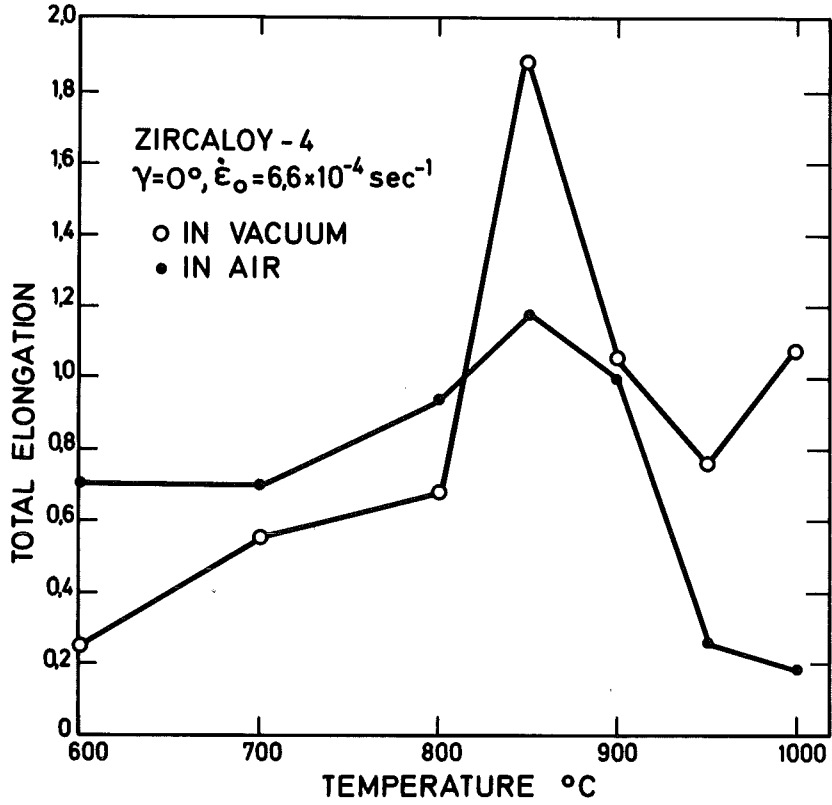


Abb. 4235-1: Gesamtdehnung in Abhängigkeit von der Temperatur.

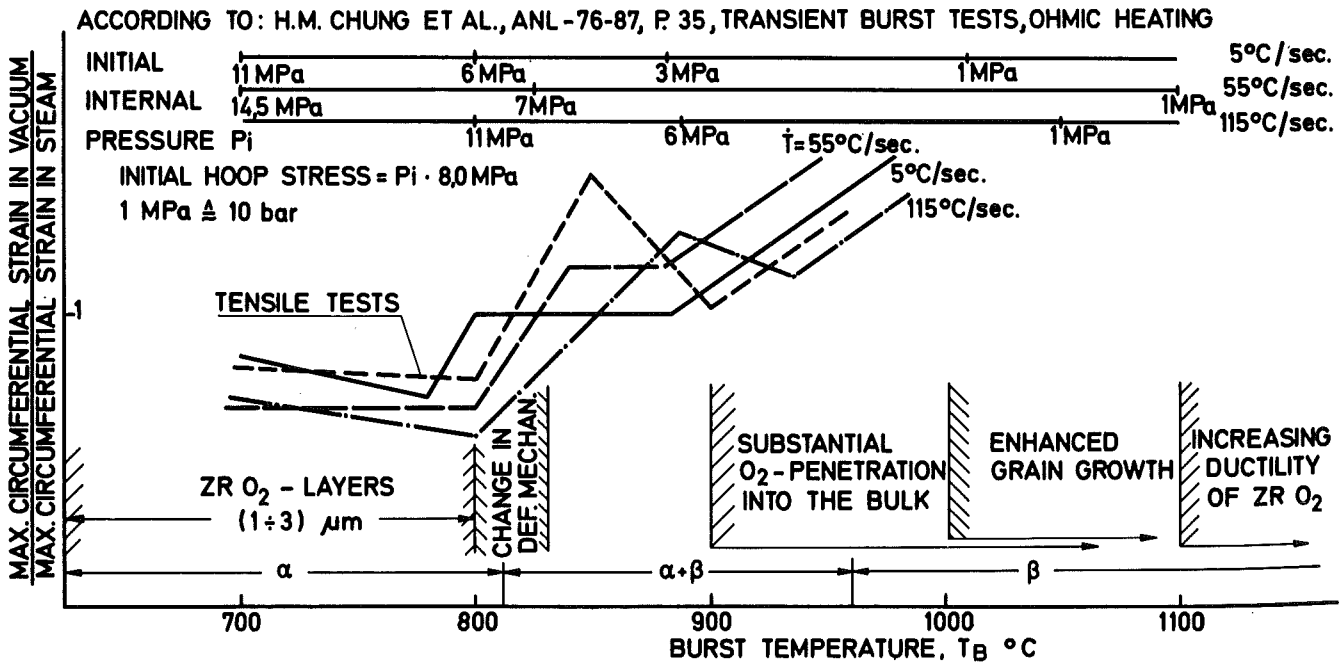
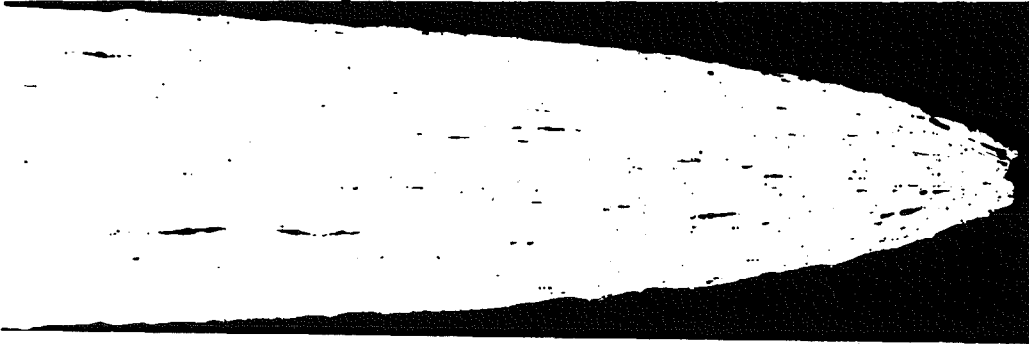


Abb. 4235-2: Einfluß der Atmosphäre auf die Umfangsdehnung von Zry-4 Hüllrohren (schematisch).

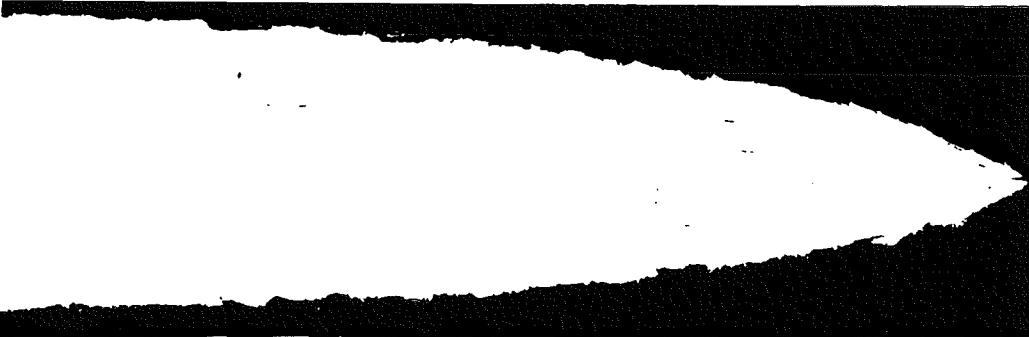
ZRY -4, $\gamma = 0^\circ$, $\dot{\epsilon}_0 = 1,3 \times 10^{-2} \text{ sec}^{-1}$, $T = 700^\circ \text{C}$ $\longleftarrow 50 \mu\text{m}$



a)

IN VACUUM,

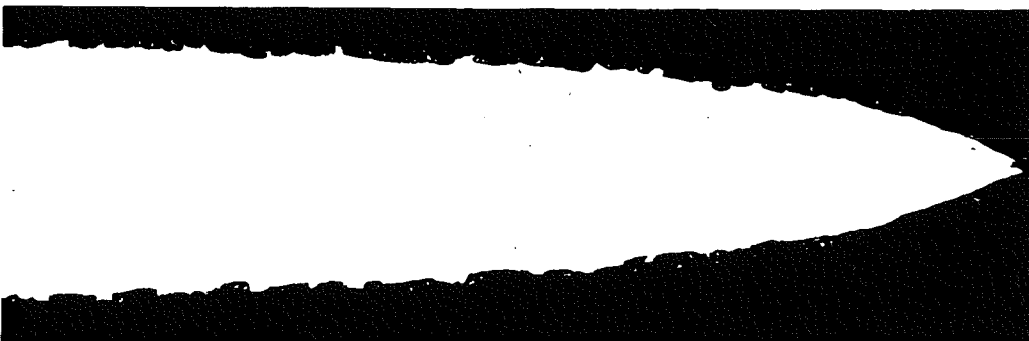
$\epsilon_{\text{tot}} = 0,34$



b)

PREOXIDIZED (ZR O₂ : 1 ÷ 3 μm), TEST IN VACUUM

$\epsilon_{\text{tot}} = 0,45$



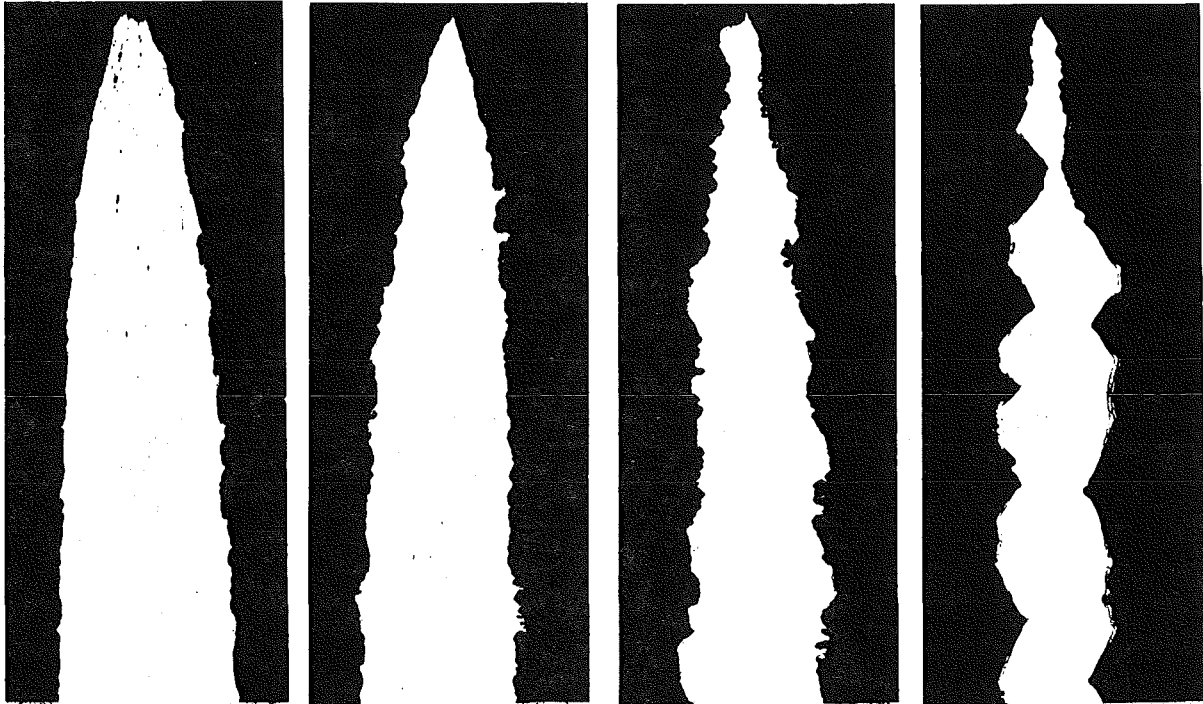
c)

TEST IN AIR (ZR O₂ : 1 ÷ 3 μm)

$\epsilon_{\text{tot}} = 0,92$

Abb. 4235.3: Metallographische Aufnahme von Flachzugproben (Längsschliffe), verformt in unterschiedlichen Zuständen.

ZIRCALOY - 4, $\gamma = 0^\circ$, $\dot{\epsilon}_0 = 6,6 \times 10^{-4}$ [sec⁻¹] \dashv 50 μ m
 $T_D = 600^\circ\text{C}$ $\epsilon_{\text{tot}} = 0,56$ 700°C 0,75 800°C 0,51 850°C IN AIR 0,64

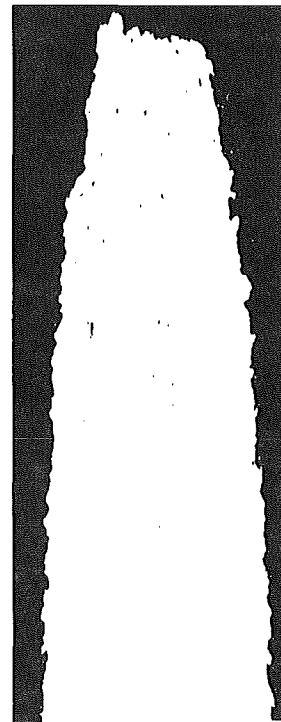
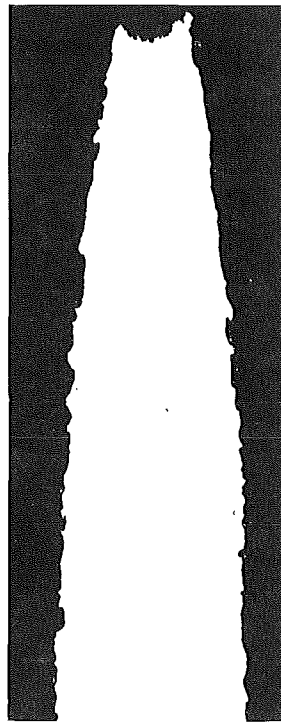
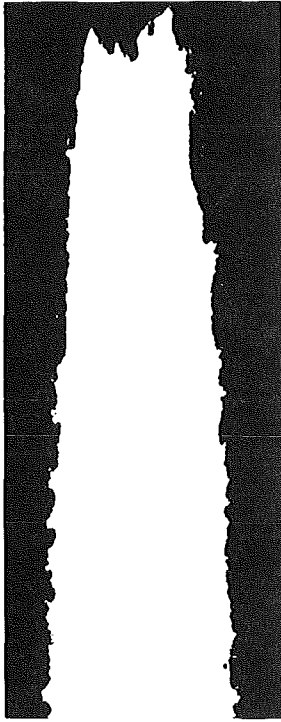


$T_D = 600^\circ\text{C}$ $\epsilon_{\text{tot}} = 0,24$ 700°C 0,35 800°C 0,68 850°C IN VACUUM 0,83

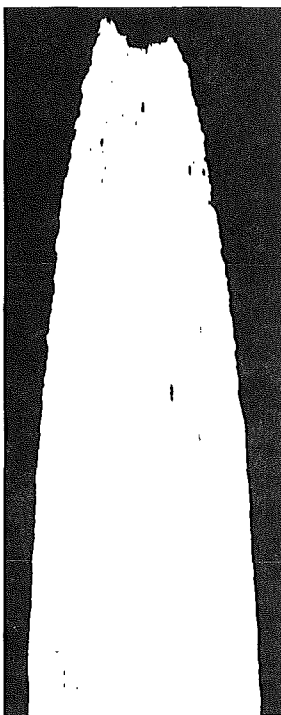


Abb. 4235.4: Metallographische Aufnahmen von Flachzugproben (Längsschliffe) verformt bei unterschiedlichen Temperaturen in Luft und Vakuum.

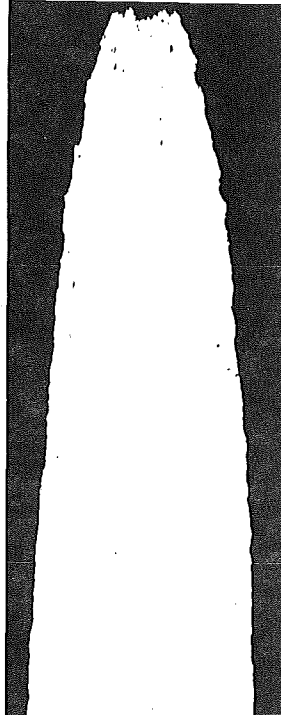
ZIRCALOY - 4, $\gamma = 0^\circ$, $T_D = 700^\circ\text{C}$ $\rightarrow 50 \mu\text{m}$
 $\dot{\epsilon}_0 = 3,3 \times 10^{-3} [\text{sec}^{-1}]$ $3,3 \times 10^{-2} [\text{sec}^{-1}]$ $2,4 \times 10^{-1} [\text{sec}^{-1}]$ IN AIR



$\dot{\epsilon}_0 = 3,3 \times 10^{-3} [\text{sec}^{-1}]$



$3,3 \times 10^{-2} [\text{sec}^{-1}]$



$3,0 \times 10^{-1} [\text{sec}^{-1}]$ IN VACUUM

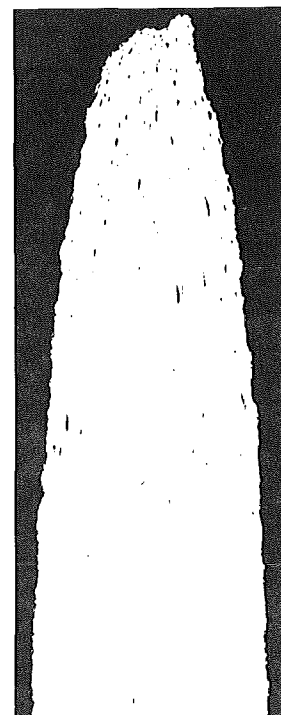


Abb. 4235.5: Metallographische Aufnahmen von Flachzugproben (Längsschliffe) verformt bei unterschiedlichen Verformungsgeschwindigkeiten in Luft und Vakuum.

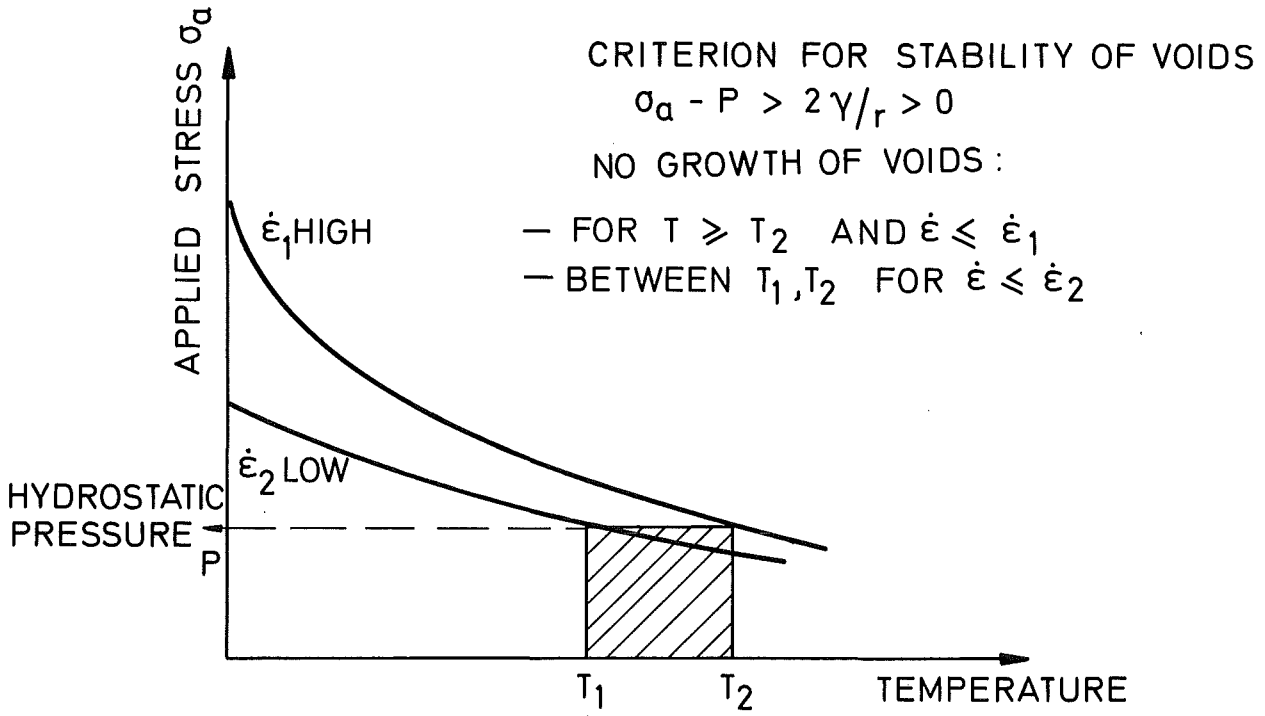


Abb. 4235.6: Zur Stabilität von Poren.

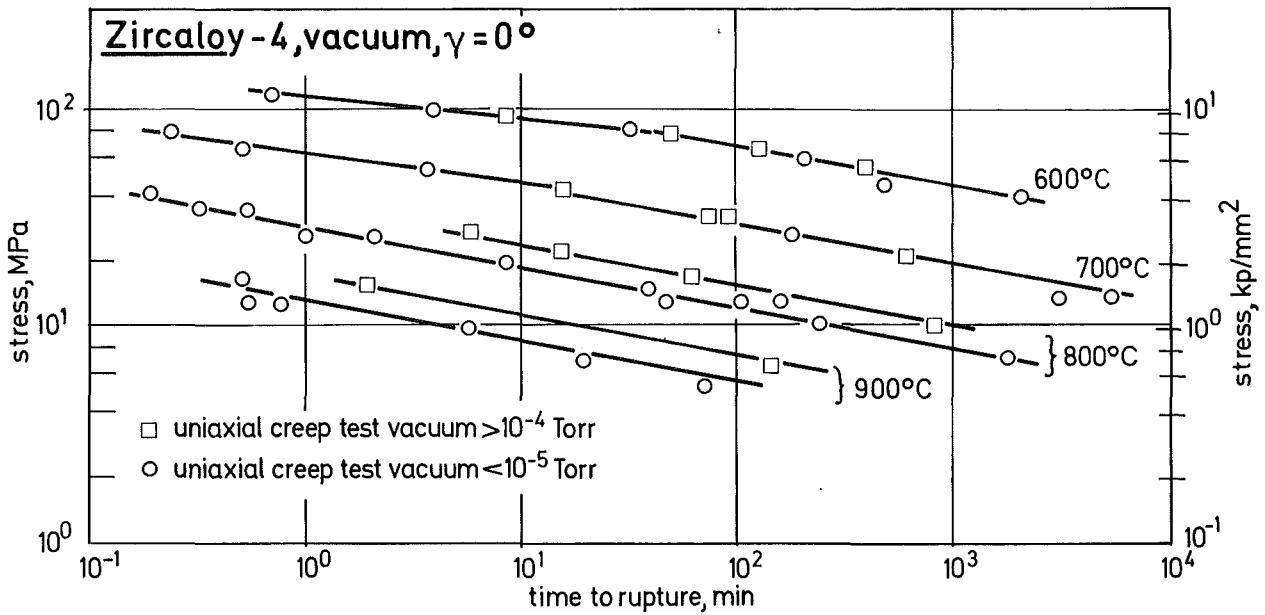


Abb. 4235.7: Zeitstandverhalten von Zry-4 Flachzugproben.

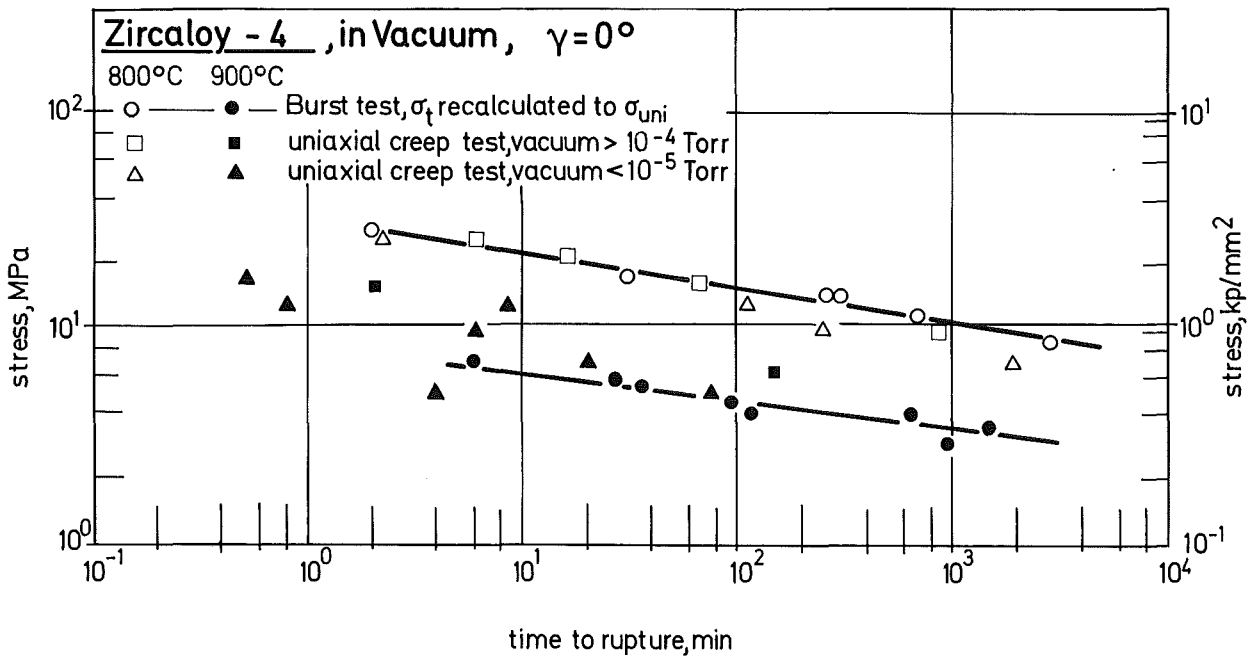


Abb. 4235.8: Zeitstandverhalten von Zry-4 Flachzug- und Rohrproben.

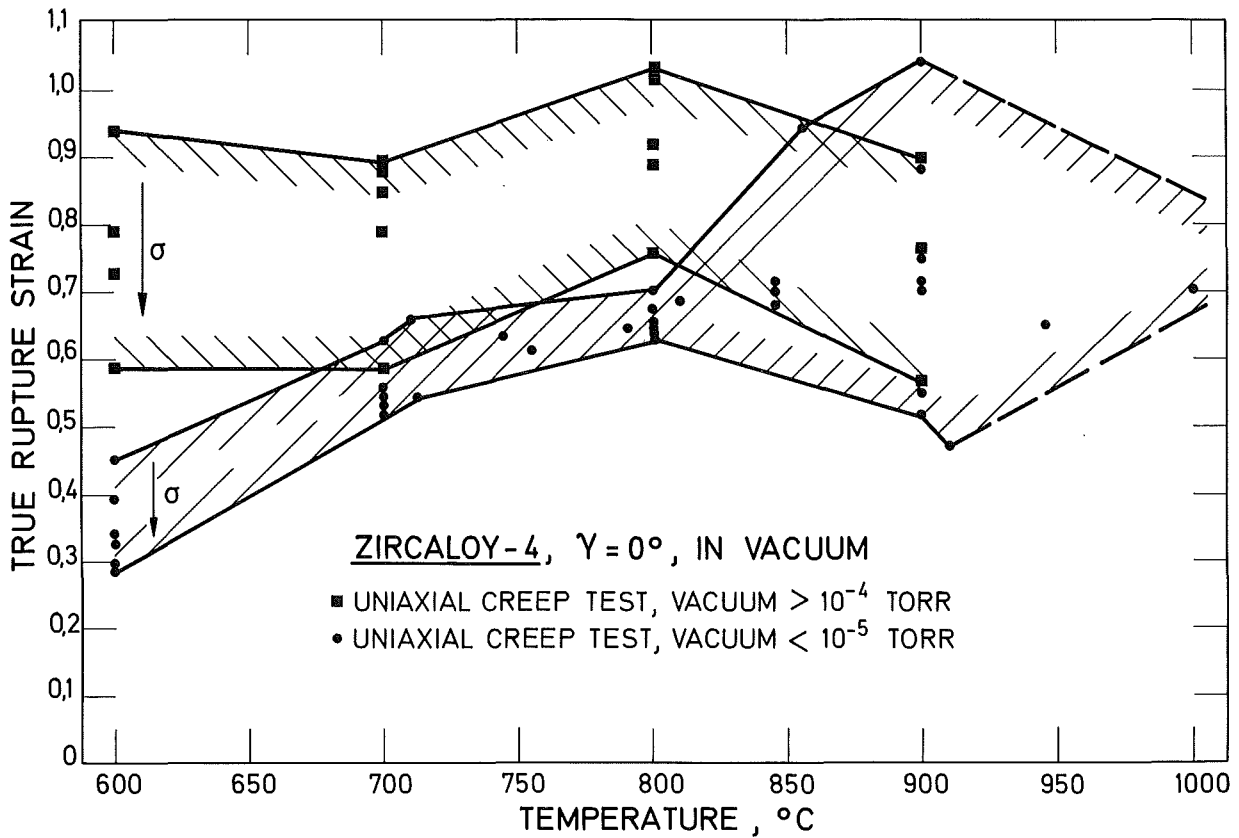


Abb. 4235.9: Temperaturabhängigkeit der Kriech- Bruch-Dehnung.

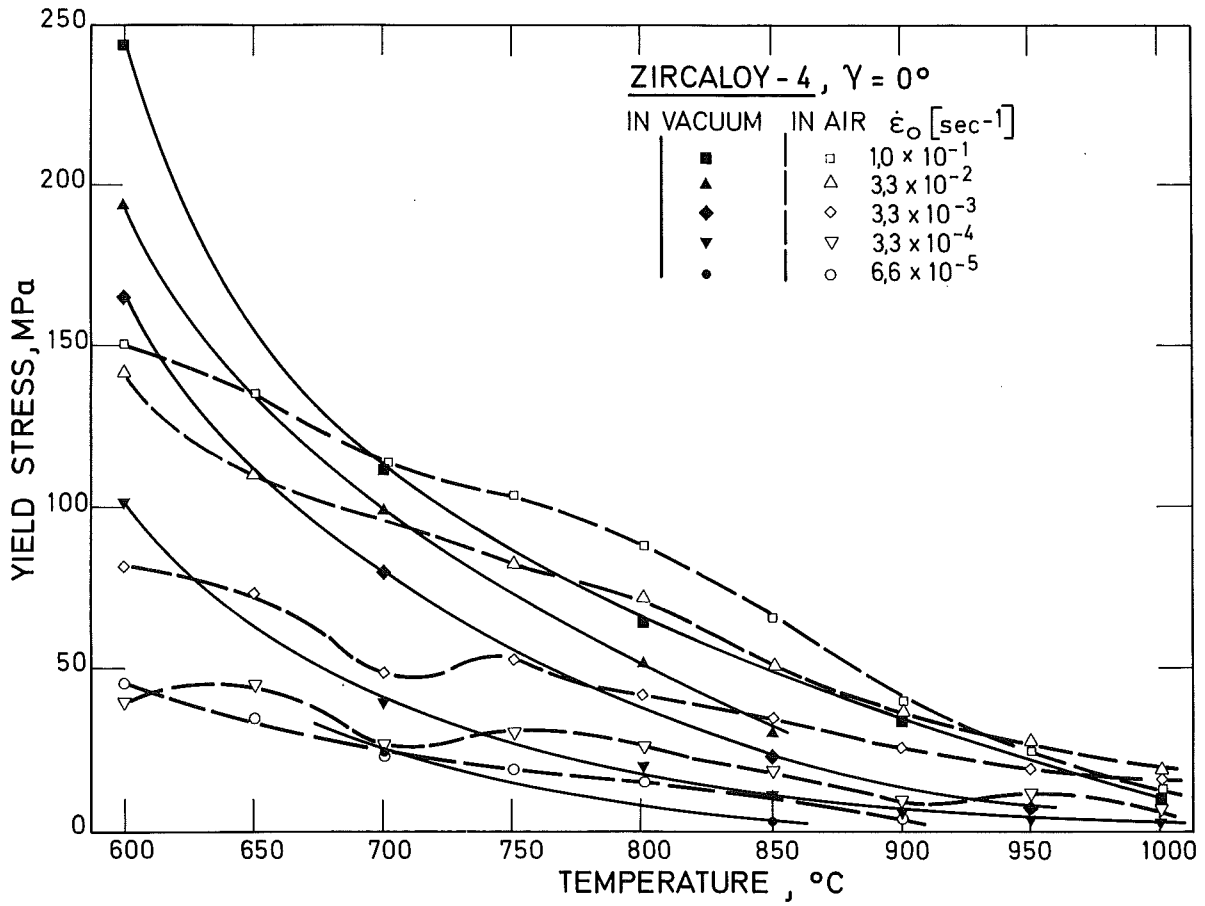


Abb. 4235.10: Temperaturabhängigkeit der Fließspannung.

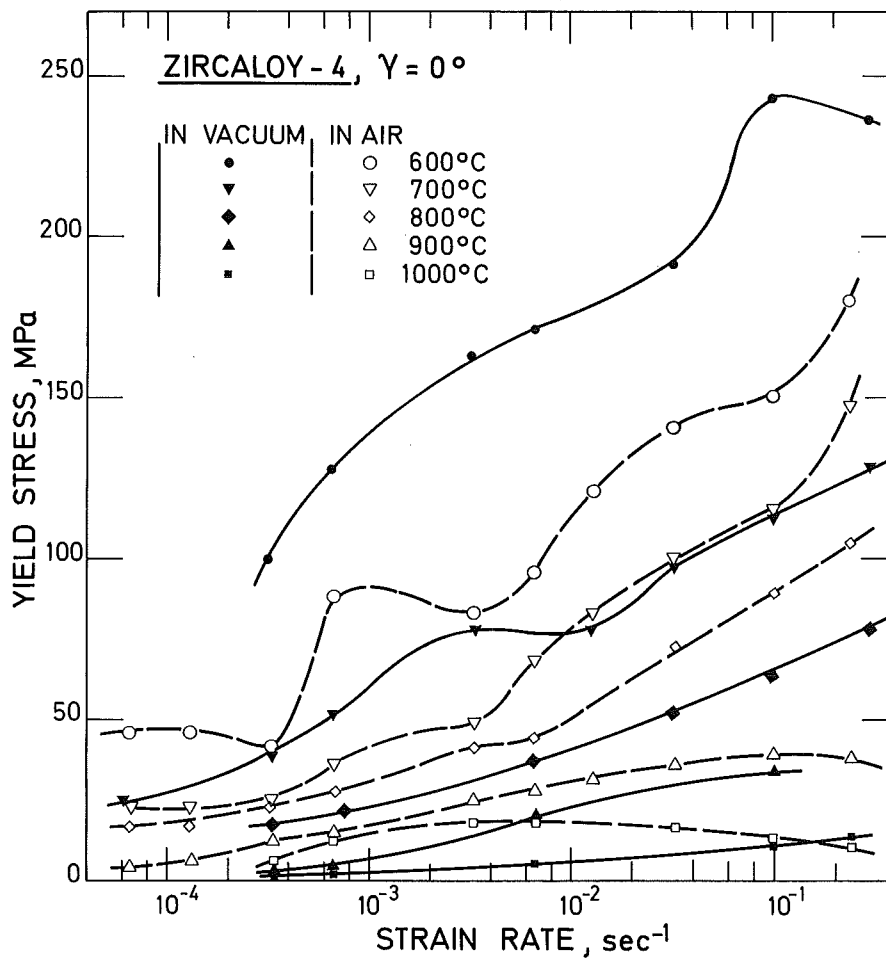


Abb. 4235.11: Abhängigkeit der Fließspannung von der Verformungsgeschwindigkeit.

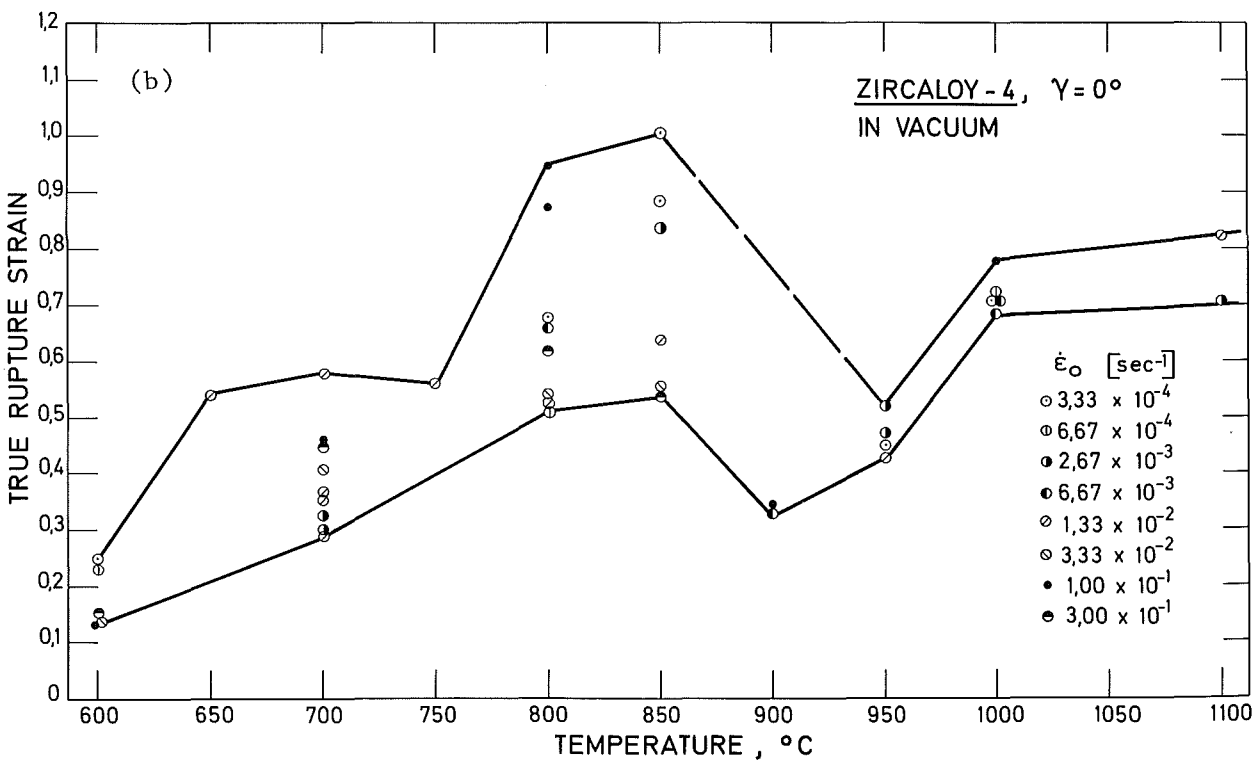
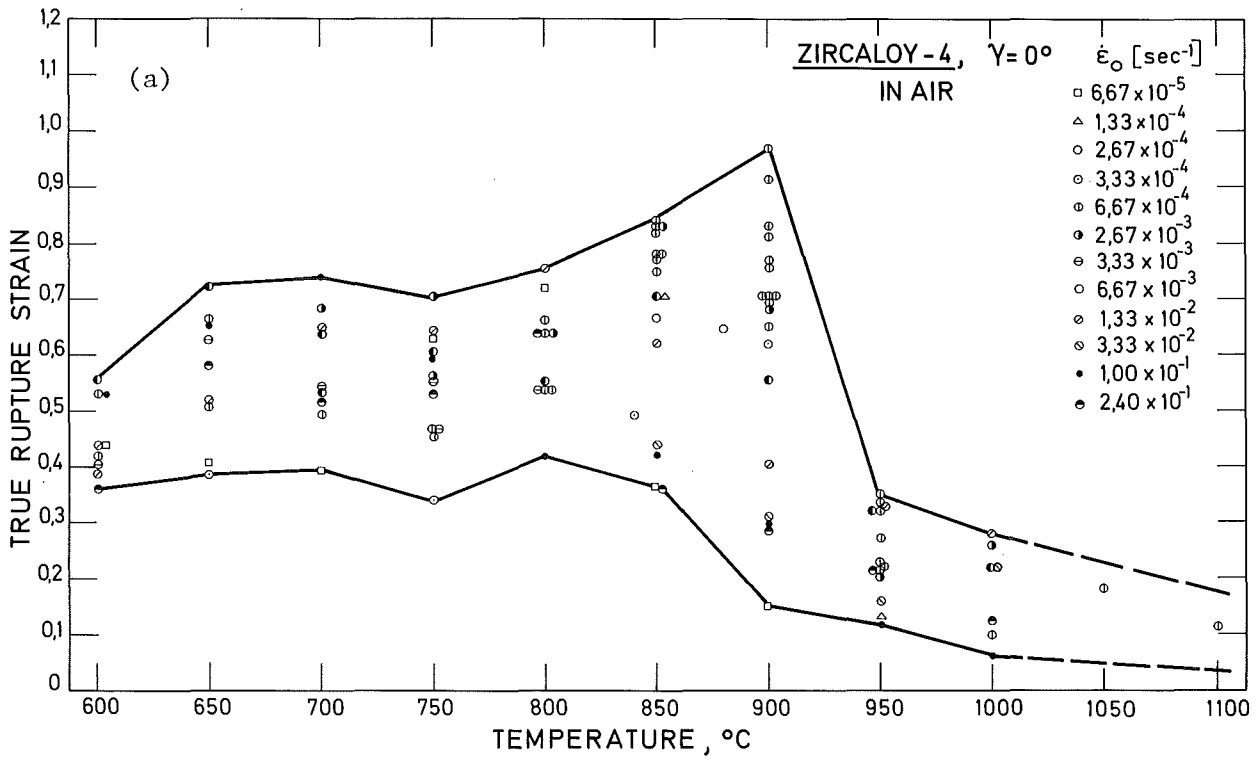


Abb. 4235.12 Temperaturabhängigkeit der Dehnung für unterschiedliche Verformungsgeschwindigkeiten in Luft (a) und Vakuum (b).

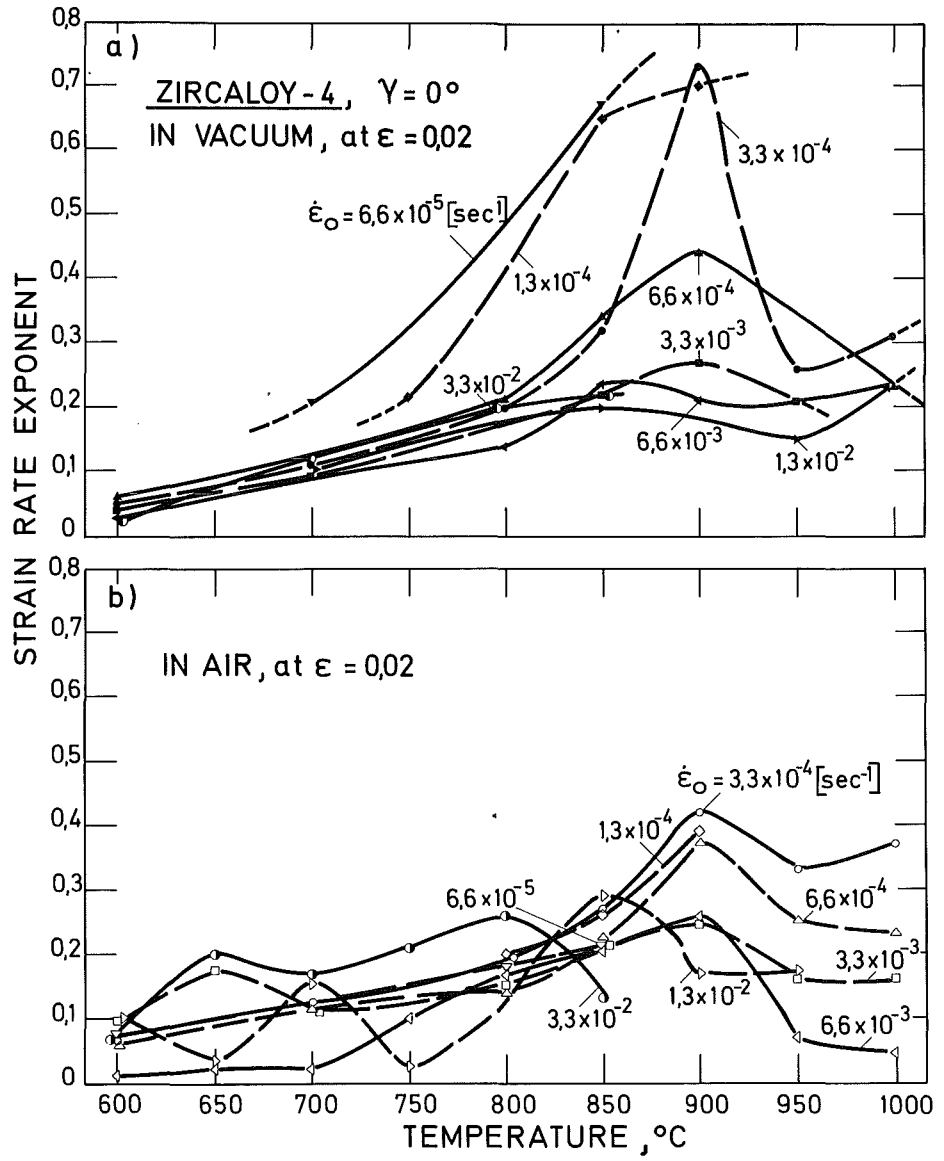


Abb. 4235.13 a: Temperaturabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten für unterschiedliche Verformungsgeschwindigkeiten.

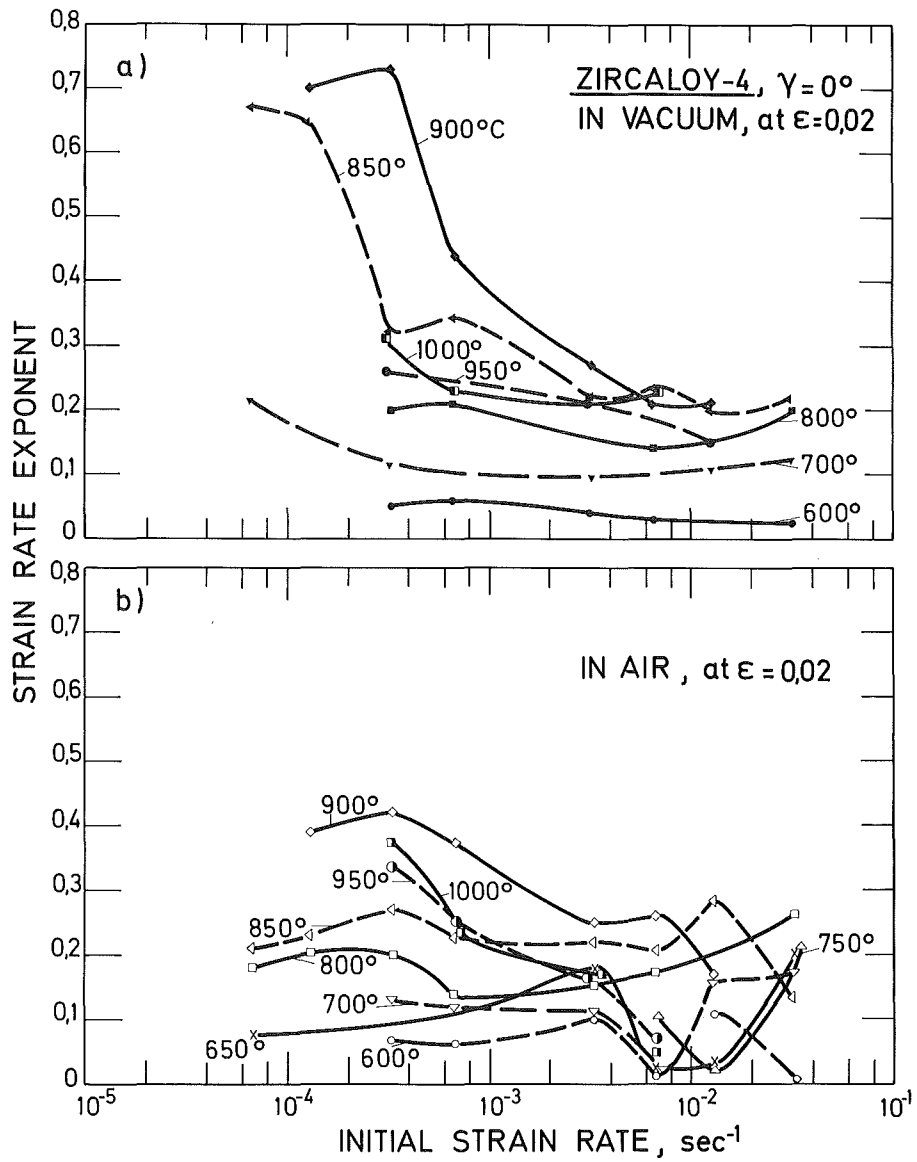


Abb. 4235.13 b: Abhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten von der Verformungsgeschwindigkeit für unterschiedliche Temperaturen.

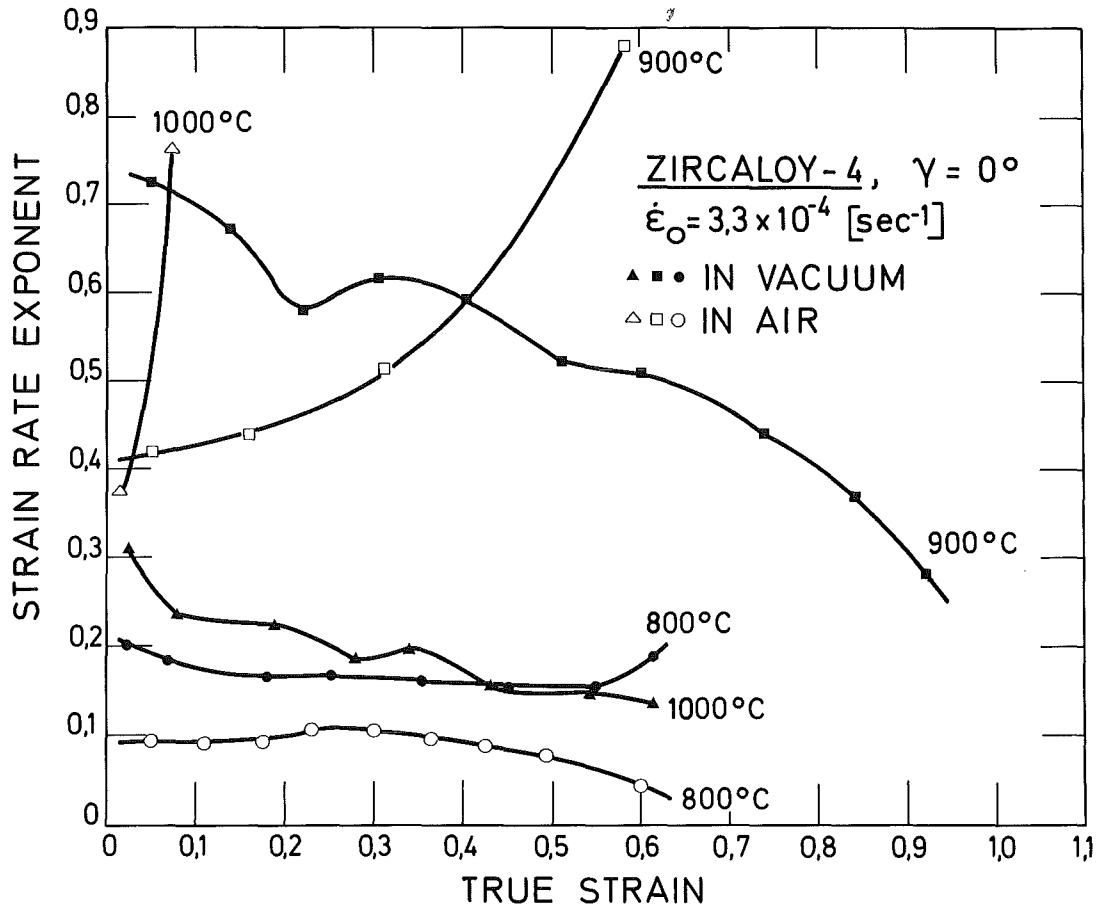


Abb. 4235.14: Verformungsabhängigkeit des Geschwindigkeitsexponenten bei unterschiedlichen Temperaturen.

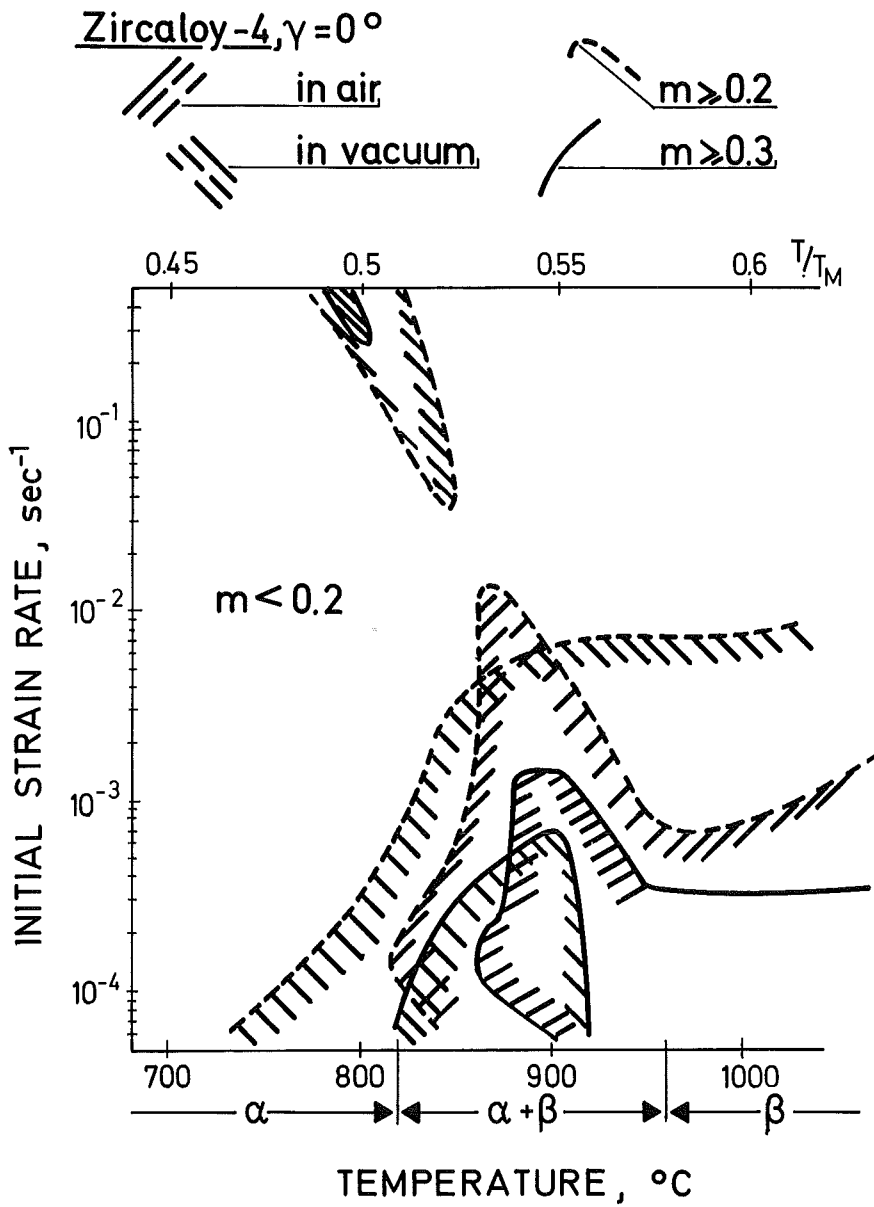


Abb. 4235.15: Einfluß der Verformungstemperatur und -geschwindigkeit auf den Geschwindigkeitsexponenten (Halbschematisch).

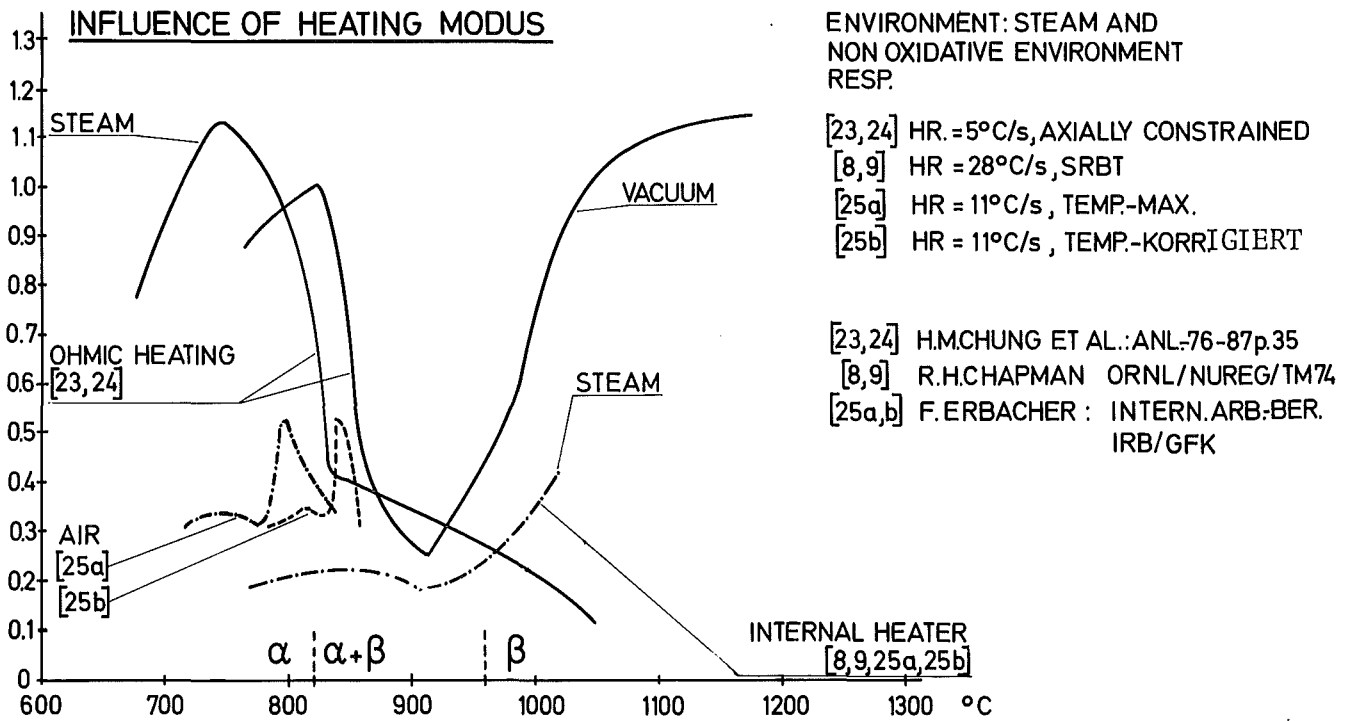


Abb. 4235.16: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (Einfluß der Beheizungsart).

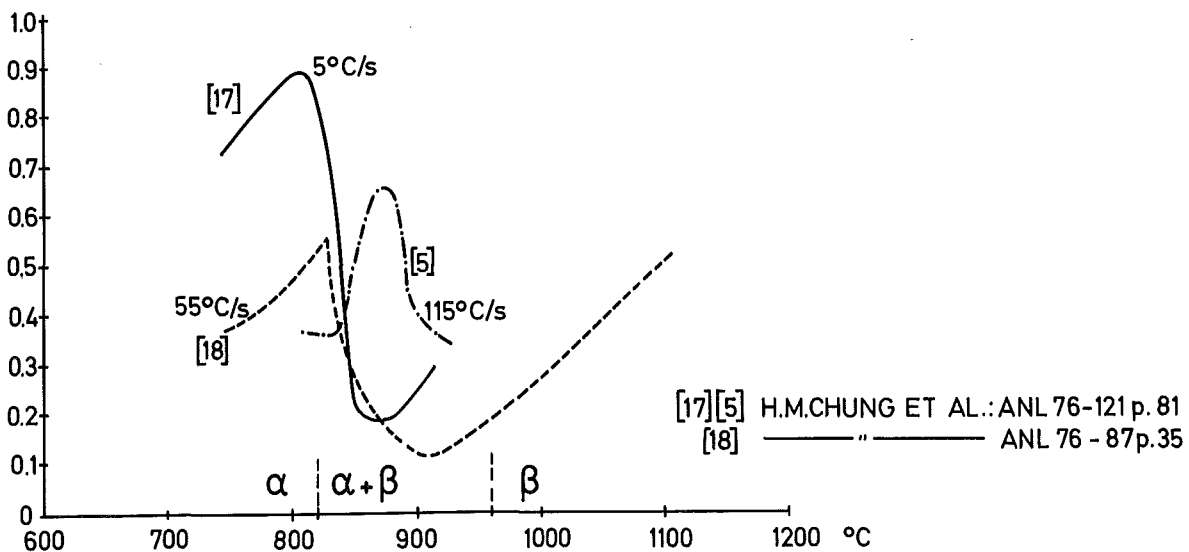
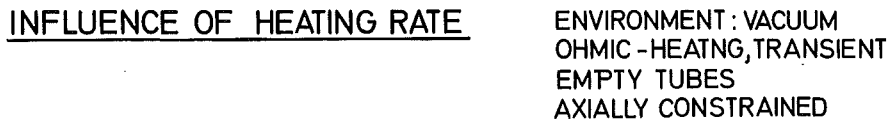


Abb. 4235.17: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (Einfluß der Heizrate).

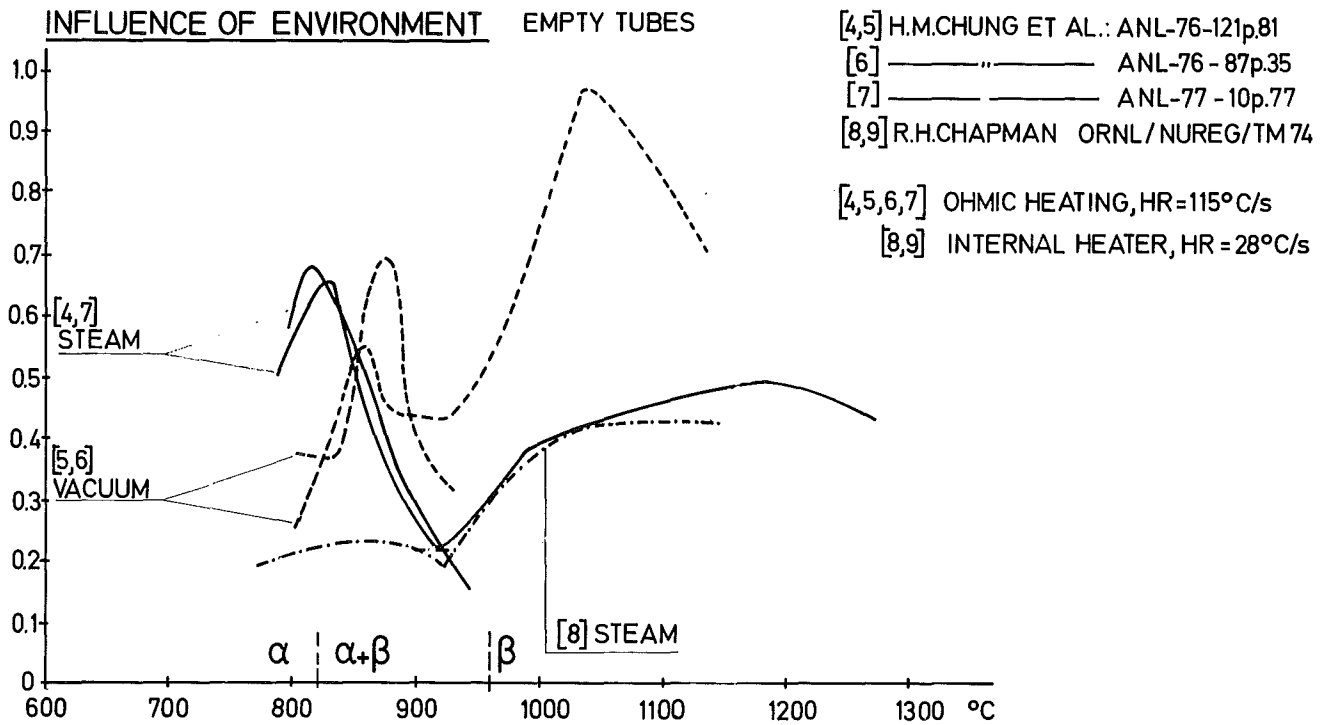


Abb. 4235.18: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (Einfluß der Außenatmosphäre).

INFLUENCE OF PREOXYDATION ENVIRONMENT : VACUUM
 OHMIC HEATING(TRANSIENT), HR.=115°C/s
 EMPTY TUBES
 AXIALLY CONSTRAINED

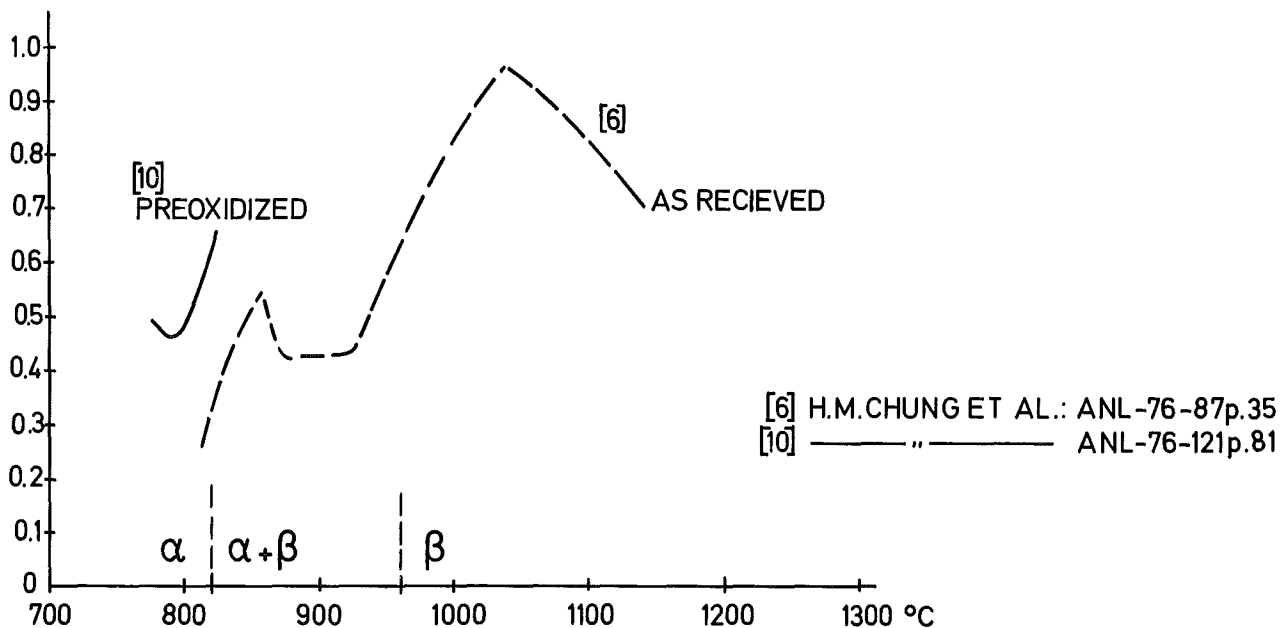


Abb. 4235.19: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (Einfluß der Voroxidation).

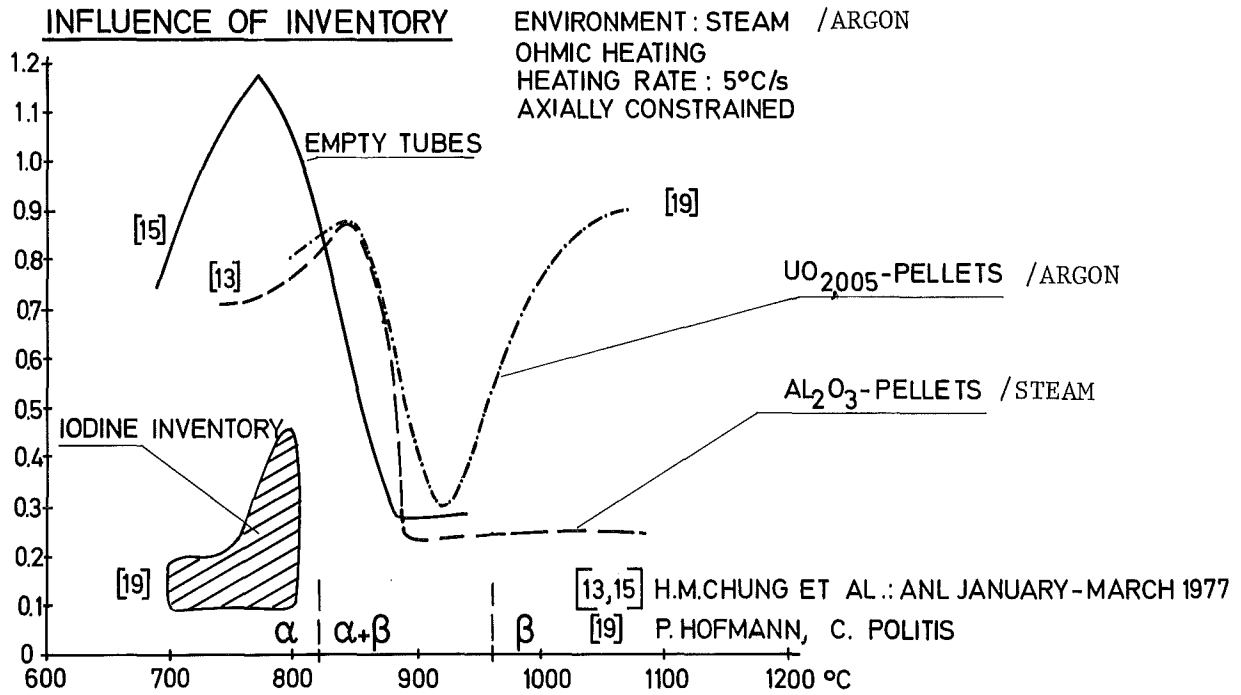


Abb. 4235.20: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (Einfluß der "Rohrfüllung").

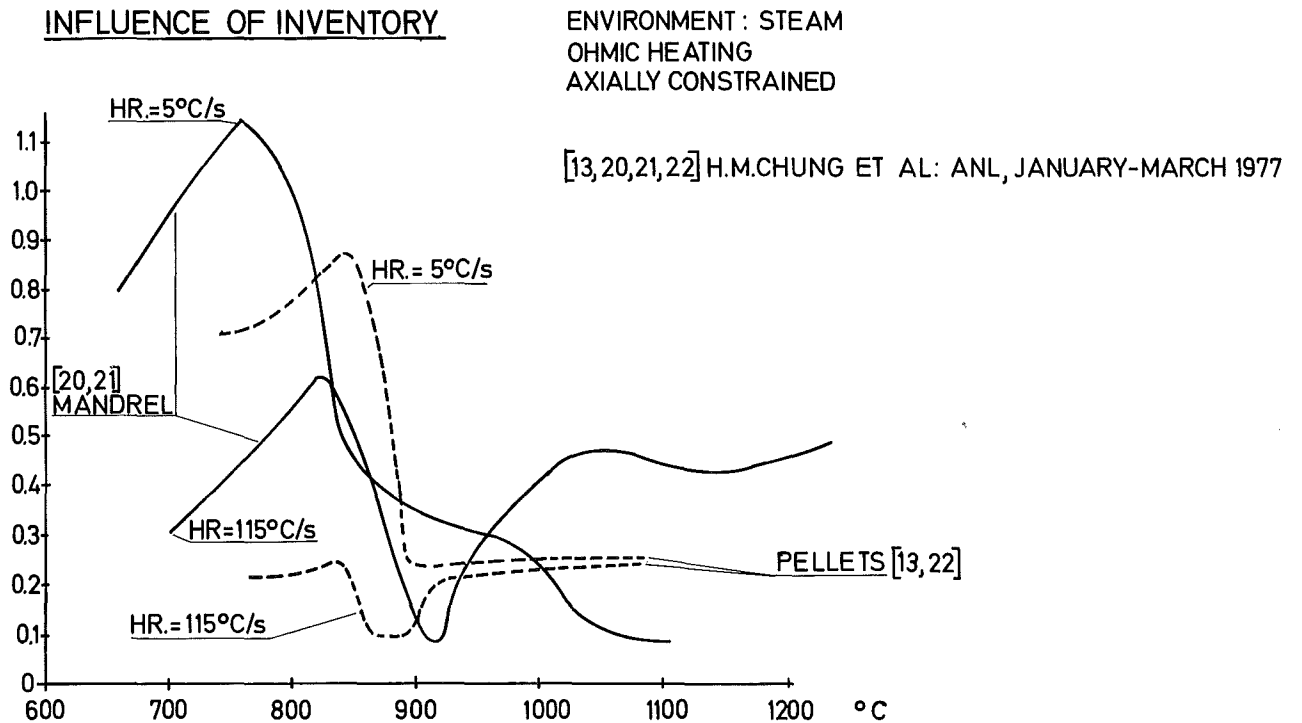


Abb. 4235.21: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (Einfluß der "Rohrfüllung").

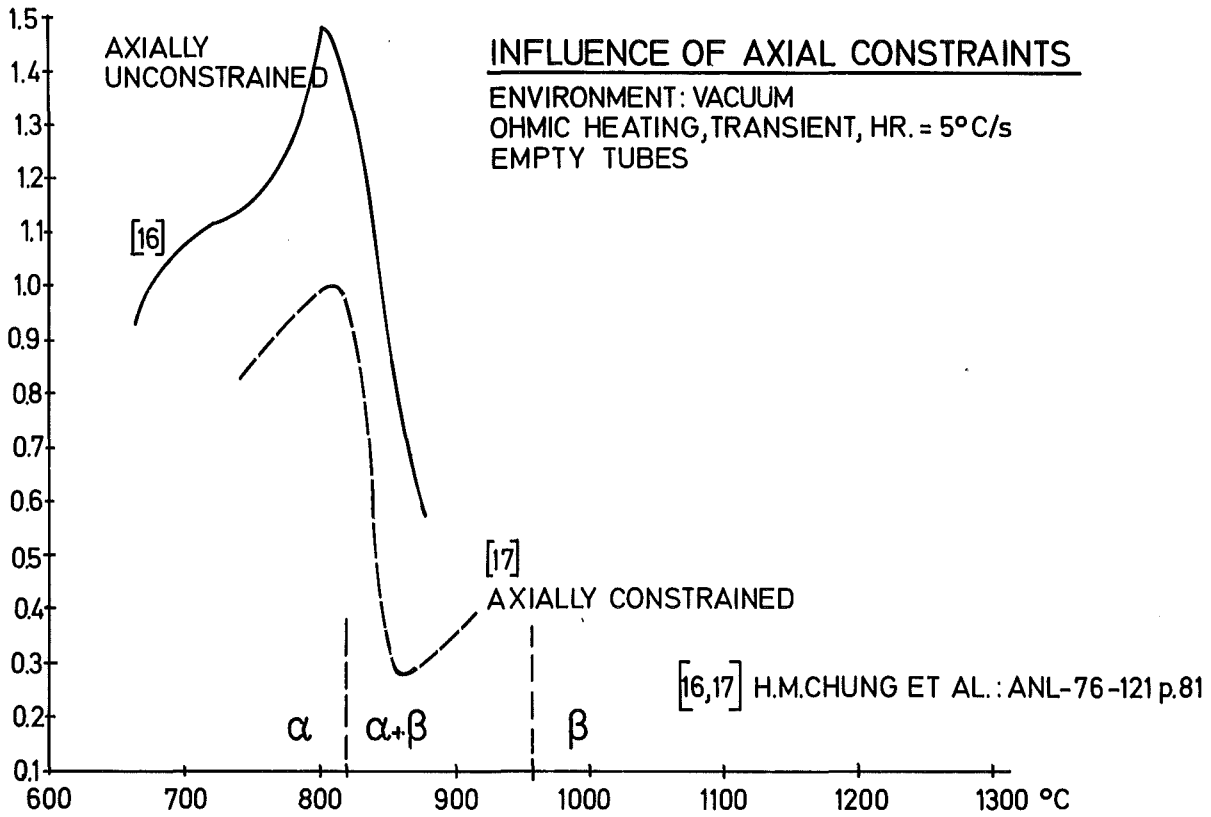


Abb. 4235.22: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (Einfluß geometrischer Restriktionen).

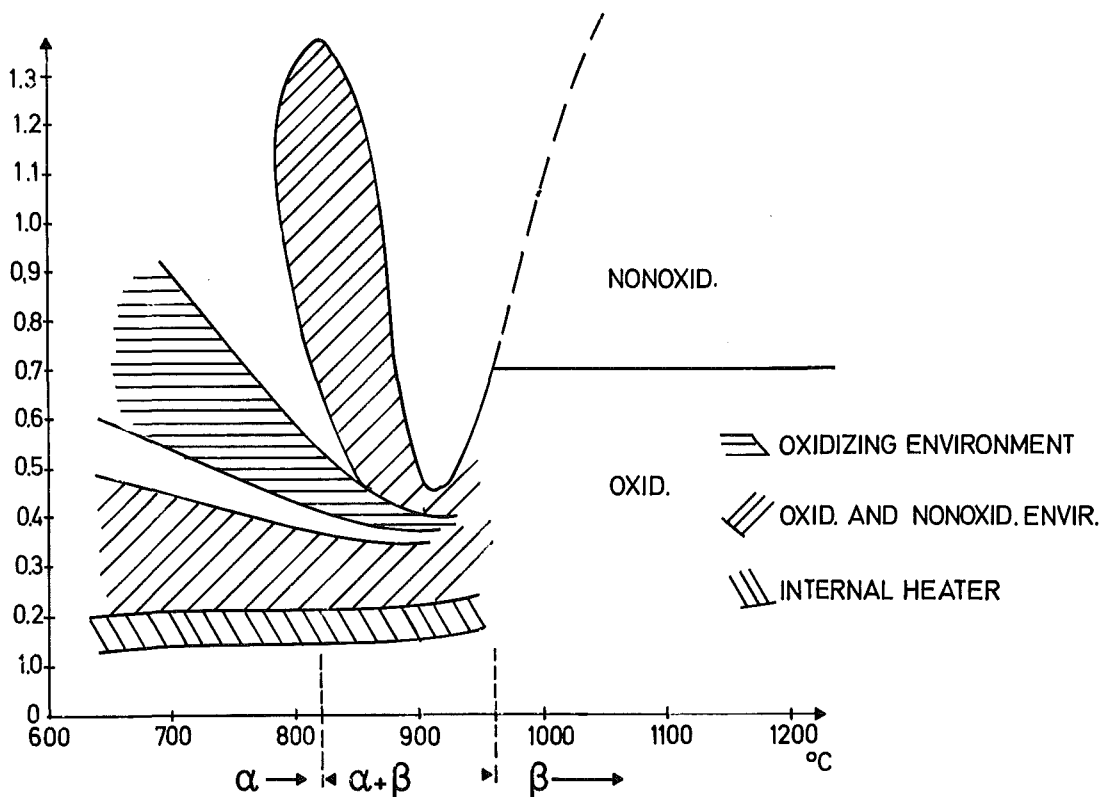


Abb. 4235.23: Maximale Umfangsdehnung gegen Bersttemperatur (schematisch).

TENSILE "CONSTANT STRESS" CREEP TEST (TCSCT)

γ	$\frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon}$	n_{SL}	FOR	STATUS	APPROPRIATE FOR n-EVALUATION	PLASTIC BEHAVIOR
> 0	< 0	≥ 1		STABLE	YES	WORK HARDENING
< 0	> 0	≤ 1	$-\gamma > \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon}$	STABLE	NO	WORK SOFTENING
< 0	> 0	≥ 1	$-\gamma \leq \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon}$	UNSTABLE	NO	WORK SOFTENING
0	0	NOT DEFINED		UNSTABLE	NO	IDEALLY PLASTIC

TENSILE "CONSTANT LOAD" CREEP TEST (TCLCT)

0	> 0	≥ 1	$n_L > 1$	UNSTABLE	NO	IDEALLY PLASTIC
$> \gamma > 0$	> 0	≥ 1	$1 - \gamma \leq \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon}$	STABLE	YES	WORK HARDENING
> 1	< 0	≥ 1	$1 - \gamma \leq \left \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon} \right $	STABLE	YES	WORK HARDENING
< 0	> 0	< 1	$1 \geq \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon}$	STABLE	NO	WORK SOFTENING
< 0	> 0	≥ 1	$1 < \frac{d \ln \dot{\epsilon}}{d \epsilon}$	UNSTABLE	NO	WORK SOFTENING

Abb. 4235.24: Analyse der Zugkriechversuche (Vergleich).

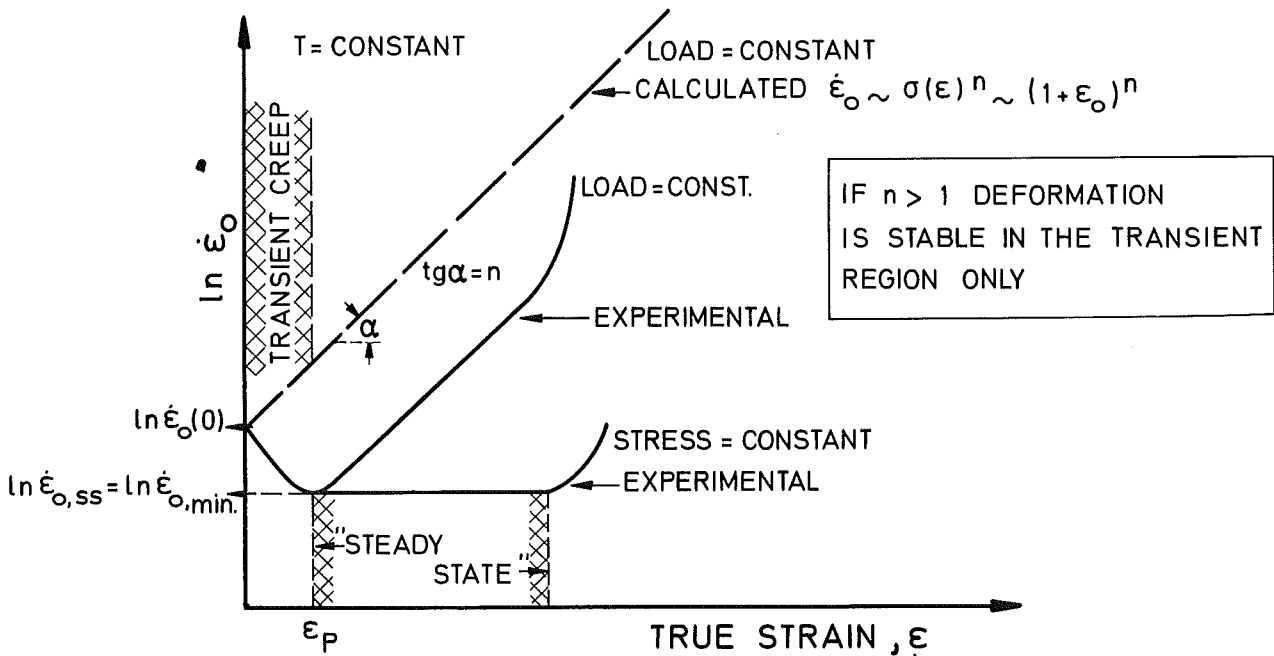


Abb. 4235.25: Analyse der Zugkriechversuche (Verformungsgeschwindigkeit gegen Dehnung, schematisch).

4235.2 Untersuchungen zur Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation
von Zircaloy 4-Hüllrohren

(S.Leistikow, H.v.Berg, R.Kraft, E.Pott, G.Schanz)

1. Oxidationskinetische Untersuchungen an ungespannten Rohrabschnitten
in Wasserdampf

1.1 Bestimmung des Sauerstoff-Konzentrationsprofils isotherm oxidiertes
Rohrproben

Das Oxidationsverhalten des Zircaloy-4-Hüllrohrmaterials und die durch Oxidation bedingte Veränderung seines mechanischen Verhaltens bei postulierten Kühlmittelverluststörfällen ist auf experimenteller Basis zu untersuchen und modellmäßig zu beschreiben. Dieses Ziel erfordert nicht nur die Bestimmung der Kinetik der Sauerstoffaufnahme, sondern auch die Bestimmung der Sauerstoffverteilung, die sich aus der Stärke der sauerstoffreichen Schichten Oxid und α -Phase und dem O_2 -Konzentrationsprofil in Oxid, α - und β -Phase ergibt. Insbesondere der O_2 -Gehalt der β -Phase ist von Bedeutung, da bekanntlich der Sauerstoff die Härte des Materials empfindlich erhöht und andere relevante mechanische Eigenschaften verändert.

Die Kenntnis gemessener Konzentrationsprofile erlaubt:

- den Vergleich mit errechneten Profilen und damit die Verifizierung der Modellannahmen des Computercodes SIMTRAN für den isothermen und im Hinblick auf den temperaturtransienten Fall;
- die Aufstellung der Sauerstoffbilanz und den Vergleich mit der gemessenen Sauerstoffaufnahme;
- die Aufstellung von Konzentrations-Mikrohärtebeziehungen und damit die Benutzung der Mikrohärtemessung als einfache Methode der Konzentrationsbestimmung.

Zur Ermittlung des Konzentrationsprofils wurden an einigen isotherm oxidierten Proben Mikrosondenuntersuchungen und Mikrohärtemessungen durchgeführt. Auf die Eichung dieser indirekten Meßmethoden des Sauerstoffprofils mittels Standards bekannten Sauerstoffgehalts wurde verzichtet. Zur Eichung wurde stattdessen davon ausgegangen, daß die Sauerstoffkonzentration an den Phasengrenzen der jeweiligen Gleichgewichtskonzentration nach dem Zustandsdiagramm entspricht.

Die Ergebnisse beider Meßmethoden sind mit dem Zustandsdiagramm Zircaloy-Sauerstoff widerspruchsfrei zu deuten. Empirische Mikrohärtte-O₂-Konzentrations-Beziehungen konnten für α- und β-Phase aufgestellt werden. Die aus Profilen errechnete Sauerstoffbilanz ergab gute Übereinstimmung mit der gemessenen Sauerstoffaufnahme. Die Verteilung des Sauerstoffs auf die drei beteiligten Phasen wurde abgeschätzt.

1.1.1 Mikrosondenuntersuchung

Die Linienanalyse in radialer Richtung an Querschliffen von Rohrproben hat für die Zirkon- und Sauerstoff-Impulszahlen nachgewiesen, daß im Oxid ein Sauerstoff-Konzentrationsgefälle von außen nach innen besteht, ein Konzentrationsprung an der Grenze zur α-Phase, sowie eine Konzentrationsabnahme in der α-Phase. An der α-β-Grenze wurde kein deutlicher Konzentrationsprung registriert. Im Bereich der β-Phase ist eine Sauerstoffaufnahme praktisch nicht erkennbar, das Impulszahl-Untergrund-Verhältnis ist dort offenbar zu klein. Nach einer Korrekturrechnung der Konzentrationsabhängigkeit der Impulszahlen im Zr-O-System und dem Ansatz, daß das Oxid an der Probenoberfläche stöchiometrisch sei, ergaben sich für eine 15 min bei 1100°C oxidierte Probe folgende Konzentrationen an den Grenzen des Oxids und der α-Phase (Tab. 4235-1):

Tabelle 4235-1 : Sauerstoffkonzentration an den Grenzen von Oxid und α-Phase nach Mikrosondenuntersuchung und Zustandsdiagramm (Probe 15 min 1100°C)

Sauerstoffkonz. [Gew.-%] gemäß:	Oxid		α-Phase	
	Oberfl.	an α-Gr.	an Ox.-Gr.	an β-Gr.
O-Impulszahl	26 *	20,8	5,9	2,0
Zr-Impulszahl	26 *	23,6	6,2	1,8
Zustandsdiagramm	26	24,5	7,0	2,0

* Eichbezug der Impulszahlen auf stöchiometrisches Oxid

Abb. 4235-26 zeigt als Beispiel ein Profil der Zr- und O-Impulszahlen.

1.1.2 Mikrohärtmessung und Aufstellung von Mikrohärtte-Konzentrations-Beziehungen

Die Härte des Zircaloy ist empfindlich vom Sauerstoffgehalt abhängig. Empirische

Beziehungen sind in der Literatur für beide metallische Phasen aufgestellt worden. Konzentrationsprofile an oxidierten Proben lassen sich jedoch nur durch Mikrohärtmessungen verfolgen, und die Anwendung der für Makrohärte gültigen Beziehungen ist nicht zulässig.

Mikrohärtmessungen nach Vickers mit 25 g Last wurden an Querschliffen einiger oxidierten Proben durchgeführt. Im Oxid war keine Messung möglich. In der sauerstoffstabilisierten α -Phase ergab sich trotz beträchtlicher Streuung der Einzelwerte (Streuband der Standardabweichung aus je 5 Messungen max. ± 50 kp/mm²) ein deutliches Härteprofil (Abb. 4235-27). An der Grenze zur β -Phase wurde ein Härtesprung registriert, in der β -Phase relativ flache Härteprofile. Der Präparationszustand beeinflusst offenbar geringfügig die in der β -Phase gemessene Härte. Im Vergleich zu chemisch polierten Proben ergab die Messung an mechanisch polierten Proben deutlich tendenziell höhere Werte.

Mit dem Ziel, für die α - und die β -Phase empirische Näherungsbeziehungen zwischen Härte und Sauerstoffkonzentration aufzustellen, wurden die gemessenen Härteprofile ausgewertet. Vereinfachend wurde angenommen, daß die Grundhärte der beiden Phasen temperatur- und zeitunabhängig ist, daß kein Einfluß des Präparationszustandes besteht, daß der sauerstoffbedingte Härtebeitrag proportional und additiv ist, und daß an den Phasengrenzen Sauerstoffgleichgewicht gemäß dem Zustandsdiagramm besteht. Unter diesen Annahmen ergab die Anpassung an die gemessenen Härtewerte folgende lineare Beziehungen:

$$\begin{aligned} C_{\alpha} &= 1,4 \cdot 10^{-2} H_{\alpha} - 4,4 & C &= \text{O}_2\text{-Konzentration} \quad [\text{Gew.}\%] \\ C_{\beta} &= 3,1 \cdot 10^{-3} H_{\beta} - 0,39 & H &= \text{Mikrohärte MHV}_{0,025} [\text{kp/mm}^2] \end{aligned}$$

In der folgenden Tabelle 4235-2 wird die nach obigen Beziehungen aus der Härte errechnete Sauerstoffkonzentration mit dem Zustandsdiagramm verglichen.

Tabelle 4235-2: Härte- und Sauerstoffkonzentration in α - und β -Phase nach Mikrohärtmessung und Zustandsdiagramm

	α -Phase		β -Phase		
	an Grenze zu Oxid	an Grenze zu β	an Grenze zu α	in Wandmitte	vor Oxidation
1300°C, 2 min.					
H [kp/mm ²]	790	502	410	350	
aus H	6,7	2,6	0,9	0,7	
C [Gew.-%] Zustandd.	7,0	2,6	1,0		
1200°C, 15 min					
H [kp/mm ²]	810	480	370	330	150
aus H	6,9	2,3	0,8	0,6	0,1
C [Gew.-%] Zustandd.	7,0	2,3	0,7		0,1*
1200°C, 2 min.					
H [kp/mm ²]	840	470	370	285	
aus H	7,4	2,2	0,8	0,5	
C [Gew.-%] Zustandd.	7,0	2,3	0,7		
900°C, 2 min.					
H [kp/mm ²] aus H				160	
C [Gew.-%]				0,1	

* nach chemischer Analyse

Aus der tabellarischen Zusammenstellung ist zu entnehmen, daß die Härte-Konzentrations-Beziehungen zufriedenstellend angepaßt sind. Die Abweichungen der aus der Härte errechneten, von den nach dem Zustandsdiagramm zu erwartenden Konzentrationen liegen im Bereich der Härtestreuung. Nach ihr beträgt die Unsicherheit der Konzentrationsbestimmung $\pm 0,5$ Gew.-% für die α -Phase bzw. $\pm 0,1$ Gew.-% für die β -Phase. Abweichungen vom Zustandsdiagramm wurden nicht gefunden. Die für die Wandmitte errechneten Konzentrationen sind das wichtigste Ergebnis. Die Sauerstoffaufnahme der β -Phase, die ursprünglich ca. 0,1 Gew.-% enthält, ist

offenbar während der Oxidation beträchtlich. Während nach 2 min bei 900°C in Wandmitte noch keine Erhöhung nachweisbar ist, steigt die Konzentration stark mit der Reaktionstemperatur und der Reaktionszeit. Zu erwarten ist eine entsprechend deutliche Auswirkung auf das mechanische Verhalten der Hüllrohre, insbesondere hinsichtlich Versprödung und Verfestigung.

1.1.3 Sauerstoffbilanz und -Verteilung

Nachdem die Konzentrationsprofile für die durch Härtemessung untersuchten Zustände zumindest näherungsweise bekannt sind, läßt sich die Sauerstoffbilanz aufstellen. Dazu wurde die Sauerstoffaufnahme der Schichten Oxid, α - und β -Phase ermittelt und aufsummiert. Die O₂-Aufnahme einer Schicht ergibt sich aus ihrer Stärke, ihrer Dichte und der Differenz ihrer mittleren Konzentration und der Anfangskonzentration. Die Dichte des Oxids wurde zu 5,745 g/cm³ angesetzt, die Dichte des Metalls, 6,57 g/cm³, wurde mit dem Faktor 1/1-c (c = Konzentration in Gewichtsanteilen) multipliziert, unter der Annahme, daß die Sauerstoffaufnahme in erster Näherung keine Volumenzunahme, sondern eine entsprechende Dichteerhöhung bewirkt. Als mittlere Sauerstoffkonzentration wurde für Oxid und α -Schicht der Mittelwert der Grenzkonzentrationen des Zustandsdiagramms gewählt, also lineare Konzentrationsgradienten angenommen. In der β -Phase wurde zwischen der Grenzkonzentration und der aus der Härte in Wandmitte abgeschätzten Konzentration dem Verlauf des Profils entsprechend gemittelt.

Die auf diese Weise abgeschätzte Sauerstoffaufnahme wird mit der experimentell gemessenen in Tab. 4235-3 für einige Zustände verglichen.

Tab. 4235-3 : Vergleich der aus dem Konzentrationsprofil errechneten mit der gemessenen Sauerstoffaufnahme

Zustand	Probe Nr.	O ₂ -Aufnahme errechnet	[mg/dm ²] gemessen	Abweichung err.-gem. [%] gem.
1300°C, 2 min.	Z 79 R	1098	1067	+ 2,9
	Z 83 R	1049	1025	+ 2,4
1200°C, 15 min.	Z 87 R	1710	1786	- 4,3
	Z 10 R	1601	1566	+ 2,2
1200°C, 2 min	Z 86 R	667,8	653	+ 2,3
	Z 88 R	662,5	645	+ 2,5
900°C, 2 min	Z 102 R	90,5	84,9	+ 6,6
	Z 104 R	90,5	87,4	+ 3,5

Die Übereinstimmung ist gut in Anbetracht der Meßunsicherheit der Schichtstärken und Konzentrationen. Die Tendenz der Rechnung, etwas höhere O₂-Aufnahme zu ergeben, könnte damit zusammenhängen, daß die Profile in Oxid und α -Phase linear angenommen wurden.

Der aufgenommene Sauerstoff befindet sich nach dieser Abschätzung zu ca. 65-75% im Oxid, zu ca. 20-25% in der stabilisierten α -Phase und bis ca. 15% in der β -Phase. Der Anteil in der β -Phase nimmt mit deren Aufzehrung zeitlich ab.

2. Rohrinnendruck-Zeitstand- und Kriechversuche an einseitig verschlossenen Rohrkapseln im Rohrofen

2.1 Isotherm/isobare Versuche in Wasserdampf und Argon

2.1.1 Vertiefte Auswertung der Rohrzeitstandversuche in Argon (800-1300°C)

Die bei 800, 900 und 950°C kriechverformten Kapseln zeigten bei visueller Betrachtung eine mattgraue, feinkörnige Oberfläche, die bei 1000-1300°C verformten Kapseln eine grobkörnige, silberglänzende, orangenschalenähnliche Oberflächenstruktur. Deshalb erschien es interessant, an den bei 800-1300°C der Zeitstandprüfung in Argon unterworfenen Rohrkapseln rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen durchzuführen.

Die Probenvorbereitung und -untersuchung erfolgte jeweils nach der im letzten Berichtszeitraum (8) beschriebenen Methode der Probenvorbereitung zur rasterelektronenmikroskopischen Auswertung an der am stärksten gedehnten resp. geborstenen Stelle.

Die rasterelektronenmikroskopischen Oberflächenaufnahmen der Kapseln zeigen bei den verschiedenen Versuchstemperaturen eine sehr unterschiedliche, im folgenden beschriebene Ausbildung der Oberflächenstruktur:

- bei 800°C - unterhalb des α/β -Umwandlungsbereiches - entsteht eine mittelfeine in Beanspruchungsrichtung gleichmäßig verformte Kornstruktur (Abb. 4235-28).
- bei 900°C - im Umwandlungsbereich - zeigen die Aufnahmen (Abb. 4235-29) deutlich wie Pflastersteine aus der Oberfläche heraustretende Körner (mittlerer Korndurchmesser = 10-15 μm), auf denen stellenweise die Spuren einer Korngrenzgleitung sichtbar sind. Diese Spuren sind auf eine

mäßige Probendehnung ohne Gestaltänderung der Körner [Rachinger-Gleitung bzw. Kornvertauschmechanismus (9)] zurückzuführen.

- bei 950^oC zeigt sich - nach kurzen Standzeiten und Umfangsdehnungen < 50% - ähnlich wie bei 900^oC eine aus der Oberfläche heraustretende Kornstruktur (mittlerer Korndurchmesser = 10-15 µm) (Abb. 4235-30,31), nach etwas längeren Zeiten und Umfangsdehnungen > 50% tritt zeilenweise eine Kornverlängerung (Abb. 4235-31) in der Beanspruchungsrichtung (Lifschitz-Gleitung) (9) auf.
- die bei 1000-1300^oC bis zum Zeitstandbruch gedehnten Kapseln (Abb. 4235-32) zeigen eine verformte, stark kornvergrößerte Oberflächenstruktur (mittlerer Korndurchmesser = 800-1200 µm), die wenigen auf der Oberfläche der Körner auftretenden Inhomogenitäten sind als Oxidkeime zu deuten.

2.1.2 Rohr-Zeitstandversuche in Wasserdampf (1000-1300^oC)

Die für die Durchführung von Rohrrinnendruck-Zeitstand- und Kriechversuchen in Wasserdampf und Argon eingesetzte Versuchsapparatur ist bereits mehrfach vorgestellt und beschrieben worden (10). Das gilt auch für die technische Vorgehensweise bei der Versuchsdurchführung und -auswertung (11).

An dieser Stelle sollen die bei der Verfolgung des laufenden Programmes erzielten Resultate der Vergleichsversuche bei 1000-1300^oC in Dampf vorgestellt und mit den bereits in Argon erzielten und schon mitgeteilten Ergebnissen (10,11) verglichen werden.

2.1.2.1 Zeitstandkurven

Durch einige Photos geborstener Kapseln illustriert werden die Ergebnisse der Rohrrinnendruck-Zeitstandprüfung in der üblichen Darstellungsform, d.h. in einer doppelt-logarithmischen Auftragung von (auf die anfänglichen Rohrabmessungen bezogener) Tangentialspannung resp. Innendruck gegen die Standzeit wiedergegeben (Abb. 4235-33-36). Zu Vergleichszwecken werden die entsprechenden Funktionen der Zeitstandprüfung in Argon jeweils zugeordnet. Auch wurde eine Übersicht über die Gesamtheit der Zeitstandversuche in Argon und Wasserdampf erstellt (Abb. 4235-37). Aus den gewählten Darstellungen wird ersichtlich, daß die Wasserdampf-Oxidation des Zircaloy 4 unter den angewandten Versuchsbedingungen eine verfestigende und dehnungsvermindernde Wirkung auf das Materialverhalten ausübt. Diese Eigenschaftsänderungen treten mit steigender Versuchstemperatur

immer stärker hervor. So wird erkennbar, daß der mit steigender Temperatur eintretende Festigkeitsabfall durch den mit der Metalloxidation zu ZrO_2 einhergehenden Festigkeitsanstieg nicht nur aufgefangen sondern überkompensiert wird. Nur noch bei $1000^\circ C$ läßt sich für die hier in Frage kommenden Reaktionszeiten von etwa 10 Minuten eine Zeitstandkurve voll ausmessen. Bereits danach tritt eine so weitgehende Verfestigung des Werkstoffs ein, daß die schrittweise abgesenkten Innendrucke zu keinem Bersten der Proben führten. Dieser Zustand wird bei steigender Versuchstemperatur zu immer kürzeren Reaktionszeiten erreicht. Ein allen Versuchen gemeinsamer Grenzdruck von etwa 7-8 at kennzeichnet die Schwelle, unterhalb der ein Bersten der Proben überhaupt nicht mehr beobachtet werden konnte, da die oben beschriebene oxidationsbedingte Verfestigung schneller ablief als der Zeitstandbruch eintrat.

Mit Abb. 4235-38 wird demonstriert, welche hohen Innendrucke erforderlich sind, um spannungslos bei $1100^\circ C$ vorkorrodierte Kapseln bei gleicher Temperatur zum Bersten zu bringen. Der Anstieg der Tangentialspannung über der Reaktionszeit zeigt tendenziell Ähnlichkeit mit dem parabolischen Zeitgesetz des ZrO_2 -Schichtwachstums.

2.1.2.2 Maximale Umfangsdehnungen

In den Abb. 4235-39+40 wird die Gesamtheit der nach Bruch im Bereich stärkster Kapseldehnung gemessenen maximalen Umfangsdehnungen wiedergegeben. Die Abb. 4235-39 zeigt dabei das Dehnungsverhalten in LOCA-typischen Reaktions- bzw. Belastungszeiten von 100-200 sec, denen Kriechgeschwindigkeiten von 10^{-2} - $10^{-3} s^{-1}$ entsprechen. Die Abb. 4235-40 weist die Gesamtheit der gemessenen Werte über Zeiten <20 Minuten aus. Es wird deutlich, daß bei $800^\circ C$ bis 10 Minuten eine weitgehende Übereinstimmung des Festigkeits- und Dehnungsverhaltens in Argon und Dampf gefunden wurde. Ähnliche Dehnungswerte werden aber auch zu unterschiedlichen Zeiten bei 900 und $1000^\circ C$ gefunden. Bei 950° und allen Temperaturen $> 1000^\circ C$ setzt sich das Band der in Wasserdampf gemessenen maximalen Umfangsdehnungen deutlich gegenüber dem in Argon zu erheblich niedrigeren Werten ab. Interessant ist weiterhin, daß mit hohen Werten bei 800 und $1000^\circ C$, niedrigen Werten bei $950^\circ C$ die in der Literatur schon oft beschriebene Tendenz zu Maxima und Minima auch für den Funktionsverlauf in Wasserdampf erhalten bleibt, jedoch die Neigung zu erhöhter Duktilität bei $900^\circ C$ erheblich reduziert wird. Bei Temperaturen oberhalb $1100^\circ C$ gehen die maximalen Umfangsdehnungen bei Prüfung in Dampf auf Werte <20% zurück. Als kritisch im technischen Sinne sind demnach die in LOCA-typischen Zeiten auftretenden Umfangsdeh-

nungen bei 800-1000°C anzusehen.

2.1.3 Vertiefte Nachuntersuchung von Zeitstand- und Kriechversuchen in Wasserdampf auf Oberflächen-Struktur, Kinetik der Rißbildung und Oxidation

2.1.3.1 Kriechversuche (900°C)

Unlängst ist ausführlich über die Durchführung und Auswertung von Kriechversuchen an einer gewissen Zahl von einzelnen Kapselproben berichtet worden (8), die nur in wenigen Exemplaren bis zum Bruch, die Mehrzahl jedoch bis zu einem beliebig gewählten Versuchsabbruch gefahren und zum Zweck vertiefter Nachuntersuchungen entnommen wurden (Abb. 4235-41). In ersten Abbildungen wurden damals die Kriechkurven, die Makrophotos der eingesetzten Kapseln und die durch Rasterelektronenmikroskopie ausgewerteten Oberflächenrißstrukturen wiedergegeben. Ergänzt werden diese Informationen durch Abb. 4235-42, in der die mittlere Rißbreite als Funktion der mittleren Rißdichte mit der Reaktionszeit als Parameter aufgetragen ist. Man erkennt daraus den zeitlichen Verlauf der Bildung einer mit dem Innendruck zunehmenden Rißdichte sowie einer mit der Standzeit zunehmenden Rißverbreiterung. Hohe Innendrucke führen also zur Bildung vieler, schmaler Risse, niedrigere Innendrucke zur Bildung einer geringeren Anzahl breiterer Risse.

In den metallographischen Aufnahmen tritt diese Tatsache nochmals deutlich hervor (Abb. 4235-43/46):

- erste Rißbildung nach maximalen Umfangsdehnungen von 3-4%,
- größere Rißdichte von geringerer Tiefe und kleinerer Öffnung bei hohen Innendrucken des Kapselversuchs und umgekehrt bei den niedrigeren.

Die geätzten Querschliffe der oxidierten Kapselproben (Abb. 4235-47+48) zeigen den unterschiedlichen Gefügestand hinsichtlich des Fortschritts der α/β -Zr-Phasenumwandlung nach $2\frac{1}{4}$ resp. $32\frac{3}{4}$ Minuten bei 900°C. Auch die Oxidation der mehr oder weniger tief angerissenen Oberfläche unter Bildung einer ZrO_2 -Schicht und einer zweischichtigen sauerstoffstabilisierten α -Phase, in der die Umwandlung unterbleibt, tritt deutlich hervor.

Zur Bestimmung der Oxidschichtstärke wurden von den metallographischen Querschliffen je 10 Reihenphotos im ungeätzten Zustand in 200-1000-facher Vergrößerung aufgenommen und planimetrisch vermessen. Um die Kapseldehnung an der

metallographisch untersuchten Stelle genau bestimmen zu können, wurde auch eine Gesamtaufnahme des Querschliff-Probenringes in 6facher Vergrößerung hergestellt.

Die planimetrische Auswertung der metallographischen Querschliffbilder (Abb. 4235-43+46) in Bezug auf die im Verlauf der Kriechverformung verstärkte ZrO_2 -Schichtbildung ergab die in Abb. 4235-49 gezeigten Kurvenzüge, denen der ZrO_2 -Schichtwachstumsverlauf im unverformten Zustand zugeordnet ist. Die oxidischen Schichtstärken wurden hierzu jeweils durch planimetrische Vermessung der ZrO_2 -Gesamtfläche und deren Bezug auf die unverformte metallische Oberflächenlänge ermittelt. Die schwarz ausgemalten Symbole der Kurven kennzeichnen jeweils die entsprechende oxidische Schichtstärke in makroskopisch unverformten, lokalen Oberflächenbereichen. Ihre Nähe zur Kurve des ungespannten Materials läßt erwarten, daß der Effekt verstärkter Oxidation im wesentlichen durch die verformungsbedingt verstärkte Freilegung metallischer Oberfläche und Oxidation in Rissen hervorgerufen wird und nicht durch verformungsbedingte Veränderung der oxidischen Defektstruktur im mikroskopischen Sinne. Die Spanne wirksamer Tangentialspannungen ist unter Bezug auf die Anfangs- und Endabmessungen der Proben wiedergegeben. Deutlich ist daraus der dehnungsbedingt starke Anstieg der wahren Spannung erkennbar. Vergleicht man abschließend den Oxidationszustand bei gleichen Reaktionszeiten, aber unterschiedlichen Spannungen, so wird deutlich, daß die bei höheren Innendrücker bis zum gewählten Zeitpunkt eingetretenen höheren Verformungen naturgemäß auch stärkere Oxidationseffekte zur Folge haben. An der Gesamtheit der bei $900^{\circ}C$ bis zum Bersten beanspruchten Kapseln wurde nachgewiesen, daß die ZrO_2 -Schichtstärken keinesfalls höher liegen als die im unverformten Zustand bei $1000^{\circ}C$ gemessenen Werte (Abb. 4235-50). Die prozentuale Erhöhung - gegenüber der Oxidation im unverformten Zustand bei $900^{\circ}C$ - liegt zwischen 83 und 45%.

2.1.3.2 Zeitstandversuch ($950^{\circ}C$)

Gleiches - wie oben hervorgehoben - gilt für die Gesamtheit der bei $950^{\circ}C$ geborstenen und metallographisch-planimetrisch nachuntersuchten Kapseln im Vergleich zu drucklos exponierten Prüflingen: in keinem Fall wurde die $1000^{\circ}C$ - ZrO_2 -Wachstumsfunktion des unverformten Zustands überschritten. Die kriechverformungsbedingte Erhöhung der Oxidation liegt gegenüber dem unverformten Zustand bei $950^{\circ}C$ um 44-20% höher und damit aufgrund der gegenüber $900^{\circ}C$ verminderten Umfangsdehnung auch entsprechend niedriger (Abb. 4235-51).

Die in Abb. 4235-52 dargestellte Folge metallographischer Oberflächenaufnahmen läßt bei Wirksamkeit hoher Innendrucke die lokalen Effekte hoher Oberflächenverformung zu einem Zeitpunkt noch wenig fortgeschrittener ZrO₂-Schichtbildung erkennen. Trotz geschlossener Oxidschicht kommt es nach längeren Standzeiten im Tertiärbereich wieder zu stärkeren Umfangsdehnungen, in allen Fällen wird der Oxidationsangriff durch Bildung unzähliger Schichtdefekte gesteigert.

3. Rohrinnendruck-Zeitstand- und Kriechversuche an einseitig verschlossenen Rohrkapseln unter induktiver Beheizung

3.1 Temperaturtransiente/isobare Versuche in Wasserdampf

3.1.1 Versuchseinrichtung

Da die Simulation eines störfalltypischen Zeit-Temperaturverlaufes im Rohrofen aufgrund der geringen Aufheizgeschwindigkeit nicht möglich ist, wurde für den erforderlichen schnellen Temperaturanstieg und -wechsel die programmierbare Induktionsheizung als geeignete Beheizungsart eingesetzt.

Für die Durchführung der temperaturtransienten/isobaren Rohrkapsel-Zeitstandversuche mußte die bislang nur für temperaturtransiente Korrosionsversuche an ungespannten Rohrabschnitten verwendete induktive Beheizungsanlage umgebaut werden. Sie umfaßt damit im jetzigen Ausbauzustand folgende wesentliche Komponenten: Teststrecke mit Dampferzeuger und Dampfkondensator, Hochfrequenz-Generator mit Induktionsspule sowie als neue Anlagenteile : Druckversorgung mit Druckregelung und pyrometrische Temperaturmessung resp. -steuerung. Die erweiterte Anlage ist in Abb. 4235-53 schematisch wiedergegeben.

Ihre Funktion ist folgendermaßen zu beschreiben:

Die zu untersuchenden, einseitig verschlossenen Rohrkapseln werden in ein Quarzrohr eingeführt, in das über einen Dreiweghahn von unten Argon resp. Dampf eingeleitet wird. Ein der Teststrecke nachgeschalteter Kühler kondensiert den Dampf und leitet das Kondensat zurück zum Dampferzeuger. Die Aufheizung der Probe erfolgt durch eine an einen Hochfrequenz-Generator (Firma EMA, 335 KHz, 15 KW) angeschlossene Induktionsspule. Die im Gegensatz zur bisherigen Meßmethode berührungslose Temperaturmessung mittels eines Pyrometers der Fa. G. Maurer (500-1250°C, Brennweite 1000 mm, Meßfleck 1 x 2 mm) ist deshalb von Vorteil, da selbst bei im tertiären Kriechbereich auftretenden hohen lokalen Dehnungen der vorprogrammierte Temperaturverlauf konstant gehalten werden kann. Das Pyrometersignal steuert über eine eigens für diese Beheizungsart entwickelte elektronische Pro-

grammregelung die an die Induktionsspule abgegebene Generatorleistung.

Die Beaufschlagung der Probe mit dem erforderlichen Argon-Innendruck erfolgte durch ein Ventilsystem, das ein genaues und reproduzierbares Einregulieren erlaubte eine ebenfalls angeschlossene Vakuumpumpe ermöglichte das Spülen des gesamten Drucksystems einschließlich der Probenkapsel. Der Druck wurde über geeichte Druckmeßdosen, die an einem Mehrkanalschreiber angeschlossen waren, kontrolliert.

3.1.2. Experimentelle Durchführung

Für die Herstellung der Zircaloy-4-Rohrkapseln wurden 50 mm lange Rohrabschnitte des DWR-Hüllmaterials (9,30 mm id; 10,75 mm ad) nach KWU-Spezifikation verwendet. Die Rohrabschnitte wurden auf der einen Seite mit einem Zircaloy-Stopfen und auf der anderen Seite mit einem 24 mm langen Zircaloy-Druckrohr verschweißt.

Die Proben wurden außen gebeizt und anschließend genau vermessen. Zur Verminderung der Temperaturabstrahlung nach unten wurden am Endstopfen der Probe im Abstand von 1-2 mm zwei Abschirmbleche aus Zirkonium angepunktet. Nach oben verminderte ein über das Druckzuleitungsrohr geschobenes Keramikrohr die Wärmeabstrahlung.

Die so präparierte Kapsel wurde in dem Quarzrezipienten an das Druckzuleitungssystem angeschraubt und zur Induktionsspule ausgerichtet. Da bei geringfügiger Exzentrizität der Kapselposition die der Spule am nächsten liegende Kapselseite etwas stärker als die anderen Partien aufgeheizt wurde, war es für die pyrometrische Temperaturkontrolle von Vorteil, die Probe wenige Millimeter aus der Mitte in Richtung auf das Pyrometer einzubauen, um so mit höherer Wahrscheinlichkeit die Berststelle auf der dem Pyrometer zugewandten Seite zu erhalten.

Vor Versuchsbeginn wurde das gesamte Drucksystem zur Entfernung der Luft mehrmals evakuiert und wieder mit Argon gefüllt. Nach diesem Spülvorgang erfolgte die sehr genaue Einstellung des gewünschten Probeninnendruckes. Eine künstlich erzeugte kleine Leckrate verhinderte die bei Temperaturanstieg entstehende Druckerhöhung. Gleichzeitig kompensierte ohne meßbare Verzögerung der sehr genau arbeitende Druckminderer den durch die Leckrate und durch Volumenvergrößerung bei Kapseldehnung entstehende Druckverlust. Der Druck wurde zusammen mit der Temperatur durch einen Vier-Kanalschreiber registriert.

Nach diesen Vorarbeiten wurde der Reaktionsraum zuerst gut mit Argon gespült, sodann wurde Dampf eingelassen. Die Regelung wurde eingeschaltet und mit Beginn des Temperaturanstieges gleichzeitig Druck aufgegeben und die Standzeit gemessen.

Die Optimalisierung der induktiven Aufheizung durch druckbeaufschlagte Kapseln erforderte eine Vielzahl von Versuchen, von denen im folgenden die Ergebnisse einheitlicher Versuchsführung wiedergegeben werden.

3.1.3 Isotherm/isobare Vergleichsversuche zu Rohrofen-Experimenten

Um eine vergleichbare Ausgangsbasis herzustellen, wurden in der oben beschriebenen Apparatur isotherm/isobare Rohrrinnendruck-Zeitstandversuche unter induktiver Beheizung an einseitig verschlossenen Rohrkapseln durchgeführt. Im Gegensatz zu der rein isotherm/isobaren Reaktionsführung im Rohrofen wurden diese Versuche bis zum Erreichen der Normaltemperatur temperatur-transient ($40^{\circ}/s$) angefahren.

Die erzielten Ergebnisse (Standzeiten und max. Umfangsdehnungen) sind in Tab. 4235-4 und Abb. 4235-54+55 wiedergegeben. Sie lassen sich im Prinzip in das Streuband der aus Rohrofenversuchen bekannten Werte einordnen, was durch eine direkte Gegenüberstellung der Ergebnisse beider Systeme für Versuche unter ähnlichen oder gleichen Versuchsbedingungen in der Tabelle, vor allem aber in der Zeitstandkurve $1000^{\circ}C$, ausgewiesen wird. Gewisse Unterschiede können auf die unterschiedliche Beheizungsart resp. die Temperaturverteilung über die Probenlänge zurückgeführt werden.

Unterschiedlich zu den Rohrofenexperimenten ^{sich} erweist/auch das Versuchsmaterial (Abb. 4235-55) nach Ende der Standzeit (Bruch). Die Umfangsdehnungen treten sehr lokal und vorzugsweise nahe der eingeschweißten Druckrohrverbindung auf. Erst die Versuche oberhalb $1000^{\circ}C$ zeigen mit dem Material der Rohrofenversuche vergleichbare Beulenformen.

3.1.4 Erste LOCA-ähnliche Verläufe

Bislang wurden temperatur-transiente Oxidationsuntersuchungen nur an ungespannten Rohrabschnitten durchgeführt. Ihre Temperatur-Zeitverläufe waren auf diejenigen berechneter LOCA-Funktionen abgestimmt: Blowdown-Peak bei 950° , Minimum bei 750° , Peak nach Wiederaufheizung und Haltezeit bei $700-1200^{\circ}C$. Die Aufheiz- resp. Abkühlgeschwindigkeiten lagen zwischen $5-100^{\circ}/s$, die Gesamtzeit bei etwa 3 Minuten.

Tabelle 4235-4

Vergleich der Resultate von isotherm/isobaren Rohrinndruck-Zeitstandversuchen
bei induktiver und Rohrofenbeheizung

Induktive Beheizung					Rohrofenbeheizung				
T (°C)	P _i (bar)	σ _t _A (N/mm ²)	t _B (min;s)	ε _B (%)	P _i (bar)	σ _t _A (N/mm ²)	t _B (min;s)	ε _B (%)	
900	22,8	14,7	4' 33"	53,9	23,0	14,9	2' 15"	45,7	
	22,8	14,8	4' 31"	54,9					
	22,9	14,9	5' 1"	63,4					
950	13,0	8,3	1' 18"	44,1	13,0	8,3	2' 21"	14,3	
	13,2	8,5	14"	46,2	13,7	8,8	1' 17"	12,9	
1000	6,9	4,4	Versuchsabbr. nach 45'	30,3	6,9	4,4	25' 33"	30,8	
	7,0	4,5	2' 10"	39,3	7,0	4,4	8' 12"	22,7	
	7,5	4,8	2' 52"	61,3	7,4	4,7	2' 31"	42,9	
	8,0	5,1	1' 26"	50,3	8,0	5,1	1' 36"	23,2	
	8,5	5,5	58"	61,6	8,5	5,4	53"	78,8	
1100	7,3	4,7	1' 4"	44,7	7,3	4,7	2' 56"	12,0	
					7,4	4,7	2' 36"	16,5	
					7,5	4,8	58"	23,9	
1200	7,6	4,9	45"	16,2	7,7	5,0	58"	15,0	
					8,0	5,1	40"	13,0	

Für die ersten LOCA-typischen Verläufe an isobar beaufschlagten Rohrkapseln wurde ein ähnlicher Verlauf mit einer Maximaltemperatur von 1000°C ausgewählt.

In der folgenden Tabelle 4235-5 sind die bislang erzielten Versuchsergebnisse von Proben, die unter LOCA-Bedingungen angefahren und bis zum Bruch auf Maximaltemperatur gehalten wurden, wiedergegeben:

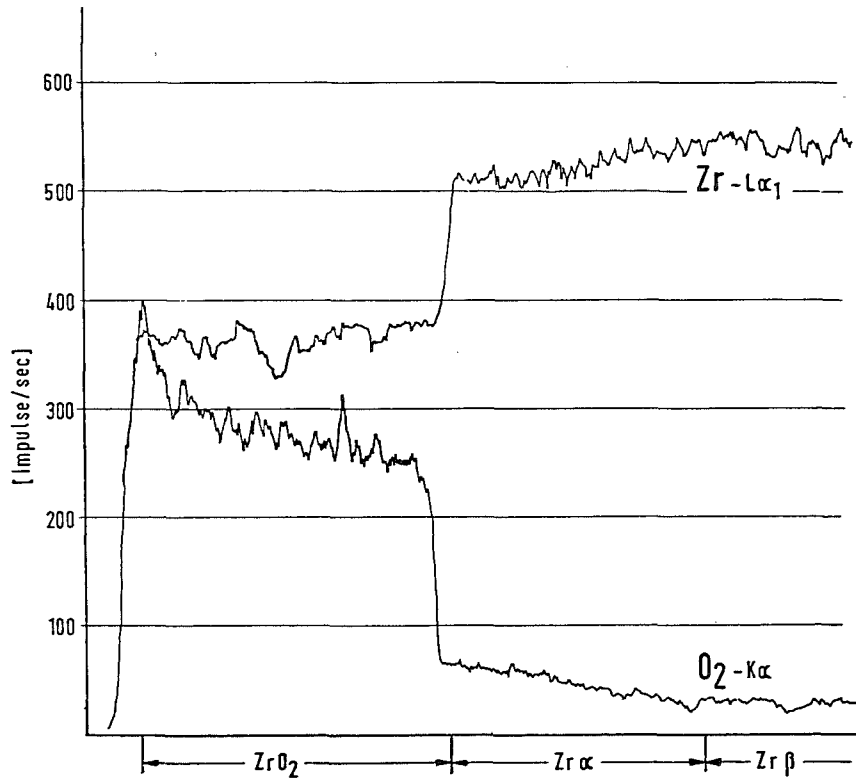
Tabelle 4235-5 Erste Ergebnisse unter LOCA-Bedingungen

<u>Innendruck</u>	<u>Tangent. Spannung</u>	<u>Standzeit</u>	<u>max. Umfangsdehnung</u>
p_i (bar)	σ_{t_A} (N/mm ²)	t_B $\left(\frac{\text{min}}{\text{sec}}\right)$	ϵ_B (%)
8,4	5,5	4' 1"	23,7
9.5	6,2	2' 3"	67,4

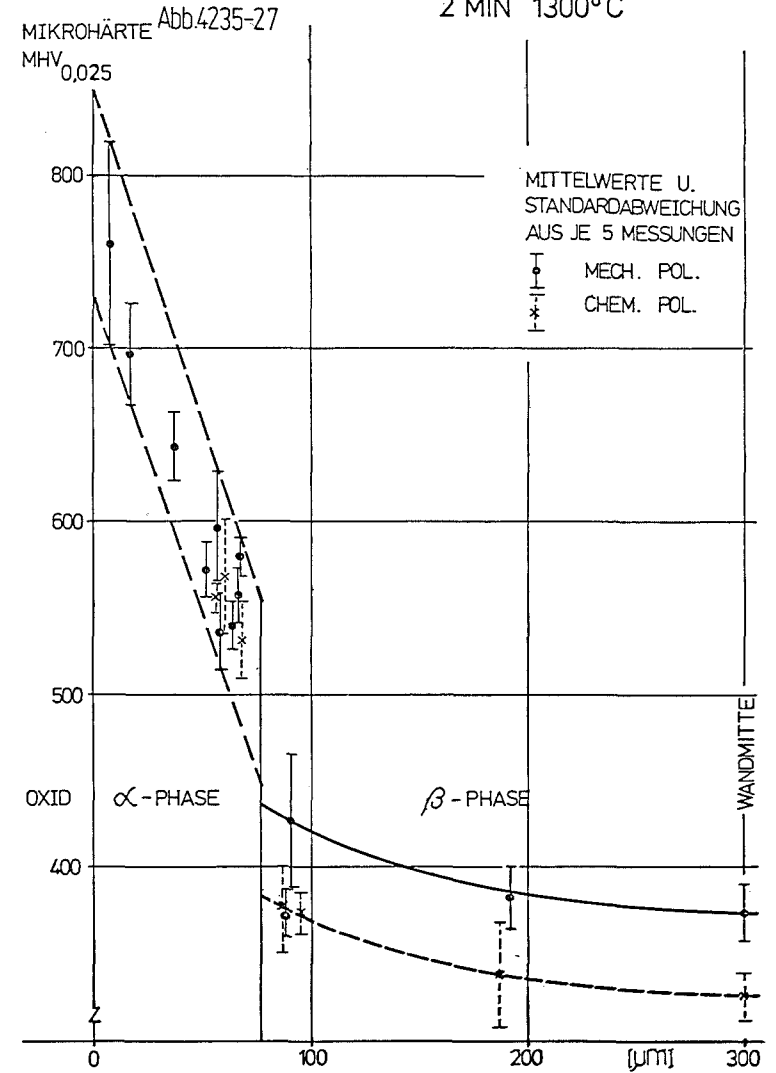
Ein Vergleich mit isotherm/isobaren Ergebnissen zeigt eine Verlängerung der Standzeit und eine Verminderung der Duktilität des temperatur-transient/isobar beanspruchten Materials, was tendenziell richtig ist, wenn man die im LOCA-Fall gegenüber isothermen Reaktionen verminderte Zeit-bei-Temperatur berücksichtigt.

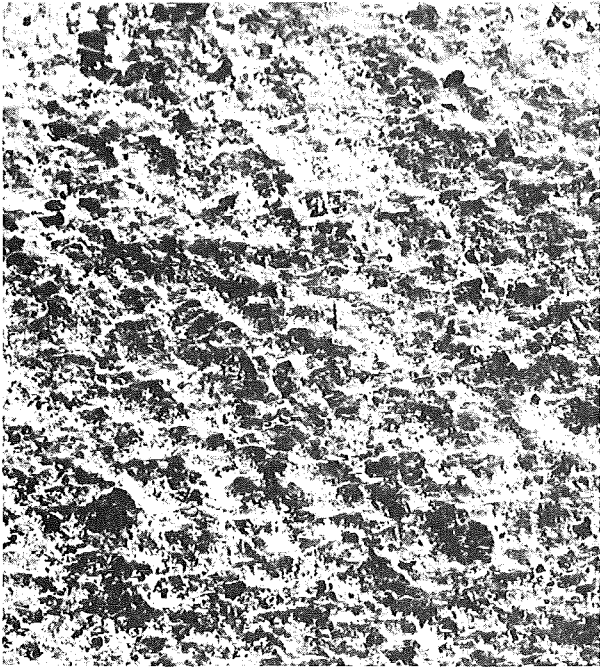
Abb.4235-26 ZIRCALOY 4 / DAMPF-OXIDATION
(15 min, 1100°C, 1 at)

MIKROSONDEN-ANALYSE VON Zr UND O₂
ÜBER DEN QUERSCHLIFF DER OXIDIERTEN
ROHROBERFLÄCHE

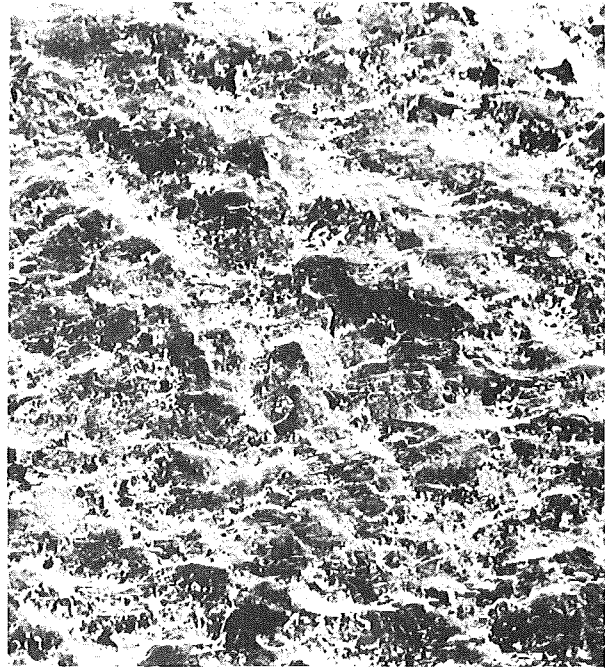


ZIRCALOY-4 / DAMPF HT-OXIDATION :
HÄRTEPROFIL ÜBER α -U. β -PHASE NACH
2 MIN 1300°C





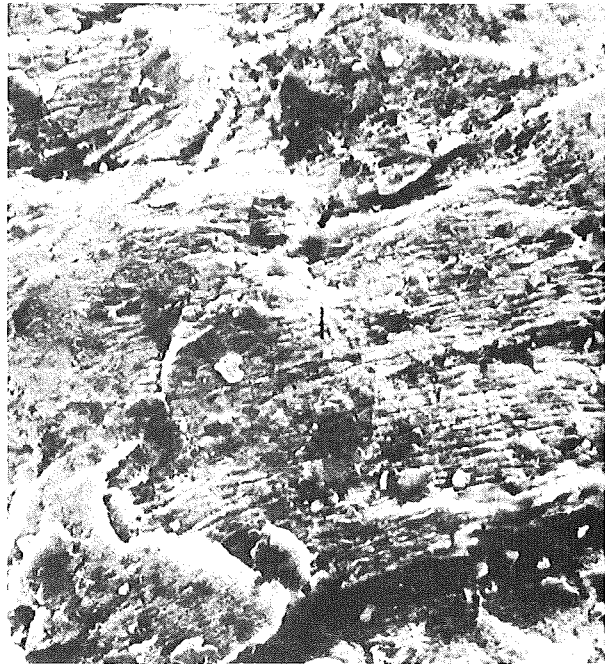
100 μm



40 μm



10 μm

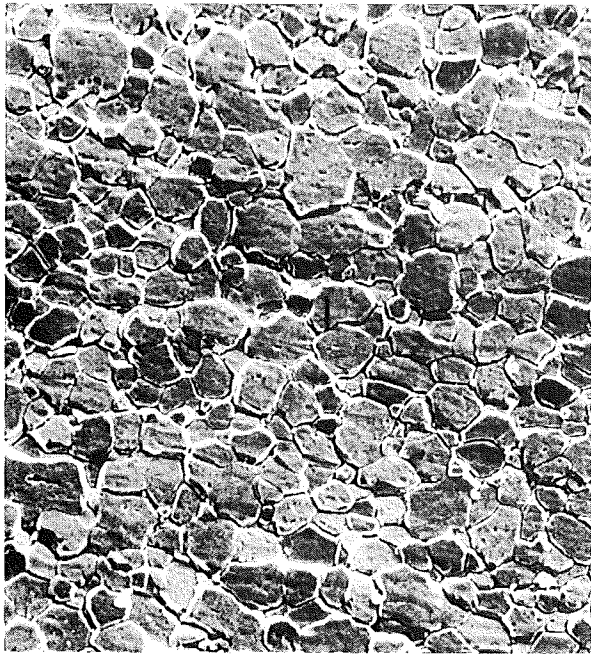


4 μm

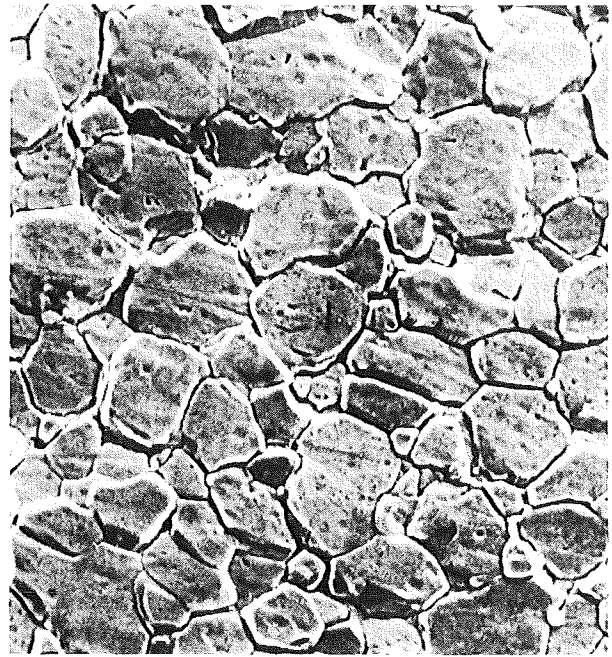
Abb4235-28

OMK IMF/II

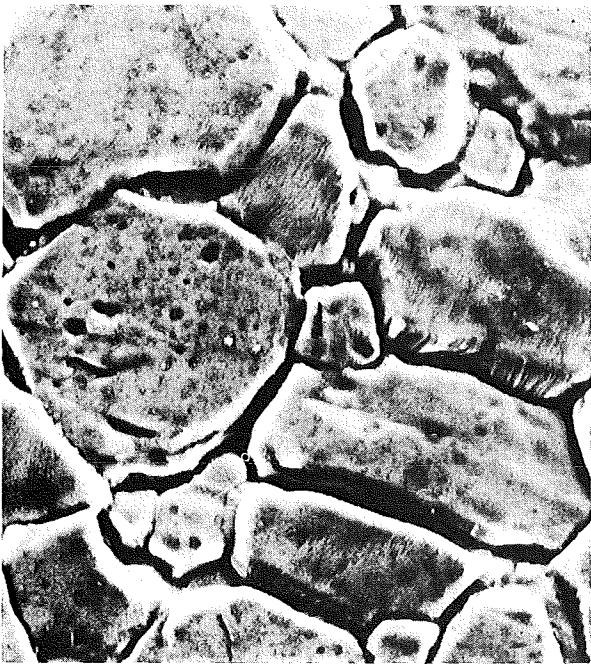
ROHRINNENDRUCK-ZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 IN ARGON
REM-AUFNAHMEN NACH DEM BERSTEN (800°C, 676 sec, 41.2 at, $\epsilon=91.7\%$)



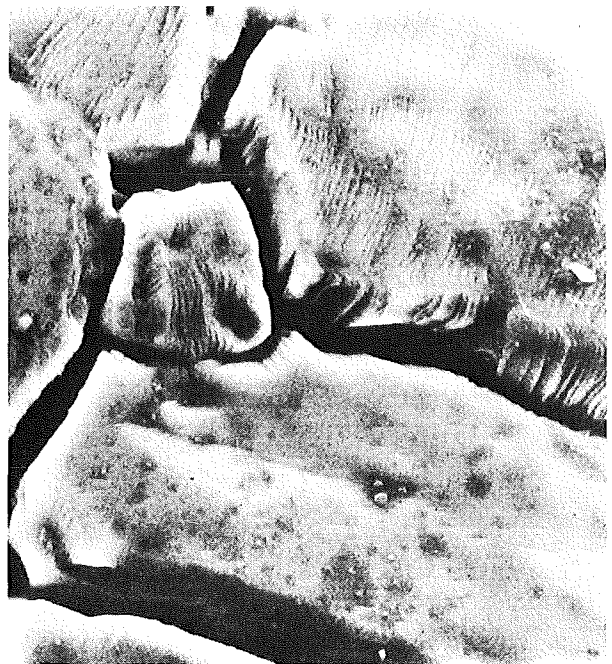
20 μm \longleftarrow



10 μm \longleftarrow



4 μm \longleftarrow

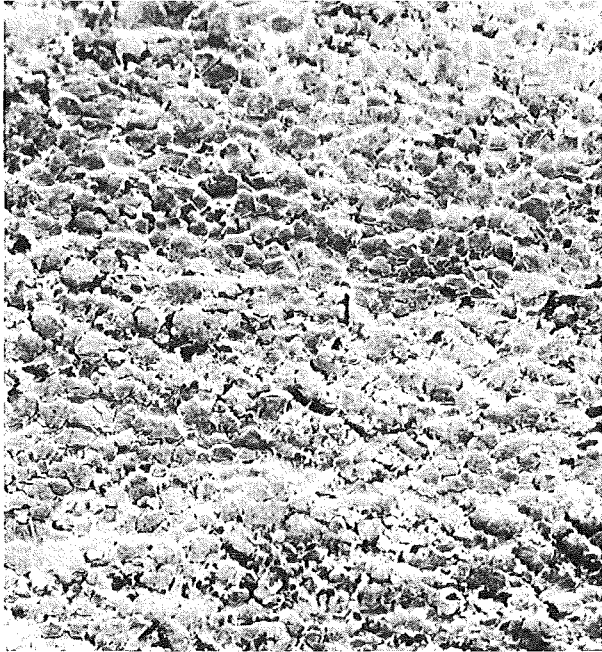


2 μm \longleftarrow

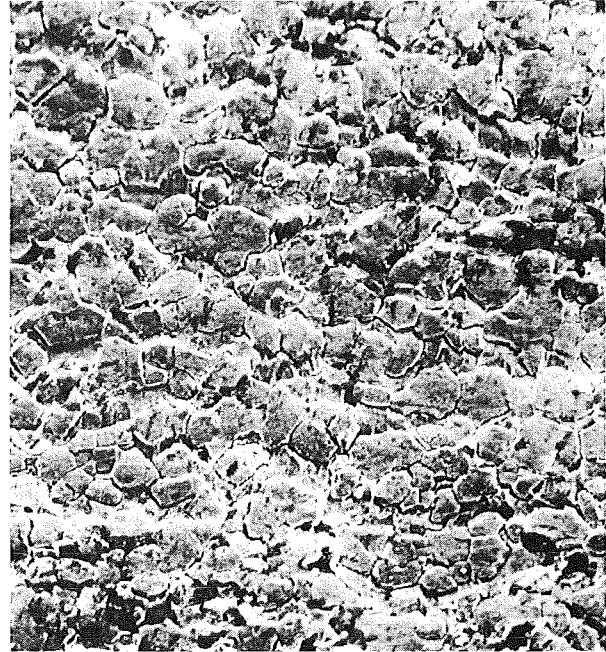
Abb.4235-29

GrK IMF/II

ROHRINNENDRUCK-ZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 IN ARGON
REM-AUFNAHMEN NACH DEM VERSUCH (OHNE BRUCH) 900°C, 309sec, 16at, $\epsilon = 19,5\%$



40 μm \longleftrightarrow



20 μm \longleftrightarrow



10 μm \longleftrightarrow



4 μm \longleftrightarrow

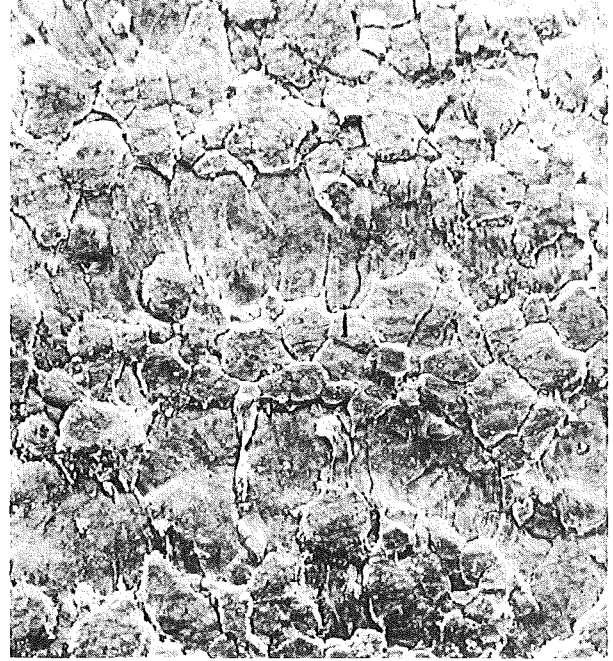
Abb 4235-30

GRK IMF/II

ROHRINNENDRUCK-ZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 IN ARGON
REM-AUFNAHMEN NACH DEM BERSTEN (950°C, 21 sec, 19 at, $\epsilon = 46.4\%$)



40 μm



20 μm



10 μm

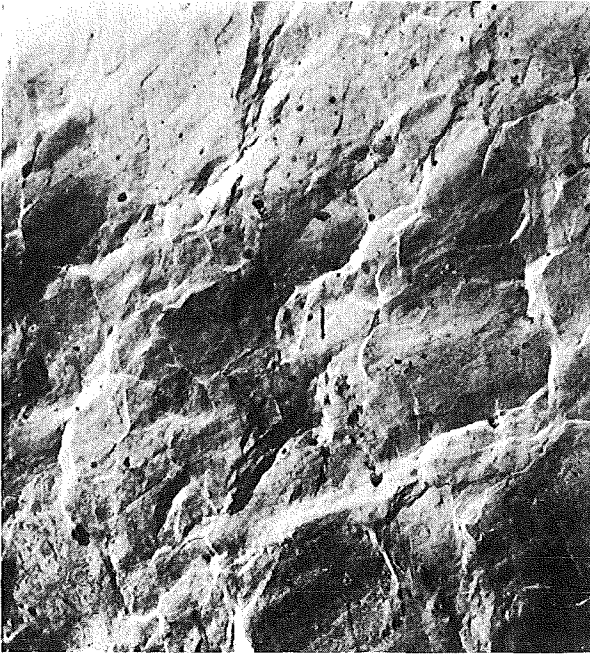


4 μm

Abb.4.235-31

GIK IMF/II

ROHRINNENDRUCK-ZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 IN ARGON
REM-AUFNAHMEN NACH DEM BERSTEN (950°C, 144 sec, 13at, $\epsilon = 61,2\%$)



1000°C, 1186 sec, 3.2 at, $\epsilon = 75,7\%$



1100°C, 169 sec, 4 at, $\epsilon = 81,3\%$



1200°C, 85 sec, 4 at, $\epsilon = 83,7\%$



1300°C, 98 sec, 3.5 at, $\epsilon = 77,8\%$, 400µm

Abb.4235-32



ROHRINNENDRUCK-ZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 IN ARGON REM-AUFNAHMEN NACH VERSCHIEDENEN VERSUCHSBEDINGUNGEN

Abb.4235-33

ROHRINNENDRUCK- KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALLOY 4 ROHRKAPSELN BEI 1000°C ZEITSTANDKURVEN IN ARGON UND DAMPF

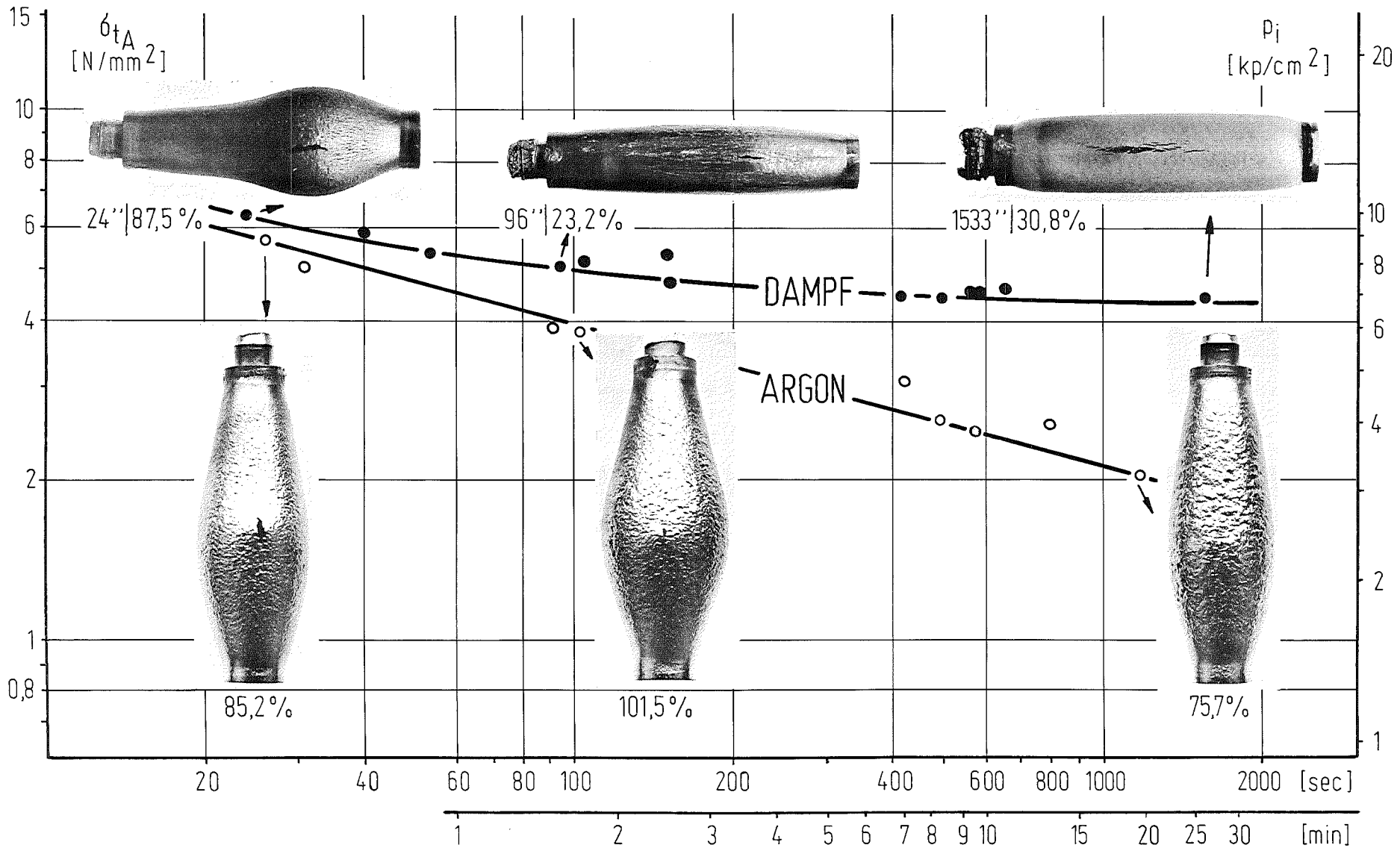


Abb.4235-34

ROHRINNENDRUCK- KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN BEI 1100°C ZEITSTANDKURVEN IN ARGON UND DAMPF

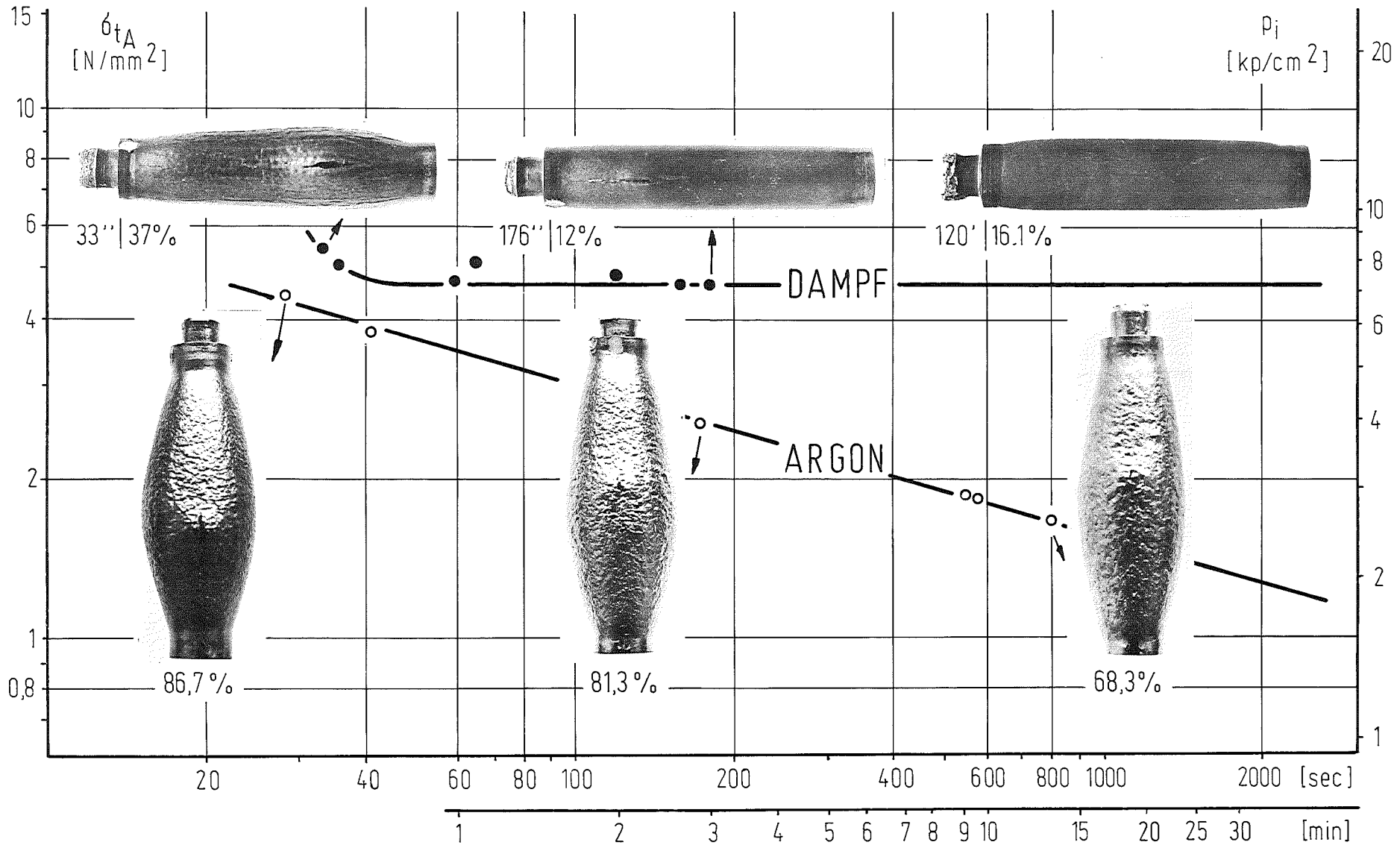
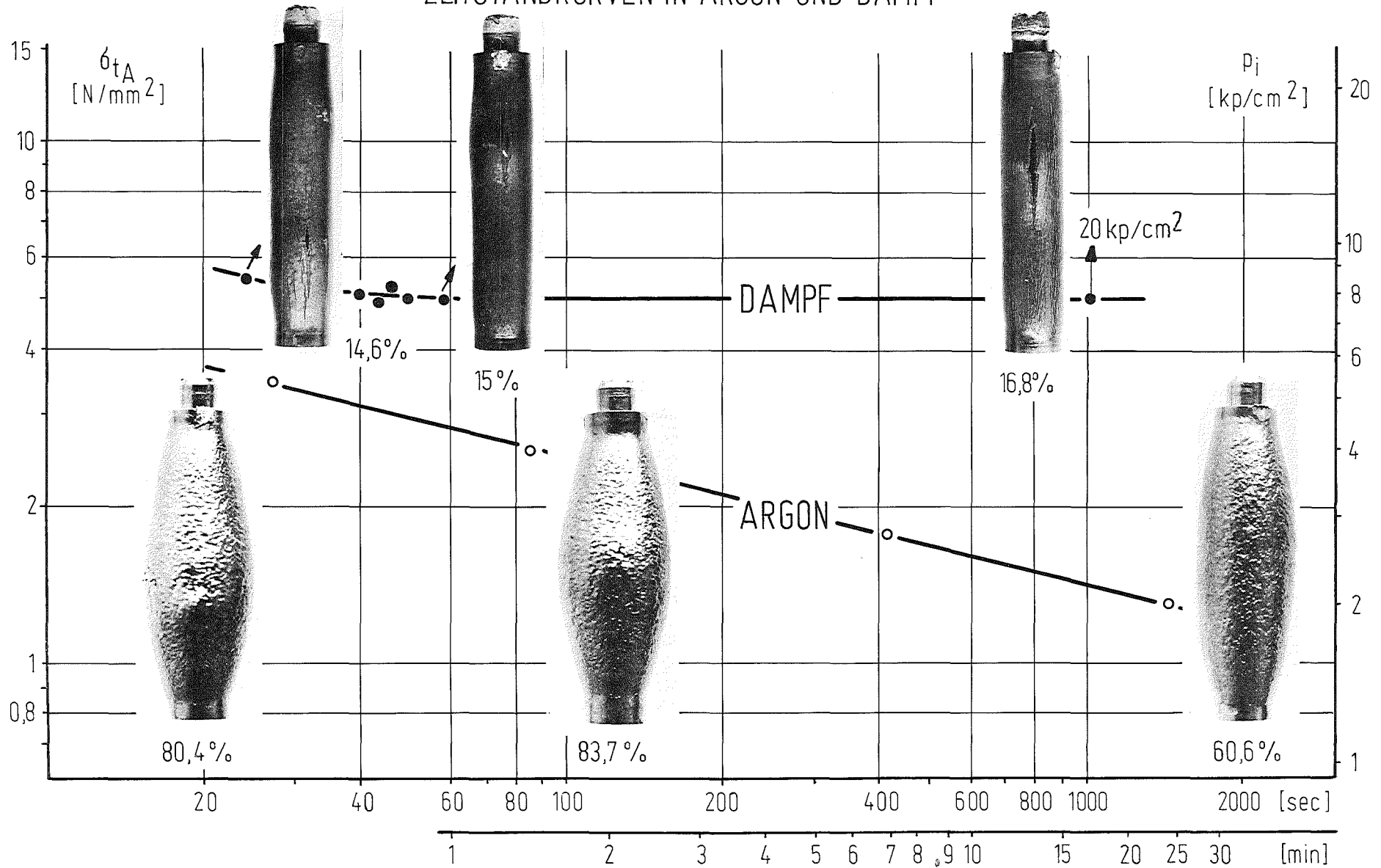


Abb.4235-35

ROHRINNENDRUCK- KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN BEI 1200°C ZEITSTANDKURVEN IN ARGON UND DAMPF



ROHRINNENDRUCK- KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALLOY 4 ROHRKAPSELN BEI 1300°C ZEITSTANDKURVEN IN ARGON UND DAMPF

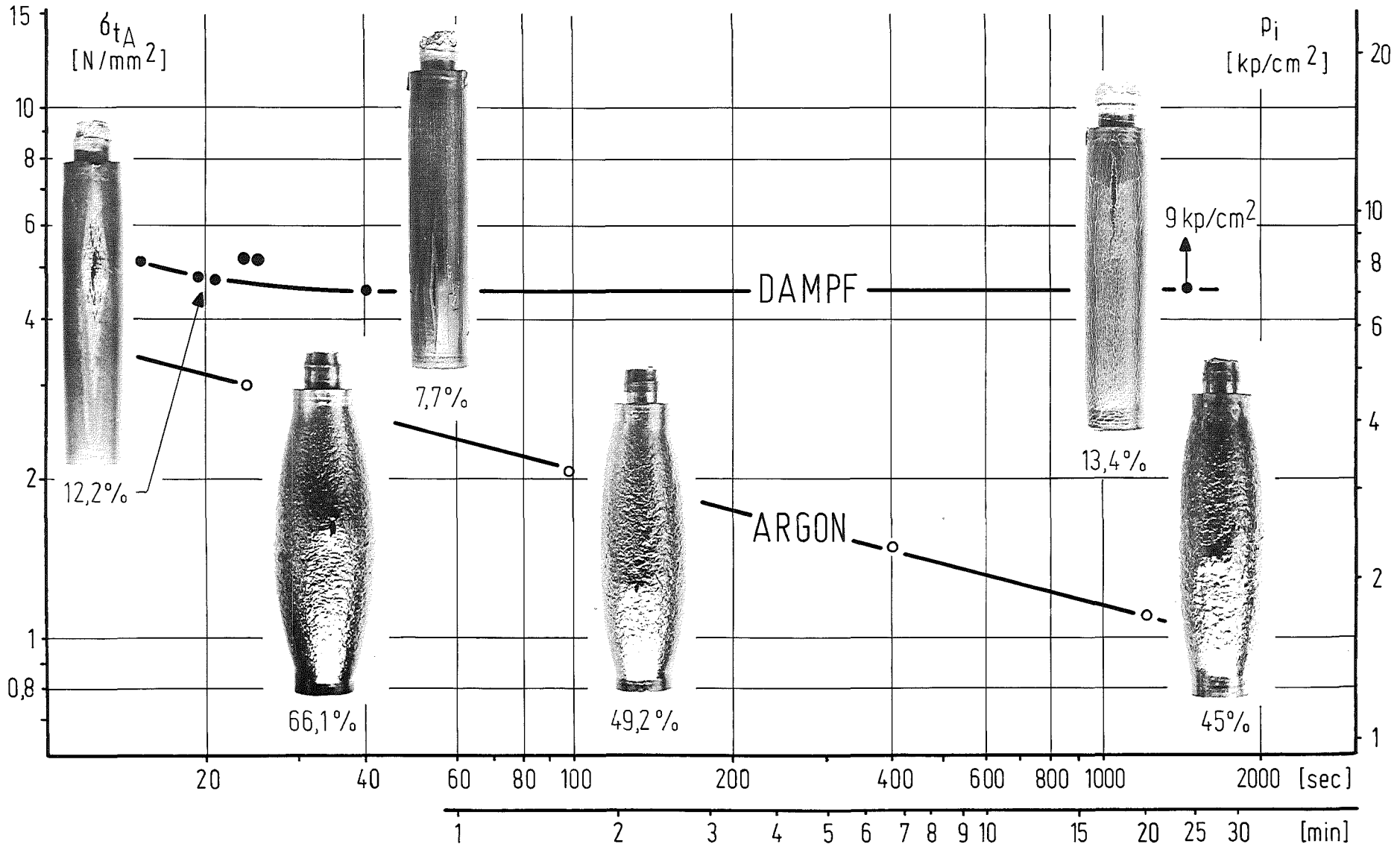


Abb.4235-37

ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG
VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN BEI 1000°C-1300°C
ZEITSTANDKURVEN IN ARGON UND DAMPF

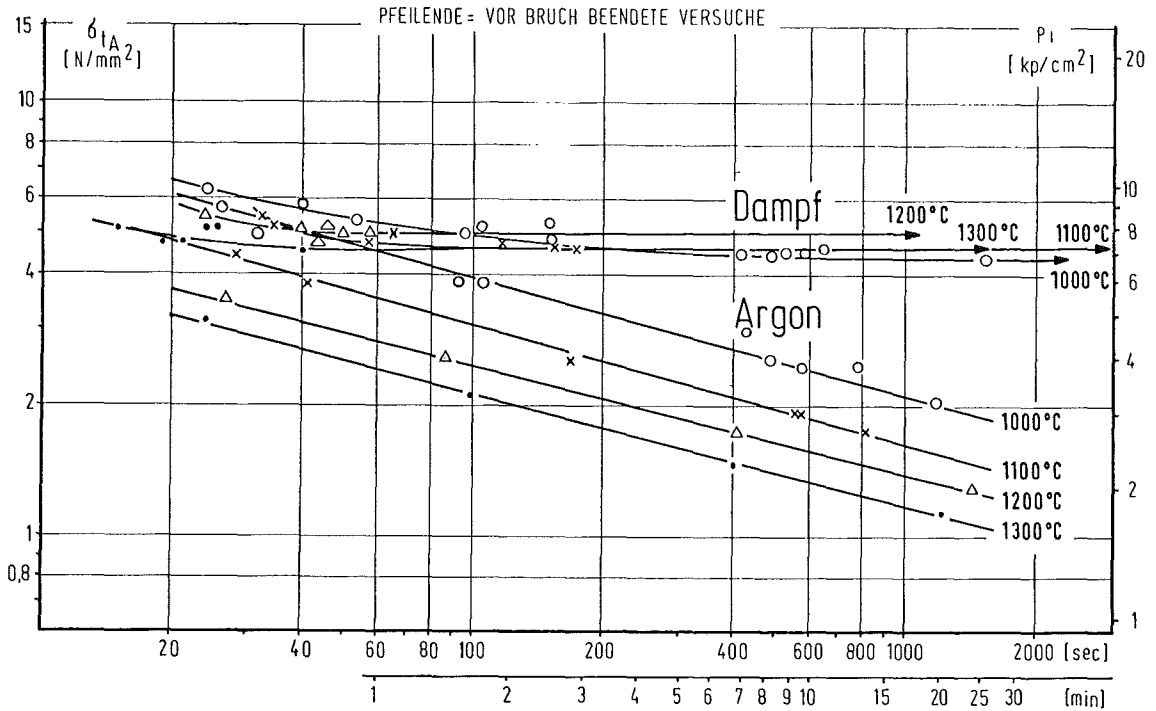
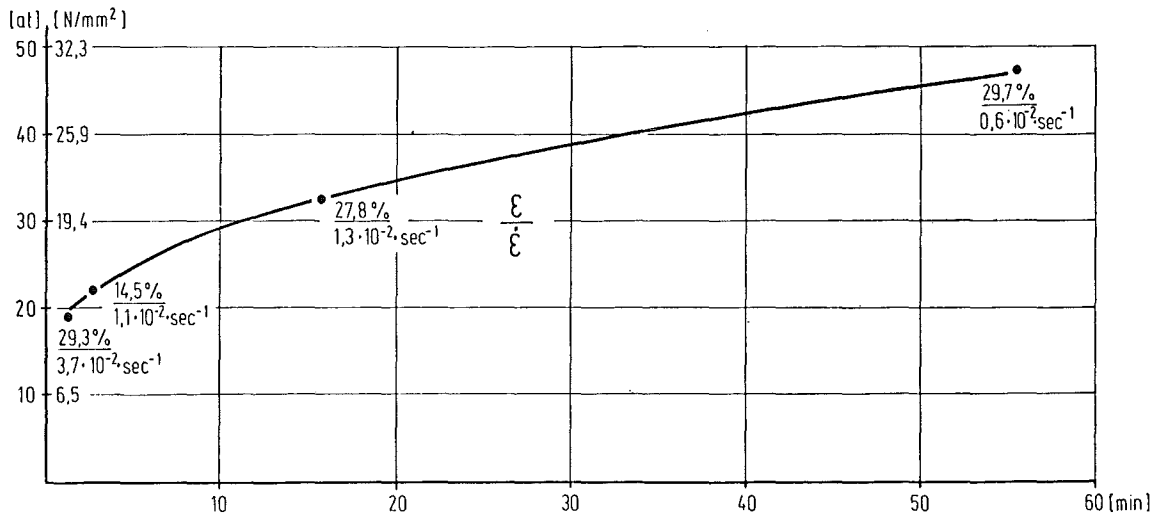


Abb.4235-38

ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG
VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN

BERSTVERSUCHE AN SPANNUNGSLOS VORKORRODIERTEN
ROHRKAPSELN (1100 °C, 1.3 - 55 min)

Abszisse: Dauer der Korrosion in spannungslosem Zustand und des Bersttests (<48 sec)



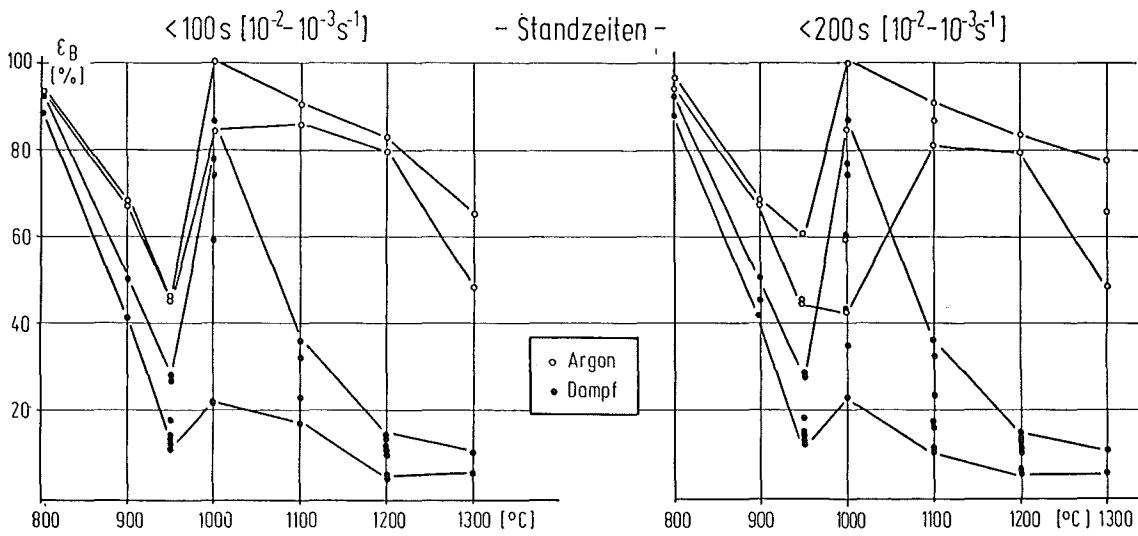


Abb4235-39



Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4-Rohrkapseln in Argon und Dampf. Max. Umfangsdehnung als Funktion der Temperatur (LOCA-TYPISCHE STANDZEITEN).

Abb4235-40 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 - ROHRKAPSELN IN REINEM ARGON U. DAMPF
GESAMTHEIT GEMESSENER MAX. UMFANGSDEHNUNGEN ALS FUNKTION DER TEMPERATUR

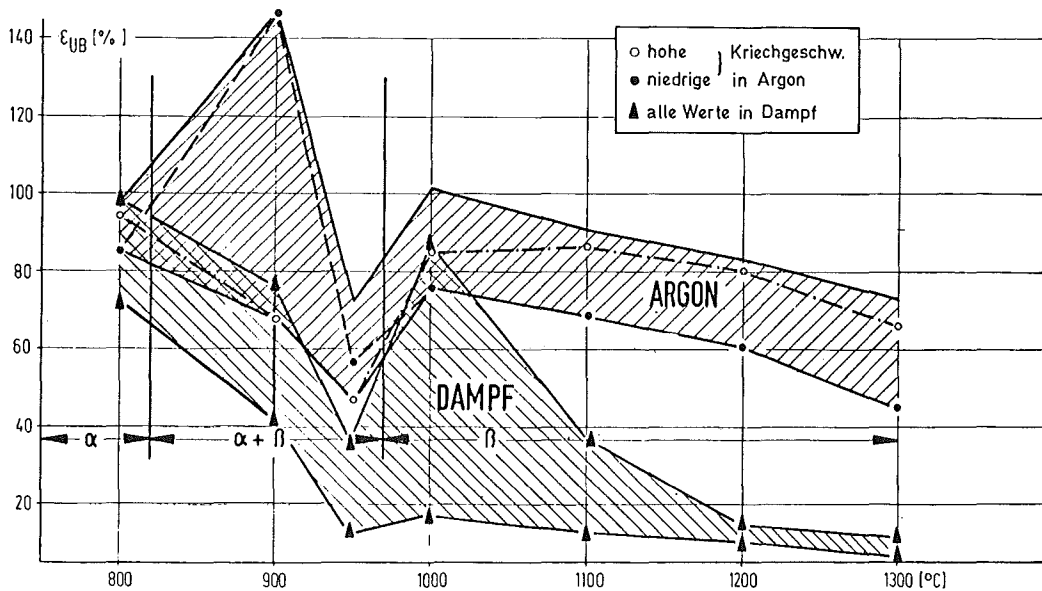
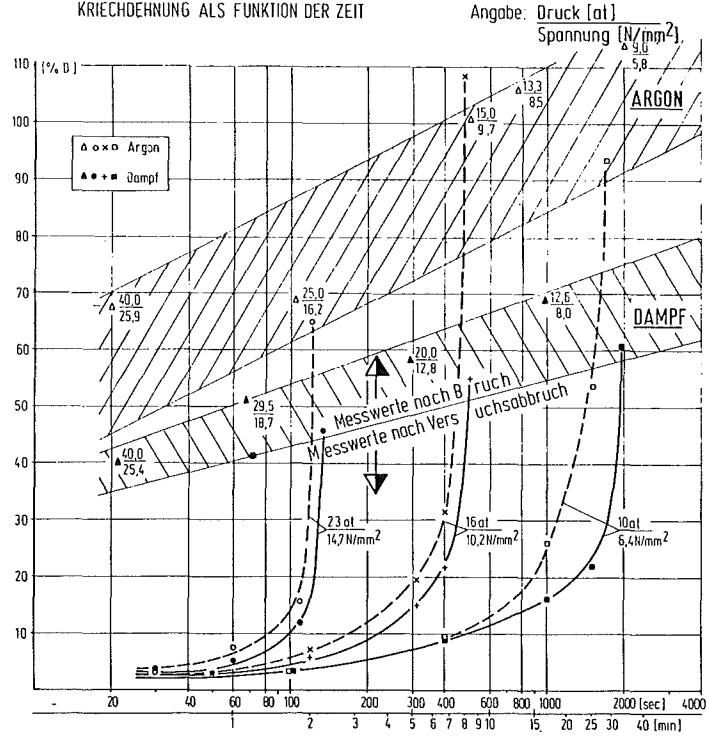
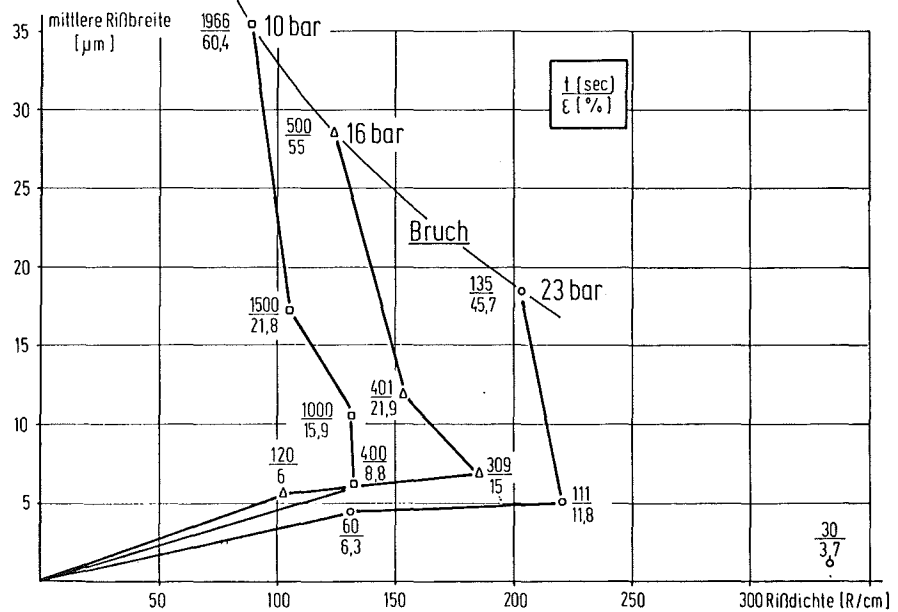


Abb.4235-41 ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG
VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN ARGON UND DAMPF BEI 900 °C
KRIECHDEHNUNG ALS FUNKTION DER ZEIT



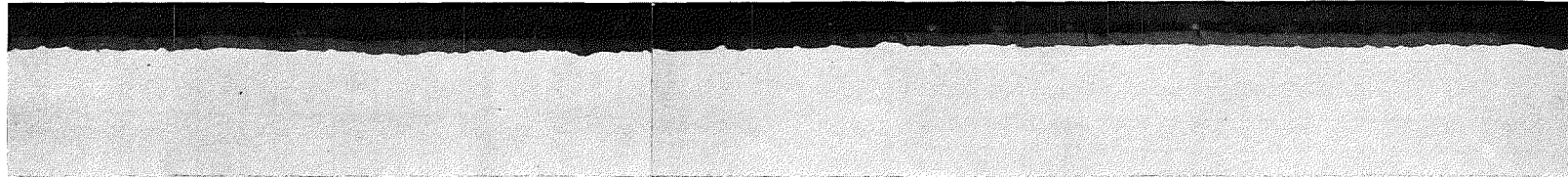
ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF
Abb.4235-42 900 °C, 10 - 23 bar

AUSWERTUNG VON REM-OBERFLÄCHENAUFNAHMEN

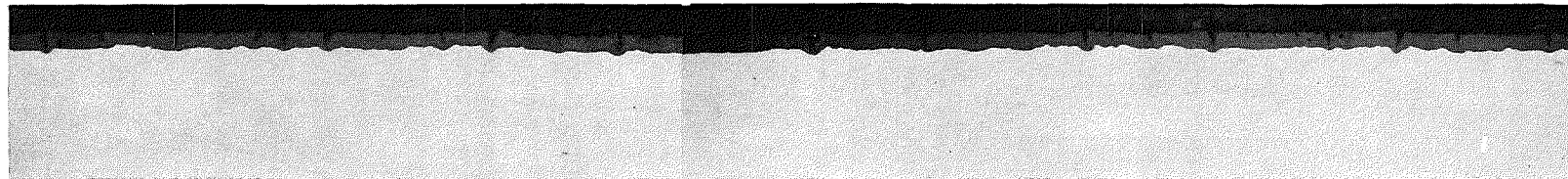


ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALLOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF BEI 900°C

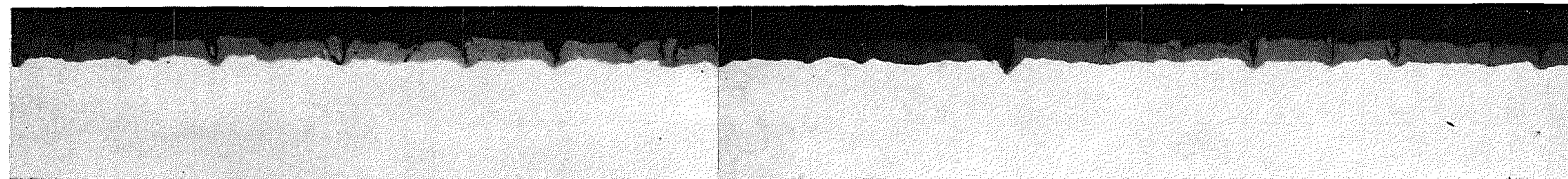
METALLOGRAPHISCHE QUERSCHLIFFE IM BEREICH MAX. KAPSELDEHNUNG (23 bar)



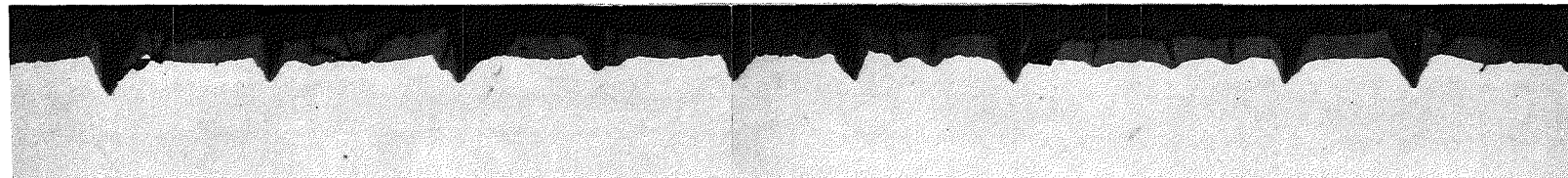
$t = 30 \text{ sec}, \epsilon = 3,7\%$



$t = 60 \text{ sec}, \epsilon = 6,3\%$



$t = 111 \text{ sec}, \epsilon = 11,8\%$



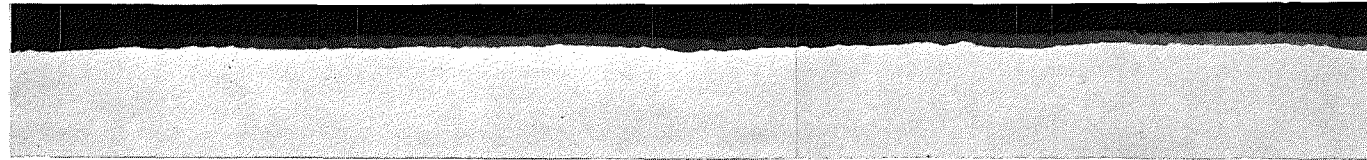
$t_B = 135 \text{ sec}, \epsilon = 45,7\%$

20 μm 

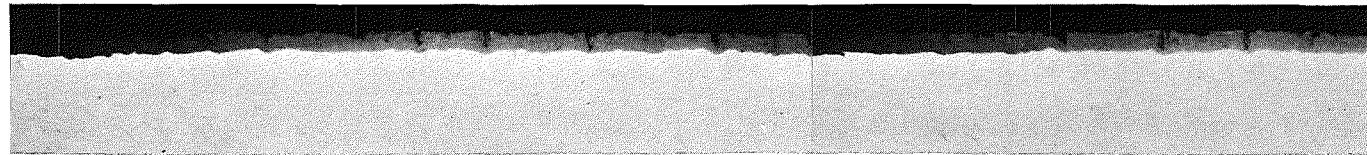
ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALLOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF BEI 900°C

Abb 4235-44

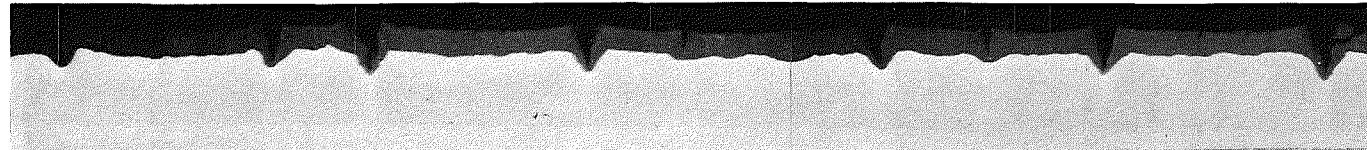
METALLOGRAPHISCHE QUERSCHLIFFE IM BEREICH MAX. KAPSELDEHNUNG (16 bar)



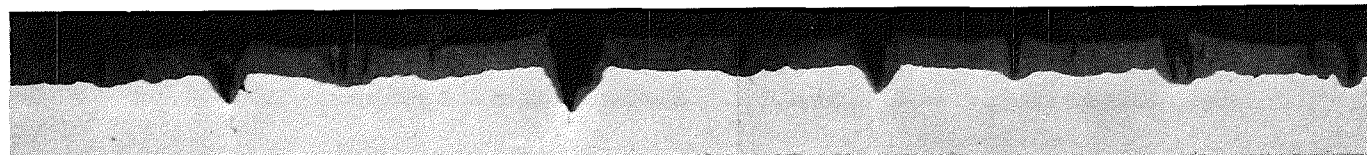
$t = 50 \text{ sec, } \epsilon = 3,4\%$



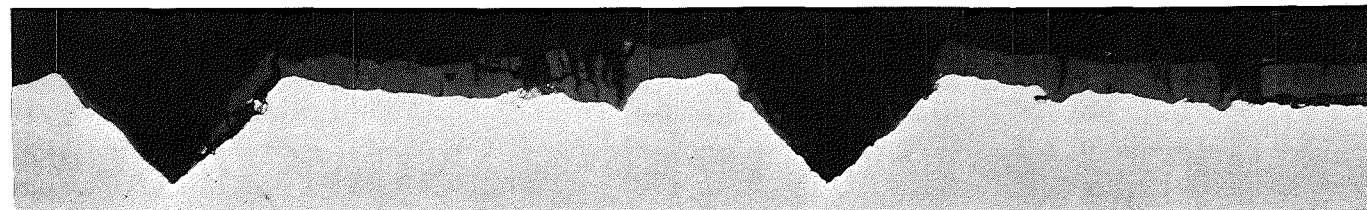
$t = 120 \text{ sec, } \epsilon = 6,0\%$



$t = 309 \text{ sec, } \epsilon = 15,0\%$



$t = 401 \text{ sec, } \epsilon = 21,9\%$



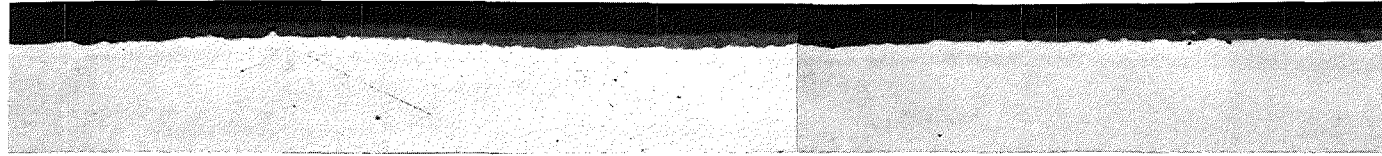
$t_g = 500 \text{ sec, } \epsilon = 55,0\%$

20 μm —

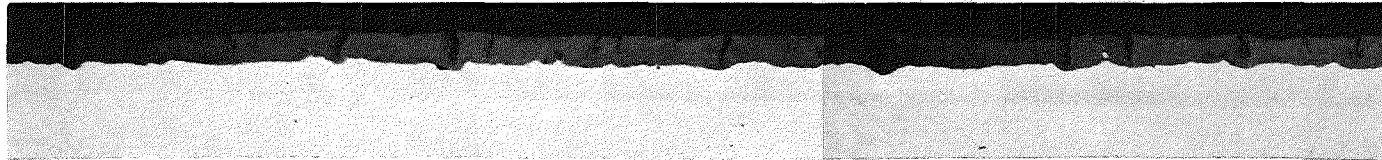
ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN IN DAMPF BEI 900°C

Abb4235-45

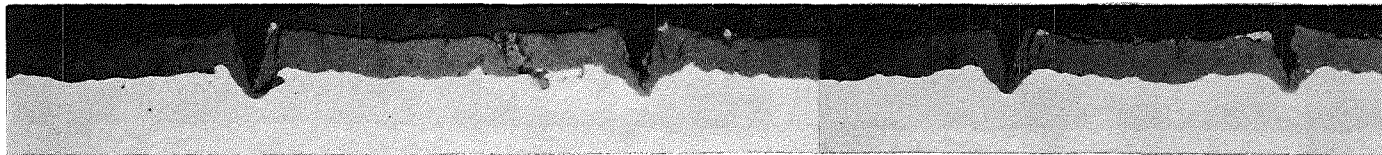
METALLOGRAPHISCHE QUERSCHLIFFE IM BEREICH MAX. KAPSELDEHNUNG (10 bar)



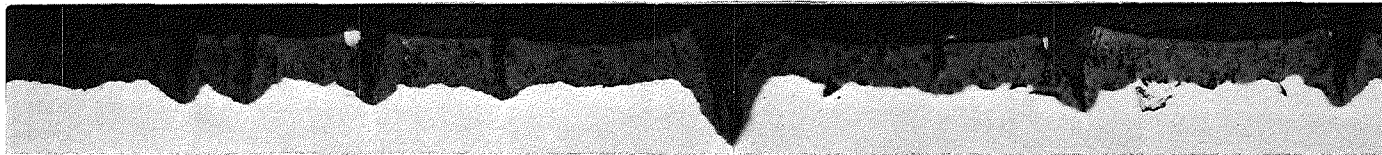
$t = 100 \text{ sec}, \epsilon = 3,3\%$



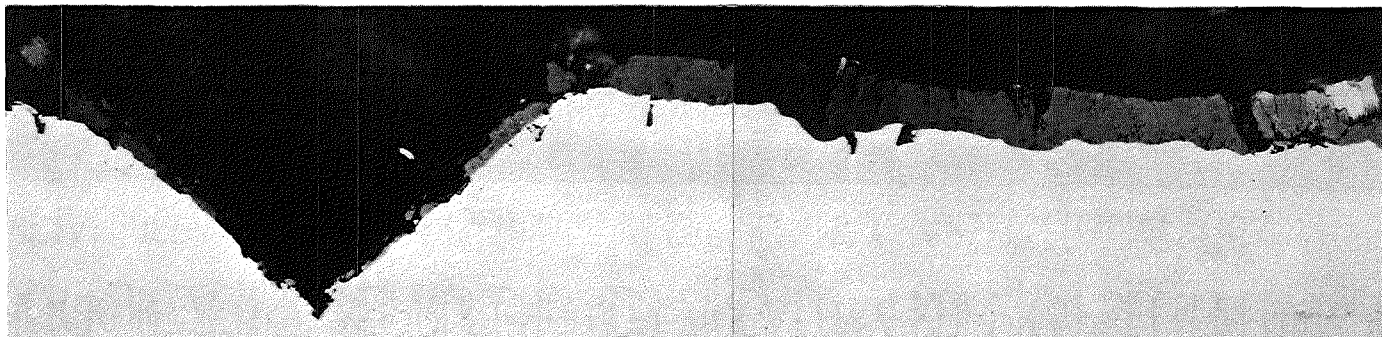
$t = 400 \text{ sec}, \epsilon = 8,8\%$



$t = 1000 \text{ sec}, \epsilon = 16,0\%$



$t = 1500 \text{ sec}, \epsilon = 21,8\%$



$t_B = 1966 \text{ sec}, \epsilon = 60,4\%$


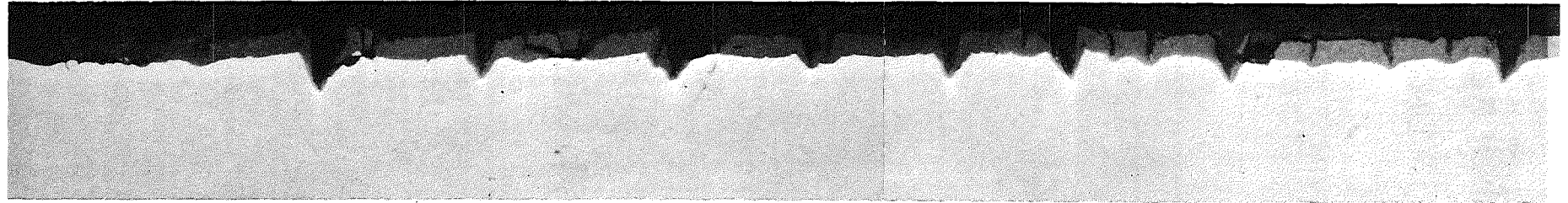
20 μm 

Abb4235-46

ROHRINNENDRUCK-KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4-ROHRKAPSELN IN DAMPF BEI 900°C

METALLOGR. QUERSCHLIFFE DER GEBORSTENEN KAPSELN IM BEREICH MAXIMALER DEHNUNG

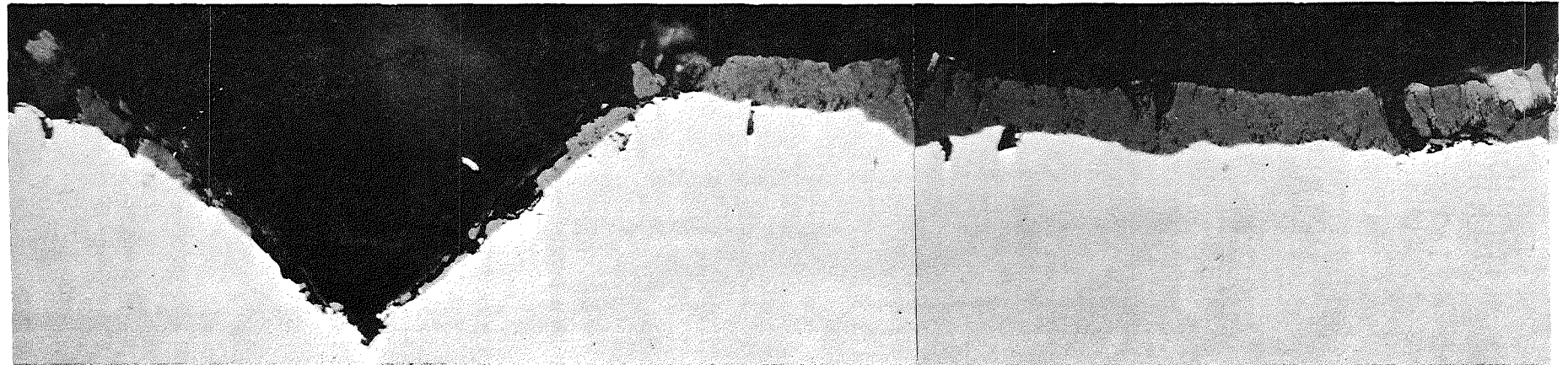
— 20µm



$p = 23 \text{ bar}$; $\epsilon = 45,7\%$; $t_B = 135 \text{ sec}$



$p = 16 \text{ bar}$; $\epsilon = 55,0\%$; $t_B = 500 \text{ sec}$



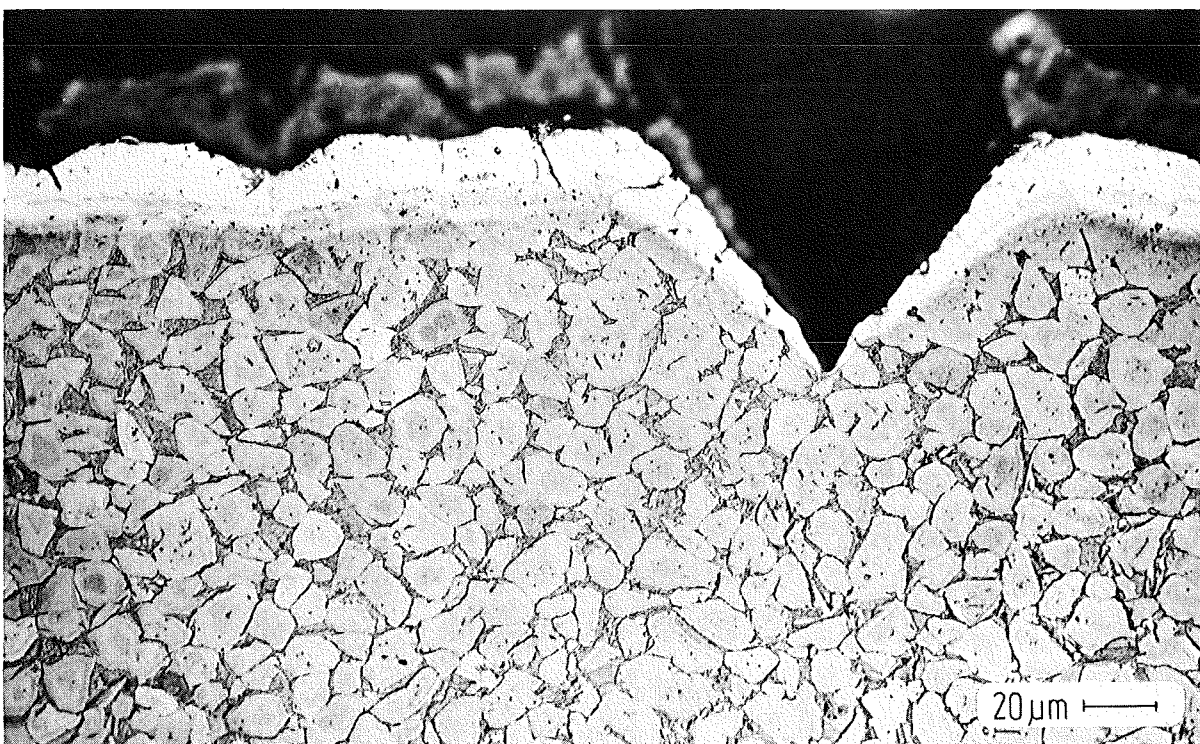
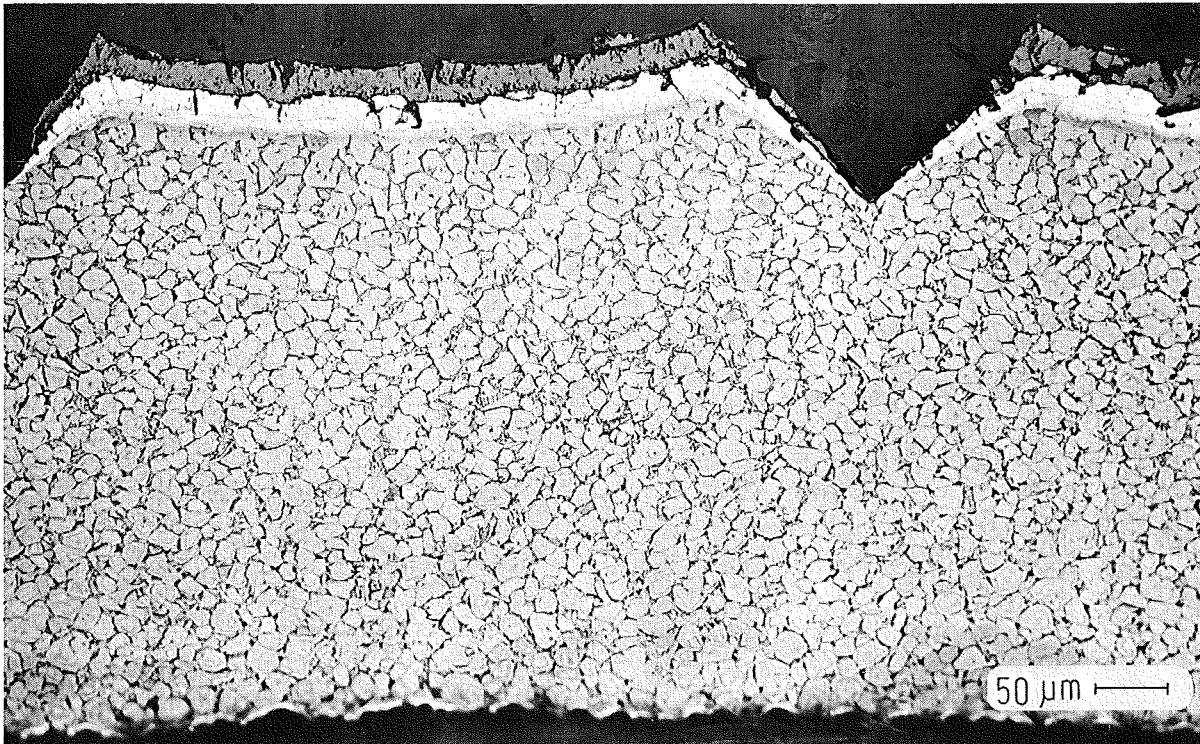
$p = 10 \text{ bar}$; $\epsilon = 60,4\%$; $t_B = 1966 \text{ sec}$

ROHRINNENDRUCK - KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4-ROHRKAPSELN IN DAMPF

32'46'', 900°C, 10 bar

METALLOGR. QUERSCHLIFF IM BEREICH MAXIMALER KAPSEL-
DEHNUNG (60,4%)

Abb.4235-47

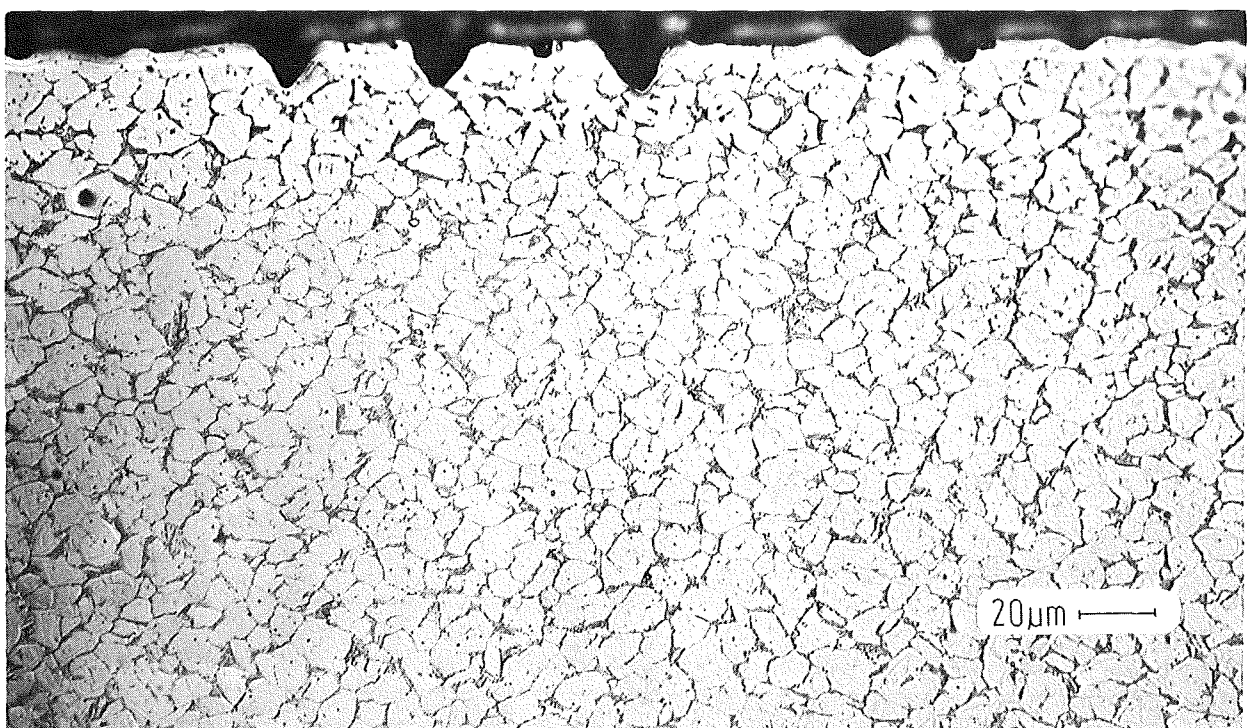
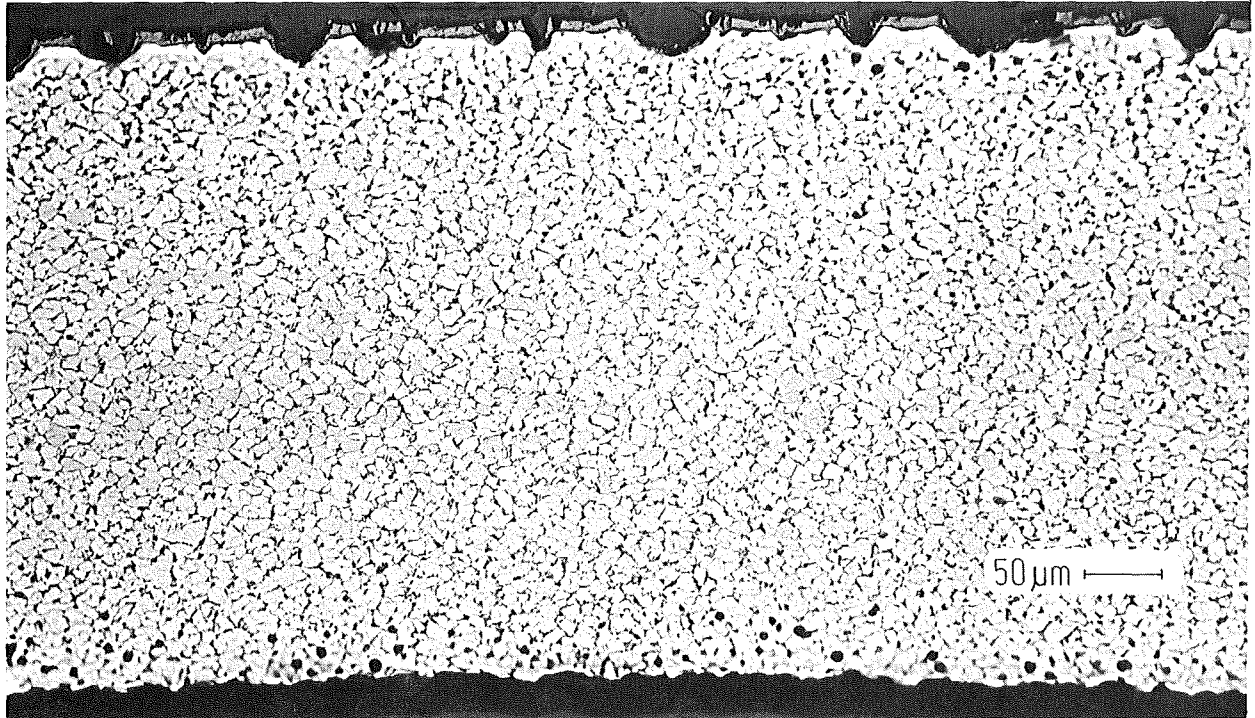


ROHRINNENDRUCK - KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4-ROHRKAPSELN IN DAMPF

2'15", 900°C, 23bar

METALLOGR. QUERSCHLIFF IM BEREICH MAXIMALER KAPSEL-
DEHNUNG (45,7%)

Abb.4235-48



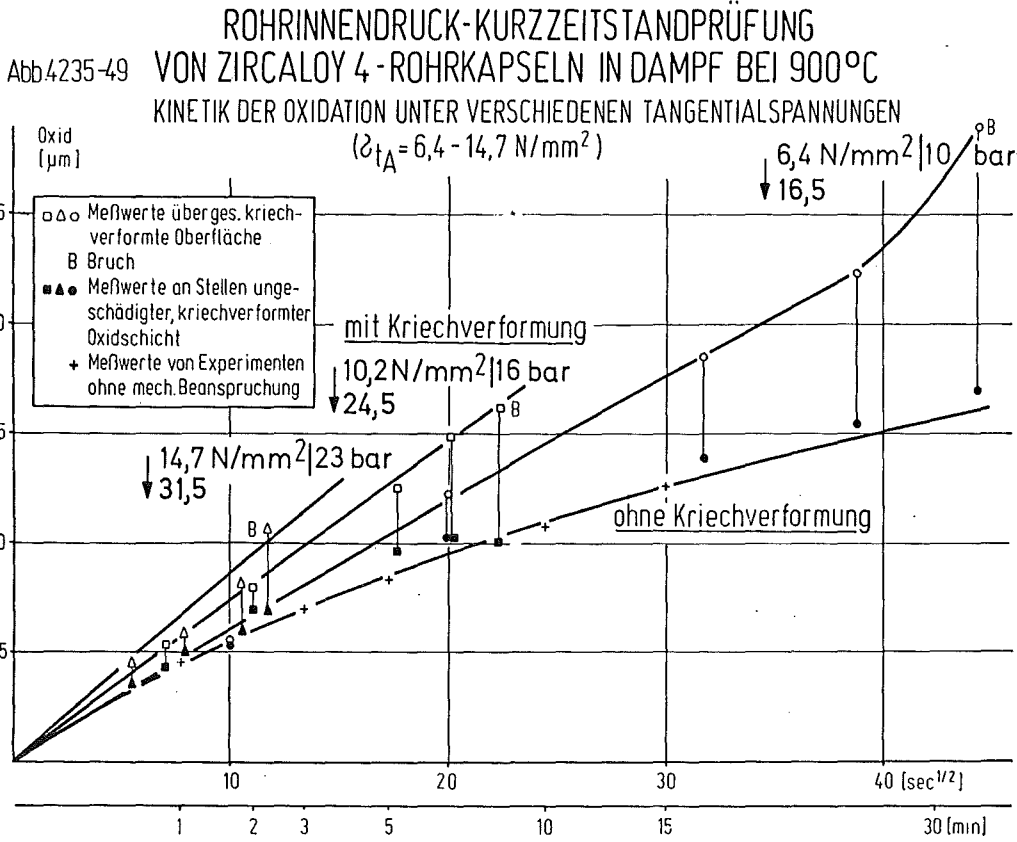


Abb.4235-50 ZIRCALOY 4 / DAMPF HOCHTEMPERATUR - OXIDATION
AUSMASS VERSTÄRKTER OXIDATION DURCH KRIECHVERFORMUNG
BEZOGEN AUF DIE AUSGANGS - ROHRABMESSUNGEN

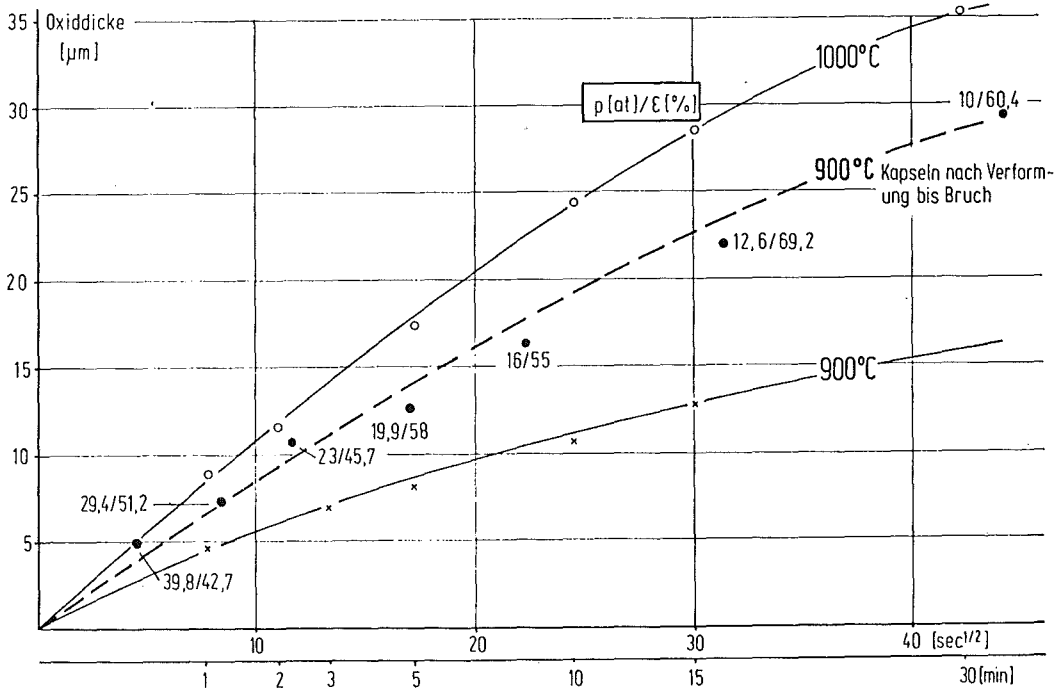
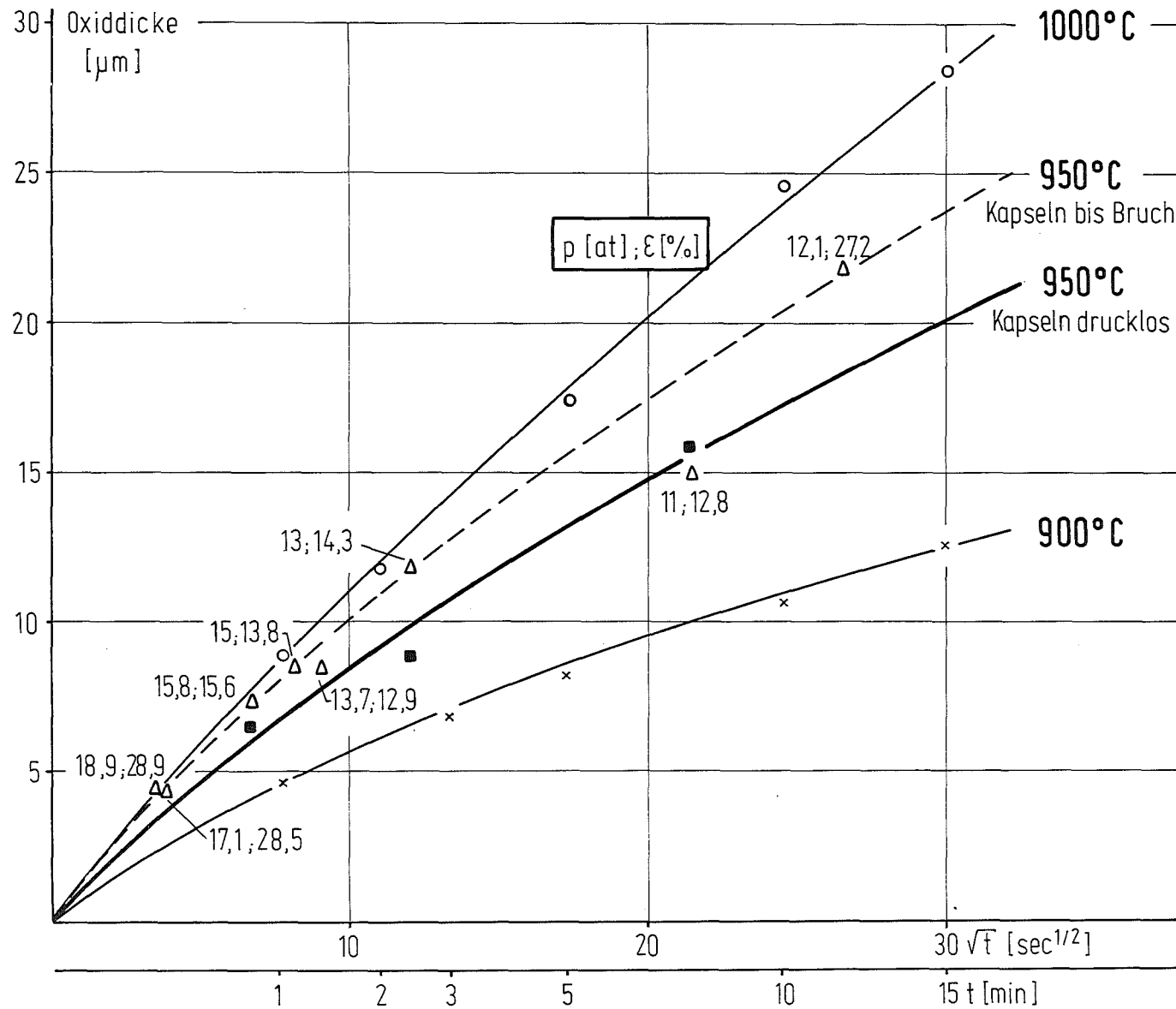
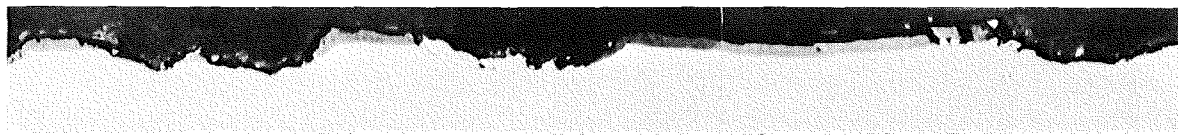
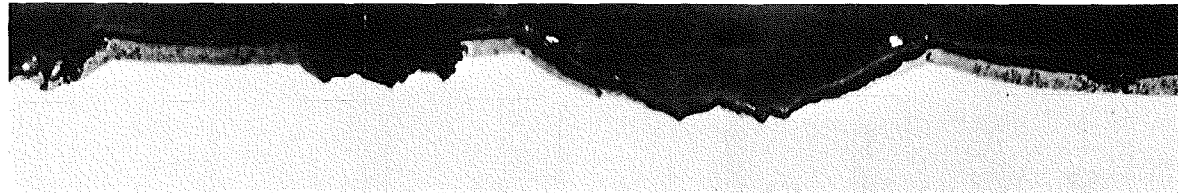


Abb.4235-51 ZIRCALOY 4 / DAMPF-HOCHTEMPERATUR OXIDATION
 AUSMASS VERSTÄRKTER OXIDATION DURCH KRIECHVERFORMUNG
 BEZOGEN AUF DIE AUSGANGS-ROHRABMESSUNGEN

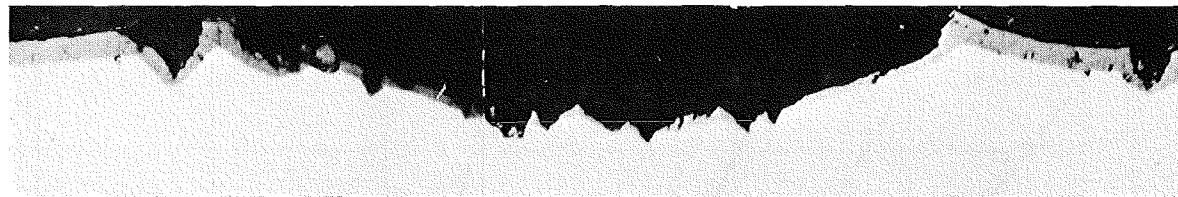




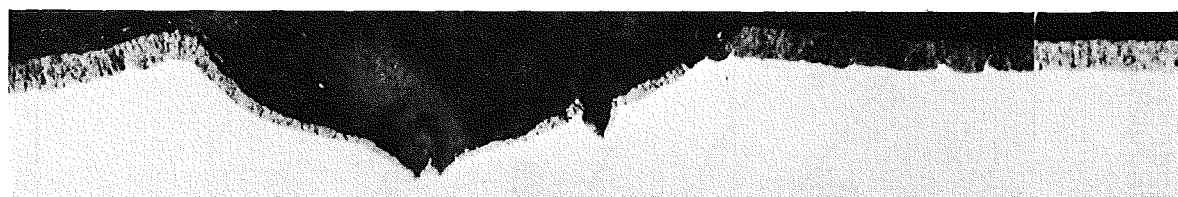
13/17,1/11/28,5



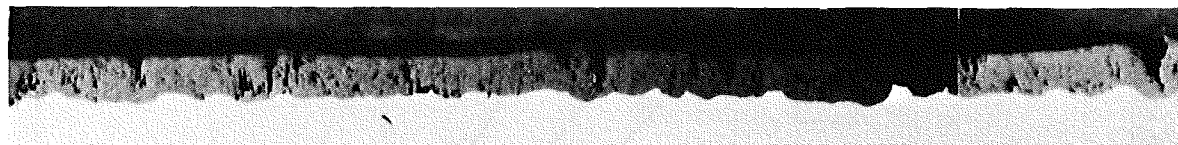
42/15,8/10,2/15,6



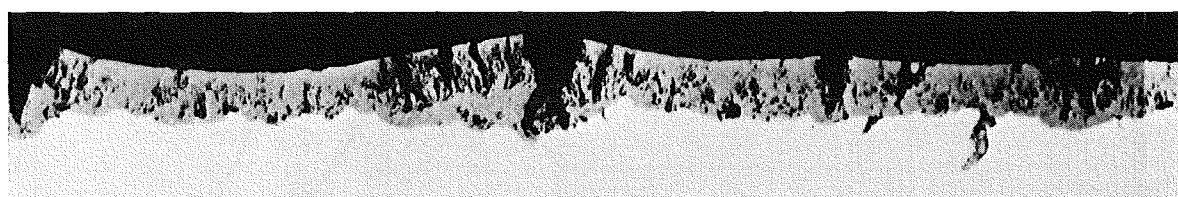
63/15/9,6/13,8



141/13/8,3/14,3



452/11/7,1/12,8



691/12,1/7,8/27,2



2070/10,3/6,6/36,6

$t[s]/p_{iB} [bar]/\sigma_{tA} [N/mm^2]/\epsilon_B [\%]$

20µm 

grk IMF/II

Abb.4235-52
Rohrinnendruck-Zeitstandprüfung von Zircaloy 4 in
Dampf. Querschliffe geborstener Kapseln (950°)

Abb.4235-53

VERSUCHSEINRICHTUNG ZUR ROHRINNENDRUCK-ZEITSTANDPRÜFUNG UNTER INDUKTIVER BEHEIZUNG

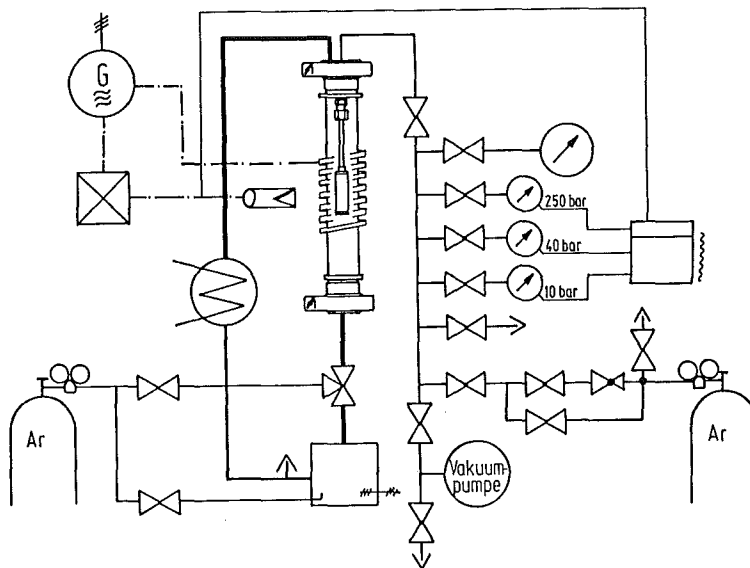
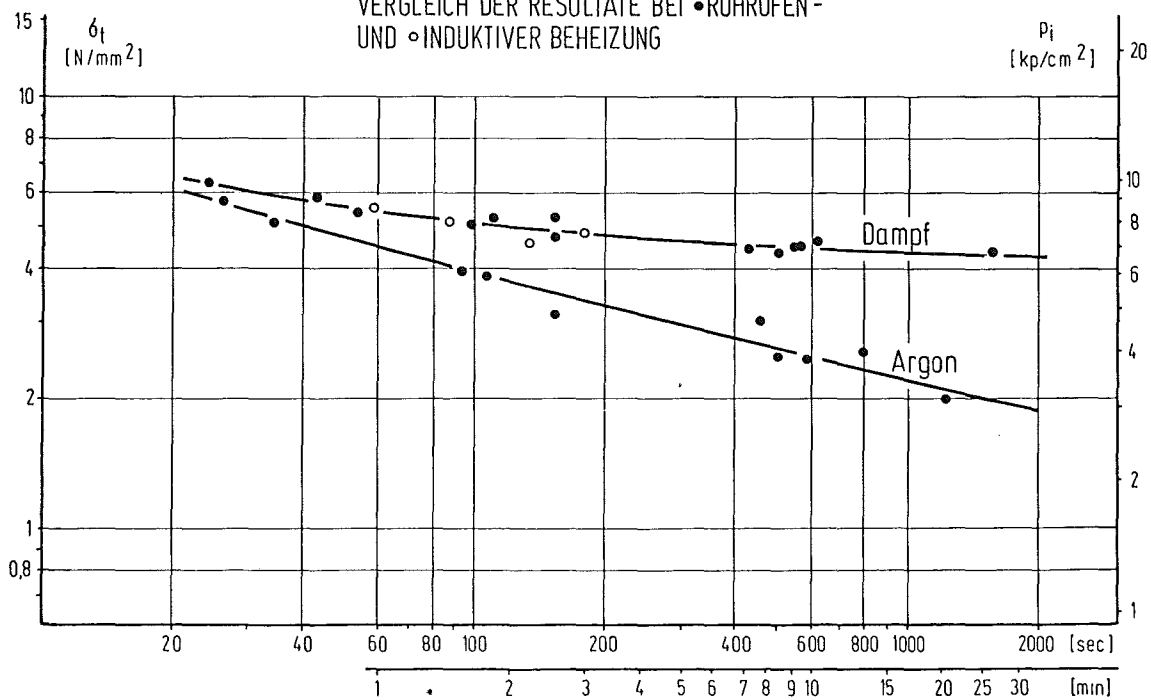
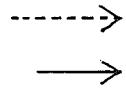
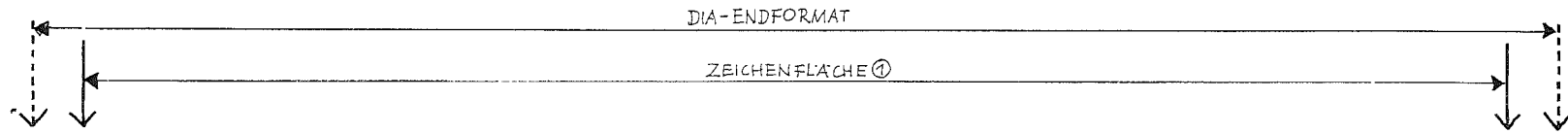


Abb.4235-54

ROHRINNENDRUCK- KURZZEITSTANDPRÜFUNG VON ZIRCALOY 4 ROHRKAPSELN BEI 1000 °C

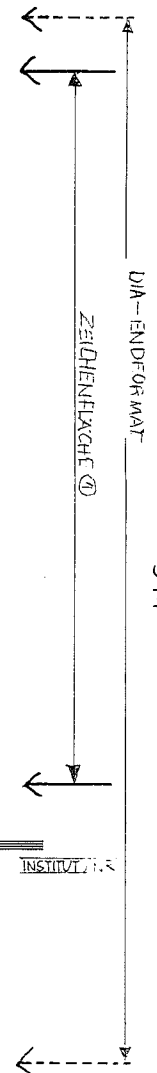
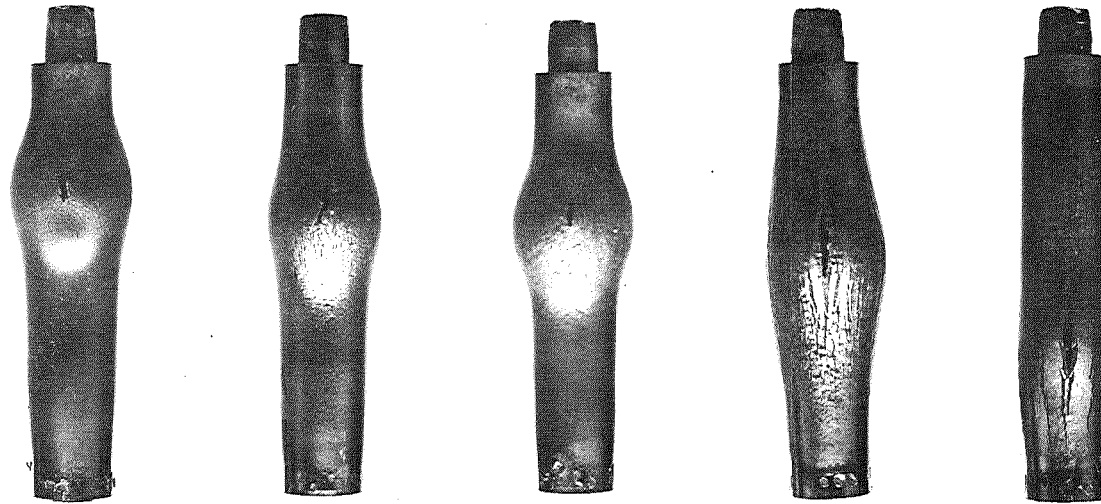
ZEITSTANDKURVEN IN ARGON UND DAMPF MIT VERGLEICH DER RESULTATE BEI •ROHRÖFEN- UND ◦INDUKTIVER BEHEIZUNG





Frontansicht der
Berststelle

Mindestschrittgröße
Strichstärke



T [°C]	900	950	1000	1100	1200
t _B [min,s]; p _i [bar]	4'33";22,8	1'18";13,0	58";8,5	1'4";7,3	45";7,6
σ _{tA} [N/mm ²]; ε _B [%]	14,7;53,9	8,3;44,1	5,5;61,6	4,7;44,7	4,9;16,2

GRK IMF/II

INSTITUT FÜR...

2 Zeilen
Titel

Rohrinnendruck-Kurzzeitstandprüfung von Zircaloy 4 -Rohrkapseln in
Dampf unter induktiver Beheizung (900 -1200°C)

Abb.4235-55



4235.3 Untersuchungen zum Einfluß des Oxidbrennstoffes und von Spaltprodukten auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-Hüllrohren bei Störfalltransienten

(P.Hofmann, C.Politis, J.Burbach, K.Kurz, H.Metzger, G.Rejman, B.Scheckel; IMF I)

1. Einfluß der Innenkorrosion auf die mechanischen Eigenschaften von Zry-4-Hüllrohren /2,12/

1.1 Versuchsdurchführung

In der neuen Rohrberstanlage (TUBA ; Tube Burst Apparatus) wurden erste Berstexperimente mit kurzen Zry-4-Hüllrohren in Schutzgas bzw. Vakuum durchgeführt (Abb.4235-56,-58,-59). Die ca. 60 mm lange Rohrprobe (10,76 mm Durchmesser; 0,75 mm Wandstärke) wird in der Versuchsanlage senkrecht montiert. Sie ist mit einer Druckleitung verbunden, um den Gasinnendruck zu messen und zu regeln. Die Aufheizung der Proben erfolgt mittels Wärmestrahlung. Die max. Heizleistung der Anlage beträgt 30 KW. Je nach Aufheizgeschwindigkeit der Rohre werden verschiedene Aufheizmethoden angewandt. Einmal wird der kalte Heizer über die Probe gefahren und dann gemeinsam mit der Probe nach dem gewünschten Temperatur-Verlauf hochgeheizt. Zum anderen wird der bereits auf einer bestimmten stationären Temperatur ($\leq 2000^{\circ}\text{C}$) befindliche Heizer in sehr kurzer Zeit über die kalte Probe abgesenkt. Nach dem Bersten der Rohrprobe wird dann - je nach der gewünschten Abkühlgeschwindigkeit - entweder die Heizleistung gezielt heruntergeregelt bzw. die Heizung abgeschaltet oder der Heizer wird hydraulisch hochgezogen. Durch dieses Verfahren können Aufheiz- und Abkühlgeschwindigkeiten bis zu 70°C/s bzw. 50°C/s realisiert werden. Z.Zt. können nur isobare oder unregelmäßige drucktransiente Experimente in der TUBA durchgeführt werden. Ende 1977 wird auch eine gezielte Regelung des Druckverlaufes in den Rohrproben möglich sein; zur Zeit wird eine entsprechende Druckregelanlage installiert.

Die Hüllrohraufweitung kann während der Experimente mittels einer Hochgeschwindigkeitskamera kontinuierlich gefilmt werden. Die Auswertung der Filme erfolgt anschließend durch einen elektronischen Bildanalysator. Dabei wird die Zunahme der projizierten Rohrquerschnittsfläche als Funktion

der Zeit automatisch bestimmt. Auf dem Film werden gleichzeitig die zu jedem Bild gehörende Hüllmaterialtemperatur und Rohrrinnendruck gespeichert (BCD-Code).

In einer anderen Versuchsanlage wurden erste temperatur- und drucktransiente Berstversuche mit jodhaltigen Zry-4-Rohrproben durchgeführt (Abb.4235-57). Ziel dieser Untersuchungen ist es, festzustellen, unter welchen Randbedingungen (Druck, Temperatur, Jodkonzentration) es zum Versagen der Hüllrohre infolge Spannungsrißkorrosion kommt. Wie bereits im letzten Halbjahresbericht beschrieben /13/, erfolgt in dieser Anlage die Messung des Rohrrinnendruckes bei Temperaturen oberhalb 200°C. D.h., um die Kondensation von Jod an kalten Stellen zu verhindern, müssen während des Experiments die Probenzuleitung (Kapillarrohre) sowie die Druckmeßdose auf Temperaturen > 200 gehalten werden.

Die Rohrproben enthielten 4 bzw. 8 mg Jod/cm³, was einem simulierten Abbrand von 5 bzw. 10 At.% entspricht, unter der Annahme vollständiger Freisetzung des Jods aus dem UO₂. Die Jodkonzentration wurde zunächst deshalb so hoch gewählt, um festzustellen, ob das mechanische Verhalten von Zry bei hohen Temperaturen überhaupt durch Jod beeinflußt werden kann. In weiterführenden Experimenten wird auch der Einfluß der Jodkonzentration systematisch untersucht. Die Versuchsproben wurden bei Raumtemperatur mit einem bestimmten Vordruck (Argon) beaufschlagt. Die weitere Druckerhöhung in den Rohrproben erfolgt entsprechend der Temperaturerhöhung sowie zu einem geringen Teil auch durch die Verdampfung von Jod. Die Aufheizung der Proben erfolgt mittels Wärmestrahlung in einem Rohrofen unter Schutzgas (Abb.4235-57).

Bei den bisher durchgeführten Experimenten zur Ermittlung der Versagensgrenzen der Zry-4-Rohre infolge Spannungsrißkorrosion (SRK) kamen die Hüllrohre nur im Anlieferungszustand zum Einsatz. Da unter diesen Umständen die Unebenheiten in der Hüllrohroberfläche $\leq 5 \mu\text{m}$ sind, aber im Zry keine Mikrorisse vorhanden sind, sollte die Anfälligkeit der Zry-Rohre gegenüber der SRK klein sein. Im Hinblick auf die SRK werden dadurch konservative Verhältnisse simuliert. J.a. werden aber im Hüllmaterial während des Reaktoreinsatzes, besonders nach hohen Abbränden, Mikrorisse entstehen, die im Zusammenwirken mit Jod oder anderen flüchtigen Spaltprodukten zu einem beschleunigten Hüllrohrversagen führen können.

1.2 Versuchsergebnisse

1.2.1 Einfluß von Jod auf das Verformungs- und Bruchverhalten von Zry-4-Hüllrohren

Wie die Versuchsergebnisse zeigen, sind hinsichtlich der Bersttemperatur als Funktion des Berstdruckes keine wesentlichen Unterschiede zwischen den jodhaltigen Rohrproben und den Argon-Vergleichsproben (enthalten kein Jod) festzustellen (Abb.4235-60). Auch im Hinblick auf die Zeit bis zum Bersten ($T_{20^{\circ}\text{C}} \rightarrow T_{\text{Bruch}}$) sind für die verschiedenen Rohrproben keine ausgeprägten Unterschiede zu beobachten (Abb.4235-61). Die Zeiten variieren - je nach Vorinnendruck und damit maximal erreichbarer Temperatur - zwischen etwa 70 und 300 s. Was aber die Berstdehnungen der Rohrproben anbelangt, so sind hier jedoch teilweise sehr starke Unterschiede zwischen den jodhaltigen Rohrproben und den Argon-Vergleichsproben festzustellen (Abb.4235-62,-63,-64).

Während bei niedrigen Berstdrücken (< 40 bar) und damit hohen Hüllmaterialtemperaturen ($> 850^{\circ}\text{C}$) praktisch keine oder nur geringe Unterschiede hinsichtlich der max. Umfangsdehnungen der Rohrproben auftreten (Abb.4235-62), sind bei Bersttemperaturen unterhalb etwa 850°C und Berstdrücken größer 45 bar deutliche Unterschiede zwischen den Jodproben und den Ar-Vergleichsproben vorhanden (Abb.4235-63,-64). Das unterschiedliche Verformungsverhalten der verschiedenen Rohrproben läßt sich deutlich den Abb.4235-65 und 4235-66 entnehmen, wo die maximalen Umfangsdehnungen bzw. Berstdehnungen der Rohrproben in Abhängigkeit von der Bersttemperatur und des Berstdruckes aufgetragen sind. Im LOCA-typischen Temperatur- und Druckbereich variieren die Berstdehnungen der jodhaltigen Rohrproben zwischen ca. 10 und 20% gegenüber etwa 60 und 100% bei den Ar-Vergleichsproben. In diesem Temperatur-/Druckbereich sind auch unter oxidierenden Versuchsbedingungen keine wesentlichen Unterschiede im Verformungsverhalten der jodhaltigen Zry-Hüllrohre zu erwarten, da die Hüllmaterialtemperaturen relativ niedrig ($< 850^{\circ}\text{C}$) und die Versuchszeiten kurz (< 150 s) sind, und dadurch die Außenoxidation des Zry vernachlässigbar klein ist /8/. Die sehr geringen Oxidationseinflüsse haben unter diesen Bedingungen auch keinen ausgeprägten Einfluß auf das Verformungsverhalten der Zry-Hüllrohre /14/.

Ermittelt man, unter Berücksichtigung der Berstdehnung, die tangentielle Bruchspannung in den Zry-Hüllrohren, so erkennt man, daß diese unterhalb

etwa 850°C für die jodhaltigen Proben kleiner ist als für die Argon-Vergleichsproben (Abb.4235-67). Möglicherweise handelt es sich bei der so bestimmten Tangentialspannung um die notwendige kritische Spannung im Hüllmaterial, die in Gegenwart von korrosiven Medien wie Jod zur Spannungsrißkorrosion und damit zum Versagen des Hüllrohres führt. Bei Temperaturen oberhalb 850°C hat die Gegenwart von Jod praktisch keinen Einfluß auf das Verformungs- und Berstverhalten der Zry-Hüllrohre. Sehr wahrscheinlich erreicht man bei den hohen Temperaturen nicht mehr die zum Versagen erforderlichen kritischen Spannungen im Hüllrohr, da sich diese bereits vorher infolge plastischer Verformung abbauen. Inwieweit auch die Zweiphasigkeit des Zry oberhalb 850°C dieses Verhalten mitbestimmt ist nicht bekannt.

Die Jodkonzentration in den Rohrproben war bei diesen ersten Experimenten relativ hoch. In weiterführenden Experimenten soll aber die kritische Jodkonzentration systematisch bestimmt werden, die gerade noch zum Versagen der Zry-4-Hüllrohre infolge SRK führt. Die kritische Jodkonzentration wird vermutlich jedoch keinen festen Wert darstellen, sondern stark vom Ausgangs-, d.h. Schädigungszustand der Hülle abhängen.

1.2.2 Rasterelektronenmikroskopische Untersuchungen der Zry-4-Berstproben

Die geborstenen jodhaltigen Rohrproben und Argon-Vergleichsproben wurden systematisch mit einem Rasterelektronenmikroskop (REM) untersucht. Ziel dieser Untersuchungen ist es, den Versagensmechanismus der Hüllrohre zu bestimmen.

Bei den Argon-Vergleichsproben ergaben die REM-Untersuchungen stets ein duktiles Versagen der Zry-4-Hüllrohre; die Bruchflächen zeigen die dafür typische Grübchenbildung (Abb.4235-68). Auf der Hüllrohrinnenoberfläche haben sich z.T. dünne Oxidschichten gebildet, die während der Hüllrohrverformung aufbrechen. Schädigungen des darunterliegenden metallischen Zry, wie z.B. die Bildung von Rissen, konnten nicht beobachtet werden (Abb.4235-68). Im Gegensatz dazu werden bei den jodhaltigen Rohrproben mit Bersttemperaturen unterhalb 800°C auf der Hüllrohrinnenoberfläche stets unzählige Anrisse festgestellt (Abb.4235-69). Die Aufweitungen der Risse hängen dabei von der max. Berstdehnung der Hüllrohre ab und sind in der Ebene des Bruches am größten. Im Hinblick auf die Anzahl der Anrisse im Hüllrohr, d.h. der Hüllmaterialschädigung, ist eine schwache

Abhängigkeit von der Jodkonzentration festzustellen.

Die Risse im Zry-Hüllrohr verlaufen zunächst interkristallin, danach kommt ein Übergangsbereich in dem auch transkristalline Risse bzw. Brüche festgestellt werden können, anschließend erfolgt der duktile Restbruch des Rohres (Abb.4235-70). Die interkristallinen Anrisse bzw. Bruchflächen zeigen sehr deutlich, daß es zu einer starken Auflockerung des Gefügeverbandes kommt, wodurch die Festigkeit des Zry stark reduziert wird (Abb.4235-71). Da mit zunehmender Rißtiefe die tragende Wandstärke des Hüllrohres stetig abnimmt, kommt es bei gleichbleibender mechanischer Belastung des Rohres bei einer kritischen Rißtiefe zu einem duktilen Gewaltbruch des Restquerschnittes des Hüllrohres, da die Spannung ständig zunimmt. Diese Bruchflächencharakteristik (interkristalliner Rißbeginn, inter- und transkristalliner Übergangsbereich, duktiler Restbruch) ist bei allen jodhaltigen Rohrproben festzustellen. Diese Beobachtungen stehen auch in Übereinstimmung mit Angaben aus der Literatur /15,16,17,18,19/, nur wurden dort die Experimente generell bei wesentlich tieferen Temperaturen ($< 500^{\circ}\text{C}$) durchgeführt.

Bei jodhaltigen Rohrproben mit 8 mg J/cm^3 kommt es in der Umgebung des Risses teilweise zu einer nahezu vollständigen Auflösung des Hüllmaterialgefügeverbandes, nicht nur von den Bruchflächen aus, sondern auch von der Oberfläche her (Abb.4235-72). Das Hüllmaterial reißt von Innen entlang der Korngrenzen auf. Die Bruchfläche selbst zeigt wieder die 3 typischen Bereiche: interkristalliner Bruchbeginn sowie duktiler Restbruch, dazwischen das inter- und transkristalline Mischbruchgebiet (Abb.4235-73). Der duktile Bruchbereich hat darüberhinaus ein anderes Aussehen als bei den Rohrproben mit 4 mg J/cm^3 bzw. den Argon-Vergleichsproben. Es kommt zu deutlich geringeren plastischen Verformungen der Hüllrohre.

Es ist hier nochmals anzumerken, daß die Experimente zur Spannungsrißkorrosion von Zry-4 durch Jod mit fehlerfreien Hüllrohren durchgeführt wurden. Im Falle bereits vorhandener Mikrorisse im Hüllmaterial ist mit einem beschleunigten Versagen der Hüllrohre zu rechnen. Darüberhinaus werden die Bruchdehnungen bei vorgeschädigten Hüllrohren deutlich kleiner sein als bei diesen Experimenten. Entsprechende Experimente mit Hüllrohren, die Mikrorisse unterschiedlicher Tiefe enthalten, sind in Vorbereitung.

2. UO₂/Zry-Reaktionsexperimente unter PCM-Bedingungen /12/

2.1 Versuchsdurchführung

Im Rahmen dieser out-of-pile Untersuchungen werden die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO₂ und Zry systematisch bei Temperaturen zwischen 1000 und 1500°C untersucht. Unter PCM-Bedingungen ist der Außendruck (Systemdruck) deutlich größer als der Gasdruck im LWR-Brennstab, das Zry-Hüllmaterial kollabiert daher auf den Brennstoff. Die Glühexperimente wurden deshalb bei hohen UO₂/Zry-Kontaktdrücken durchgeführt. Die Versuchsdurchführung wurde bereits im letzten Halbjahresbericht ausführlich beschrieben /13/. Die am IMF I durchgeführten UO₂/Zry-Reaktionsexperimente sind begleitende out-of-pile Experimente zu den in-pile durchgeführten PCM-Experimenten in der Power Burst Facility in Idaho /20,21/. Ziel dieser Untersuchungen ist es, die UO₂/Zry-Reaktionskinetik sowie den Einfluß der chemischen Wechselwirkungen auf die mechanischen Eigenschaften des Zry-4 zu ermitteln.

2.2 Versuchsergebnisse

2.2.1 Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der UO₂/Zry-Reaktionsprodukte

Bei 1300°C und einem Kontaktdruck von $p = 0,64 \text{ Kp/cm}^2$ wird auf der Seite zum UO₂ hin eine α -Zr(O)-Reaktionszone mit α -U an den Korngrenzen und im Korn beobachtet (Abb.4235-74). Zwischen der α -Zr(O)-Zone und dem Zry-4-Hüllmaterial bildet sich eine uranhaltige Phase. Die verschiedenen Reaktionszonen wurden mittels eines eigens dafür konzipierten Fokkussierungssystems röntgenographisch untersucht. Durch sehr kleine Aperturblenden von ca. 0,1-0,5 mm war es möglich, die verschiedenen Reaktionszonen mit dem Röntgenstrahl abzutasten. In Abb.4235-75 sind einige Röntgenfeinstrukturaufnahmen zu sehen, welche mit dem Diffraktometer aufgenommen wurden. Daraus geht deutlich hervor, daß nach einer Glühung bei 1300°C die innere Reaktionszone im Kontakt mit dem UO₂ aus α -Zr(O) und etwas α -U sowie UO₂ besteht. Auf der Seite des Zry wird eine uranreichere und eine Zr-reichere Zone beobachtet. Die uranreichere Zone enthält α -U und δ -UZr₂ (Abb.4235-75). Diese Phase hat ein hexagonales Gitter ($D_{6h}^1 - P\bar{6}$ mmm) mit $a \approx 5,05 \text{ \AA}$ und $c \approx 3,10 \text{ \AA}$ und zerfällt oberhalb 620°C in den Mischkristall (γ -U, β -Zr). Bei unseren Versuchen bildete sich die UZr₂-Phase aus α -U und α -Zr(O) beim langsamen Abkühlen unterhalb 620°C. In der nachfolgenden Zr-reicheren Zone

(vgl. Abb.4235-75) wird röntgenographisch δ -UZr₂ sowie eine weitere Zirkon-Phase mit etwas Uran beobachtet; die Struktur dieser Phase ist nicht bekannt, vermutlich wird sie durch Sauerstoff stabilisiert. UO₂ wurde weder in der uranreicheren - noch in der zirkonreicheren Zone beobachtet. Dies stimmt mit früheren Gefügeuntersuchungen überein. Die Bildung von ZrO₂ wurde nicht beobachtet.

Die Versuchsbedingungen zur Aufstellung einer praxisrelevanten Reaktionskinetik zwischen UO₂ und Zry-4 unter PCM-Bedingungen waren in dem oben diskutierten Konzept nicht erfüllt. Einmal war der in Wirklichkeit vorhandene mechanische Druck auf die Zry-Hülle nicht vorhanden und zum anderen waren die Aufheiz- und Abkühlungszeiten des Ofens mit 8°C/s zu groß, um Kurzzeitversuche, wie sie für das Studium der Reaktionskinetik und Diffusion erforderlich sind, zu realisieren. Dies hat auch die Bildung von δ -UZr₂ bei langsamer Abkühlung deutlich gezeigt. Es wurden deshalb die reaktionskinetischen Experimente in einem Gas-Hochdruckautoklaven unter Argon-Drucken von 80 bar durchgeführt. Die Glühtemperaturen betragen 1000, 1100, 1200, 1300, 1400 und 1500°C, die Glühzeiten 3, 6, 10, 20, 30 und 60 min.

In Abb.4235-76 ist das Mikrogefüge der Proben, die bei 1300°C 10, 20, 30 und 60 min lang geglüht wurden, zu sehen. Es werden stets drei Reaktionszonen beobachtet. An der Phasengrenze UO₂/Zry-4 bildet sich auf der Seite zum UO₂ hin eine α -Zr(O)-Phase mit α -U an den Korngrenzen. Danach folgt eine uranreiche (U,Zr)-Phase mit folgender chemischer Zusammensetzung: 87,2 Gew.% U, 10,6 Gew.% Zr und 2,2 Gew.% O. Da jedoch Uran sehr wenig Sauerstoff zu lösen vermag, wird angenommen, daß in der U-Zone entweder sehr feine Ausscheidungen aus α -Zr(O) existieren, oder daß durch die U-Zr-Mischkristallbildung eine höhere Löslichkeit von Sauerstoff in Uran ermöglicht wird. Wie aus der Abb.4235-78 zu entnehmen ist, folgt nach der U-Zone eine Reaktionszone aus reinem α -Zr(O) und danach die noch unreaktierte Zry-4-Hülle. Je nach Temperatur und Sauerstoffgehalt ist in der Zry-4-Hülle auch die umgewandelte β -Phase (α') des Zry deutlich zu sehen. Oberhalb 1400°C kommt es, bedingt durch thermische Spannungen und infolge der Sprödigkeit der α -Zr(O)-Phase am Übergang α -Zr(O)/Zry zu tangentialen Rissen. Diesen Sachverhalt kann man aus den Schlifffbildern deutlich entnehmen (Abb.4235-79).

Ab 1300°C wird im Gefüge des UO_2 in großen Mengen ausgeschiedenes α -U beobachtet (Abb.4235-80). Obwohl eine quasistöchiometrische Zusammensetzung von $\text{O/U} = 2,005$ verwendet wurde, ist dies möglich, denn nach dem Phasendiagramm (vgl. Abb.4235-81) liegt die untere Phasengrenze von UO_2 bei 1400°C bei einem O/U -Verhältnis von 1,96. Bei den hohen Temperaturen wird das UO_2 durch das Zircaloy zu leicht unterstöchiometrischem Urandioxid (UO_{2-x}) reduziert, das bei der Abkühlung in stöchiometrisches UO_2 und metallisches Uran zerfällt. Selbst bei geringen Zr-Gehalten im Uran, ist diese metallische Phase ab etwa 1300°C flüssig, wie systematische Untersuchungen in dem System U-Zr-O ergeben haben /22/. Oberhalb 1300°C werden daher bei den UO_2/Zry -Reaktionsexperimenten stets größere Mengen flüssiger Phasen beobachtet, die teilweise die Dishing-Hohlräume der UO_2 -Pellets füllen.

Wie aus der Abb.4235-82 zu sehen ist, sind die Dishing-Hohlräume der UO_2 -Pellets voll mit der erstarrten Uran-Schmelze gefüllt. Die Röntgendiffraktometeraufnahme (Abb.4235-83a) zeigt, daß das Reaktionsprodukt hauptsächlich aus α -U besteht, das noch etwas α -Zr und UO_2 enthält. Das UO_2 ist offenbar sehr fein in der Uranschmelze verteilt. Freies Zr oder ZrO_2 konnte nicht nachgewiesen werden. Die Referenzaufnahmen von Zry-4 als Ausgangsmaterial und α -Zr(O) sind den Abb.4235-83b und 4235-83c zu entnehmen. Mikrosondenuntersuchungen (Abb.4235-84) ergaben, daß die erstarrte Schmelze in den Dishing-Hohlräumen aus 94,7 Gew.% U, 2,7 Gew.% Zr und 2,3 Gew.% O besteht. Die zirkonreiche Phase am Kontakt Schmelze/ UO_2 -Pellet besteht aus 95,0 Gew.% Zr, 1,3 Gew.% U und 3,1 Gew.% O.

Neben den UO_2/Zry -Reaktionsexperimenten wurden erste Versuche mit spaltproduktartigen Versuchsproben durchgeführt. Dem UO_2 wurden die Spaltprodukte Cs, J und Te entsprechend eines simulierten Abbrandes von 10 At.% zugegeben. Die Spaltprodukte haben aber offenbar keinen Einfluß auf die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry. Tellur wird z.T. gemeinsam mit Cs an der Reaktionsfront im Zry mit der Mikrosonde nachgewiesen.

Während des Abbrandes im Reaktor bilden sich auf der Hüllrohrinnenoberfläche der Brennstäbe dünne Oxidschichten (ZrO_2). Es wurde deshalb untersucht, inwieweit diese ZrO_2 -Schichten eventuell die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry bei hohen Temperaturen beeinflussen. Erste Versuchsergebnisse zeigen, daß die Oxidschichten bis zu 1000°C die UO_2/Zry -Reaktionen verhindern, d.h. eine Art Schutzschicht bilden. Oberhalb 1000°C

besitzt die Oxidschicht nur noch bei sehr kleinen Glühzeiten eine Schutzschichtwirkung, da das ZrO_2 mit dem Zry unter Bildung von $\alpha-Zr(O)$ reagiert.

2.2.2 UO_2/Zry -Reaktionskinetik

Das wesentliche Ziel der UO_2/Zry -Reaktionsexperimente ist - wie bereits erwähnt - die quantitative, analytische Beschreibung der chemischen Wechselwirkungen. Die Wanderung der Phasengrenzen zwischen den verschiedenen Phasen wurde daher bei den untersuchten Glühtemperaturen über die Wurzel aus der Glühzeit aufgetragen (Abb.4235-85). Im Falle diffusionsgesteuerter Vorgänge sollten die UO_2/Zry -Reaktionen einem parabolischen Zeitgesetz gehorchen. Diese Bedingung ist, wie man der Abb.4235-85 entnehmen kann, erfüllt. Man kann daher die Größe (x^2/t) über $(1/T)$ auftragen und erhält eine Arrhenius-Darstellung für die Phasengrenzwanderung bzw. den Eindringkoeffizient (Abb.4235-86). Da die UO_2/Zry -Reaktionen primär durch die Sauerstoffdiffusion im Zry bestimmt werden, da dies der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist, sollte die Aktivierungsenergie (AE) für die Phasengrenzwanderung $\alpha-Zr(O)/Zry-4$ derjenigen der Sauerstoffdiffusion entsprechen. Die hier ermittelte AE von 42900 kcal/mol stimmt recht gut mit Angaben von S.Leistikow et al /8/ überein, die einen Wert von 43880 kcal/mol erhielten.

Im Moment werden UO_2/Zry -Glühexperimente mit Mo- bzw. W-Markierungsdrähten an der Phasengrenze UO_2/Zry durchgeführt, um festzustellen, wo nach den Glühungen die ursprüngliche Phasengrenze liegt. Das wird sehr wahrscheinlich eine geringe Korrektur der Eindringkoeffizienten in kleineren Werten zur Folge haben. Die Arrhenius-Darstellung gibt daher im Augenblick konservative Werte wieder.

Literatur

- /1/ R.T.Ratcliffe und G.W.Greenwood
Phil. Mag., 12, 59 (1965)

- /2/ P.Hofmann
KFK-Ext.6/77-2 (1977)

- /3/ R.W.Baluffi und L.L.Seigle
Acta Met., 5,449 (1957)

- /4/ M.Bocek et al.
J. of Nucl. Mat., 62, 26 (1976)

- /5/ F.Erbacher et al.
Reaktortagung 1977, S.193

- /6/ B.Ilschner
Hochtemperatur-Plastizität, Springer, 1973, S.73

- /7/ E.W.Hart
Acta Met., 15, 351 (1967)

- /8/ S.Leistikow et al.
KFK 2435 (1977) 261-305

- /9/ M.Bocek et al.
KFK 2375 (1976) 256-283

- /10/ S.Leistikow et al.
KFK 2262 (1976) 233-260

- /11/ S.Leistikow et al.
KFK 2375 (1976) 284-315

- /12/ P.Hofmann, C.Politis
Thermal Reactor Safety Meeting of the ANS
August 1977, Sun Valley, Idaho, USA

- /13/ P.Hofmann et al.
KFK 2435 (1977) 306-331

- /14/ H.M.Chung, A.M.Garde, T.F.Kassner
Thermal Reactor Safety Meeting of the ANS
August 1977, Sun Valley, Idaho, USA

- /15/ C.C.Busby et al.
Journ. of Nucl. Mat., 55 (1975) 64

- /16/ J.G.Weinberg
WAPD-TM-1048 (1974)

- /17/ J.C.Wood et al.
Journ. of Nucl. Mat., 57 (1975) 155

- /18/ A.Garlich
Journ. of Nucl. Mat., 49 (1973) 209

- /19/ K.Videm
Enlarged HPG-Meeting on Water Reactor Fuel Performance,
Sanderstølen, Norwegen (1977)

- /20/ W.J.Quapp, R.K.McCardell
OECD-CSNJ Spec. Meeting, Spatind, Norwegen (1976)

- /21/ W.J.Quapp et al.
Thermal Reactor Safety Meeting of the ANS,
August 1977, Sun Valley, Idaho, USA

- /22/ C.Politis
KFK 2167 (1975)

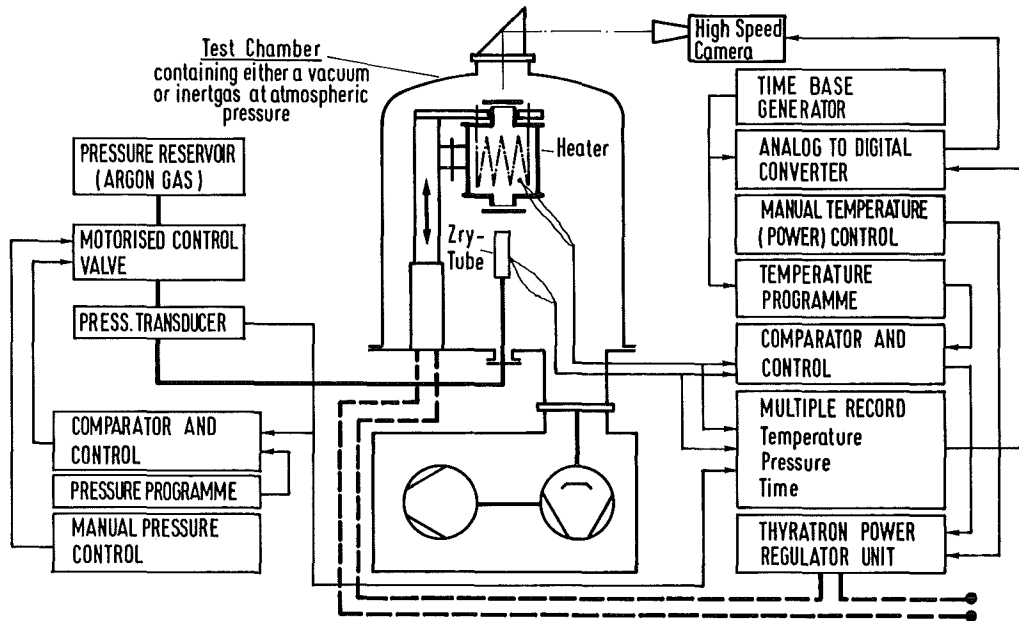


Abb.4235-56: Schematische Darstellung der Rohrberstanlage TUBA (Tube Burst Apparatus). Die Verformung der Zry-Hüllrohre wird mittels einer Hochgeschwindigkeitskamera festgehalten

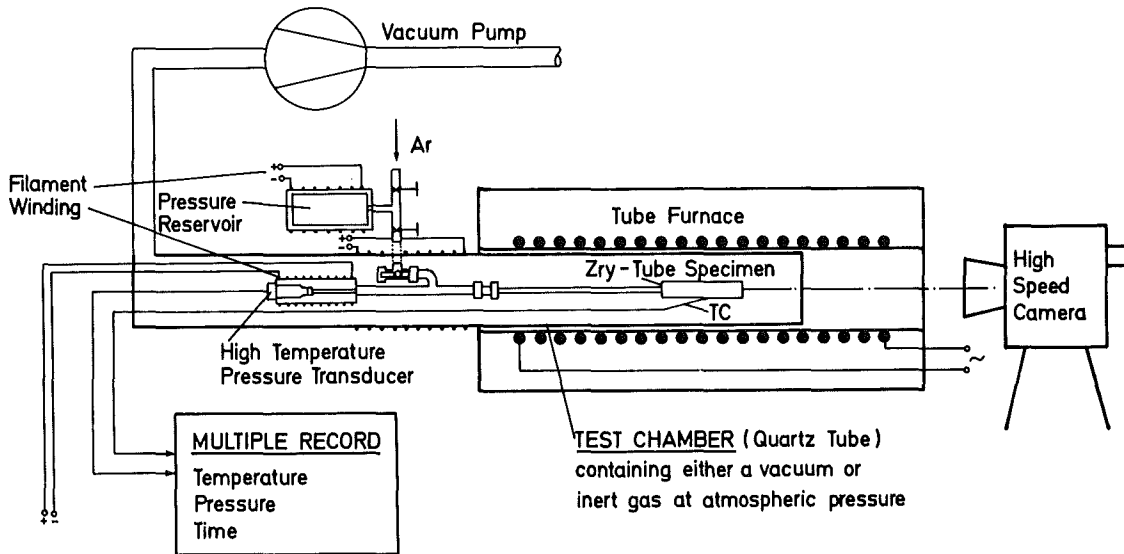


Abb.4235-57: Schematische Darstellung der Versuchsanlage zur Durchführung von Experimenten zur Spannungsrißkorrosion von Zry-4 durch Jod. Um die Kondensation von Jod an kalten Stellen zu verhindern, muß das ganze Meß- und Regelsystem auf Temperaturen > 200°C gehalten werden

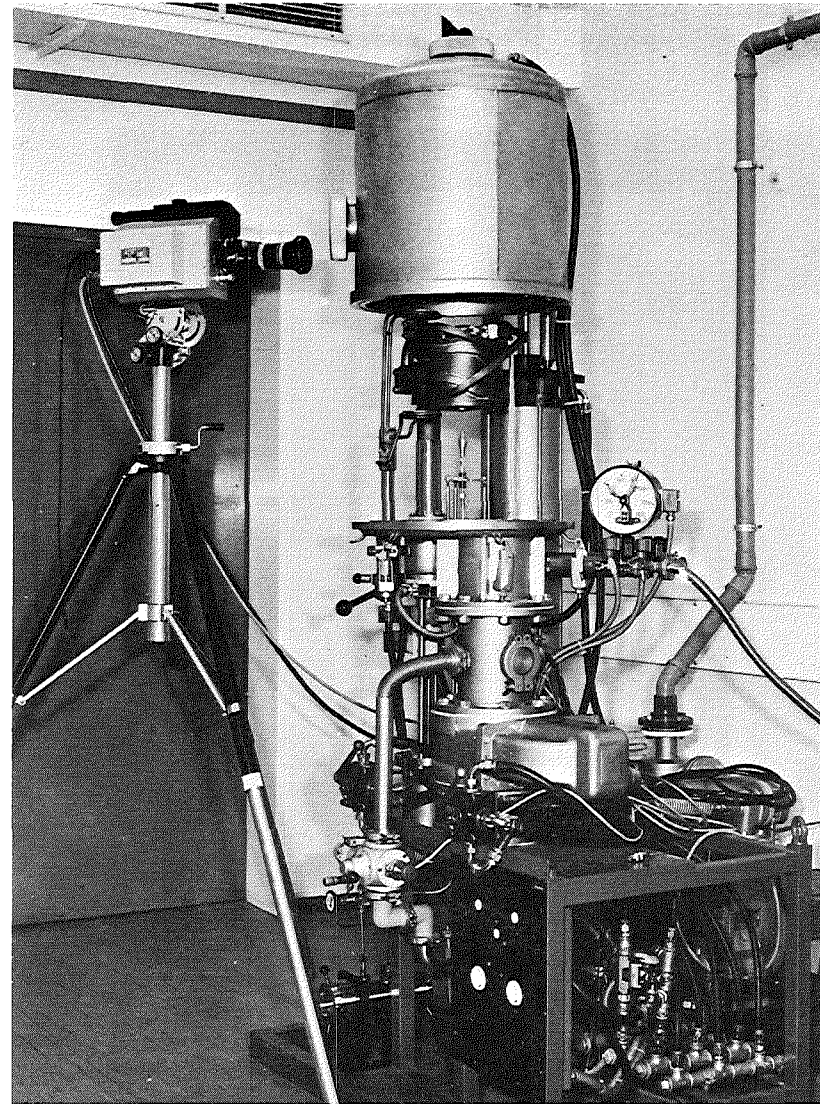
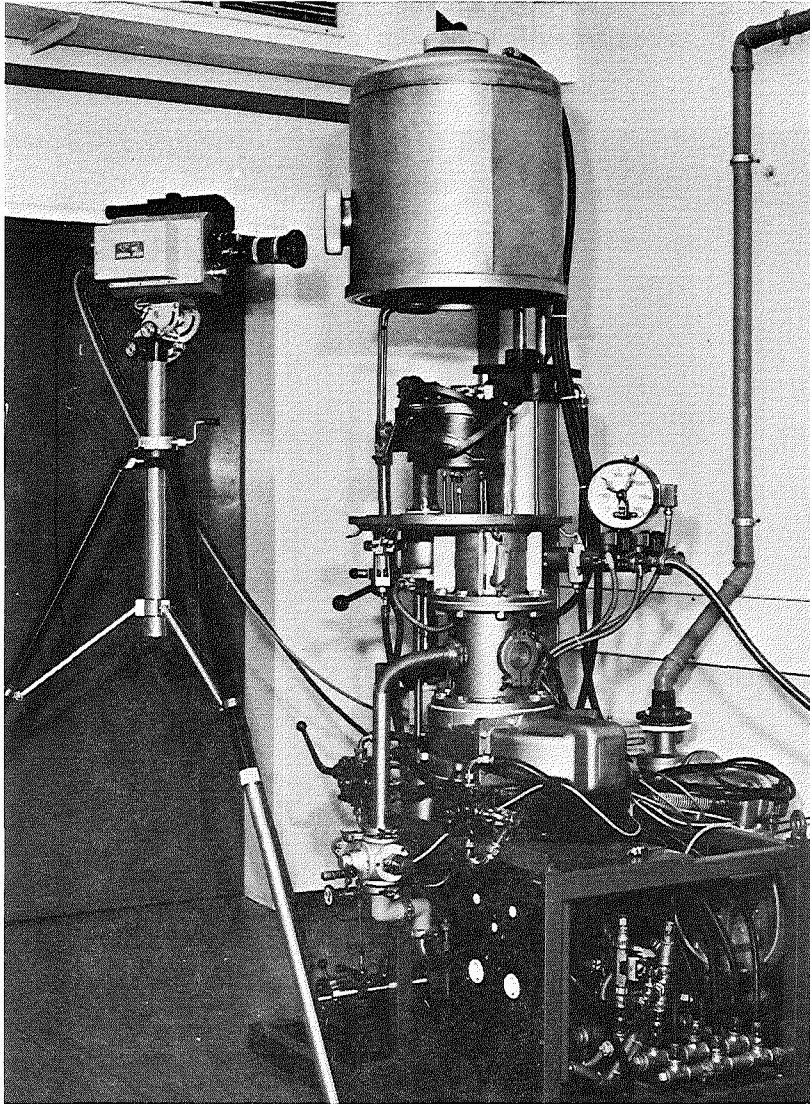


Abb.4235-58: Rohrberstanlage TUBA im geöffneten Zustand; einmal mit abgesenktem (links) und einmal mit hochgezogenem Heizer (rechts). Die Hüllmaterialtemperatur und der Rohrinrendruck werden gemeinsam mit der Hüllrohrverformung auf dem Film der Hochgeschwindigkeitskamera festgehalten

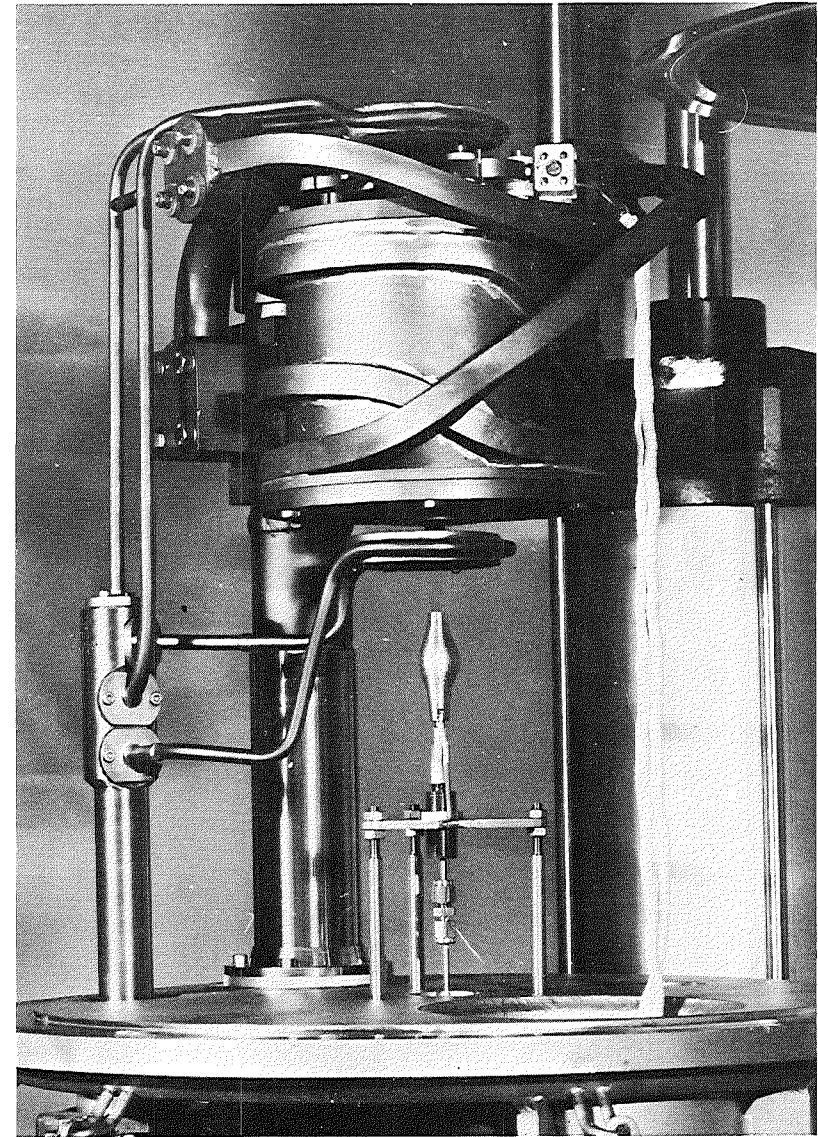
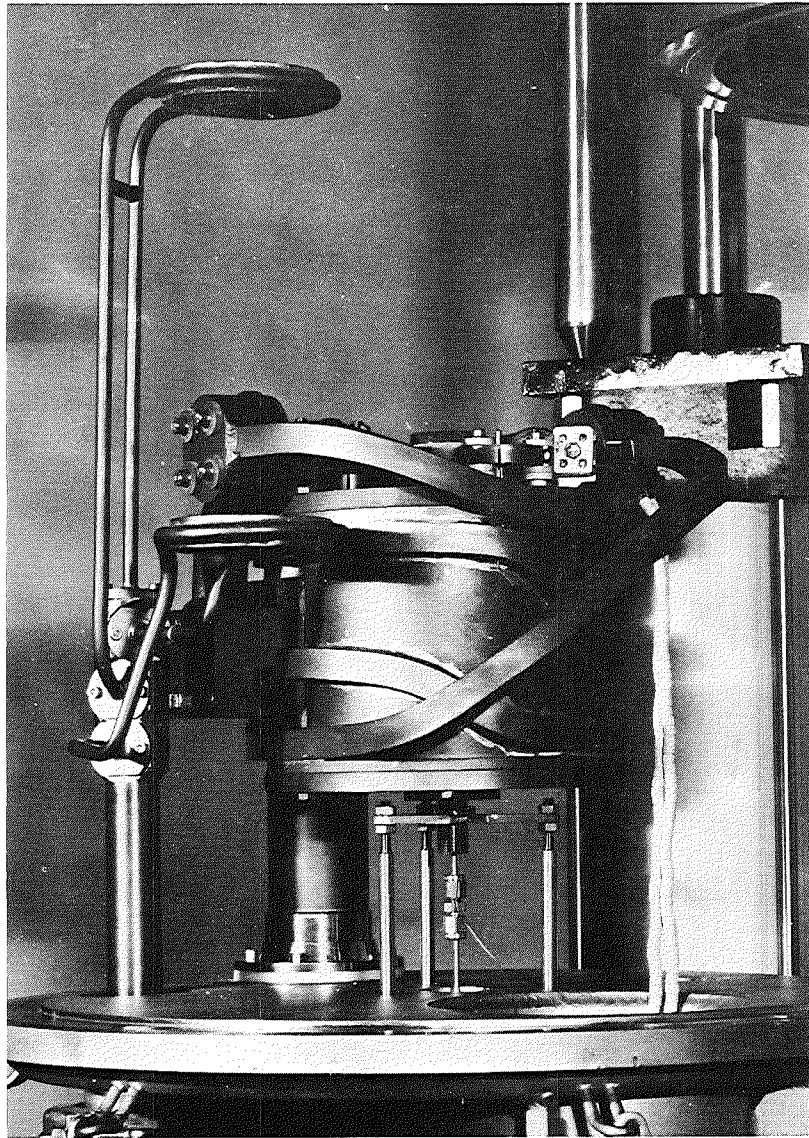


Abb.4235-59: Heizer der Rohrberstanlage (TUBA). Die Aufheizung der Rohrproben erfolgt entweder gemeinsam mit dem Heizer oder der bereits auf Temperatur ($\leq 2000^{\circ}\text{C}$) befindliche Heizer wird hydraulisch sehr schnell über die Probe abgesenkt

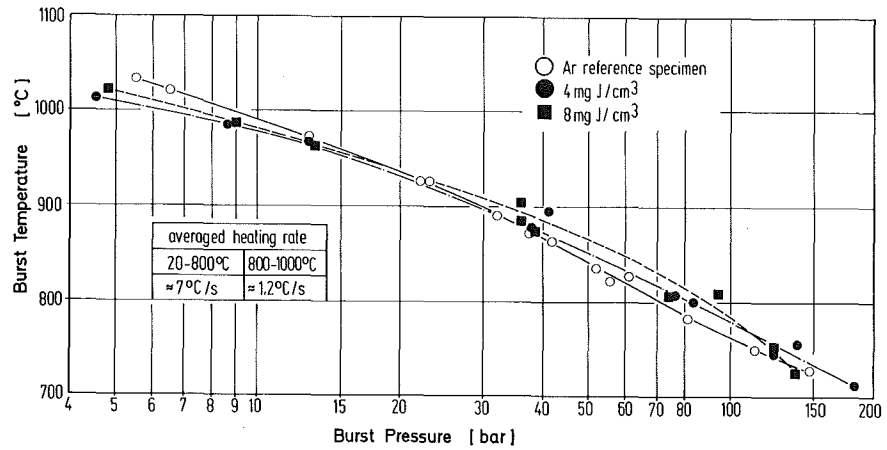


Abb.4235-60: Berstdruck in Abhängigkeit von der Bersttemperatur von jodhaltigen und jodfreien (Argon-Vergleichsproben) Rohrproben unter Schutzgas. Zwei Jodkonzentrationen wurden untersucht: 4 und 8 mg Jod/cm³. Durchmesser der Rohre: 10,76 mm; Wandstärke 0,75 mm

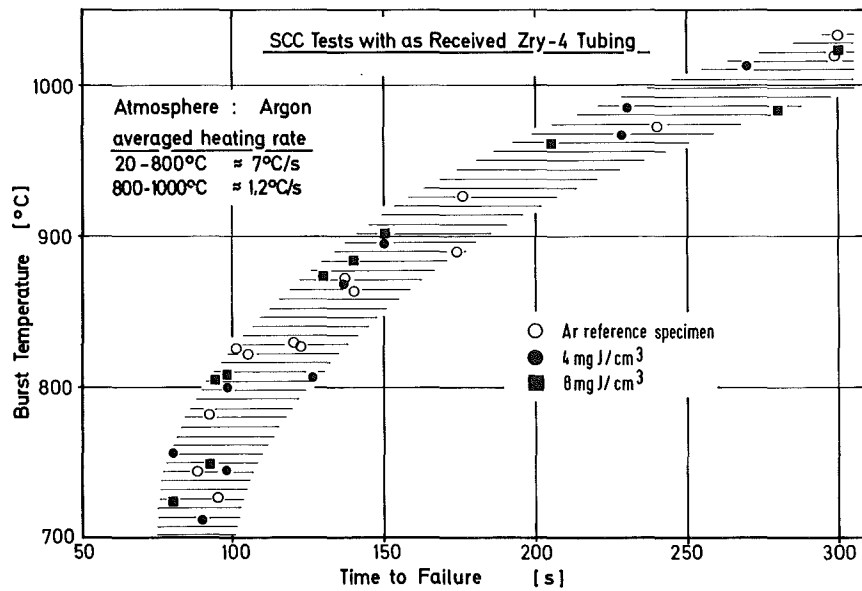


Abb.4235-61: Zeit bis zum Bersten der Rohrproben in Abhängigkeit von der Bersttemperatur. Die Ausgangstemperatur betrug 20°C. Die Rohrproben kamen im Anlieferungszustand zum Einsatz

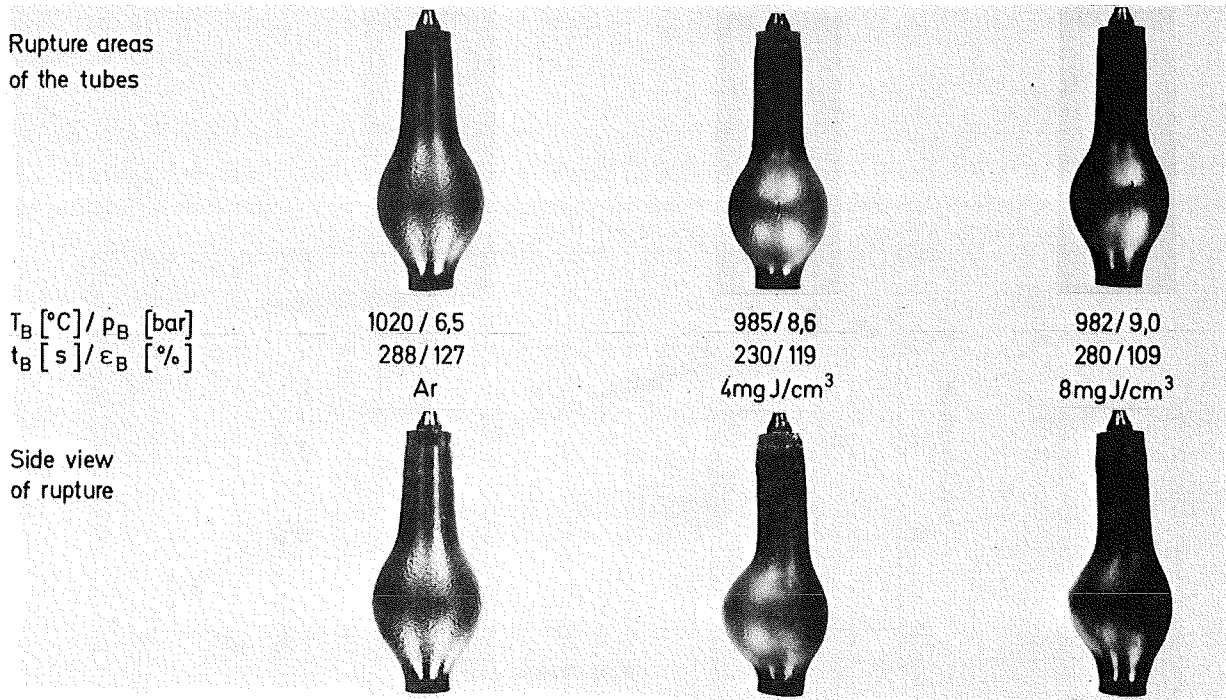


Abb.4235-62: Zry-4-Hüllrohre nach dem Bersten unter Schutzgas. Als Druckmedium wurde Argon oder ein Argon/Jod-Gemisch verwendet. Der Ausgangsdruck betrug bei 20°C einheitlich 3 bar. Das Jod hat keinen wesentlichen Einfluß auf das Verformungsverhalten der Rohre

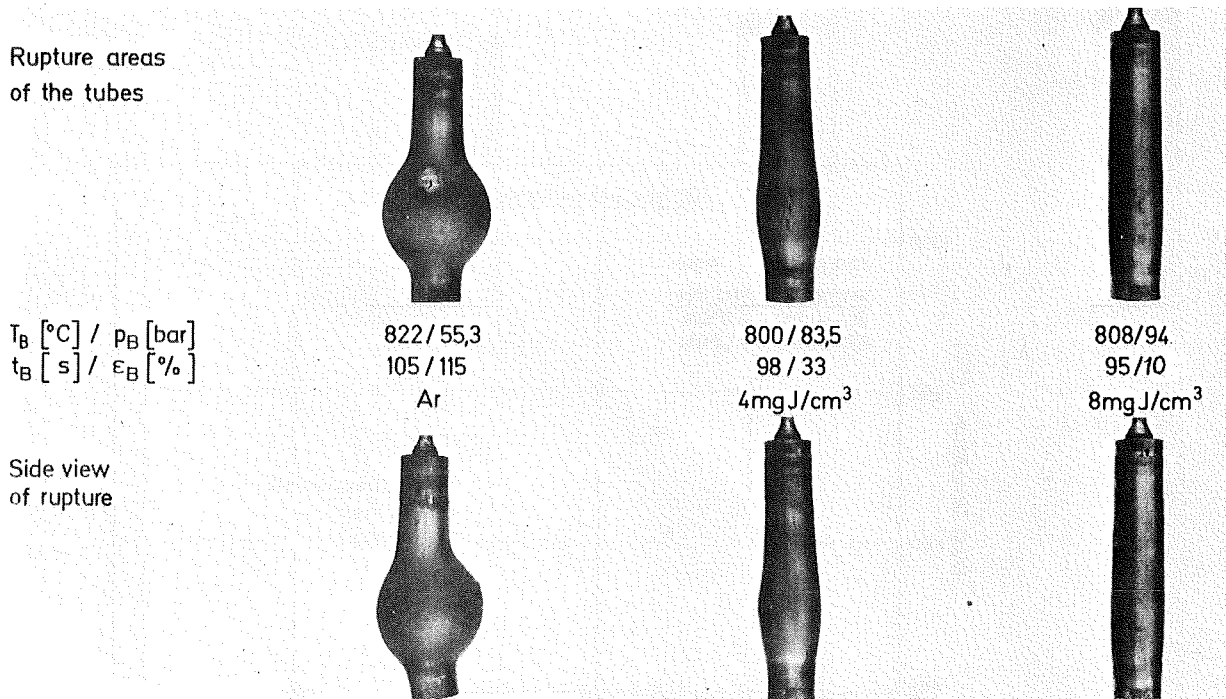


Abb.4235-63: Zry-4-Hüllrohre nach dem Bersten unter Schutzgas. Der Ausgangsdruck betrug bei 20°C einheitlich 37 bar. Es kommt zu einem spröden Versagen der jodhaltigen Rohrproben mit deutlich geringeren Berstdehnungen als bei den Argon-Vergleichsproben

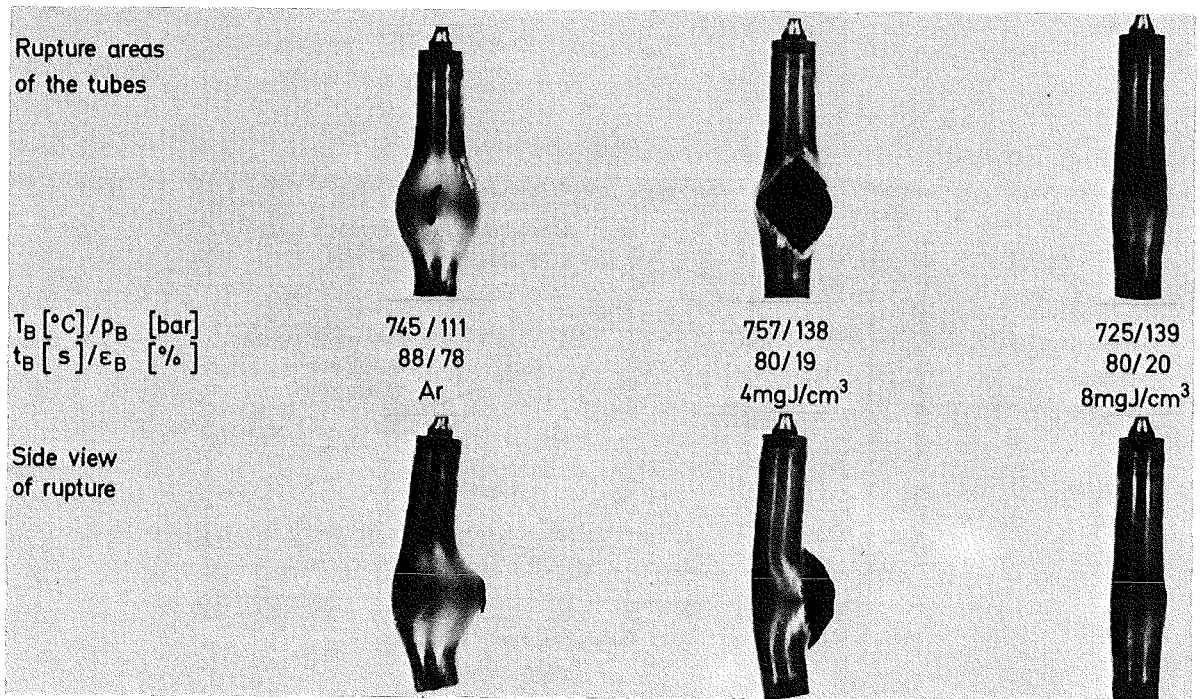


Abb.4235-64: Zry-4-Hüllrohre nach dem Bersten unter Schutzgas. Der Ausgangsdruck betrug bei 20°C einheitlich 60 bar. Die Duktilität des Zry wird durch die Gegenwart von Jod stark reduziert. Durch die große gespeicherte potentielle Energie in den Rohrproben kommt es teilweise zum Aufreißen der Hüllrohre

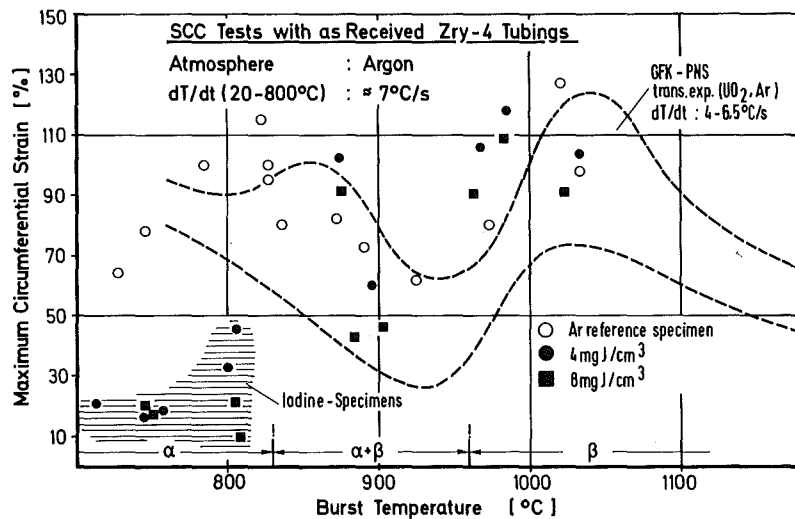


Abb.4235-65: Maximale Umfangsdehnung der Rohrproben in Abhängigkeit von der Bersttemperatur. Die Rohrproben kamen im Anlieferungszustand zum Einsatz. Unterhalb 850°C sind die Berstdehnungen der jodhaltigen Proben deutlich kleiner als die der Argon-Vergleichsproben

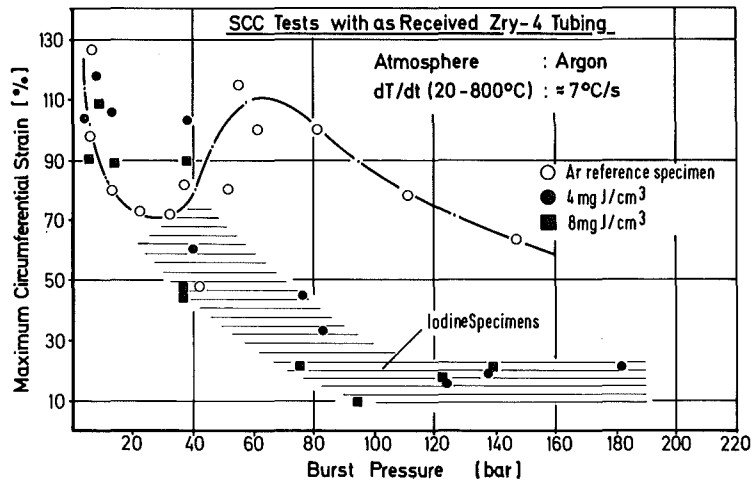


Abb.4235-66: Maximale Umfangsdehnung der Rohrproben in Abhängigkeit vom Berstdruck. Bei Berstdrücken > 40 bar sind die Berstdehnungen der jodhaltigen Proben deutlich kleiner als die der Argon-Vergleichsproben

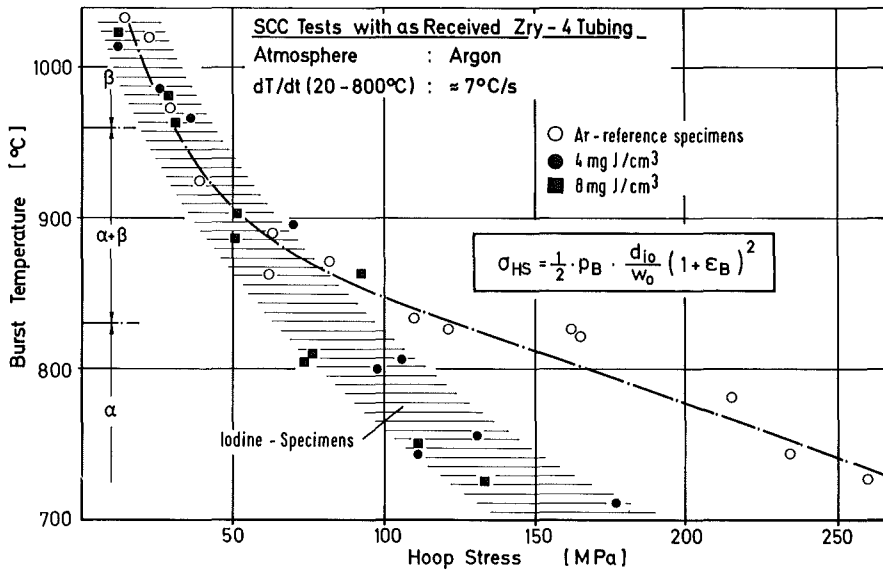
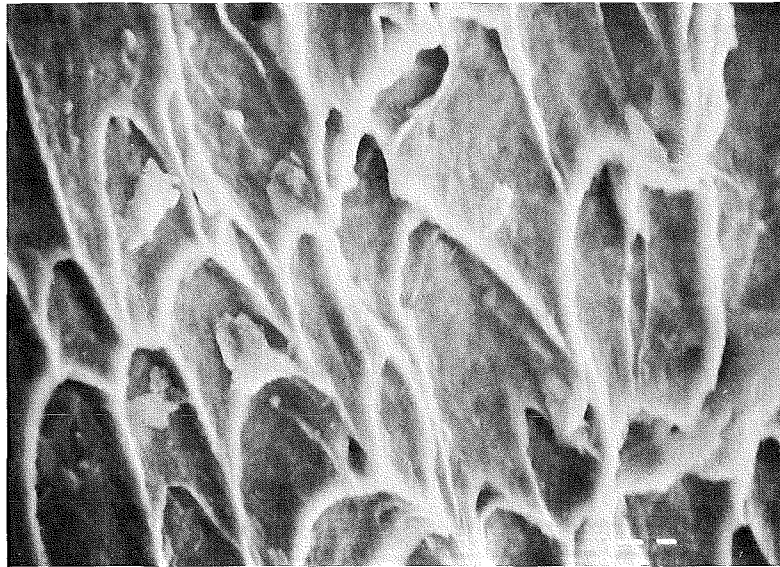


Abb.4235-67: Tangentiale wirksame Bruchspannung für jodhaltige und jodfreie (Argon-Vergleichsproben) Zry-4-Hüllrohre in Abhängigkeit von der Bersttemperatur



ductile fracture surface



Zry-4 cladding tube inside surface

155 D : $T_B = 745^\circ\text{C}$; $p_B = 111 \text{ bar}$; $t_B = 88 \text{ s}$; Argon

Abb. 4235-68: Bruchfläche und Hüllrohrinnenoberfläche einer Argon-Vergleichsprobe (das Hüllrohr kam im Anlieferungszustand zum Einsatz). Der Bruch erfolgt duktil. Auf der Innenoberfläche ist eine dünne Oxidschicht zu erkennen, die während der Verformung aufplatzte.



200 μm

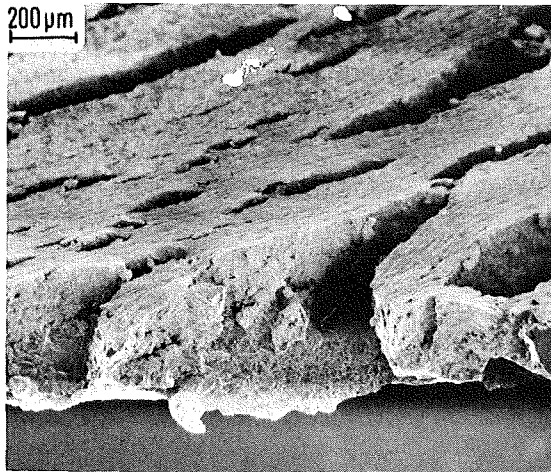
Hüllrohrinnenoberfläche



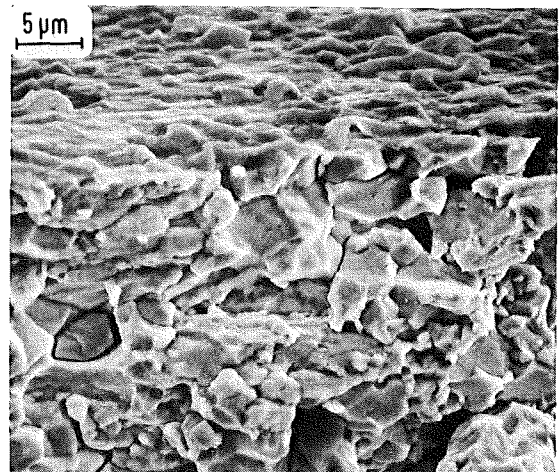
5 μm

Hüllrohraußenoberfläche

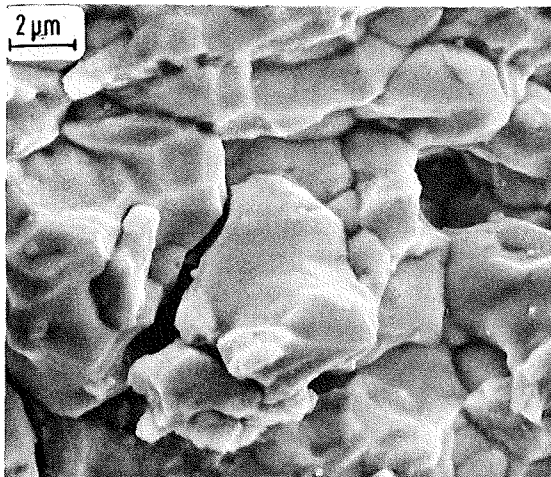
Abb.4235-69: Hüllrohrinnen- (oben) und -außenoberfläche (unten) einer jodhaltigen Berstprobe (123 B). Durch die Anwesenheit von Jod kommt es während der plastischen Verformung zu unzähligen Anrissen auf der Innenoberfläche



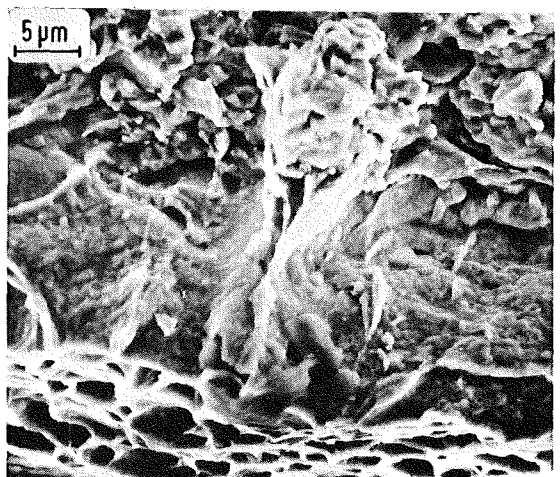
Zry tube inside and fracture surface



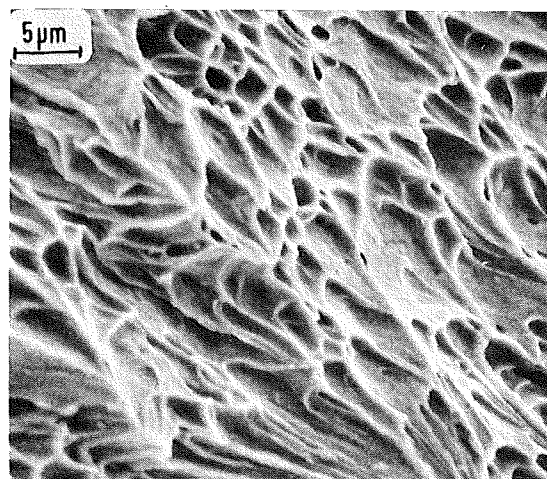
Intergranular crack starting zone



Intergranular fracture surface



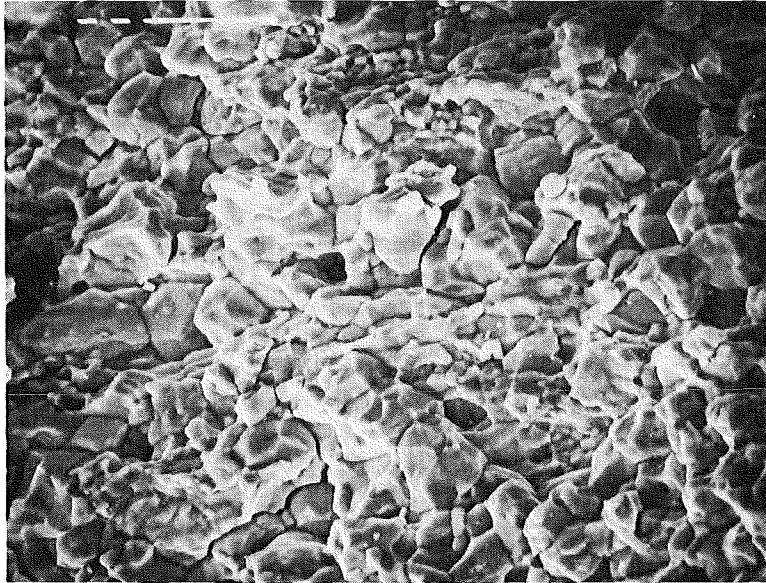
Change from intergranular SCC to ductile shear



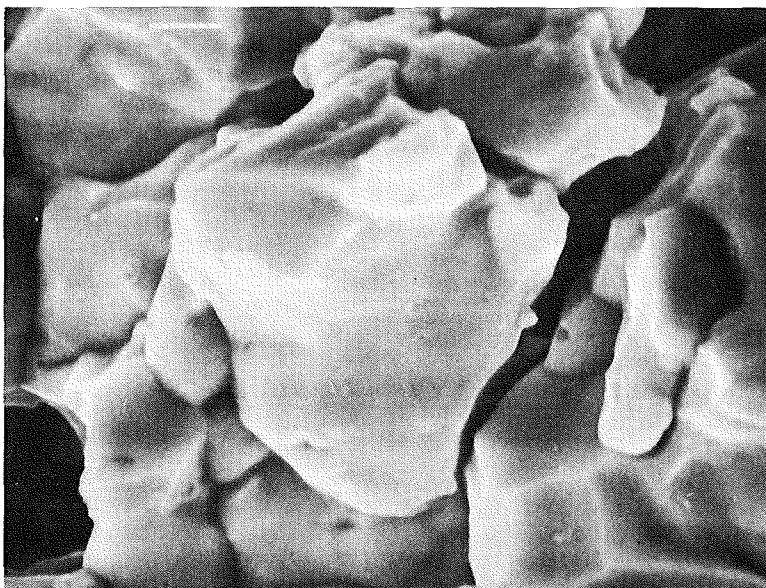
Ductile shear fracture surface

Abb.4235-70: Teilansicht der Hüllrohrinnenoberfläche und Bruchfläche einer jodhaltigen Berstprobe (123 D). Die Risse verlaufen i.a. interkristallin, der Restbruch des Hüllrohres erfolgt duktil; dazwischen liegt ein Übergangsbereich mit z.T. transkristallinen Bruchflächen.

Berstdaten der Probe 123 D: T_B : 757°C; p_B : 138 bar; t_B : 80s
Jodkonzentration: 4 mg/cm³



Intergranular cracking of Zry-4 tubing



123 D

Abb.4235-71: Interkristalline Bruchfläche einer jodhaltigen Rohrprobe (123 D). Durch unzählige Riβverzweigungen kommt es zu einer starken Auflockerung des Zry-Gefügeverbandes

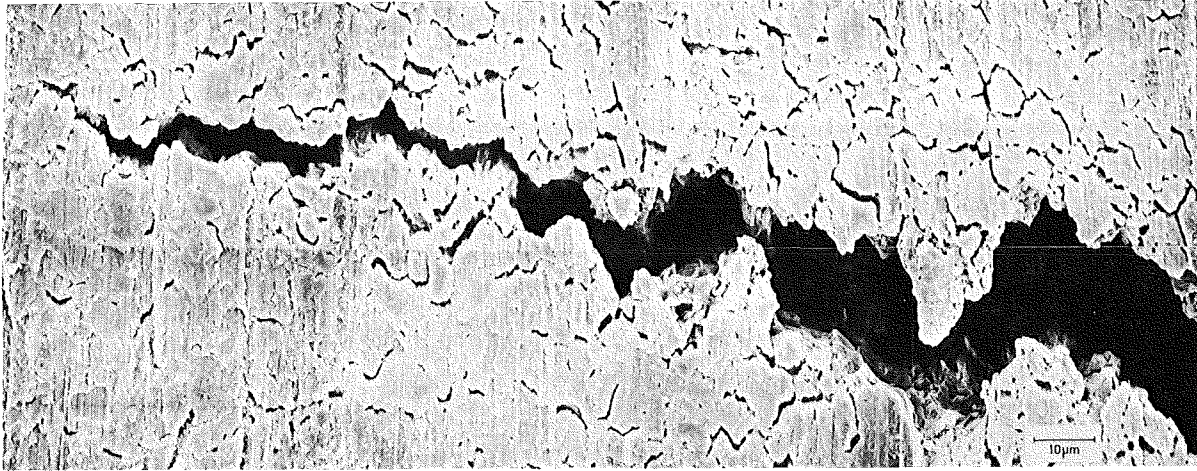


Abb.4235-72: Hüllrohraußenoberfläche einer jodhaltigen Probe in der Umgebung des Risses (Probe 110 D). Es kommt durch das Jod zu einer starken Schädigung des Hüllmaterialgefügeverbandes
Berstdaten: T_B : 808°C, p_B : 94 bar, t_B : 95 s (8 mg Jod/cm³)

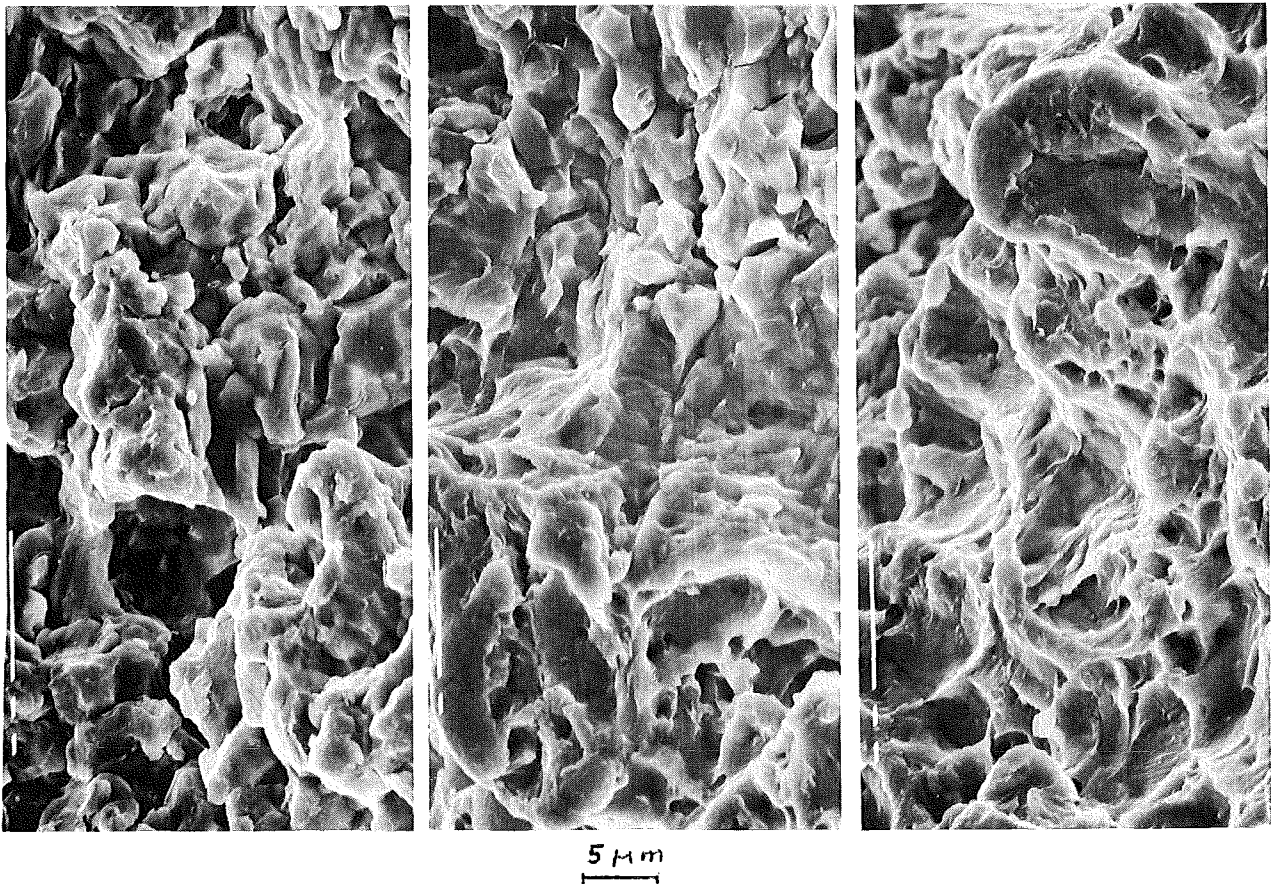
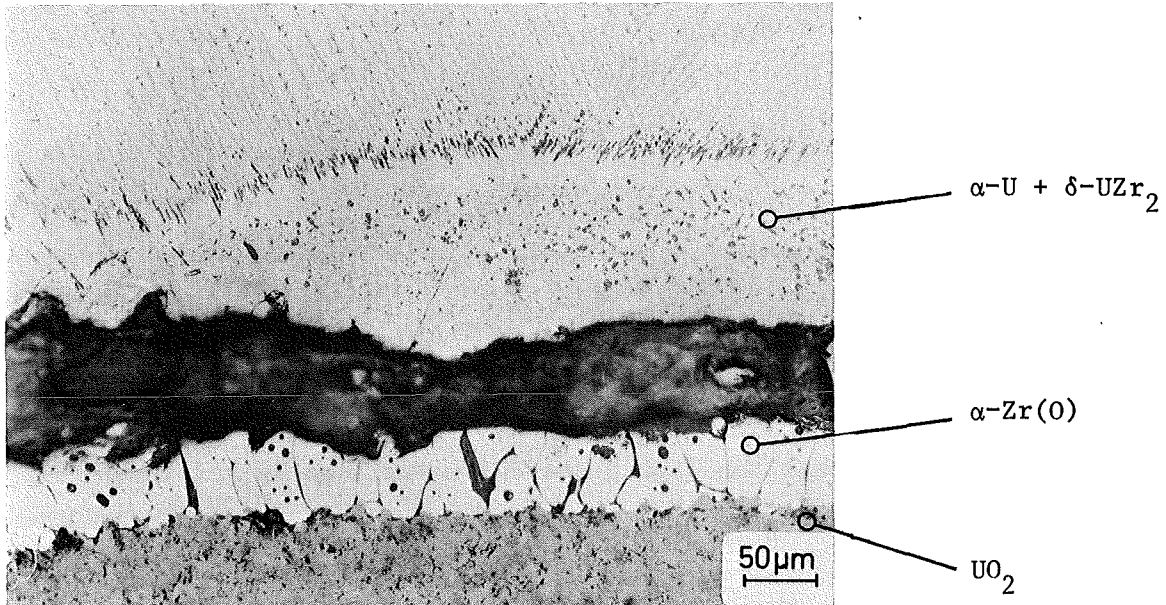
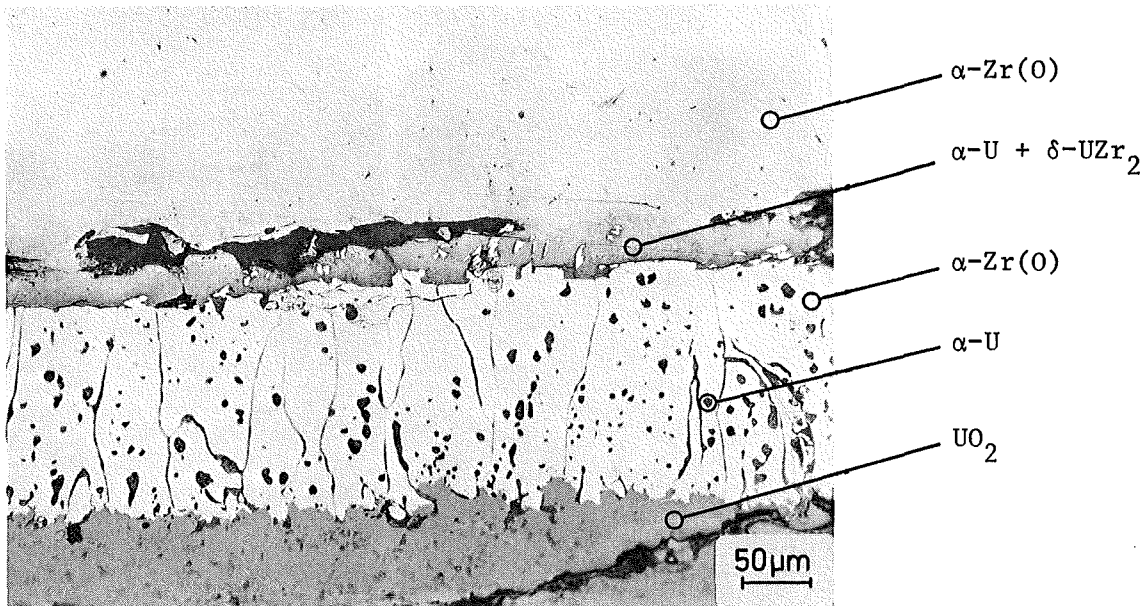


Abb.4235-73: Verschiedene Bruchflächenbereiche der Rohrprobe 110 D (Berstdaten siehe oben). Überwiegender interkristalliner Bruchbeginn (links), Mischbruchgebiet (mitte) und duktiler Restbruch (rechts)



a)



b)

Abb. 4235-74: $\text{UO}_2/\text{Zry-4}$ -Wechselwirkungen bei 1300°C nach verschiedenen Glühzeiten; UO_2/Zry -Kontakt­druck: $p = 0,64 \text{ kp/cm}^2$

- a) Glühdauer 1 h
- b) Glühdauer 3 h

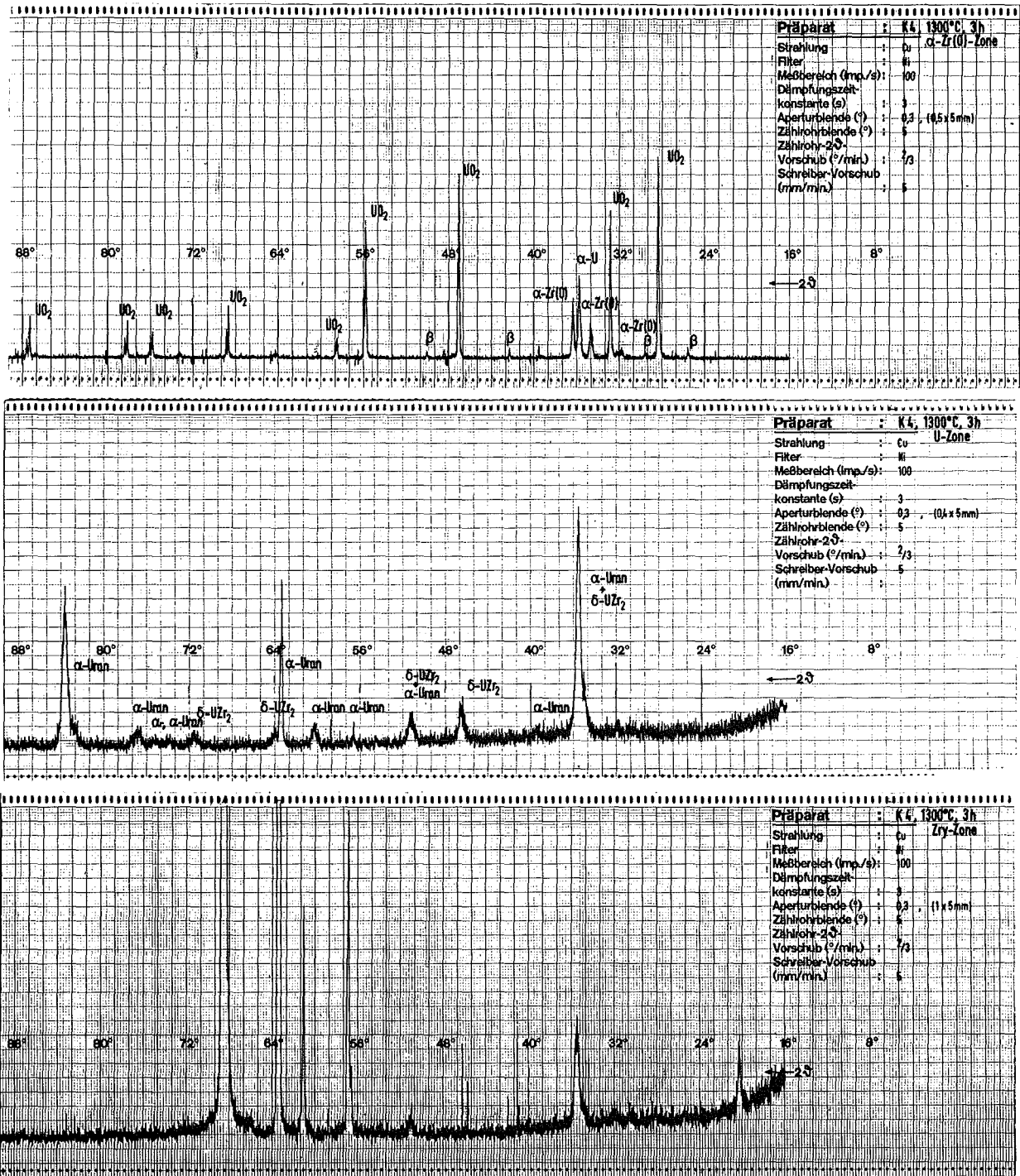
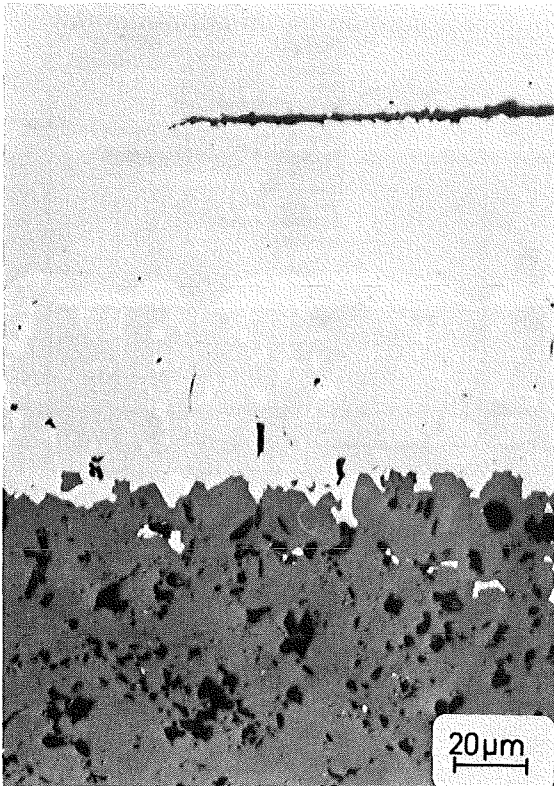
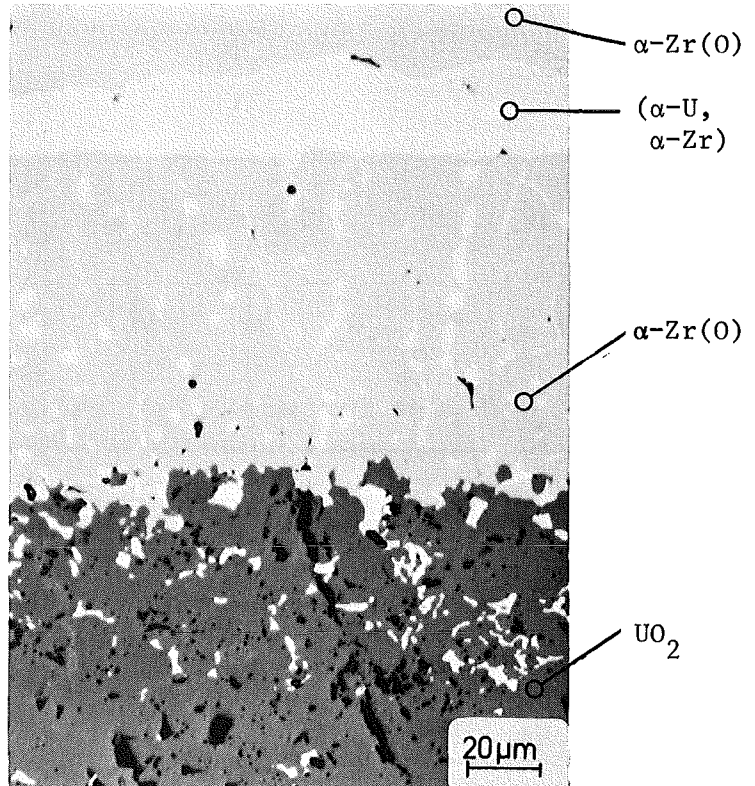


Abb.4235-75: Röntgen-Diffraktometeraufnahmen der verschiedenen UO_2/Zry -Reaktionszonen nach einer Glühung bei $1300^\circ C/3 h$ und einem UO_2/Zry -Kontaktdruck von $p = 0,64 \text{ kp/cm}^2$.

- a) α -Zr(O)-Zone; Reaktionszone zum UO_2 hin
- b) α -U-Zone mit δ -UZr₂; Reaktionszone zwischen a) und b)
- c) α -Zr(O)-Zone; Reaktionszone zum Zry hin



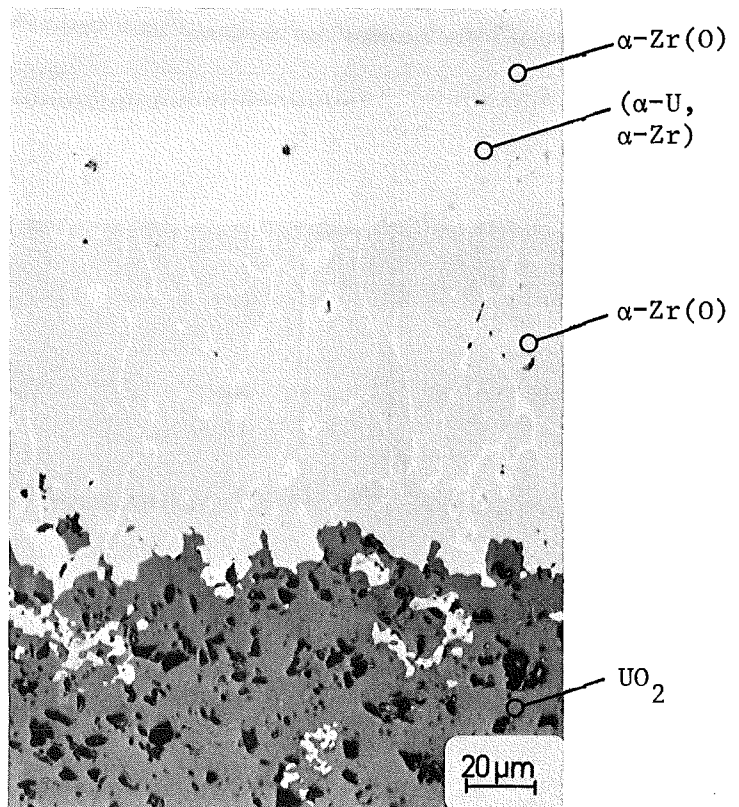
10 min



20 min



30 min



60 min

Abb.4235-76: UO_2/Zry -Wechselwirkungen bei 1300°C nach 10, 20, 30 und 60 min Glühzeit. Der UO_2/Zry - Kontaktdruck betrug ca. 80 bar

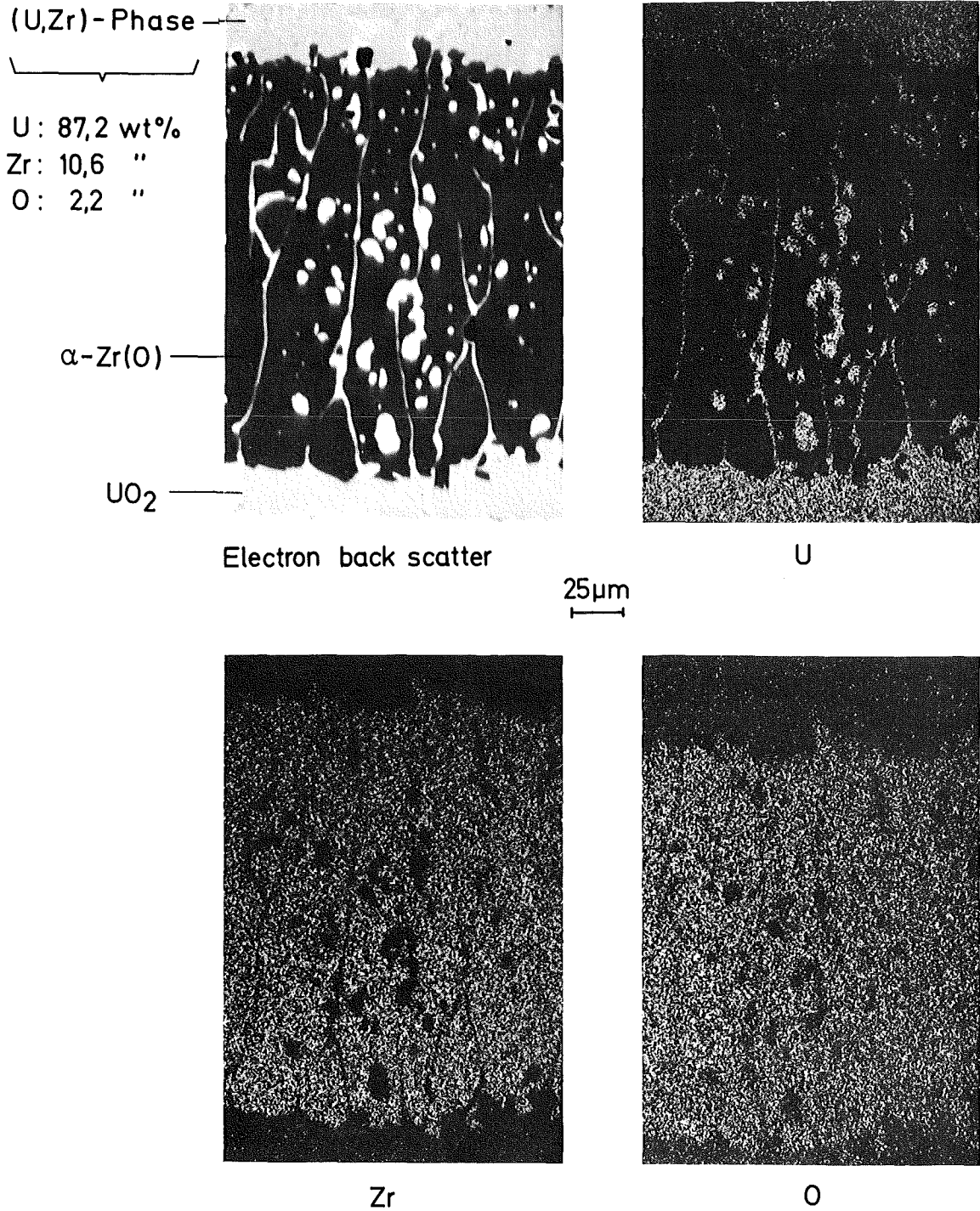


Abb.4235-77: Mikrosonden-Aufnahmen der UO₂/ZrO₂-Reaktionszone nach der Glühung bei 1400°C/30 min ($\Delta p \sim 70$ bar). Vom UO₂ ausgehend bildet sich eine α -Zr(O)-Phase, die noch in geringen Mengen eine (U,Zr)-Phase enthält, gefolgt von einer uranreichen (U,Zr)-Phase

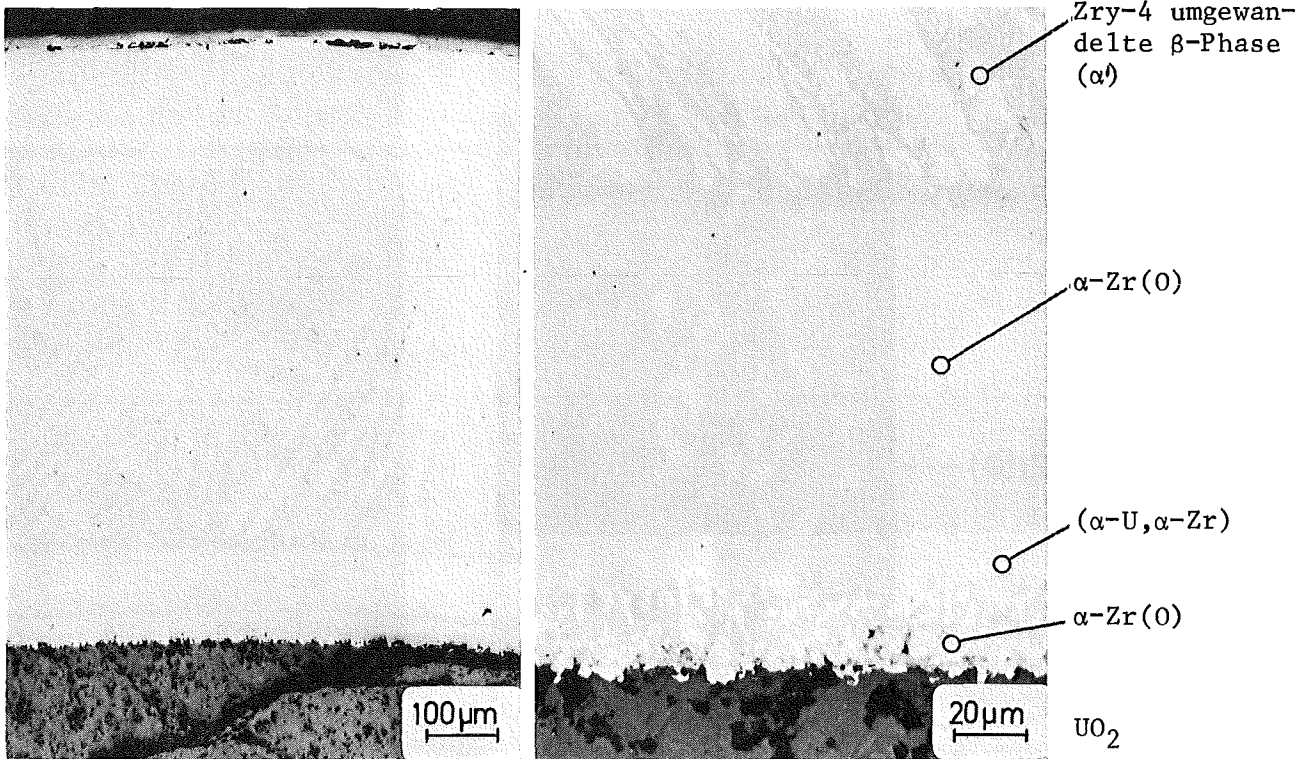


Abb.4235-78: Übersichtsaufnahme und Detail der UO₂/Zry-4-Reaktionen nach 20 min bei 1200°C; $\Delta p \approx 70$ bar

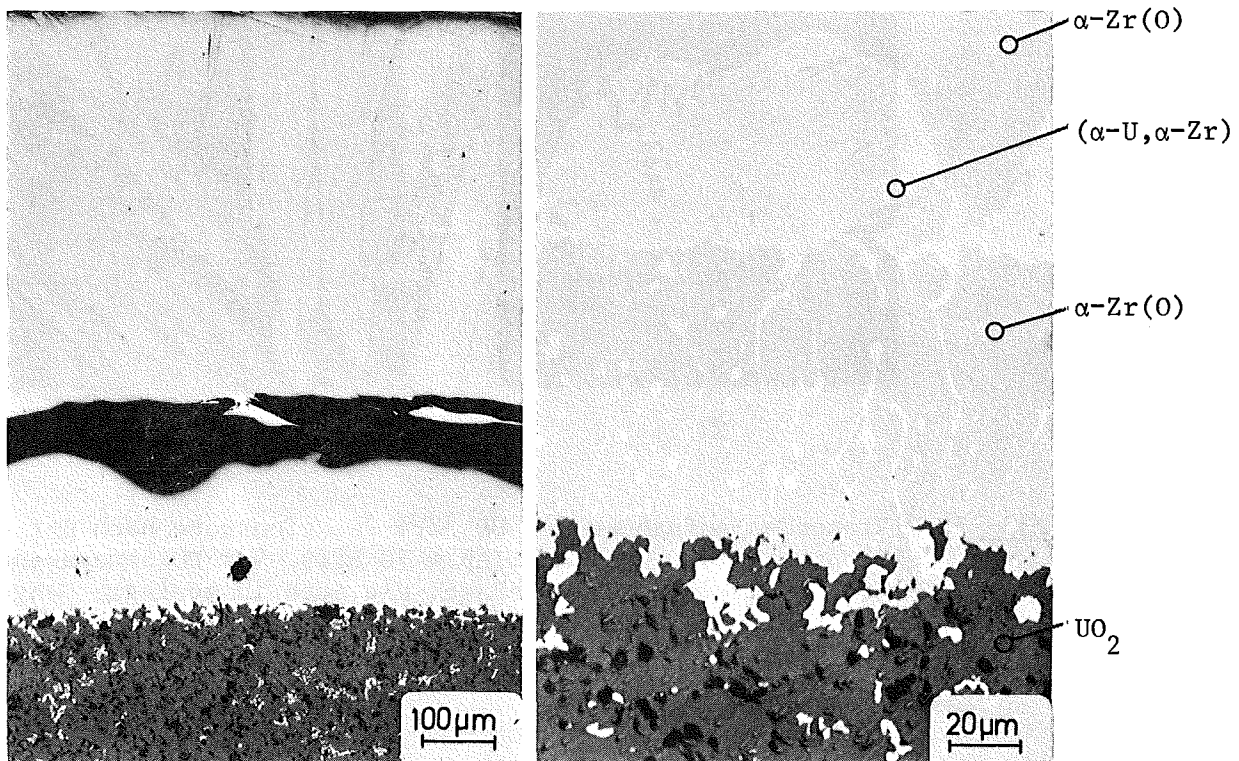
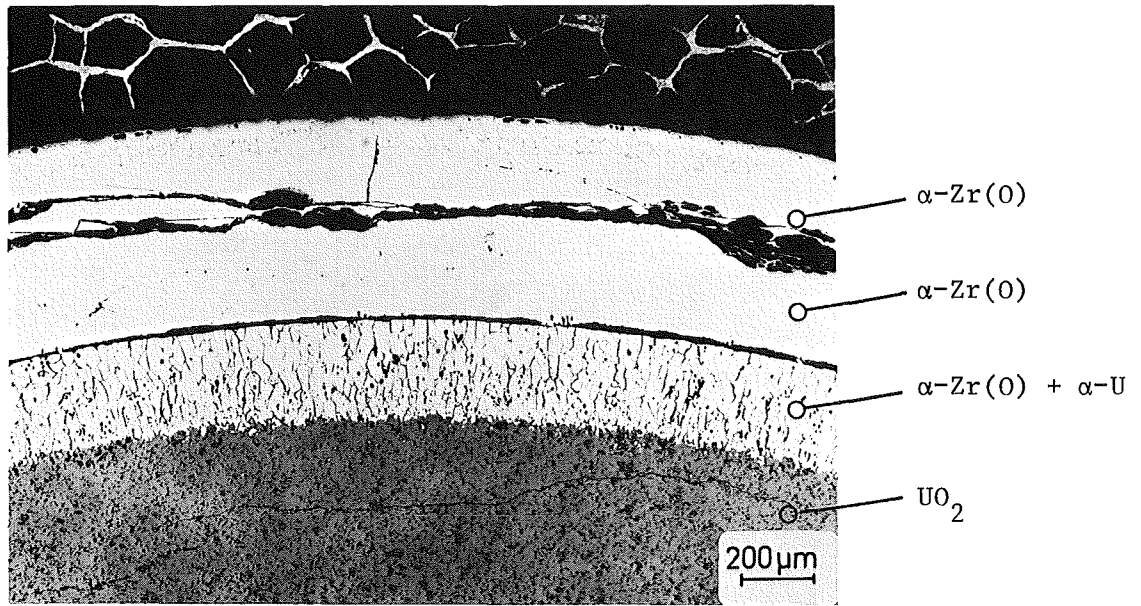
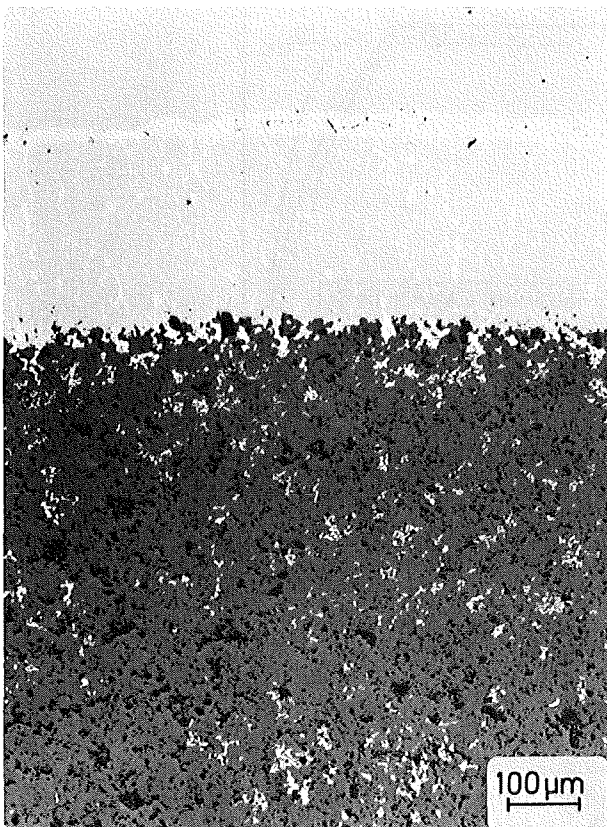


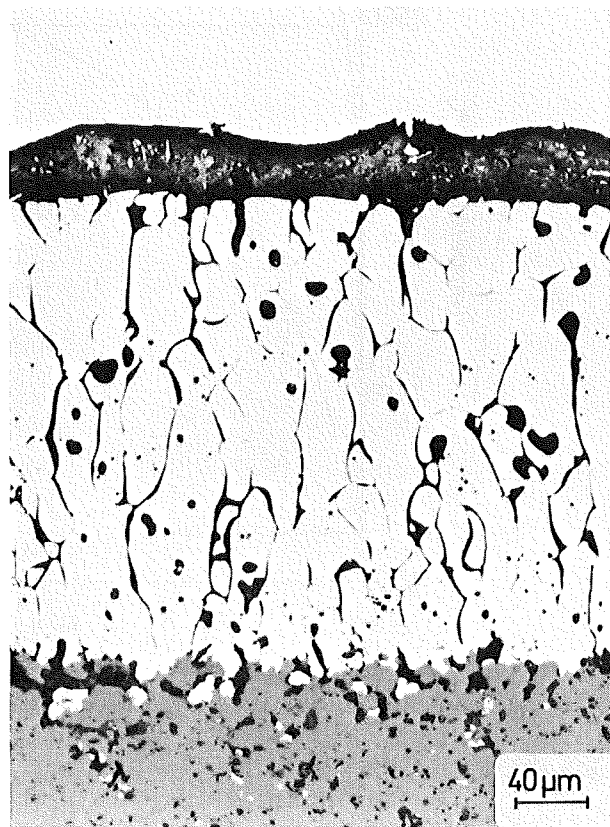
Abb.4235-79: Übersichtsaufnahme und Detail der UO₂/Zry-4-Reaktionen nach 3 min bei 1500°C; $\Delta p \approx 70$ bar



a)



b)



c)

Abb.4235-80: Probe Nr.2 DA nach der Glühung bei $1400^\circ\text{C}/30\ \text{min}$; $\Delta p \approx 70\ \text{bar}$
a) Übersichtsaufnahme, geätzt
b) Reaktionszone und UO_2 -Pellet, $\alpha\text{-U}$ -Ausscheidungen im UO_2 , ungeätzt
c) UO_2/Zry -Reaktionszone im Detail

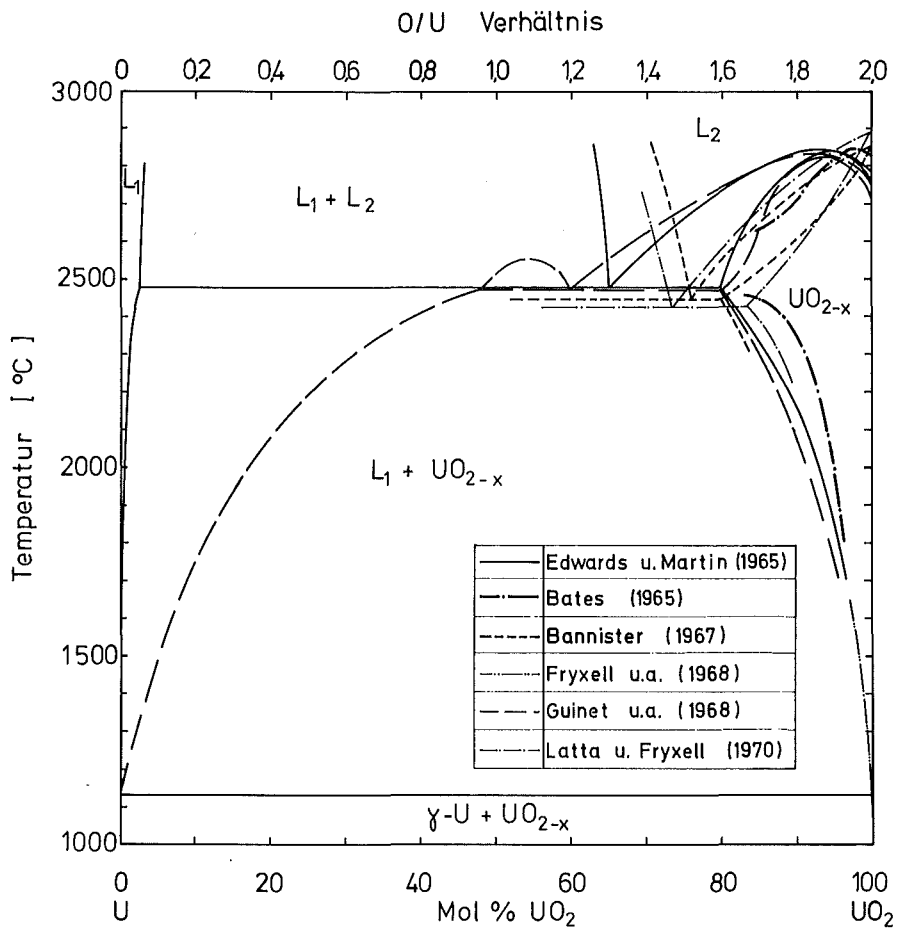


Abb.4235-81: U-UO₂-Zustandsdiagramm, zusammengestellt aus verschiedenen Literaturdaten. Oberhalb 1100°C besitzt das UO₂ einen breiten Stöchiometriebereich. Beim Abschrecken von understöchiometrischem UO_{2-x} entsteht daher neben dem UO₂ metallisches α-Uran

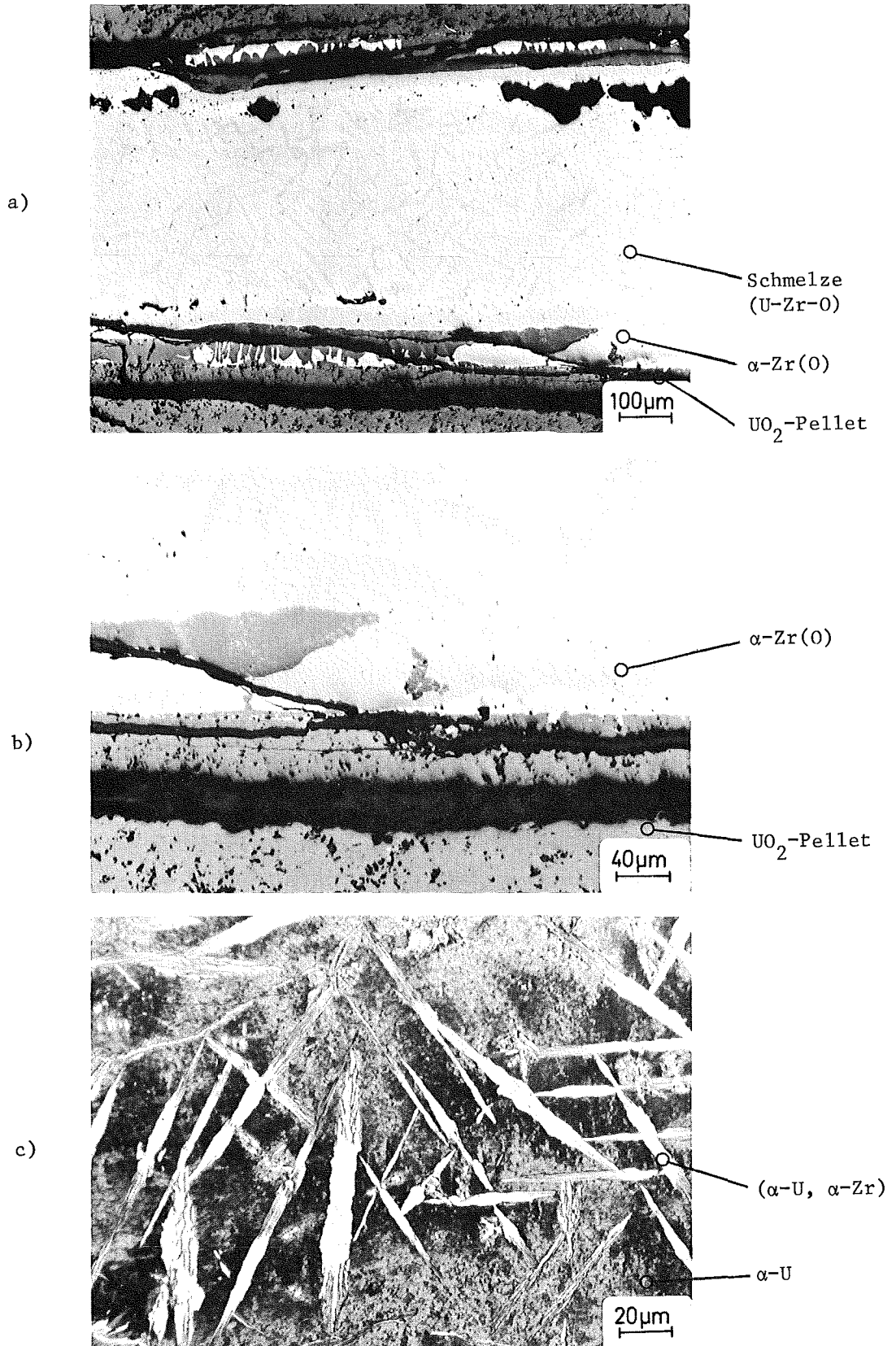
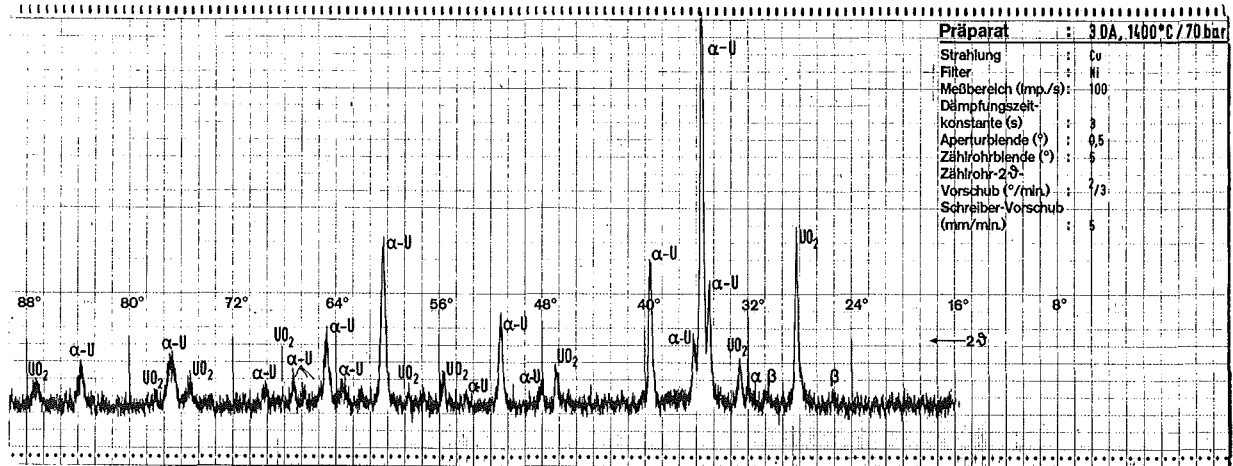
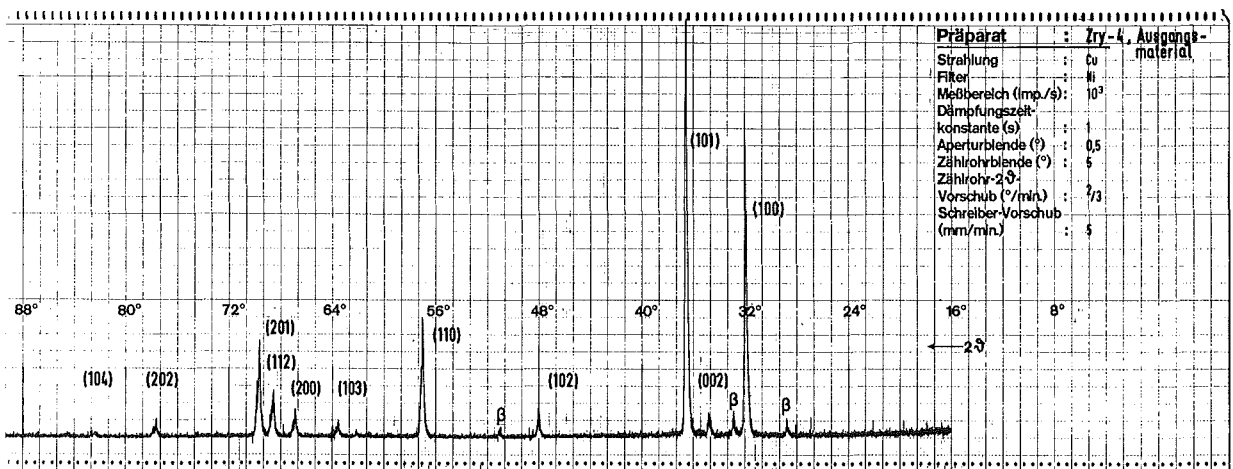


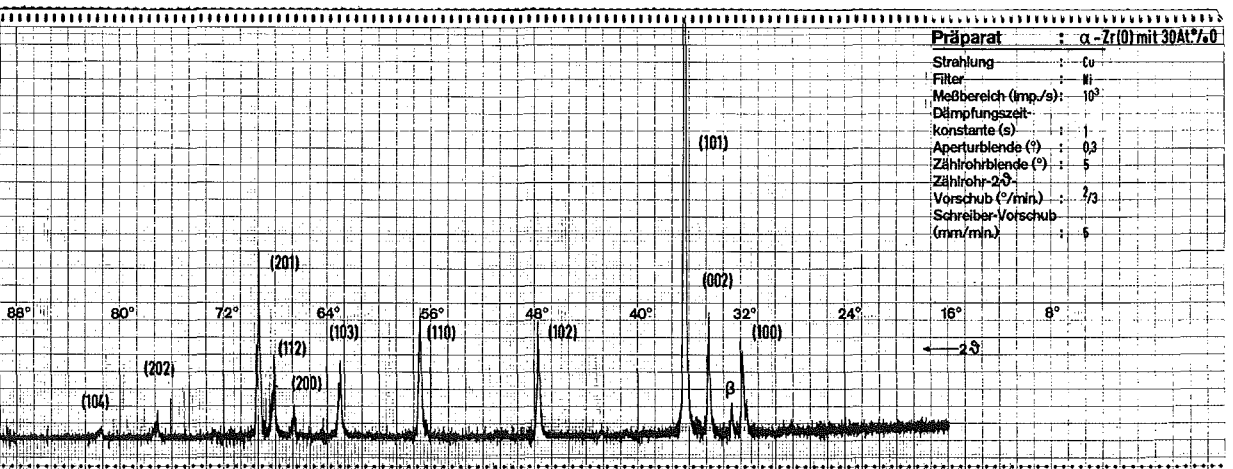
Abb. 4235-82: UO₂/Zry-Wechselwirkungen nach der Glühung bei 1500°C/20 min;
 $\Delta p \approx 80$ bar
a) Schmelze im Dishing-Hohlraum
b) Detail am Kontakt Schmelze/UO₂-Pellet
c) Detail in der Schmelze (an Luft stark oxidiert)



a)



b)



c)

Abb. 4235-83a-c: Röntgenfeinstrukturaufnahmen

- a) Reaktionsprodukt in Dishing-Hohlräumen der UO₂-Pellets; Neben UO₂ ist auch α-U in großen Mengen nachzuweisen.
- b) Zry-4 Ausgangsmaterial
- c) α-Zr(O) mit 30 At.% O

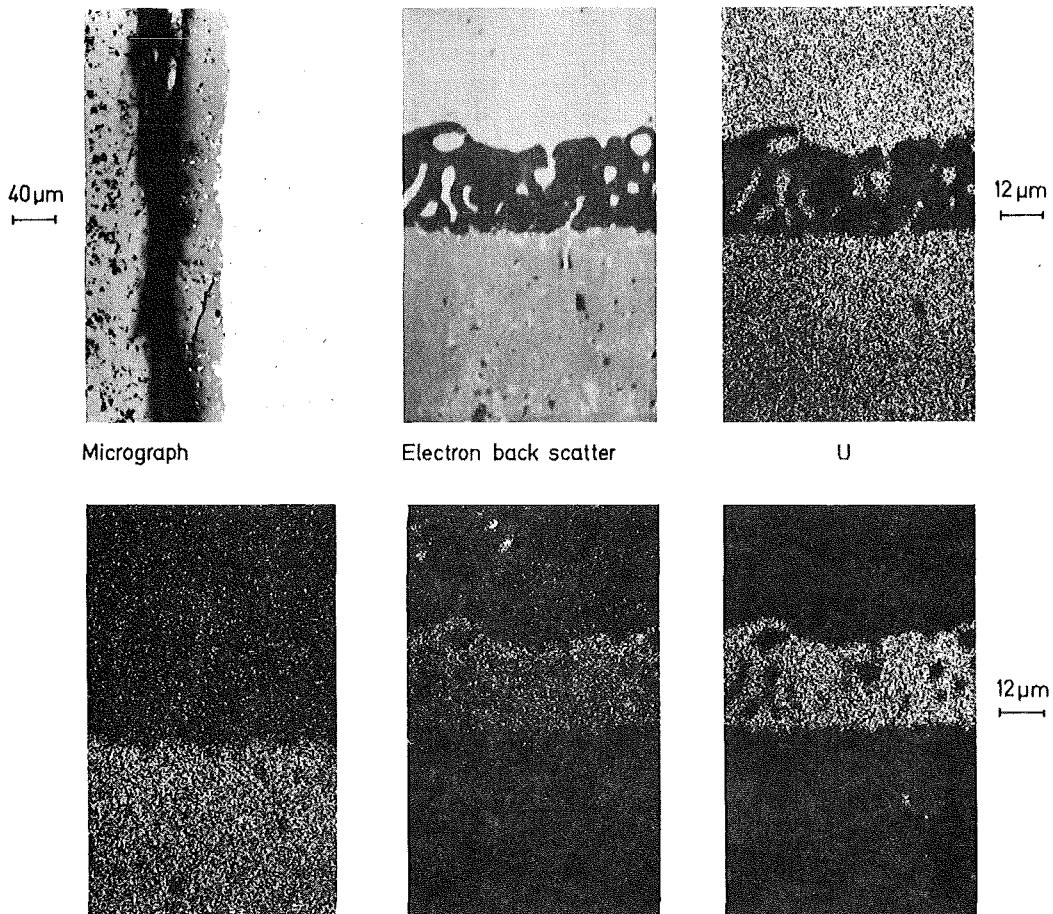
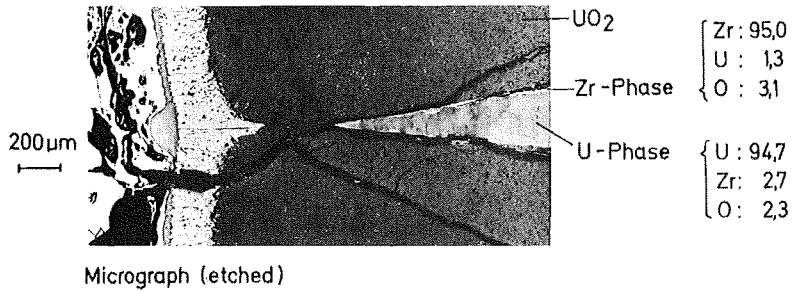


Abb.4235-84: Mikrosondenaufnahmen der erstarrten Schmelze in einem UO₂-Dishing-Hohlraum. Es bilden sich eine uranreiche- und eine zirkonreiche metallische Phase. Glühbedingungen: 1400°C/30 min; UO₂/Zry-Kontakttdruck: \approx 70 bar

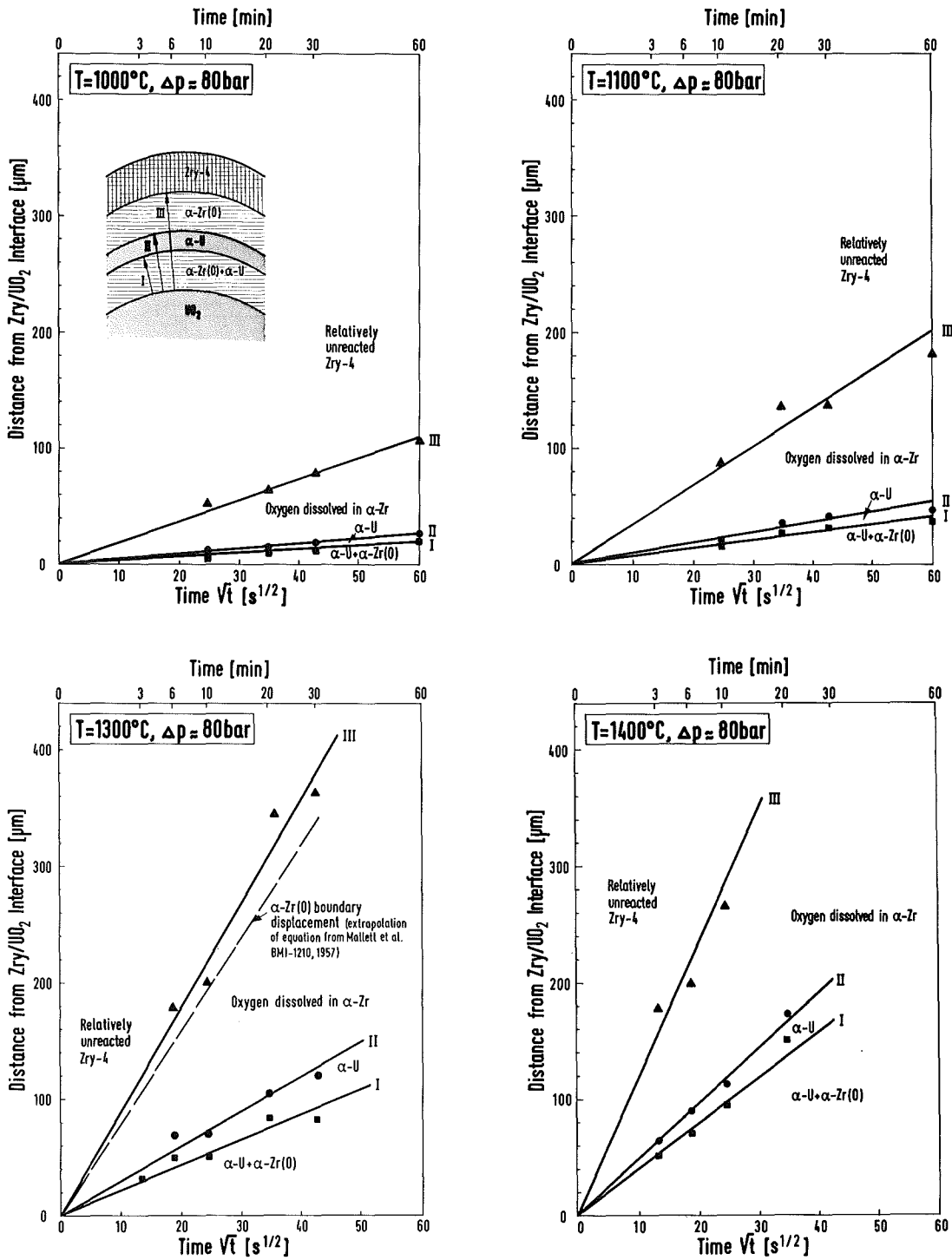


Abb.4235-85: Reaktionsumfang der chemischen Wechselwirkungen zwischen UO_2 und Zry bei 1000, 1100, 1300 und 1400°C in Abhängigkeit der Glühzeit. Der Reaktionsumfang wurde von der $\alpha\text{-Zr(O)}/\text{UO}_2$ -Grenzfläche aus metallographisch gemessen. Die Reaktionen verlaufen nach einem parabolischen Zeitgesetz

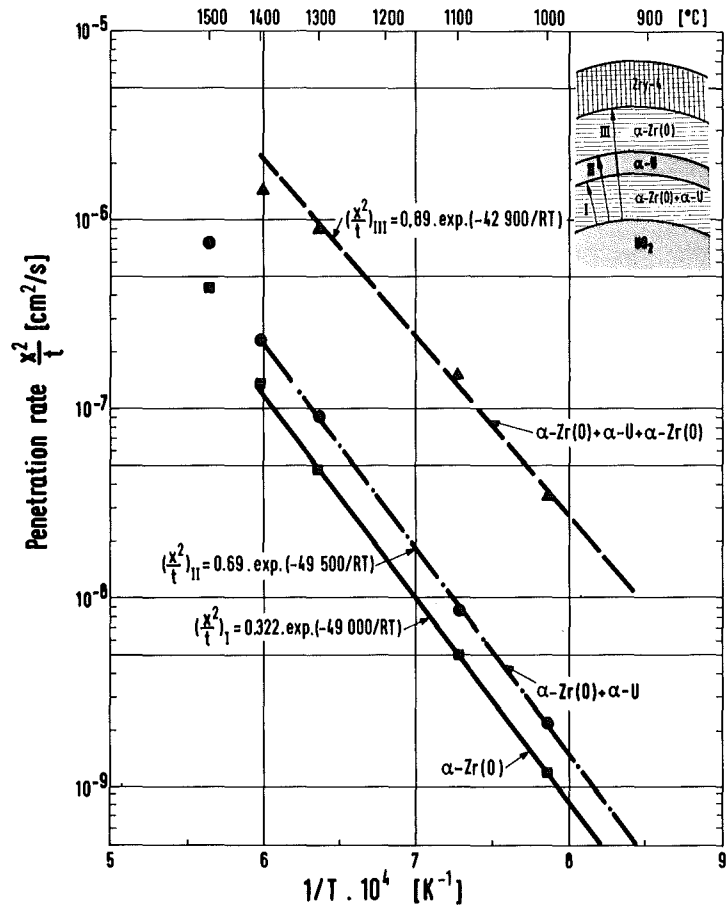


Abb.4235-86: Reaktionsumfang der chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und ZrO₂ in Abhängigkeit von der Temperatur und Zeit. Es entstehen drei verschiedene Reaktionszonen (vom UO_2 ausgehend):

- 1.) $\alpha\text{-Zr(O)}$ mit geringen Mengen $\alpha\text{-Uran}$
- 2.) $\alpha\text{-Uran}$
- 3.) $\alpha\text{-Zr(O)}$

4235.4 Bersttests mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren unter kombinierter mechanisch-chemischer Beanspruchung (FABIOLA-Programm)⁺

(L. Schmidt, H. Deckers, H. Lehning, K. Müller, IMF III;
S. Leistikow, D. Jennert, IMF II)

1. Aufgabe und Konzeption der Versuchseinrichtung

Im Rahmen des PNS-Vorhabens 4235 werden im IMF I und IMF II Untersuchungen zum mechanischen Verhalten, zur Hochtemperatur - Wasserdampf-Oxidation und zum Einfluß von Kernbrennstoff resp. Spaltstoffen an DWR-typischen Zircaloy 4-Hüllrohren unter Störfallbedingungen durchgeführt. Ziel dieser sogenannten Einzeleffekt-Untersuchungen ist es, im besonderen das Verformungsverhalten der Hüllrohre bei Temperaturen, wie sie bei Kühlmittelverluststörfällen und Störfällen ohne Schnellabschaltung möglich sind, quantitativ zu beschreiben. Zur Verifizierung des mit Hilfe der Einzeleffektuntersuchungen gewonnenen Stoffgesetzes

ist vorgesehen, parallel zur Endphase der Einzeleffekt-Untersuchungen auch Berstversuche unter kombinierter mechanisch-chemischer Beanspruchung durchzuführen. Hierzu ist eine Anlage erforderlich, in der Brennstabsimulatoren mit maßstäblichem Hüllmaterial in Wasserdampf unter störfalltypischen Temperatur- und Drucktransienten getestet werden können. Die geplanten Untersuchungen haben im Vergleich zu denen anderer Experimentatoren (KWU, USA, England, Frankreich) den Vorteil, daß die Effekte transienter Temperatur- und Stabinnendruckbeanspruchung auch unter überlagerter Dampfoxidation und Brennstoff-/Spaltstoff-Wechselwirkung einzeln und kombiniert störfalltypisch simuliert und durch kontinuierliche Messung des Aufblähvorgangs der Hülle quantitativ gemessen werden können.

In diesem neu zu erstellenden IMF-Versuchsstand sollen indirekt beheizte Einzelstäbe mit Pelletfüllung in einer dampfdurchströmten Teststrecke transienten Temperatur- und Innendruck-Bedingungen unterworfen werden, die denen der zweiten Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles eines DWR möglichst ähnlich sind. Die wichtigsten Informationen während des Experimentes geben die kontinuierliche Messung der Umfangsdehnung als Funktion der Hüllrohrtemperatur sowie die Ermittlung der Standzeit bis zum Bersten. Die Messung des äußeren und inneren Oxidationsangriffes wird innerhalb der Nachuntersuchung vorgenommen.

+) FABIOLA = facility for burst testing under fuel interaction
and steam oxidation during a LOCA

Wesentlicher Bestandteil der Versuchseinrichtung ist die Teststrecke mit dem elektrisch indirekt beheizten Brennstabsimulator. Das zusätzlich beheizte, um den Brennstabsimulator angeordnete Dampfführungsrohr ermöglicht die erforderlichen schnellen Aufheizgeschwindigkeiten der Stabhülle. Während der Abkühlphase werden Stab- und Teststreckenheizung abgeschaltet und die Stabhülle mit Dampf gekühlt. Die Hüllrohroberflächentemperatur wird mit speziellen Teilstrahlungs-pyrometern gemessen und die Umfangsdehnung entweder in axialer Richtung mit einer Hochgeschwindigkeitsfilmkamera oder mit einer horizontal angeordneten Röntgenkinematographie-Anlage erfaßt. Die anfallenden Meßdaten werden mit einer vorhandenen Datenerfassungsanlage aufgenommen. Die wesentlichen Auslegungsdaten sind in Tabelle 4235.4-1 zusammengestellt.

Für die Dampfversorgung sind der Teststrecke entsprechende Apparate und Armaturen vor- und nachgeschaltet. Abbildung 4235.4-1 zeigt das Fließschema der Testeinrichtung.

2. Aktueller Stand des Vorhabens

- Die Konstruktion der Teststrecke ist im wesentlichen abgeschlossen.
- Die erforderlichen Materialbeschaffungen wurden in die Wege geleitet.
- Für den Brennstabsimulator sind erste Prototypheizer in der Fertigung.
- Erste Vorversuche zur pyrometrischen Messung der Hüllrohroberflächentemperatur wurden durchgeführt und zeigten zufriedenstellende Ergebnisse.
- Das Konzept der Dampfversorgungsanlage wurde ausgearbeitet, und die notwendigen elektrischen Versorgungs-, Regel- und Meßeinrichtungen wurden spezifiziert.
- Die erforderliche Erweiterung der Speicherkapazität der Datenerfassungsanlage wurde in die Wege geleitet.

Tabelle 4235.4-1: Versuchsstand für Zircaloy-Hüllrohr-Berstversuche

Auslegungsdaten:

Temperaturbereich (Hüllrohroberfläche)	350 bis max. ca. 1000°C
Aufheizgeschwindigkeit	ca. 15 bis 25 K/s
Abkühlgeschwindigkeit	ca. 10 bis 20 K/s
Füllgas (im Stab)	Helium
Füllgasdruck (einstellbar bzw. regelbar)	30 bis 150 bar
Medium in der Teststrecke	Heißdampf ca. 2 m/s; 1 bis 2 bar

Brennstabsimulator

Länge (gesamt)	ca. 1000 mm
(eingespannt)	ca. 800 mm
(beheizt)	545 mm

Hüllrohr	Zircaloy 4 Ø 10,75 x 0,725 mm
----------	----------------------------------

Pellets	UO ₂ mit Cs, J, Te
---------	-------------------------------

Heizer	Ø 6 mm ca. 3 kW
--------	--------------------

<u>Temperaturmessung</u>	pyrometrisch 300 bis 1000°C
--------------------------	--------------------------------

<u>Erfassung der Umfangsdehnung</u>	Filmkamera (vertikal) Röntgenkinematographie (horizontal)
-------------------------------------	---------------------------------------------------------------------

<u>Meßdatenerfassung</u>	Datenspeicherung auf Magnet- platte im on line-Betrieb
--------------------------	-----------------------------------------------------------

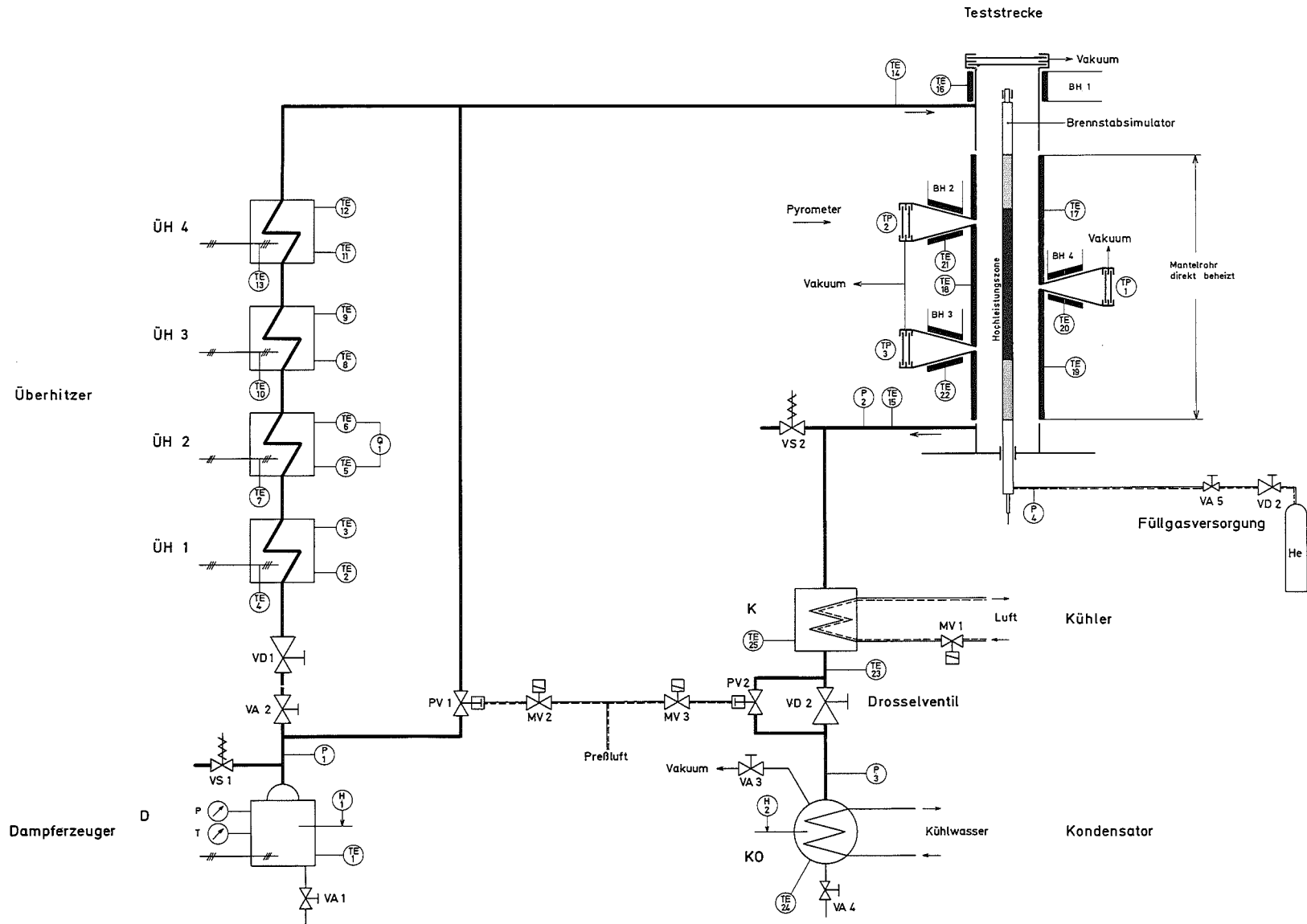


Abb. 4235.4-1: Zircaloy-Hüllrohr-Berstanlage

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, A.Hinz, N.Paroth, T.Vollmer, K.Wagner, RBT)

Kurzbezeichnung des Experimentes

Um eine Kurzbezeichnung für dieses Experiment zur Verfügung zu haben, wird es von nun an COSIMA (= controlled single rod blowdown simulation experiment Karlsruhe) genannt.

Durchgeführte Arbeiten

Das Schwergewicht der Arbeiten im Berichtszeitraum lag auf der Fertigstellung der elektronischen Meßwertverarbeitung und des rechnergesteuerten Blowdown-Ablaufes. Für beide Aufgaben wird das System CALAS der ADI eingesetzt.

Ein flexibles Steuerprogramm für die Kreislaufkomponenten - wie z.B. die Schnellschluß- und Schnellöffnungsventile, die Stab- und Teststreckenheizung, die Regelventile zur Veränderung des Ausblasequerschnittes - das unmittelbar vom Versuchsstand aus in den Rechner eingegeben werden kann, wurde aufgestellt und getestet.

Die zur ersten Beurteilung eines Versuchslaufes wichtigsten Meßwerte werden parallel zur Bandspeicherung durch ein ebenfalls erstelltes Sofort-Auswerteprogramm in Realwerten aufgezeichnet und in Diagrammform dargestellt, so daß unmittelbar nach Versuchsende ein Überblick über den Versuchsablauf gewonnen werden kann.

Die durchgeführten Testarbeiten zur Aufnahme des Experimentierbetriebes deckten eine Anzahl von nicht vorhersehbaren Problemen auf. Dennoch konnte am Ende des Berichtszeitraumes ein erster voll rechnergesteuerter Blowdown-Versuch durchgeführt werden, mit dem zum erstenmal das Zusammenwirken aller Komponenten, der Steuerung, der Meßwarterfassung und der Meßwertaufzeichnung erfolgreich demonstriert wurde. Damit steht die Versuchseinrichtung zur Aufnahme des eigentlichen Experimentierbetriebes zur Verfügung.

Dieser erste erfolgreiche Versuchslauf macht es nun möglich, das eigentliche Auswerterechenprogramm mit konsistenten Versuchsdaten zu testen, so daß dessen Fertigstellung in Angriff genommen werden kann.

Eine erste Auswertung der Meßdaten ergab, daß die eingesetzte Versuchsinstrumentierung erwartungsgemäß arbeitet. Diese Aussage gilt speziell auch für die Neuentwicklungen, nämlich die zur Bestimmung des transienten Zweiphasenmassenstromes in den Ausblaseleitungen eingebauten true-mass-flow-meter (TMFM), sowie für die in der Teststrecke eingebauten Einrichtungen zur pyrometrischen Erfassung der Hüllentemperatur des Teststabes.

Die true-mass-flow-meter zeigten neben einer guten mechanischen Funktionsfähigkeit nach der ersten überschlägigen Auswertung trotz der vorliegenden starken Druck- und Temperaturtransienten eine integrale Meßgenauigkeit von etwa 10 %. Dies ist ein dem jetzigen Entwicklungsstand dieser Meßeinrichtung entsprechendes ermutigendes Ergebnis.

Die Meßschriebe der pyrometrisch erfaßten Brennstaboberflächentemperatur zeigen, daß die optische Messung durch das beim Blowdown in der Teststrecke entstehende Zweiphasengemisch hindurch nicht wesentlich gestört ist. Weil die optische Messung direkt die Oberflächentemperaturen erfaßt, zeigen die Meßschriebe kurzzeitige Veränderungen der äußeren Wärmeübergangszahl deutlich an. In Abb. 4236-1 ist der gemessene Temperaturverlauf für zwei der vorhandenen acht Meßkanäle dargestellt: Temperaturen unterhalb von 540 °C sind hierbei nicht mehr aufgelöst.

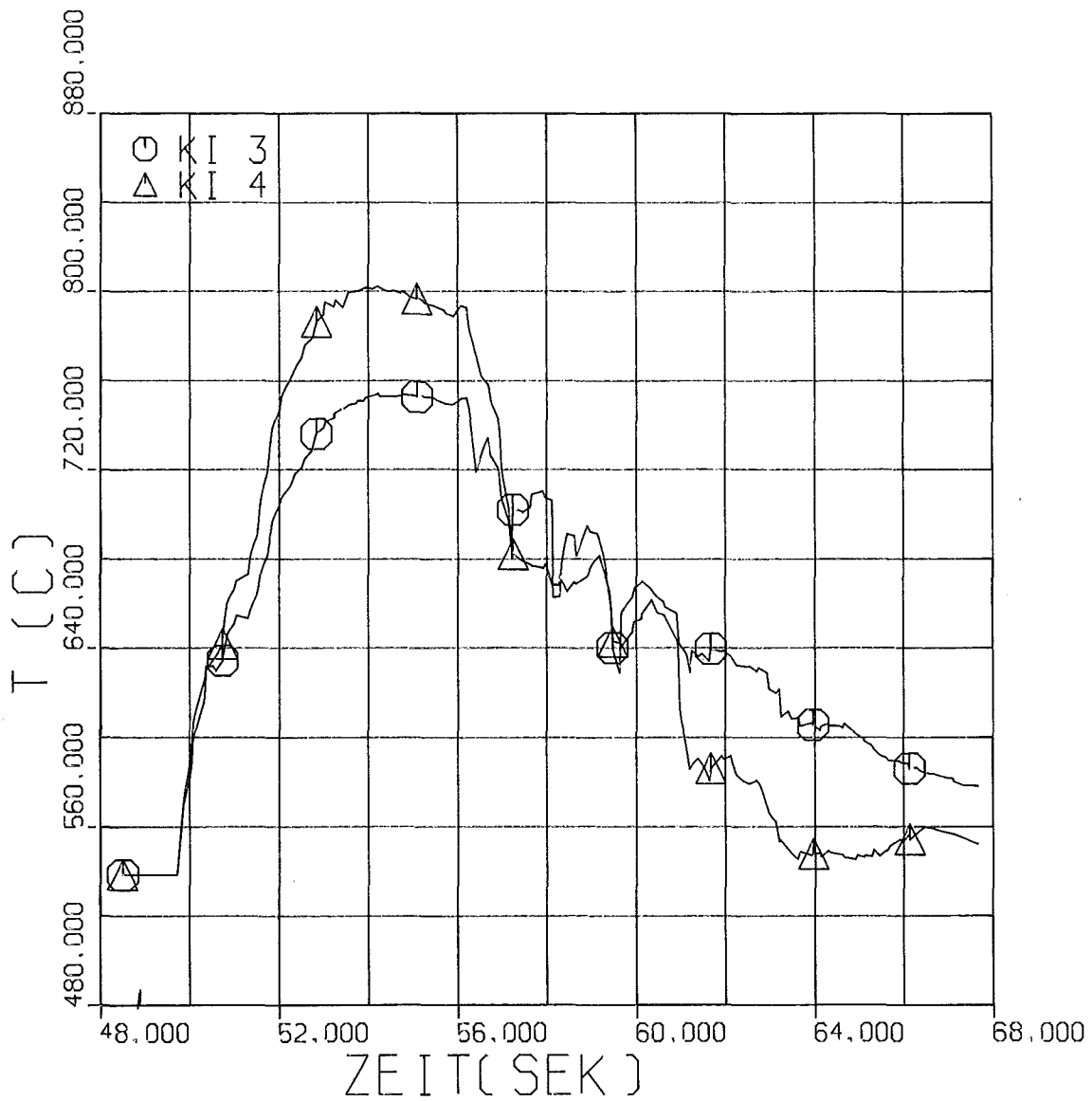
Parallel zu diesen Arbeiten zur Aufnahme des Experimentierbetriebes und zur Fertigstellung des Auswerterechenprogrammes wurde das Konzept eines indirekt beheizten Versuchsstabes, mit dessen Hilfe Wärmeübergangszahlen in der Teststrecke bei Referenzblowdownabläufen gemessen werden sollen, entwickelt und ein erster Prototyp angefertigt. Die zum Einsatz dieser Stäbe notwendigen Änderungen an der Teststrecke wurden konstruktiv und genehmigungsmäßig durchgezogen. Die Einzelteile befinden sich in der Fertigung.

Ausblick auf den geplanten weiteren Fortgang

Das noch vorhandene Entwicklungspotential der true-mass-flow-meter soll noch weiter ausgeschöpft werden, um die Meßgenauigkeit weiter zu erhöhen. Hierbei handelt es sich um kleinere hardware-Verbesserungen. Weiterhin sind Versuche durchzuführen, um außer der stationären Eichung der TMFM in

Kaltwasser-Luft-Versuchen und in Wasser-Wasserdampf-Versuchen (gemeinsame Teststrecke im IRB) auch eine bessere Definition der transienten Meßfehler zu erreichen. Die Arbeiten hierzu sind bereits angelaufen.

Die Versuchsparameter der ersten etwa 20 durchzuführenden Experimente mit dem Simulationsbrennstab werden mit dem Ziel durchgeführt werden, einerseits die Ventilsteuerprogramme zur Annäherung an anlagenrelevante Blow-down-Verläufe zu verbessern, und andererseits Informationen zur sinnvollen Festlegung des Versuchsprogrammes für die eigentlichen Hauptversuche zu erhalten. Parallel dazu sind noch weitere Arbeiten zum Austesten und Verbessern des Auswertungsrechenprogrammes durchzuführen.



Hüllrohrtemperatur im mittleren Bereich des
SIM - Stabes während der Blowdownphase
Versuch Nr. 101

RBT/IT-1977
PNS 4236

Abb. 4236 - 1

- 4237 Untersuchungen zum Brennstabversagen in der 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalles.
In-pile-Versuche mit Einzelstäben im DK-Loop des FR2.
Nuklearversuche und Referenzversuche.
(B. Räßle, K. Baumgärtner, G. Harbauer, M. Hespeler, H. Junker, E. Karb, W. Knappschneider, W. Legner, W. Leiling, H. Lukitsch, M. Prüßmann, K. Wagner, RBT)

1. Nuklearversuche

Das Versuchsprogramm wurde mit sieben Nuklearstabversuchen fortgesetzt, wobei wiederum nicht vorbestrahlte Prüflinge der Reihe B zur Verwendung kamen. Variiert wurden das Einfüllspiel der Pellets (5 Stäbe mit 190 μm , 2 Stäbe mit 150 μm) und der Plenumsdruck zwischen 58 und 90 bar. Dieser Druck wird bei dem stationären Kreislaufzustand aufgegeben, der als Ausgangszustand für die Transiente eingestellt wird.

Bei einem Prüfling blieb die Hülle wegen fehlenden Innendrucks unversehrt. Die Berstdrücke und -Temperaturen der übrigen sechs Versuche wurden in Abb. 4237-1 neu aufgenommen. Ihre Werte liegen innerhalb des Streubandes der dort erfaßten zahlreichen Out-of-pile-Versuche.

Die letzten drei Versuche (B 1.6, B 3.1 und B 3.2) wurden mit Dampf-Bypaß gefahren. Dabei war - außer der Kapillare - die gesamte Bypaß-Strecke beheizt, um im Bypaß-Teil auch bei stagnierendem Dampf Überhitzung zu erreichen. Der sich durch diesen Zustand des Dampfbypasses ergebende Dampfstrom zum Prüfling beeinflusste den transienten Temperaturanstieg an der Stabhülle. Dies äußerte sich in einer Dämpfung des Temperaturgradienten während der ersten ~ 15 s der Transientenlaufzeit. Dieser Effekt wird z.Z. noch näher untersucht.

2. Nachbestrahlungsuntersuchungen

Die Versuchsdaten und die Ergebnisse der Nachuntersuchung des Stabes A 1.1 in den Heißen Zellen - ohne metallurgische Auswertung - wurden als interner PNS-Arbeitsbericht /2/ dokumentiert. An weiteren sechs Stäben wurden folgende Nachbestrahlungsuntersuchungen durchgeführt:

- visuelle Kontrolle,
- geometrische Vermessung,
- Fotodokumentation.

Die Auswertung der dabei gewonnenen Daten wurde in Angriff genommen.

3. Vorbestrahlte Stäbe

Die Vorbereitung der Versuche mit vorbestrahlten Prüflingen verlief planmäßig. Die Konstruktion der Einrichtung für die Montage und Instrumentierung dieser Prüflingseinsätze wurde beendet. Als wesentlicher Bestandteil der Handlingeinrichtung wurde die Koppel- und Schweißvorrichtung im HZ-Betrieb bereits erprobt. Dabei absolvierten die Zellen-Operateure ein erstes Handlingstraining.

Die übrigen Baugruppen befinden sich vor der Fertigstellung.

Die Vorbestrahlung von 3 Einsätzen mit je 6 Stäben im FR2 wurde weitergeführt. Ein Einsatz ist in Nähe seines Zielabbrandes von 20.000 MWd/t_U angelangt und wird demnächst ausgebaut. Die beiden weiteren Einsätze werden bis zu 35.000 MWd/t_U abgebrannt. Ein Vorbestrahlungseinsatz für kleineren Abbrand ist in Vorbereitung.

Der Nachtrag zum Sicherheitsbericht des Projektes für die Montage und die Versuche mit vorbestrahlten Prüflingen wurde fertiggestellt. Danach werden die zulässigen Grenzen der radioaktiven Emission und der radiologischen Belastung der Umgebung nicht überschritten.

4. Referenzversuche

BSS-Versuche wurden im 1. Halbjahr mit Rücksicht auf die Nukleartabversuche nicht durchgeführt. Ein modifizierter Brennstabsimulator (BSS 07) für weitere Untersuchungen zur Temperaturmessung und zur Erprobung der beulfähigen BSS-Version wurde fertiggestellt. Dieser Stab soll im 2. Halbjahr eingesetzt werden.

Für beulfähige Referenzstäbe wurde im IRB eine Serie profilierter Heizer gefertigt. Zur Ausbildung der Übergangsstelle zum Kaltende wurden für Testzwecke verschiedene Verbindungen vorbereitet mit dem Ziel, in dieser Zone möglichst wenig Leistung freizusetzen bei genügender mechanischer Haltbarkeit.

5. Vermessung

Im interessierenden Bereich der Hüllrohre aller Nuklearprüflinge wurden bereits früher die Istmaße von Innen-, Außendurchmesser und Wandstärke exakt vermessen. Ein repräsentativer Teil der Datenblätter wurde inzwischen ausgewertet und die Ergebnisse in einem internen PNS-Arbeitsbericht /1/ niedergelegt. Generell wurde gefunden, daß die zulässigen Toleranzen der DWR-Spezifikation für Innen- u. Außendurchmesser (± 40 bzw. $50 \mu\text{m}$) nur zu einem geringen Teil ausgenutzt wurden. Eine graphische Statistik der Abweichungen vom Sollmaß zeigt Abb. 4237-2. Die Exzentrizität zwischen Innen- und Außendurchmesser und damit die Wandstärkendifferenz bleibt in ihrer Lage und Größe über der gesamten vermessenen Länge des Stabes praktisch unverändert.

6. Theoretische Arbeiten

Die versuchsbegleitenden Vergleichsrechnungen des IKE bezogen sich im 1. Halbjahr vorrangig auf Nachrechnungen der Versuchsergebnisse des BSS 05. Die angestellten Vergleiche zeigen erneut einen steileren Temperaturanstieg beim Versuch in den ersten 12 - 15 s der Transiente.

Die Übereinstimmung im übrigen Kurvenverlauf und bei den Temperaturen am inneren Dampfführungsrohr (iDFR) ist gut (siehe Abb. 4237-3). Die Abweichung im Temperaturniveau oberhalb 600°C liegt gleichbleibend bei 30 K.

Die Ähnlichkeit im Kurvenverlauf ergibt sich auch aus dem Vergleich der Aufheizgradienten. Ferner läßt die Darstellung der Aufheizgradienten von Versuch und Rechnung die cp-Änderung von Zry im Bereich der Phasenumwandlung gut erkennen. Bei höherer Leistung tritt dieser Effekt verstärkt auf.

7. Literatur

/1/ L.Sepold, M-Prüßmann:

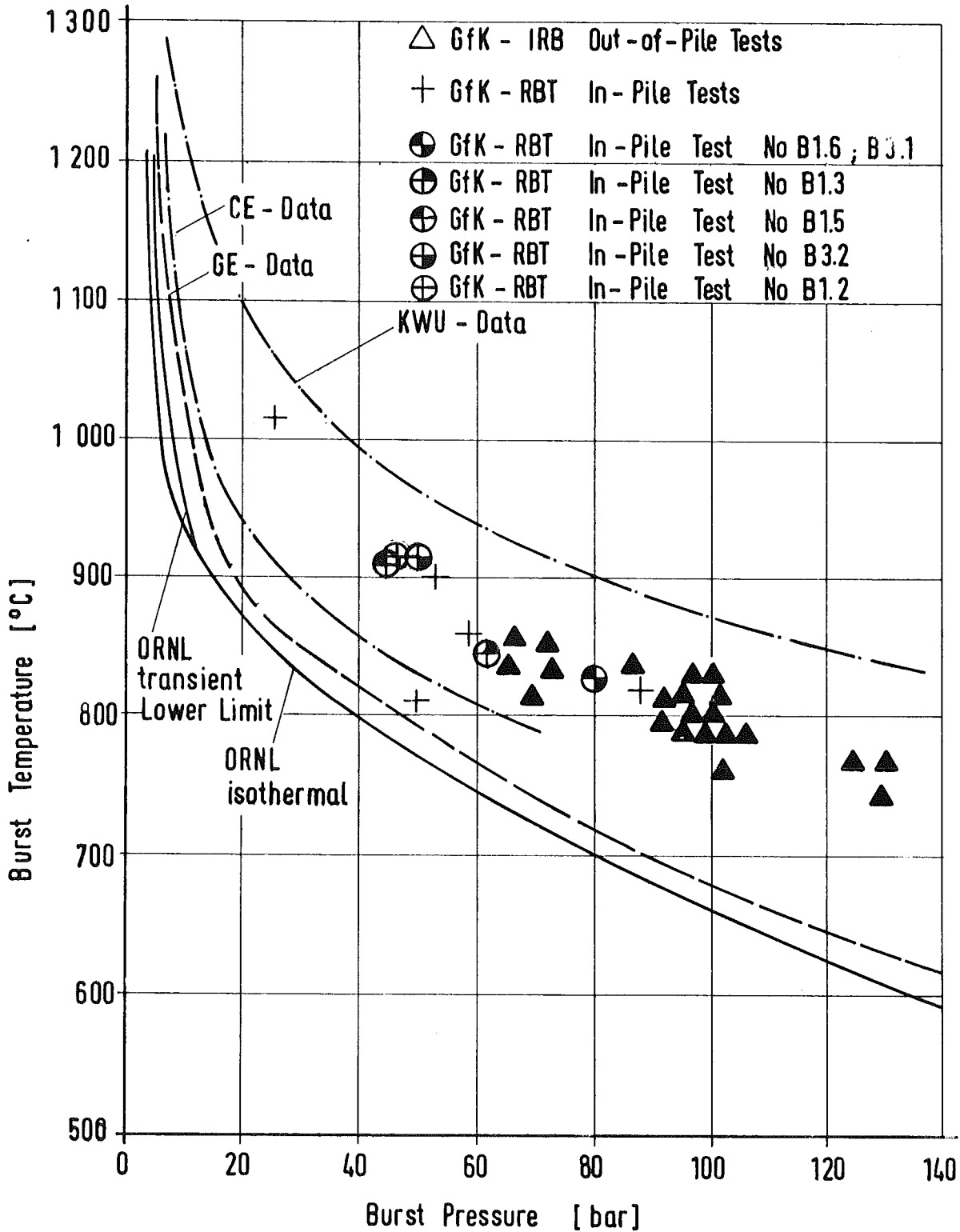
Vermessung von frischen DWR-Brennstabhüllen, April 1977

(unveröffentlicht)

/2/ E.Karb, G.Harbauer, M.Prüßmann:

Teilbericht über Nuklear-Versuch A 1.1, vorläufige Ergebnisse

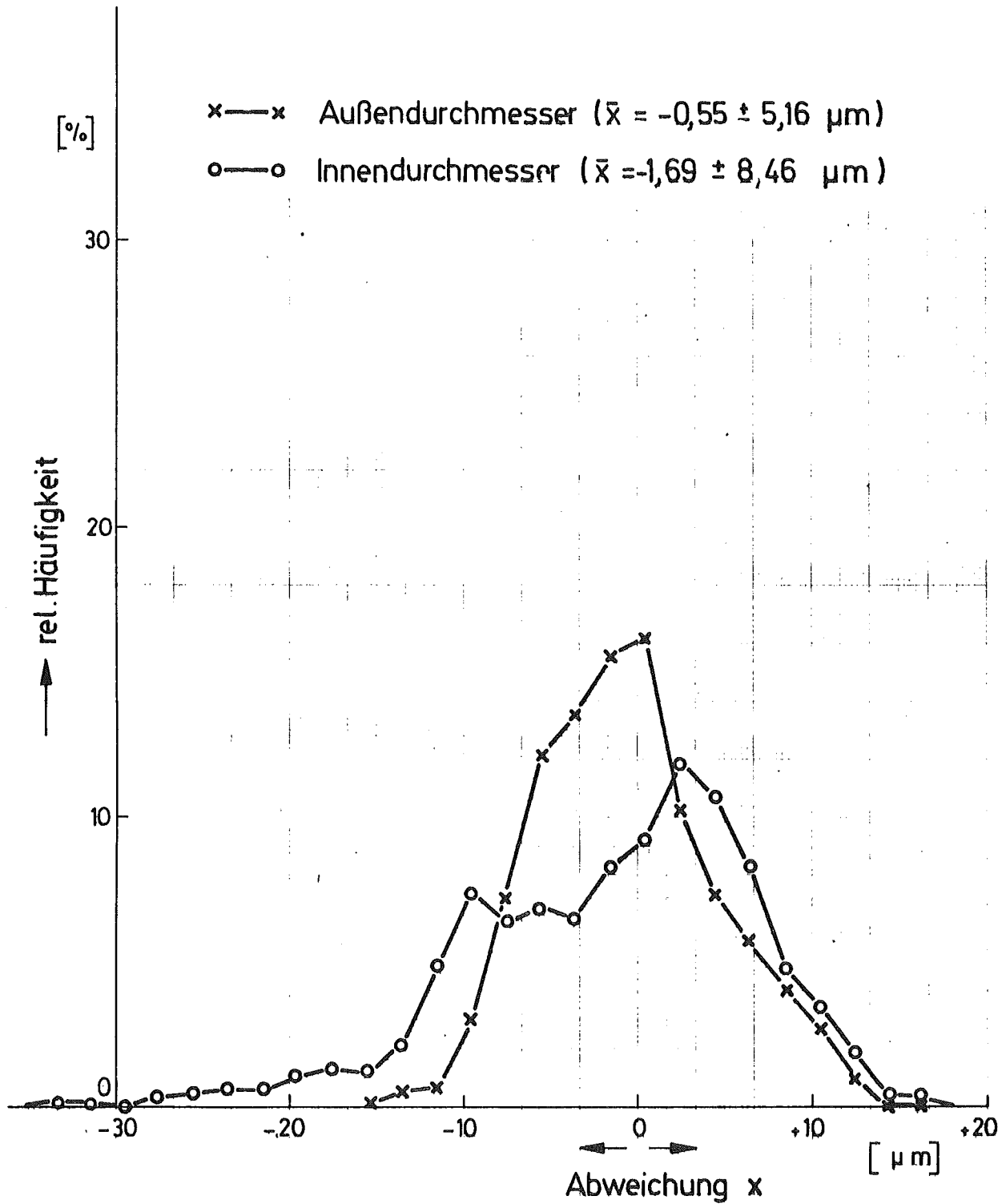
Juni 1977 (unveröffentlicht)



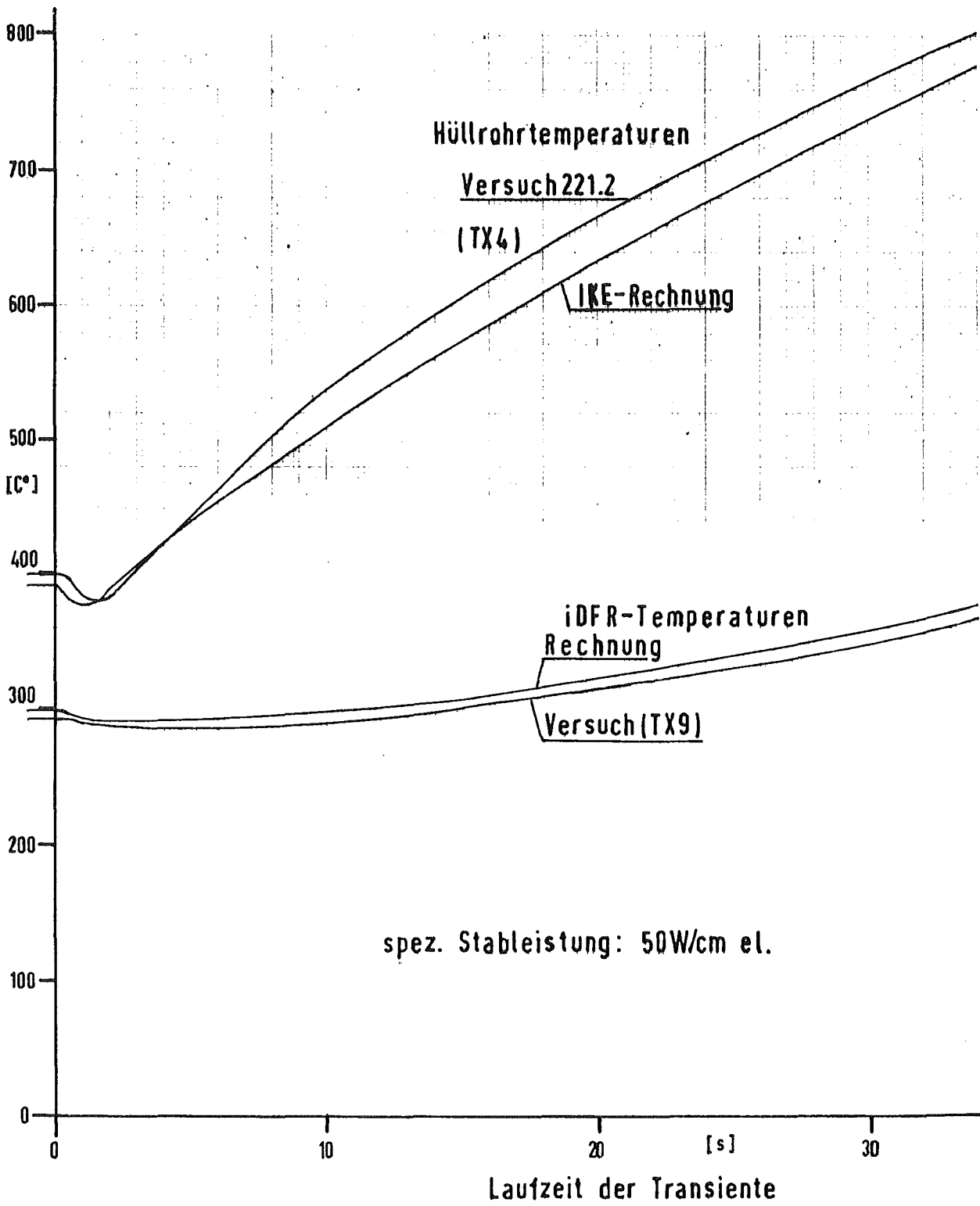
RBT/IT - 1977
PNS 4237 - 60.3

Burst Temperature vs. Burst Pressure

Abb.: 4237 1



GFK-RBT	rel. Häufigkeit der Abweichungen beim Außen-	Abb.: 4237. 2
4237 - 65	und Innendurchmesser Stab Nr. 1, 2, 3, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 46, 47, 48	PNS 1977



Vergleich Rechnung-Versuch
BSS 05

RBT/IT 1977
PNS 4237-97

Abb. 4237-3

4238 Untersuchungen zum Brennstabverhalten in der Niederdruckphase von Kühlmittelverluststörfällen und zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zirkaloy-Hüllrohren und einsetzender Kernnotkühlung (REBEKA - Programm)⁺)

(K. Wiehr, A. Emling, F. Erbacher, W. Just, H.J. Neitzel,
P.Schäffner, He. Schmidt, IRB)

Zielsetzung des Vorhabens ist die Erarbeitung experimenteller Informationen über den Aufblähvorgang von Zirkaloyhüllen 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:

- Fertigstellung von 25 Brennstabsimulatoren für Bündelexperiment.
- Instrumentierung von 5 Heizstäben mit Kapillare und Thermoelement.
- Charakterisierung von 13 Brennstabsimulatoren für Bündelexperiment mittels verbesserten Photoscannings (Temperaturverteilung).
- Experimentelle Überprüfung des theoretischen Modells zum Kapillar-Druckmeßsystem.
- Versuche zu Einzeleffekten an verkürzten Brennstabsimulatoren
 - Vergleich nicht adiabater und adiabater Versuchsführung.
 - Indirekte Beheizung unverspannter hohler Hüllrohrabschnitte.
- Bündelaufheizexperimente mit Fluten zur Überprüfung des Flutkreislaufes für Bündelversuche sowie zur Überprüfung des Rechnerdienstprogrammes für Display- und On-line-Darstellung.
- Berstexperiment an einem Brennstabsimulator voller Länge mit thermischer Umgebung in Dampfströmung.

⁺) REBEKA = reactor typical bundle experiment Karlsruhe
bzw. reactortypisches Bündel-Experiment Karlsruhe

1. Vorbereitende Arbeiten

Brennstabsimulatoren

Bei der Charakterisierung der Heizstäbe und Brennstabsimulatoren hinsichtlich der Temperaturverteilung schienen die Stäbe - bisher wurden nur verkürzte Brennstabsimulatoren damit getestet - einen nicht unbeträchtlichen Temperaturabfall von der Mitte zu beiden, den Stufen niedrigerer Leistung hin aufzuweisen. Es konnte nachgewiesen werden, daß diese scheinbare Leistungsverzerrung von der Kamera herrührt. Für das für die Bewertung benötigte Temperaturintervall wurden Korrekturisoothermen aufgestellt. Für Heizstäbe von dreizehn Brennstabsimulatoren voller Länge wurden Photoscannings aufgestellt. Abb.4238-1 zeigt das Photoscanning des Mittelteils von 1300 mm eines Heizstabes. Aus Auswertungsgründen mit dem Densitographen kann bei einem Stabdurchmesser von 6 mm nur eine Stablänge von ca. 650 mm fotografiert werden. Sollen größere axiale Längen charakterisiert werden, müssen die Aufnahmen zusammengesetzt werden, dies ist am Verlauf der Korrekturisoothermen auf Abb. 4238-1 zu erkennen.

Für den inzwischen durchgeführten Einzelstabversuch in adiabater Umgebung wurden ein auf der Heizerhülle und der Zirkaloyhülle instrumentierter Brennstabsimulator sowie zwölf weitere z.Teil auf der Inconelhülle instrumentierte Umgebungsbrennstabsimulatoren fertiggestellt.

Es hat sich gezeigt, daß die Umgebungsbrennstabsimulatoren ohne Schwierigkeiten für eine größere Anzahl von Experimenten eingesetzt werden können. Es ist ebenfalls gelungen, die Konstruktion der Brennstabsimulatoren mit Zirkaloyhülle so zu modifizieren, daß eine mehrfache Verwendung selbst von instrumentierten Heizstäben möglich wird. Dies bedeutet eine beträchtliche Kostenersparnis.

Für den vorbereiteten 25-Stab-Bündelversuch wurden die erforderlichen Brennstabsimulatoren ebenfalls fertiggestellt.

Kapillare

Zur Messung des Gasdruckes der Brennstabsimulatoren an der Stelle der erwarteten lokalen Aufblähung wurde ein spezielles Meßsystem entwickelt, bestehend aus einer Maßkapillare von 0,16 mm Innendurchmesser und 3,5 m Länge, einer Meßkammer mit einem Volumen von 44 mm^3 , einem DMS-Druckaufnehmer und das Spaltfüllgas Helium als Medium.

Das Zeitverhalten dieses Systems wurde theoretisch und experimentell untersucht. Dabei zeigte es sich, daß wegen des relativ zum Kapillarvolumen kleinen Meßkammervolumens eine quasistationäre Betrachtung unzulässig ist. Es wurde jedoch nachgewiesen, daß eine Berücksichtigung des instationären Termes in der Kontinuitätsbeziehung ausreichend ist, während die gesamten Trägheitsglieder in der Impulsgleichung vernachlässigt werden können. Mit Hilfe einiger weiterer Vereinfachungen wurde eine Beziehung ermittelt, die es erlaubt, abhängig von der Temperaturverteilung über die Kapillare aus der am Druckaufnehmer anfallenden Druckanzeige, den zu messenden Druckverlauf zu bestimmen.

Abb. 4238-2 zeigt ein Protokoll aus der Reihe der Experimente zur Untersuchung des Zeitverhaltens des Druckmeßsystems. Aufgezeichnet sind Druckanzeige p_M und berechneter und gemessener wahrer Druckverlauf p_{Kb} und p_{Km} .

Ähnlich wie in Abb. 4238-2 ergaben sich bei allen Experimenten nur geringe Abweichungen zwischen Theorie und Messung.

Bei der Anwendung des rechnerischen Korrekturverfahrens bei den Aufblähexperimenten ist es empfehlenswert, die berechneten Verläufe in geeigneter Weise zu glätten.

Quotientenpyrometer

Die Funktionsprüfung und Eichung des Gerätes wurde weitergeführt.

Eine nicht reproduzierbar auftretende Temperaturhysterese bei beiden Farbkämen zwischen Temperaturaufwärts- und -abwärtsrampe wurde festgestellt, sie konnte noch nicht völlig beseitigt werden. Die Arbeiten werden fortgesetzt.

2. Versuche

Zur Klärung der bei den bisherigen Berstversuchen beobachteten Deformationsform wurden weitere Experimente an unverspannten hohlen Hüllrohrabschnitten durchgeführt. Aus meßtechnischen Gründen wurde die Direktbeheizung des Hüllrohres durch eine indirekte Beheizung, nämlich durch einen einseitig angeordneten Flachbandofen aus Inconelblech ersetzt. Da durch Meßgeräteausfälle während der Versuche noch keine eindeutigen Aussagen getroffen werden können, müssen noch einige ergänzende Experimente durchgeführt werden.

Bei Vergleichsversuchen zwischen nichtadiabater und adiabater Versuchsführung an verkürzten Brennstabsimulatoren in praktisch stagnierender Luft waren die Versuchsstartbedingungen und die Heizleistung des Simulators während der Aufheizperiode gleich.

Bei adiabater Versuchsführung wurde ein Umgebungsrohr mit der gleichen Temperaturrampe wie die Brennstabsimulatorhülle beaufschlagt, während dieses bei nicht adiabater Versuchsführung unbeheizt bleibt.

Auf dem Umfang der Zirkaloyhülle waren je Versuch 5 Thermoelemente in einer axialen Ebene angeordnet. Zusätzlich befand sich ein Thermoelement auf dem Umgebungsrohr.

Der Vergleich zeigte folgendes Ergebnis:

	Nicht adiabater Versuch	Adiabater Versuch
Bersttemperatur	850°C	880°C
Berstdruck	67,6 kp/cm ²	65,6 kp/cm ²
Maximaldruck	74,1 kp/cm ²	73 kp/cm ²
max. azimutale Temperatur- differenz	46 K	5 K
Berstumfangsdehnung	42,8 %	63,5 %

Das wesentliche Ergebnis aus diesem Vergleich ist:

Der azimutale Temperaturunterschied bei adiabater Versuchsführung wird sehr viel kleiner. Dies führt dazu, daß bei plastischer Verformung eine gleichmäßigere Wandstärkenverschwächung auf dem Umfang auftritt und somit zu einer größeren Berstumfangsdehnung führt.

Drei Bündelaufheizexperimente mit anschließendem Fluten wurden durchgeführt. Sie dienten der Inbetriebnahme und Überprüfung des Flutkreislaufes für Bündelversuche sowie der Überprüfung des verbesserten Dienstprogrammes für die Display- und On-line-Darstellung.

Der erste Brennstabsimulator voller Länge mit stufenförmigem axialen Leistungsprofil wurde in Dampfatosphäre und mit adiabater Umgebung einem Bersttest unterworfen.

Bei diesem Versuch war der mit Zirkaloyhülle versehene, im Zentrum der Anordnung befindliche Brennstabsimulator kreisförmig von zwölf Umgebungsbrennstabsimulatoren, ebenfalls mit axialem Leistungsprofil, umgeben. Die Stäbe wurden mit scheibenförmigen Abstandhaltern in original axialer Anordnung (s. Abb. 4238-3) in Position gehalten. Dabei war in die scheibenförmigen Bleche für den blähfähigen Zentralstab je ein Original-Abstandhalter eingesetzt um für diesen möglichst reaktorähnliche Einspann- und Halterungsverhältnisse zu schaffen.

Der zentrale Brennstabsimulator wurde mit acht Temperaturstellen versehen. Die Thermoelemente waren in Stabmitte azimuthal in der Heizstabhülle angeordnet, fünf weitere Mantelthermoelemente mit Platinhülse waren auf der Zirkaloyhüllrohroberfläche angepunktet.

Die axiale Positionierung der Thermoelemente auf der Hülle ist auf Abb. 4238-3 zu erkennen. Drei der Umgebungsbrennstabsimulatoren waren mit je sieben Mantelthermoelementen, die in Nuten in der Inconelhülle verlegt wurden, versehen.

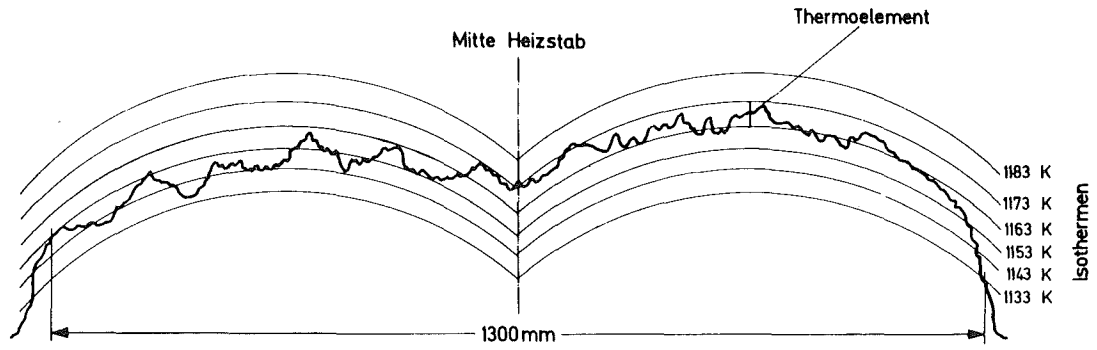
In praktisch stagnierender Dampfatosphäre wurden die Brennstabsimulatoren hochgeheizt und bei 700°C die elektrische Leistungszufuhr abgeschaltet. Der zentrale Brennstabsimulator mit einem Heliuminnendruck von 70 bar beaufschlagt und die Stromversorgung wieder zugeschaltet. Gleichzeitig wurde eine leichte Dampfströmung von unten nach oben eingestellt.

Die zugeführte Leistung war für alle Stäbe annähernd gleich groß und entsprach der auf den Profilstufen der Abb. 4238-3 angegebenen Nachwärmeleistung mal 1,62. Dies führte zu einer mittleren Aufheizrampe von 10,5 K/s. Diese Aufheizrampe wurde so gewählt, um das Ergebnis des Brennstabsimulators voller Länge mit Ergebnissen von verkürzten Brennstabsimulatoren vergleichen zu können.

Obwohl die Daten, die vom Rechner auf Band genommen wurden noch nicht ausgewertet werden konnten, kann folgendes festgestellt werden:

- Bei 600°C und praktisch isothermem Zustand in der Teststrecke beträgt der Anfangsinnendruck 70 kp/cm^2 .
- Der Stabinnendruck stieg im Maximum auf $75,6 \text{ kp/cm}^2$ an und der Berstdruck lag schließlich bei $58,6 \text{ kp/cm}^2$.
- Die Maximal- und Bersttemperatur betragen ca. 880°C .
- Es herrschte nur eine geringe azimutale Temperaturdifferenz auf dem Zirkaloyhüllrohr.
- Die maximale Berstumfangsdehnung betrug $51,2\%$.
- Umfangsdehnung mit mehr als 33% blieben auf eine Länge von drei Stabdurchmessern begrenzt.
- Das Verformungsbild ist ebenfalls dem schon an verkürzten Brennstab-simulatoren gefundenen sehr ähnlich und weist trotz recht geringer azimutaler Temperaturunterschiede eine leichte Unsymmetrie an der Berststelle auf. (Abb. 4238 - 4)
- An den Stellen der Abstandshalter treten praktisch keine plastischen Verformungen auf.
- An der axialen Verteilung der Dehnung ist der Einfluß der Kühlung durch den strömenden Dampf zu erkennen. (Abb. 4238 - 3 - 5).

Das gefundene Ergebnis bezüglich Druck, Temperatur und Umfangsdehnung steht in keinem Widerspruch zu vergleichbaren Versuchen an verkürzten Brennstab-simulatoren in Luft. •



Aufheizrampe 10K/s bei T=1168 K

Abb. 4238 - 1 Temperaturscanning des Mittelteiles eines Heizstabes

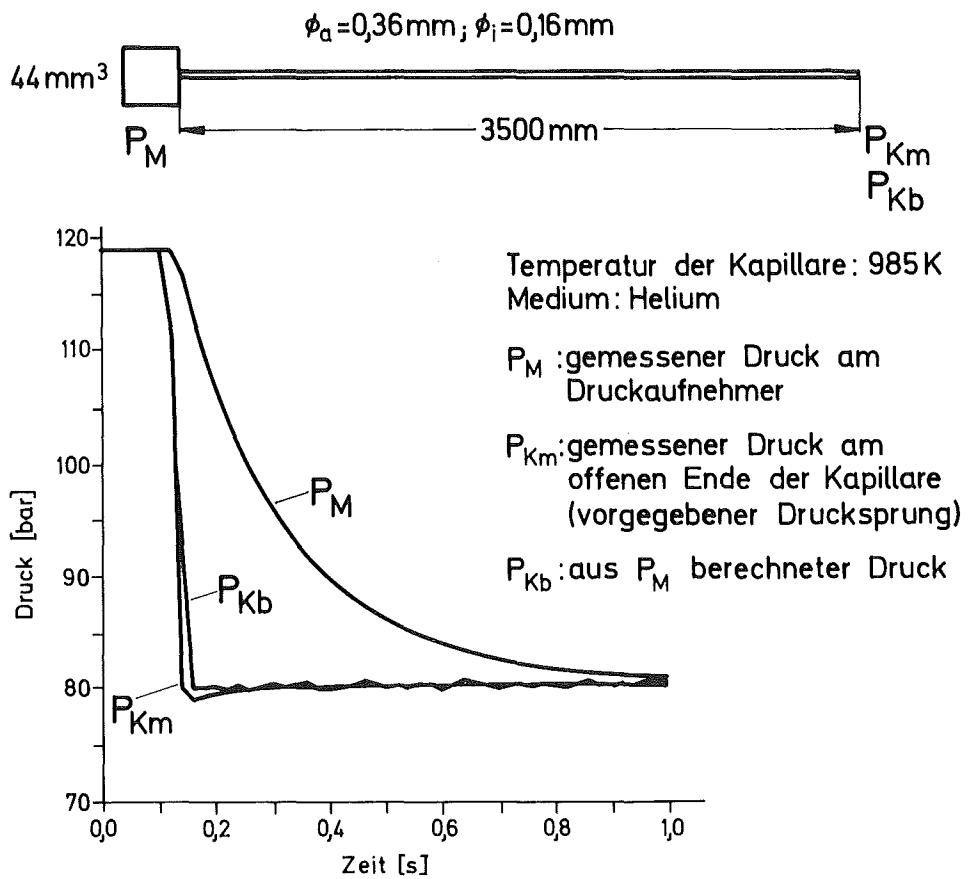


Abb. 4238 - 2 Zeitverhalten einer Druckmeßkapillare

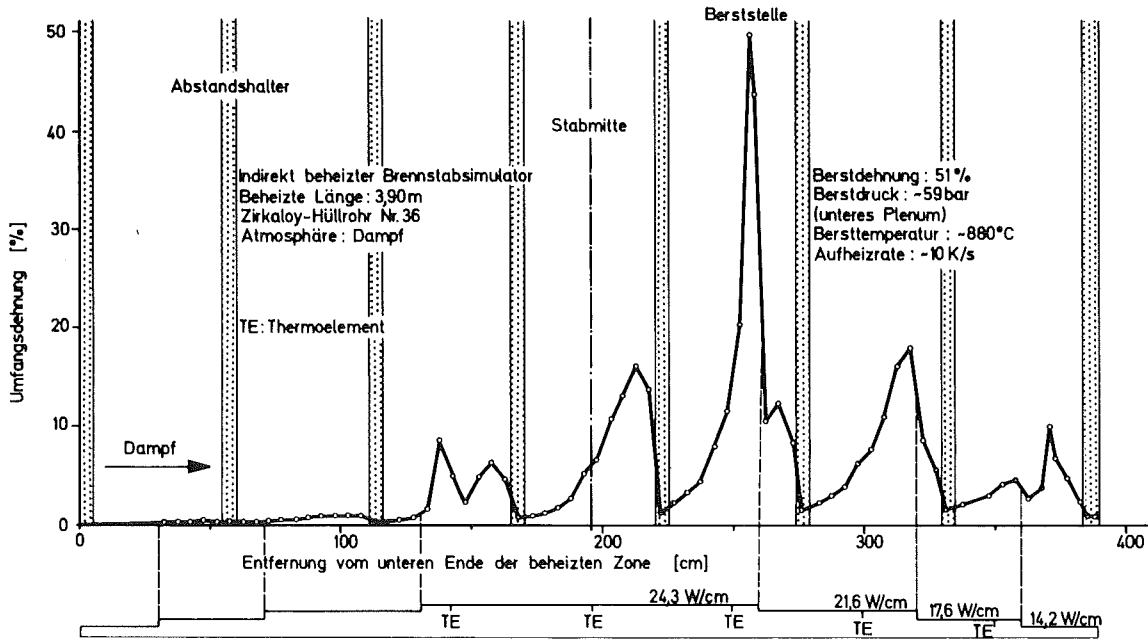


Abb. 4238 - 3 Umfangsdehnung über gesamte Stablänge

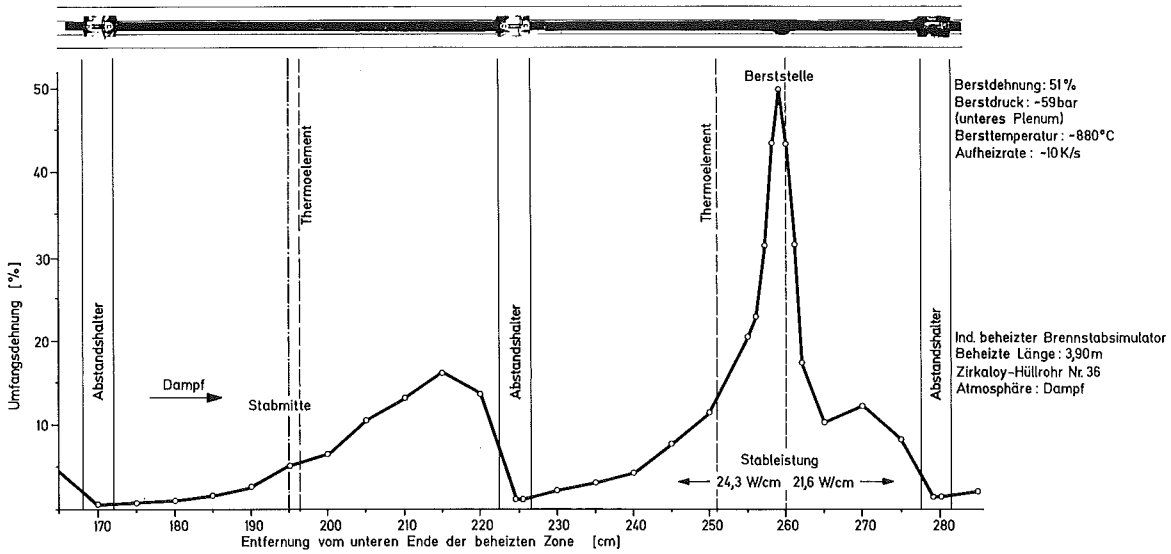


Abb. 4238 - 4 Umfangsdehnung um Stabmitte und Berststelle

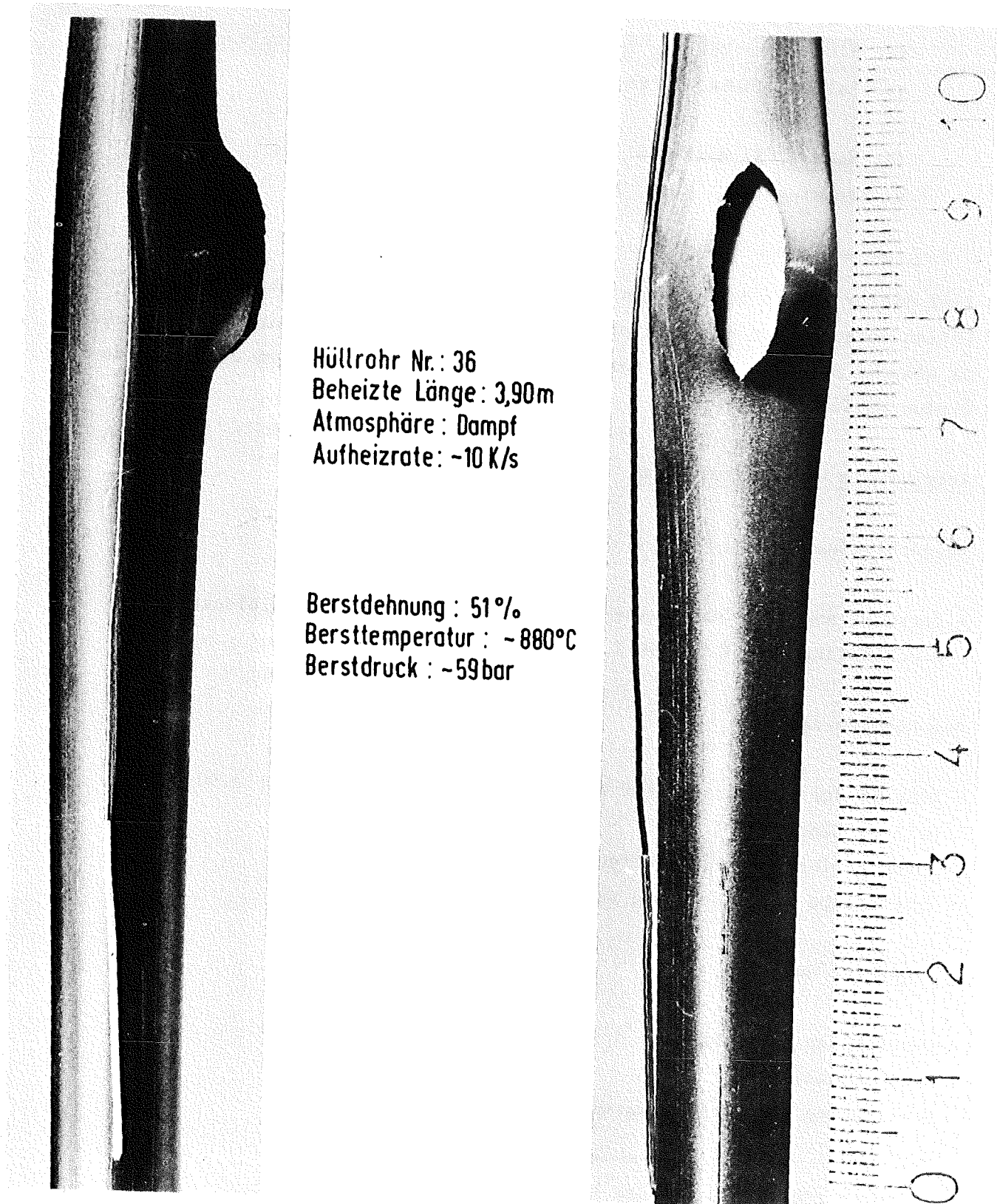


Abb. 4238 - 5 Geborstenes Zircaloy-Hüllrohr voller Länge
typische Deformationsform im Bereich der Berststelle

4239 Untersuchungen zum Einfluß der Größe und Form von Kühlkanalblockaden auf die Kernnotkühlung in der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles (FEBA - Programm ⁺)

(S. Malang, S. Barth, W. Götzmann, 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.

Arbeiten im Berichtszeitraum

Abgeschlossen wurden:

- Versuche an der 5-Stab-Reihe mit Lochplatten als Kühlkanalblockade, Blockadefaktor 62 % und 90 %.

Begonnen wurden:

- Entwurf der Teststrecke für ein 5 x 5 Bündel für Stäbe mit 3.90 m beheizter Länge
- Entwurf einer Ersatzteststrecke für die 5-Stab-Reihe
- Vorversuche zur Umströmung von Blockaden

Fortgesetzt wurden:

- Darstellung der Meßwerte
- Versuchsauswertung
- Erweiterung des Rechenprogramms HETRAP

⁺) FEBA = Flut - Experimente mit blockierten Anordnungen

1. Durchgeführtes Versuchsprogramm

1.1 Parameterbereich

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)	Lochplatte
Blockadefaktor	62 % und 90 % gleichmäßige 90 % ungleichmäßige Versperrung

1.2 Ergebnisse

Ein Überblick über die bisherige Auswertung der im Berichtszeitraum durchgeführten Versuche bestätigt die im PNS-Halbjahresbericht 1976/2 /1/ aufgezeigten Tendenzen. Bei allen bisher durchgeführten Versuchen mit blockierten Kanälen hat es sich gezeigt, daß die Kühlwirkung hinter der Blockade immer höher war als in ungestörter Geometrie.

Wenn die vom unteren Bündelende aufsteigende Benetzungsfront etwa die Hälfte des Weges bis zur Blockade zurückgelegt hat, entsteht hinter der Blockade eine zweite Benetzungsfront, die sich ebenfalls nach oben bewegt, aber mit etwas kleinerer Geschwindigkeit.

Bei Flutraten größer 5 cm/s entsteht, obwohl keine Heißeinspeisung vorliegt, eine 3. Benetzungsfront am oberen Bündelende, die sich mit der 2. Benetzungsfront trifft. Der Grund für diese dritte Front ist die kleinere Stableistung in diesem Bereich.

Die Erläuterung der Vorgänge, die in allen Versuchen, auch bei 90 % Versperrung der Kühlkanäle, ähnlich verliefen, ist anhand der Ergebnisse aus einem Versuch am anschaulichsten zu geben:

1.2.1 Blockadefaktor 62 %, gleichmäßige Versperrung aller Kühlkanäle durch Gitterplatte Typ A

Die in Abb. 4239-2 gezeigten Ergebnisse des Versuchs Nr. 74 wurden mit folgenden Daten ausgeführt:

- Lineare max. Stableistung	27,5 W/cm
- max. Stabausgangstemperatur	770°C
- Flutwassertemperatur	40°C
- Flutrate, kalt	5 cm/s
- Systemdruck	4,5 bar
- und als Blockade eine Gitterplatte, in der Mittenebene angeordnet, mit einem Blockadefaktor von	62 %

Auf der Zeitachse ist der Ablauf der Flutphase von 0 bis ca. 220 sec. zu erkennen.

Die vier dargestellten Hüllrohrtemperaturen wurden in den auf dem rechten Teil des Bildes skizzierten axialen Höhen unterhalb und oberhalb der Blockade gemessen.

Die Temperatur vor der Blockade steigt zu Beginn der Flutphase noch etwa 40°C an, bevor sie mit zunehmendem Gradient abfällt. Der Stab wird an dieser Stelle nach ca. 150 sec. benetzt. Nach der Blockade steigen die Temperaturen unter diesen Flutbedingungen nicht mehr an; unmittelbar hinter der Blockade fallen sie sogar steil ab, wie der Verlauf bei Niveau +35 zeigt. Die Auswirkungen der Blockade sind bis zum oberen Bündelende erkennbar.

Das Niveau +870 nach der Blockade wird nach ca. 200 sec. benetzt, das Niveau +1120 etwa 20 sec später.

Die erhöhte Kühlung hinter der Blockade ist auch aus der optischen Beobachtung erklärbar.

Sie wird verursacht durch zwei Effekte:

1. Beim Einsetzen des Dampfstoßes zu Beginn des Flutvorganges wirken die Erweiterungen beim Austritt aus der Blockade als Tropfenzerstäuber, wobei die Stelle der intensivsten Kühlung einige Zentimeter hinter der Blockade liegt.
2. Nach kurzer Zeit sammelt sich im Totraum direkt hinter der Blockade Wasser, das durch den Freistrahle des Zweiphasengemisches stark in Bewegung gehalten wird. Hierdurch wird dieser Bereich in der Folge auch besser gekühlt als der Bereich vor der Blockade.

Die große Reichweite der besseren Kühlwirkung bis an das obere Bündelende folgt aus der größeren Dampfproduktion, verursacht durch das raschere Ausspeichern der Wärme im Vergleich zum ungestörten Bündel.

Die Auswertung der Meßdaten ergab die in Abb. 4239-3 beispielhaft gezeigten Wärmeübergangszahlen. Über der Flutzeit in sec. sind die Wärmeübergangszahlen in logarithmischem Maßstab aufgetragen, berechnet für die im rechten Teil des Bildes skizzierten axialen Höhen.

Es ist anzumerken, daß die hier gezeigten Wärmeübergangszahlen (α_k) auf die Temperatur des Flutwasser (T_k) und nicht - wie üblich - auf die Sättigungstemperaturen (T_s , α_s) bezogen sind. Die Umrechnung erfolgt nach:

$$\alpha_s = \alpha_k \cdot \frac{T_o - T_k}{T_o - T_s}$$

Wie die Abbildung zeigt, steigt der Wärmeübergang nach Beginn der Flutphase unmittelbar hinter der Blockade auf etwa den doppelten Wert an, der sich vor der Blockade ergibt und bleibt in etwa konstant bis zum Benetzen dieser

Stelle.

Am oberen Bündelende, in einer Zone kleinerer Stableistung, steigt der Wärmeübergang ebenfalls zu Beginn über den Wert vor der Blockade und bleibt dann über lange Zeit konstant.

Vor der Blockade zeigt der zeitliche Verlauf des Wärmeübergangs ziemlich genau das gleiche Bild wie in ungestörter Geometrie und gleichen Flutparametern. Zahlenbeispiel für den WÜG in verschiedenen zeitl. Abschnitten der Flutphase (s. Abb. 4239-3):

vor der Blockade	30 - 150/200 - 5000 - 600	(W/m ² · K)
nach der Blockade	30 - 200/300 - 5000 - 600	(W/m ² · K)

Abb. 4239-4 zeigt den zeitlichen Verlauf des Wärmeflusses an der Staboberfläche, berechnet für angegebene Meßstellen.

1.2.2 Blockadefaktor 62 % und 90 % gleichmäßige Versperrung und 90 % ungleichmäßige Versperrung aller Kühlkanäle

Die in den folgenden Abbildungen gezeigten Ergebnisse der Versuche Nr. 70, 106 und 116 wurden mit folgenden Daten ausgeführt:

Versuchs-Nr.	-	70	106	116
Blockadetyp	-	A	B	C
Blockadefaktor	%	62	90	90
Unterkanalblockade	-	gleichmäßig	ungleichmäßig	ungleichmäßig
Systemdruck, abs.	bar	3.5	2	1.5
Max. Stabausgangstemperatur	°C	770	870	810
Max. Kastentemperatur	°C	510	630	580
Max. lineare Stableistung	W/cm	27.5	27.5	27.5
Flutgeschwindigkeit (im kalten Bündel)	cm/s	2.	2.	2.
Flutwassertemperatur	°C	40	40	40

In den Abb. 4239-5 bis Abb. 4239-10 liegen die angegebenen Meßebenen 1: 50 mm unterhalb, 2: 35 mm oberhalb und 3: 235 mm oberhalb der jeweiligen Blockade, die in der Mittenebene angeordnet ist. Die Blockadetypen A, B und C sind in Abb. 4239-1 dargestellt.

Der wesentliche Unterschied der in Abb. 4239-5 dargestellten beiden Versuche ist der Blockadefaktor. Beide Blockadetypen führen zu verbessertem Wärmeübergang hinter der Blockade im Vergleich zum Bereich vor der Blockade.

Die kürzere Benetzungszeit im Fall A ist auf den höheren Systemdruck zurückzuführen. Die etwas niedrigere Ausgangstemperatur der Stäbe und der Kastwand wirken in der gleichen Richtung, haben jedoch wesentlich geringeren Einfluß.

Abb. 4239-6 zeigt einen Versuch mit dem Blockadetyp C. Die Ergebnisse vermitteln einen Eindruck vom Kühlmechanismus bei umströmter Blockade. Die Interpretation dieser Versuchsreihe ist noch nicht abgeschlossen.

In den Abb. 4239-7 bis 4239-10 sind die für die angegebenen Meßstellen ermittelten Wärmeflüsse an der Staboberfläche und die Wärmeübergangszahlen dargestellt.

1.3 Erweiterung des Rechenprogramms HETRAP

Wie im vorigen Halbjahresbericht /1/ festgestellt wurde, ist ein besonderes Problem der Unterschied im thermischen Verhalten zwischen dem Brennstab und dem Heizstab, bedingt durch ihren unterschiedlichen Aufbau und die unterschiedlichen Materialien. Diese beide 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. Wie vor einem halben Jahr berichtet, wurde daher eine Option des Rechenprogramms HETRAP entwickelt, um das Temperaturprofil im Brennstab und im elektrisch beheizten Simulator parallel zu berechnen, wodurch auf die Qualität der Simulatoren geschlossen werden kann.

Ein idealer Brennstabsimulator sollte jedoch zu jedem Zeitpunkt und an jeder Stelle der Staboberfläche einen Wärmestrom besitzen, der identisch ist mit dem des Brennstabes. Da aber der Heizstab im allgemeinen ein unterschiedliches Wärmespeichervermögen und andere Zeitkonstanten aufweist, sind verschiedene Transienten hinsichtlich der Leistungszufuhr für die beiden Stäbe Voraussetzung, wenn gleiche Wärmeströme an den Staboberflächen erzielt werden sollen.

Aus diesem Grund wurde eine Methode entwickelt zur Bestimmung der zeitlichen Leistungszufuhr für den elektrisch beheizten Stab mit dem Ziel eine gute Simulation zu erreichen.

Grundsätzlich gibt es zwei Möglichkeiten, die Leistungszufuhr abhängig von der Zeit zu bestimmen:

1. Die Leistungstransiente wird vorprogrammiert ohne irgendwelche Rückkopplung der gemessenen Stabtemperatur oder des Wärmeübergangs auf die Leistungszufuhr.
2. Die Leistungstransiente wird im On-Line Betrieb unter Verwendung eines Process Computers geregelt unter Rückkopplung der gemessenen Stabtemperatur.

Da aber eine vorprogrammierte Leistungstransiente stets nur so genau ist wie die Vorausbestimmung der Wärmeübergangsverhältnisse, was z.B. mit Rechenprogrammen wie RELAP geschehen kann, wäre mit der zweiten Möglichkeit eine bessere Simulation zu erreichen.

Die Grundidee für ein derartiges Regelsystem ist in Abb. 4239-11 dargestellt, welches sich selbst erklärt. Es ist jedoch darauf hinzuweisen, daß unter "Einheiten" Funktionen zu verstehen sind, die durch getrennte Rechner ausgeführt werden können oder durch einen Computer mit der Leistungsfähigkeit von beispielsweise einer PDP-8 ausgeübt werden können.

Zu diesem Zweck wurde dem HETRAP-Rechenprogramm eine weitere Option hinzugefügt.

Das Verhalten des proportional-integral wirkenden Reglers mit Vorhalt (PID-Regler) ist durch folgende Funktion gekennzeichnet:

$$q_H' = q_B' + F_P \cdot \frac{\Delta q''}{q_B''} + F_D \cdot \frac{d(\Delta q'' / q_B'')}{dt} + F_I \cdot \int_0^t \frac{\Delta q''}{q_B''} \cdot dA \cdot \text{HCAP}$$

Dabei bedeuten:

F_p, F_D, F_I	Faktoren
HCAP	Wärmekapazität des Heizstabes
q_H'	Stableistung des Heizstabes
q_B'	Stableistung des Brennstabes
$\Delta q'' = q_B'' - q_H''$	Differenz der Stableistungen von Brennstab und Heizstab
t	Zeit

2. Schlußfolgerungen und Ausblick auf den weiteren Fortgang der Arbeiten

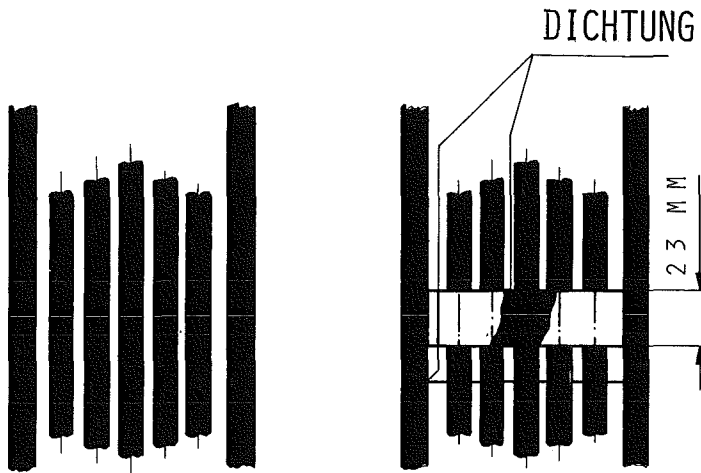
Die bisherigen Ergebnisse zur Durchströmung und Vorversuche zur Umströmung von Blockaden ergaben qualitative Ergebnisse. Eine Übertragung der quantitativen Werte auf Reaktorverhältnisse ist jedoch noch nicht zulässig. In der untersuchten 5-Stab-Reihe ist der Wandeinfluß relativ groß und der Einfluß der Form der Blockade (Einlauf-Auslauf der 2-Phasen-Strömung durch den blockierten Bereich) noch nicht untersucht. Außerdem muß das Zusammenwirken von Durchströmung und Umströmung in einer größeren Anordnung untersucht werden. Eine theoretische Synthese der beiden zunächst getrennt zu untersuchenden Effekte erscheint nicht möglich und wäre nicht ausreichend absicherbar.

Aus diesen Überlegungen ergibt sich das in Abb. 4239-12 dargestellte Programm, das mit den in Abb. 4239-13 skizzierten Anordnungen durchgeführt werden wird.

Die Versuche mit der 5-Stab-Reihe und den Hülsenblockaden werden im 2. Halbjahr 1977 durchgeführt und die 5x5-Bündel-Untersuchungen werden vorbereitet. Der voraussichtliche Versuchsbeginn der Bündel-Experimente ist Anfang 1978.

Literatur

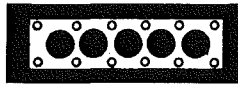
- /1/ S. Malang et al.
PNS-Halbjahresbericht 1976/2
KFK-2435, April 1977



0



A



B



C

BISHER DURCHGEFÜHRTE TESTS:

- OHNE BLOCKADE
- MIT BLOCKADE
TYP

A:	BLOCKADEFAKTOR	62 %	GLEICHMÄSSIG
B:	BLOCKADEFAKTOR	90 %	GLEICHMÄSSIG
C:	BLOCKADEFAKTOR	90 %	UNGLEICHMÄSSIG

ABB.: 4239-1

FÜNF-STAB-REIHE

GITTERPLATTEN ALS BLOCKADE

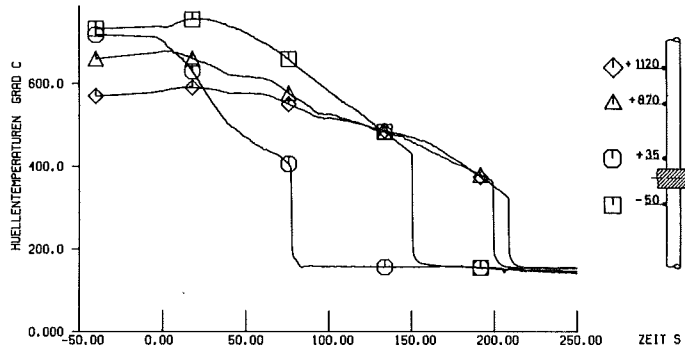


ABB.: 4239-2 HÜLLENTEMP. BEI 62% BLOCKADE

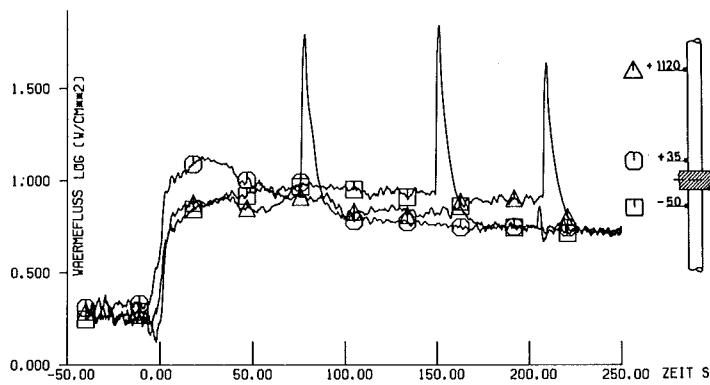


ABB.: 4239-3 WÄRMEFLUSS VOR + HINTER DER BLOCKADE

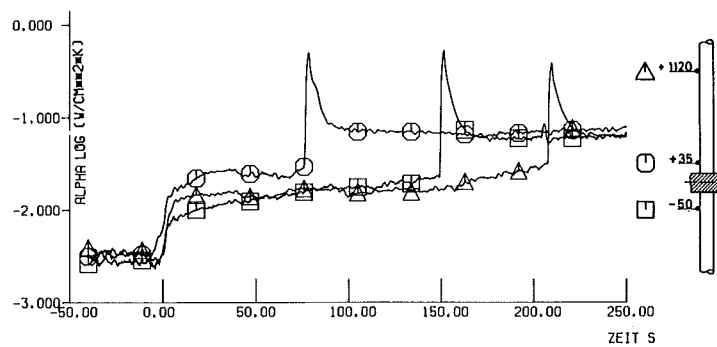


ABB.: 4239-4

WÄRMEÜBERGANGSZAHLEN VOR + HINTER DER BLOCKADE (62%)

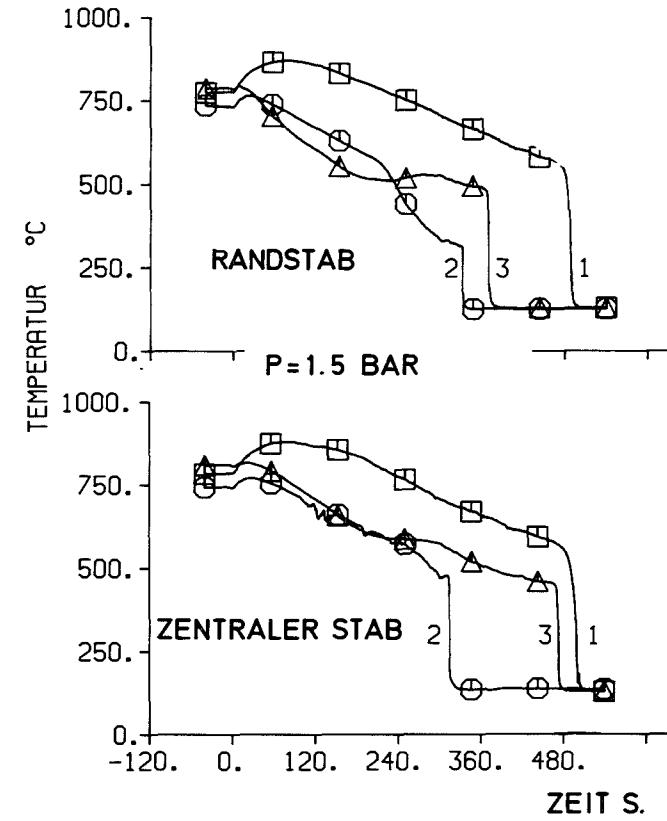
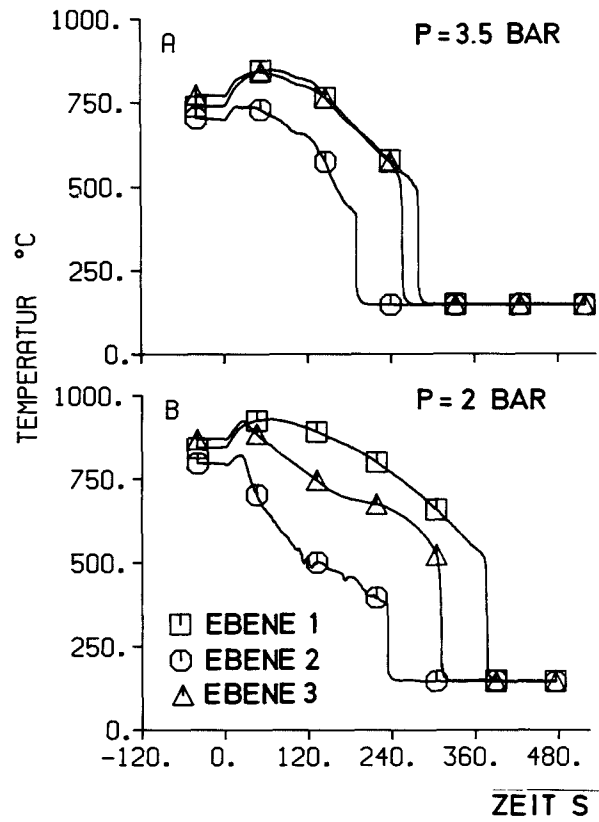


ABB.: 4239-5

GITTERPLATTE

GLEICHMÄSSIGE BLOCKADE A=62%, B=90%

ABB.: 4239-6

GITTERPLATTE

UNGLEICHFÖRMIGE BLOCKADE C=90%

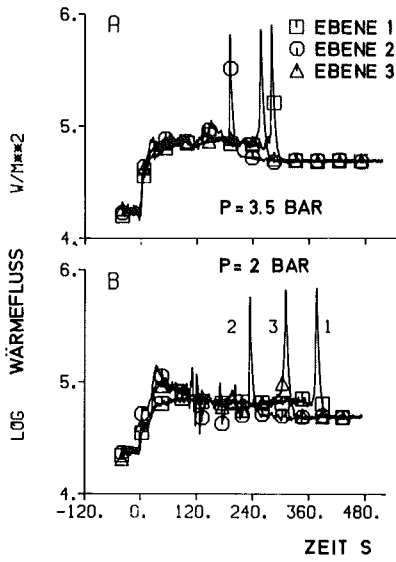


ABB.: 4239-7 GITTERPLATTE
GLEICHMÄSSIGE BLOCKADE A=62%, B=90%

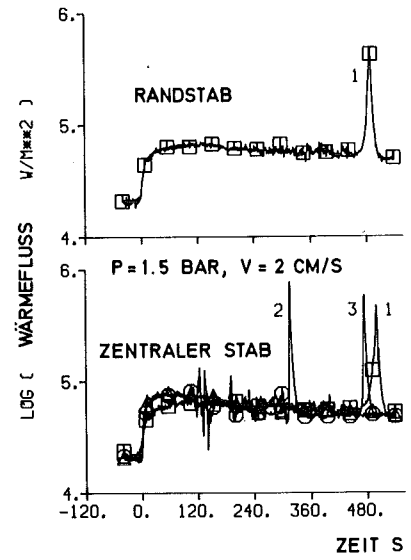


ABB.: 4239-8 GITTERPLATTE
UNGLEICHMÄSSIGE BLOCKADE C=90%

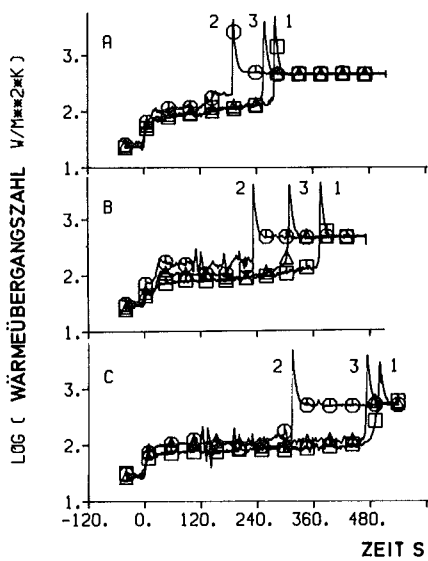


ABB.: 4239-9 GITTERPLATTE
A=62%, B=90%, C=90% UNGLEICHMÄSSIG

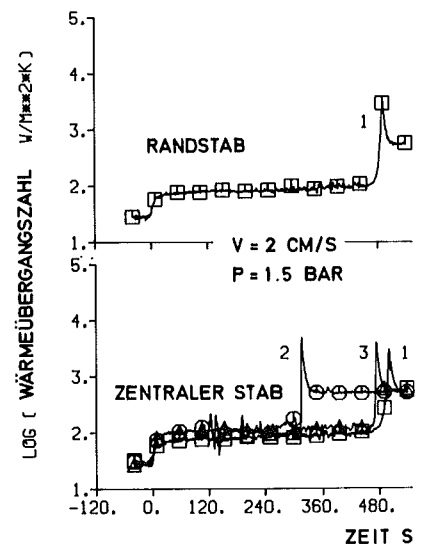
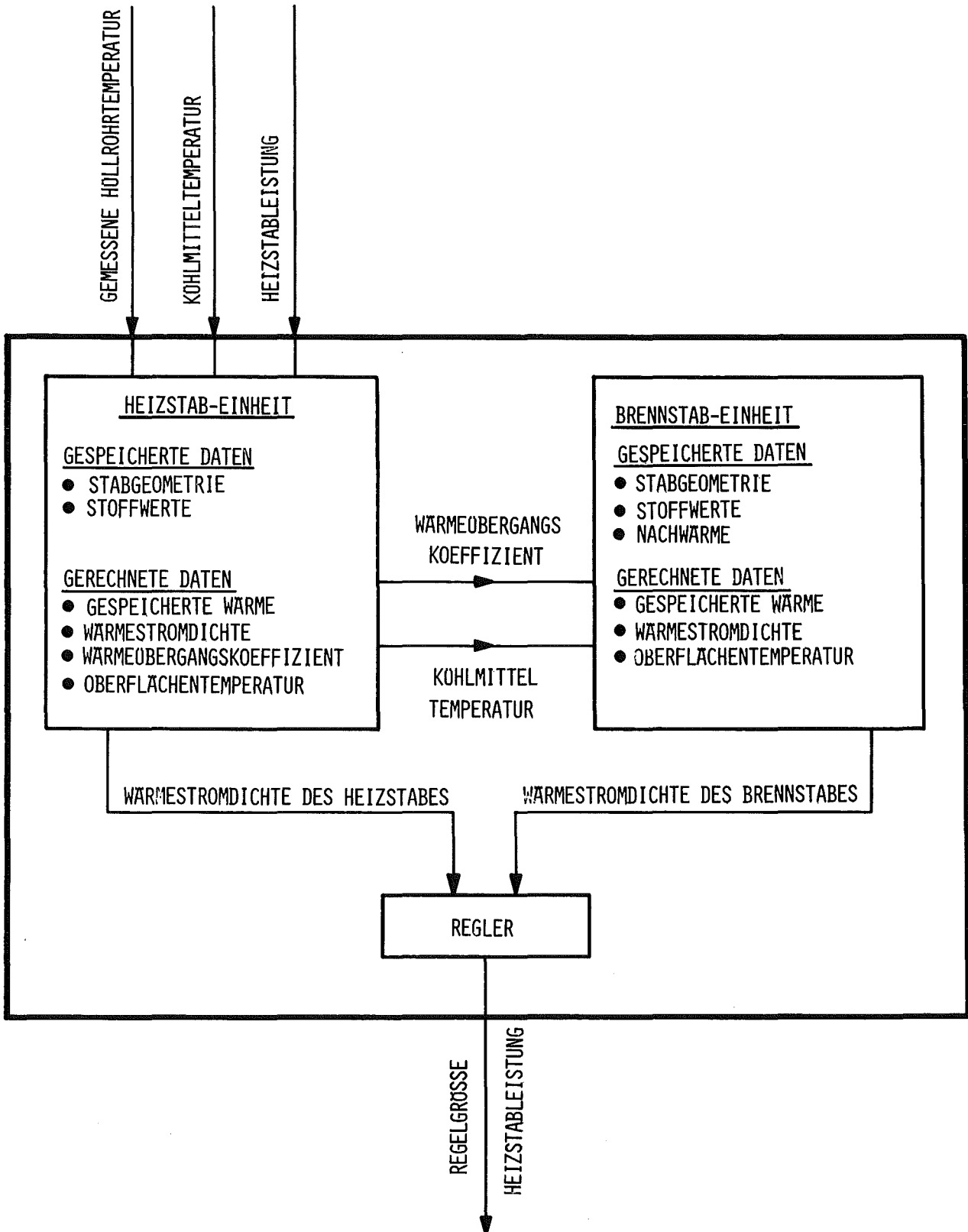


ABB.: 4239-10 GITTERPLATTE
UNGLEICHMÄSSIGE BLOCKADE C=90%



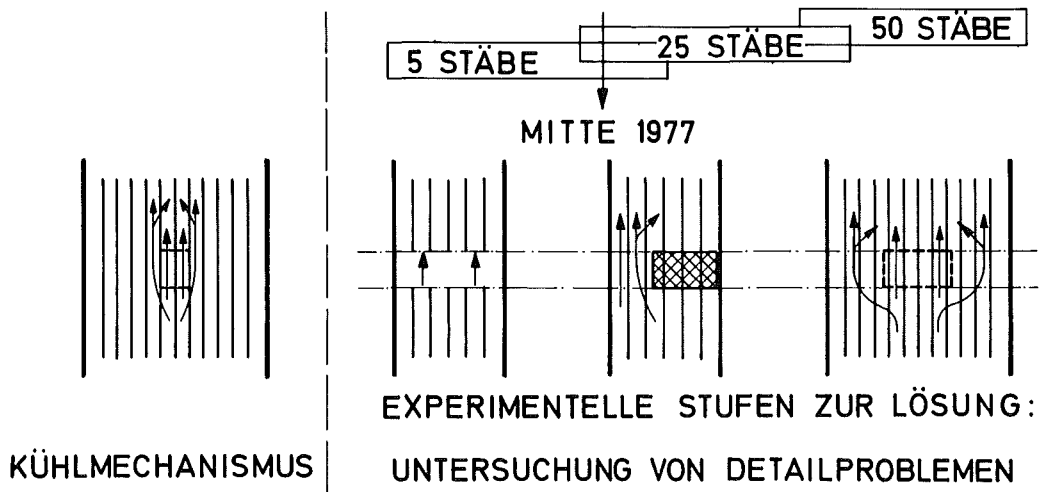


ABB.: 4239-12 **PROBLEMSTELLUNG**

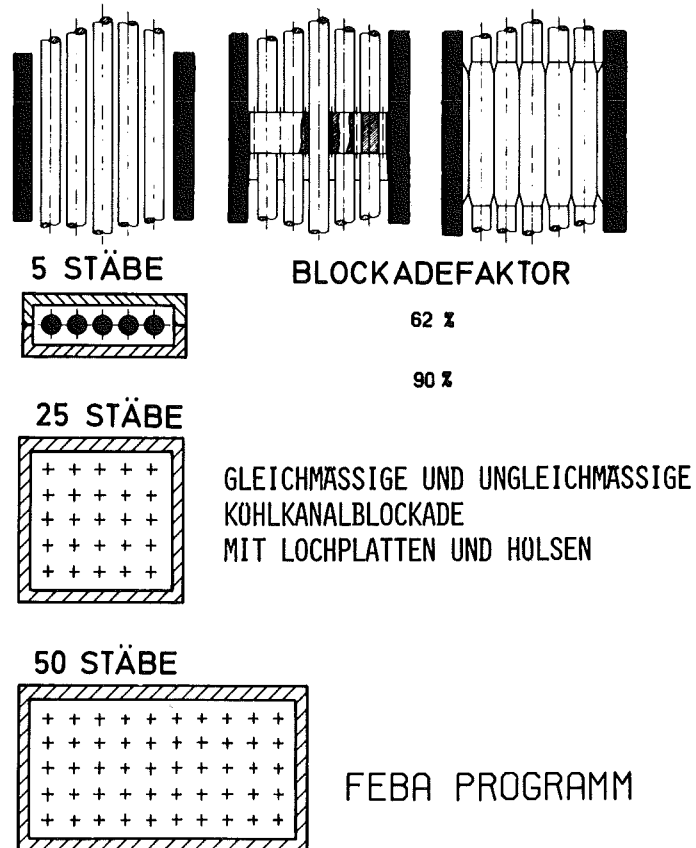


ABB.: 4239-13
FLUTEXPERIMENTE MIT BLOCKIERTEN ANORDNUNGEN

- 4240 Coreschmelzen von LWR
- 4241 Experimentelle Untersuchung der Abschmelzphase von UO_2 -Zircaloy-Brennelementen bei versagender Notkühlung (S. Hagen, A. Grünhagen, H. Malauschek, H. Schülken, K. Wallenfels, RBT-IT)

Einleitung

In dem im vorigen Halbjahresbericht beschriebenen Versuchskessel haben wir mit Bündelexperimenten zur Untersuchung des Abschmelzverhaltens von LWR-Brennelementen begonnen. Es wurden Experimente in nicht-oxidierender und oxidierender Atmosphäre durchgeführt. Bei diesen ersten Versuchen in oxidierender Atmosphäre war das Sauerstoffangebot geringer als es für die mögliche Oxidation des gesamten Hüllrohres bei dem benutzten Temperaturverlauf notwendig war. Es soll das Oxidations- und damit Schmelzverhalten für Kernbereiche mit Dampfangel untersucht werden. Die folgende Abschätzung zeigt, daß Mangel an Wasserdampf unter bestimmten Bedingungen im Core auftreten könnte.

Die Dampferzeugung im Reaktor wird stark vom Unfallverlauf abhängen. Rechnungen des IKE [1,2] und der KWU [3] ergaben folgende Dampfzraten als Funktion des anfänglichen Wasserstandes:

Wasserstand [cm]	Dampfzrate [mg/sec/Stab]	
40	32 - 8	* = 35 cm von Kern- unterkante
205 *	130 - 20	
geflutet	750 - 100	
geflutet	2000 - 800	

Die ersten 3 Angaben wurden vom IKE mit dem NURLOG-Programm (40 cm) und dem MELSIM-Programm (205 cm, geflutet) berechnet. Der 4. Wertebereich für

die Dampftrate wurde von Hassmann mit dem BILANZ-Programm bestimmt.

Der Wasserdampfbedarf steigt mit der Temperatur und der Geschwindigkeit des Temperaturanstiegs. Er liegt für Anstiegsraten von $0,1 - 5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{sec}$, für $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ bei $3 - 30 \text{ mg}$ und für $1850 \text{ }^\circ\text{C}$ bei $100 - 900 \text{ mg}/\text{sec}$ für einen 3 m langen Stab.

Wenn man von der Erhöhung der Dampftrate bei Beginn des Abtropfens der Schmelze in das im Kessel stehende Wasser absieht, nimmt die Dampftrate mit der Zeit ab. Der Dampfbedarf dagegen wächst wegen der steigenden Temperatur. Der Vergleich zwischen Dampfangebot und -nachfrage zeigt, daß der für die volle Oxidation notwendige Dampf annähernd nur im anfänglich voll gefluteten Kern vorhanden ist.

Versuche in He

Abb. 4241-1 und 2 zeigen die in He aufgeheizten Brennstabbündel. Es wurden jeweils 7 Brennstabsimulatoren und 30 bzw. 36 Reflektorstäbe benutzt. Die Brennstabsimulatoren bestanden aus: W-Stab, UO_2 -Ringpellets und Hüllrohr. Als Reflektorstäbe wurden Zircaloy-Hüllrohre verwendet.

Die Anordnung der Stäbe ist unter den Fotografien wiedergegeben. Der jeweils linke Querschnitt gibt das volle Bündel während des Versuches wieder. Die beiden Schnitte in der Mitte und auf der rechten Seite entsprechen dem Rest des Bündels, wie er auf den Fotografien wiedergegeben ist. Von den Reflektorstäben sind hier nur noch die durch die heruntergelaufene Schmelze angeschweißten Hüllrohre vorhanden.

Der Zentralstab besitzt einen unabhängigen Heizkreis. Bei dem in Abb. 1 dargestellten Versuch wurde im Zentralstab die gleiche Leistung wie in den umgebenden Stäben zusammen erzeugt. Für das Bündel in Abb. 2 dagegen haben wir ein Verhältnis von der im Zentralstab zu der in den umgebenden Heizstäben freigesetzten Leistung von $1:10$. Daher zeigt das Abschmelzverhalten bei dem Versuch in Abb. 1 noch Erscheinungen, die denen des Einzelstabes ähnlich sind. Auf dem Bild auf der rechten Seite sieht man am Zentralstab das typische Ausbilden von großen Schmelznasen. Diese bleiben am Stab haften und erhalten so für längere Zeit die Einwirkung des Zircaloy auf das UO_2 .

Ferner zeigen die Bilder die Tendenz der herablaufenden Schmelze, zwischen den Stäben zu erstarren. Bei ausreichender Schmelzbildung sammelt das Schmelzgut sich am Boden und dringt dort in die Löcher der Kupferelektrode ein.

Dieser Abschmelz- und Erstarrungsverlauf erlaubt folgende zwei Annahmen zum möglichen Verhalten der Schmelze im Core:

1. Über dem Restwasser eines anfänglich ganz gefluteten Kerns bildet sich durch die erstarrende Schmelze eine feste Bodenschicht.
2. In einem trockenen Kern kann die in größeren Mengen herablaufende Schmelze die Löcher des sich mit-aufheizenden Bodens (Rost und Stauplatte) durchdringen.

Die Abb. 2 zeigt im oberen Bereich Reste von Ringpellets, über denen das Hüllrohr abgeschmolzen ist, ohne dabei auch das Pellet ganz mit abzuschmelzen. Dies hat in diesem Bündel zwei Gründe: Die bevorzugte Heizung in den Ringstäben läßt nur ein flaches Temperaturprofil entstehen, so daß ein langsames Eindringen des Zircaloy erfolgt. Die Bündelanordnung bewirkt die Absorption des Restsauerstoffes im He und verhindert damit die Bildung von dünnen Oxidhäuten im inneren Bereich. Dadurch kann das Zircaloy leichter abfließen. Die Form der Pelletreste zeigt aber auch hier, daß die Stellen des Pellets am meisten abgeschmolzen sind, die dem Angriff des Zircaloy am stärksten ausgesetzt waren (Aufschmelzen von den Pelletstößen her).

Bündelversuche in oxidierender Atmosphäre

Für diese ersten Bündelversuche in oxidierender Atmosphäre haben wir aus experimentellen Gründen He/O₂-Gemische mit 20 % Sauerstoff anstelle von Wasserdampf als oxidierendes Medium verwandt. Die Versuche an Einzelstäben hatten gezeigt, daß in Sauerstoff sich die gleichen Schichten wie in Wasserdampf aufbauen.

Die Abb.4241-3 und 4 zeigen Aufnahmen eines Bündels mit Abstandshalter, dessen Zentralstab bis zu einer Temperatur von 1700 °C aufgeheizt wurde. Der Zentralstab bestand aus Vollpellets. Er war von 6 beheizten Brennstabsimulatoren und 32 Reflektorstäben umgeben. Auf der Abb. 3 sieht man das Verhalten des Abstandshalters und des Zentralstabes mit zunehmender Temperatur. Bis 1400 °C sind noch keine Schmelzerscheinungen am Abstandshalter zu erkennen. Bei 1550 °C ist der Abstandshalter vollkommen weggeschmolzen. In der hier vorhandenen Bündelanordnung hat die Hülle und der Abstandshalter praktisch die gleiche Temperatur. Bei den Einzelstabversuchen war die Temperatur des Abstandshalters niedriger als die der Hülle. Daher schmolzen dort die letzten Teilstücke des Abstandshalters erst bei deutlich höheren Temperaturen der Hülle ab.

Die folg. Aufnahmen der Abb.4241-3 zeigen, daß durch den Schutz der entstandenen Oxidschicht die Hülle erhalten bleibt. Es wird damit die schon bei den Einzelstabversuchen gefundene stabilisierende Wirkung der oxidierenden Atmosphäre bestätigt. Das gleiche Verhalten erkennen wir in Abb. 4. Dort sehen wir den Zentralstab nach dem Abkühlen mit den auf ihm erstarrten Schmelzresten des Abstandshalters. Es sind Aufnahmen von den zwei gegenüberliegenden Beobachtungsrichtungen wiedergegeben. Durch den Mangel an Sauerstoff ist die Oxidation bevorzugt in der unteren Hälfte erfolgt.

Die axiale Abhängigkeit von der Oxidation macht sich noch stärker in den folgenden beiden Experimenten bemerkbar. Bei ihnen überschritt die Temperatur des Zentralstabes die Schmelztemperatur des Zircalloys. Im ersten Versuch wurde der Zentralstab auf 2050 °C aufgeheizt. Abb.4241-5 zeigt Aufnahmen in den verschiedenen Abbaustadien nach dem Abkühlen. Das Experiment wurde in einem He/20 % O₂-Gemisch durchgeführt. Im Versuchskessel stand damit nur ungefähr die Hälfte der zur vollen Oxidation der 7 Brennstabsimulatoren notwendigen Sauerstoffmenge zur Verfügung.

Die gewünschte Durchströmung des Bündels von unten nach oben stellt sich durch Konvektion von selber ein. Durch die bevorzugte Aufheizung des Gasgemisches im Innern des Bündels steigt das Gas an den Stäben empor und kühlt sich dann beim Herabfallen an der kalten Kesselwandung wieder ab.

Die Aufnahmen zeigen, daß nur die untere Hälfte des Zentralstabes so stark oxidiert ist, daß beim Überschreiten der Schmelztemperatur des Zircalloys ein Abschmelzen der Hülle vermieden wurde. Bei Gasmangel erfolgt also die Oxidation von unten beginnend nur über einen Bereich, der dem Gesamtangebot von Sauerstoff entspricht.

Abb. 4241-6 gibt Fotografien eines Bündels wieder, bei dem zusätzlich der Zentralstab von einer der beiden Beobachtungsseiten durch einen Gasstrahl mit einem Sauerstoffstrom von 1,5 g/min angeblasen wurde. Die erste und dritte Aufnahme zeigt die Seite des Bündels, die zusätzlichen Sauerstoff erhielt. In dem zweiten und vierten Bild ist die entgegengesetzte Seite dargestellt. Man sieht deutlich den längeren Oxidationsbereich auf der Seite der zusätzlichen Sauerstoffzufuhr. Diese Ergebnisse zeigen, daß in sehr kurzen Abständen sich unterschiedliche Oxidschichten ausbilden können, wenn der Sauerstoffgehalt der vorbeiströmenden Atmosphäre entsprechend variiert.

An den Aufnahmen der Versuche in oxidierender Atmosphäre sieht man ferner, daß die herablaufende Schmelze eher zwischen den Stäben erstarrt, als daß sie zum Boden herabtropft.

Die Bündelexperimente in oxidierender Atmosphäre werden durch Versuche mit variablem Dampfangebot fortgesetzt.

Literatur:

1. H. Körber, Untersuchung des Einflusses einiger wichtiger Kenngrößen beim hypothetischen Kernschmelzunfall, IKE-Bericht 2-12, Januar 1975.
2. Programmbeschreibung MELSIM, Bericht in Vorbereitung.
3. Hassmann, K., Private Mitteilung.

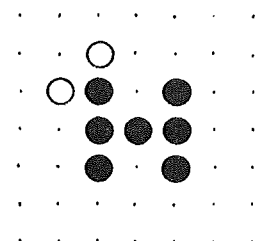
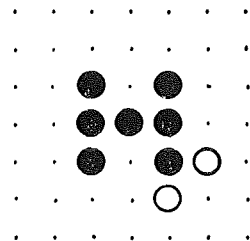
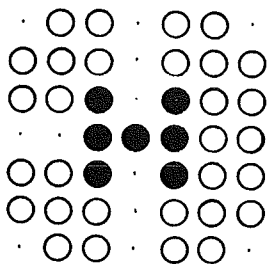
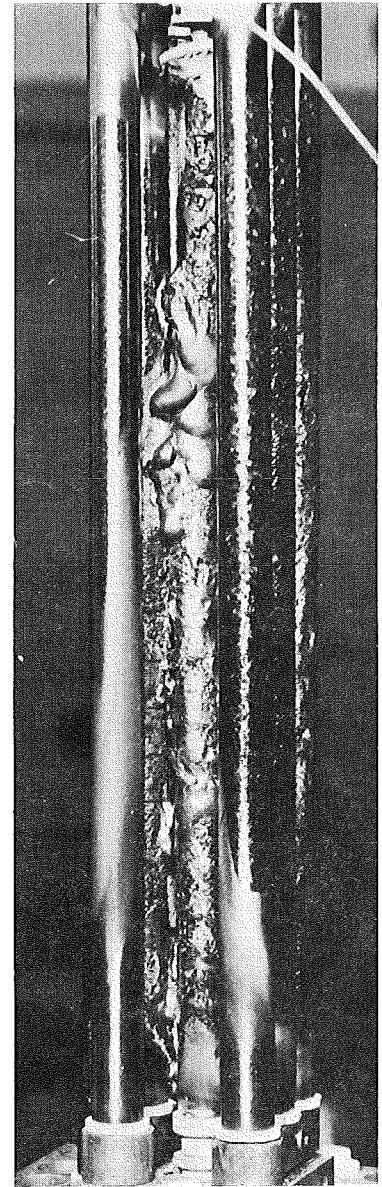
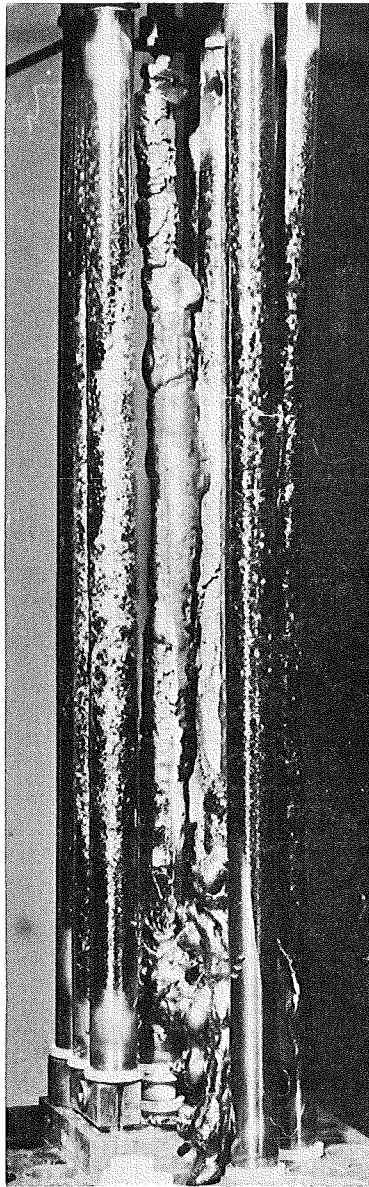
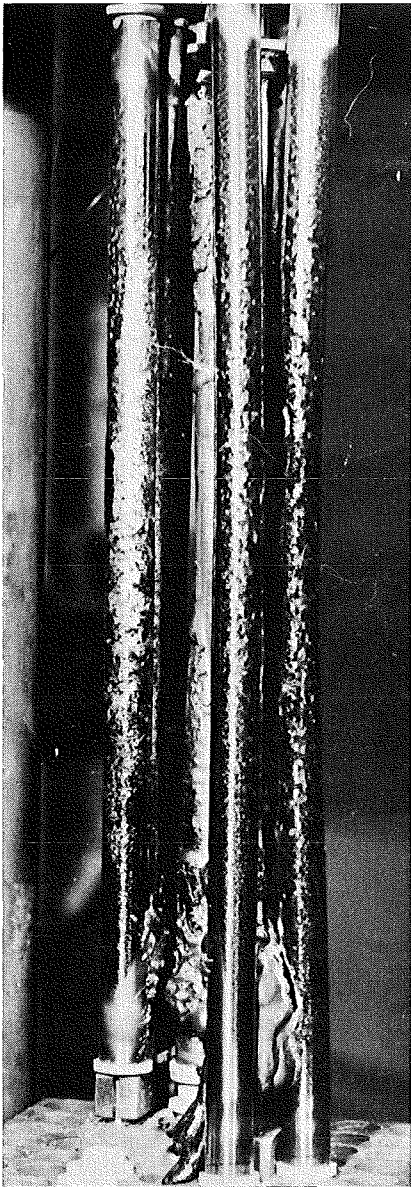


ABB. 4241-1:

IM HE AUFGEHEIZTES BÜNDEL. DIE MAXIMALE TEMPERATUR DES ZENTRALSTABS BETRUG 1850°C . IM ZENTRALSTAB WURDE DIE GLEICHE LEISTUNG WIE IN DEN 6 UMGEBENDEN STÄBEN ZUSAMMEN ERZEUGT.

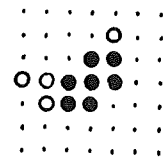
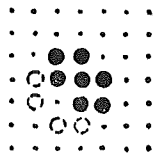
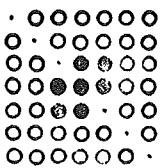
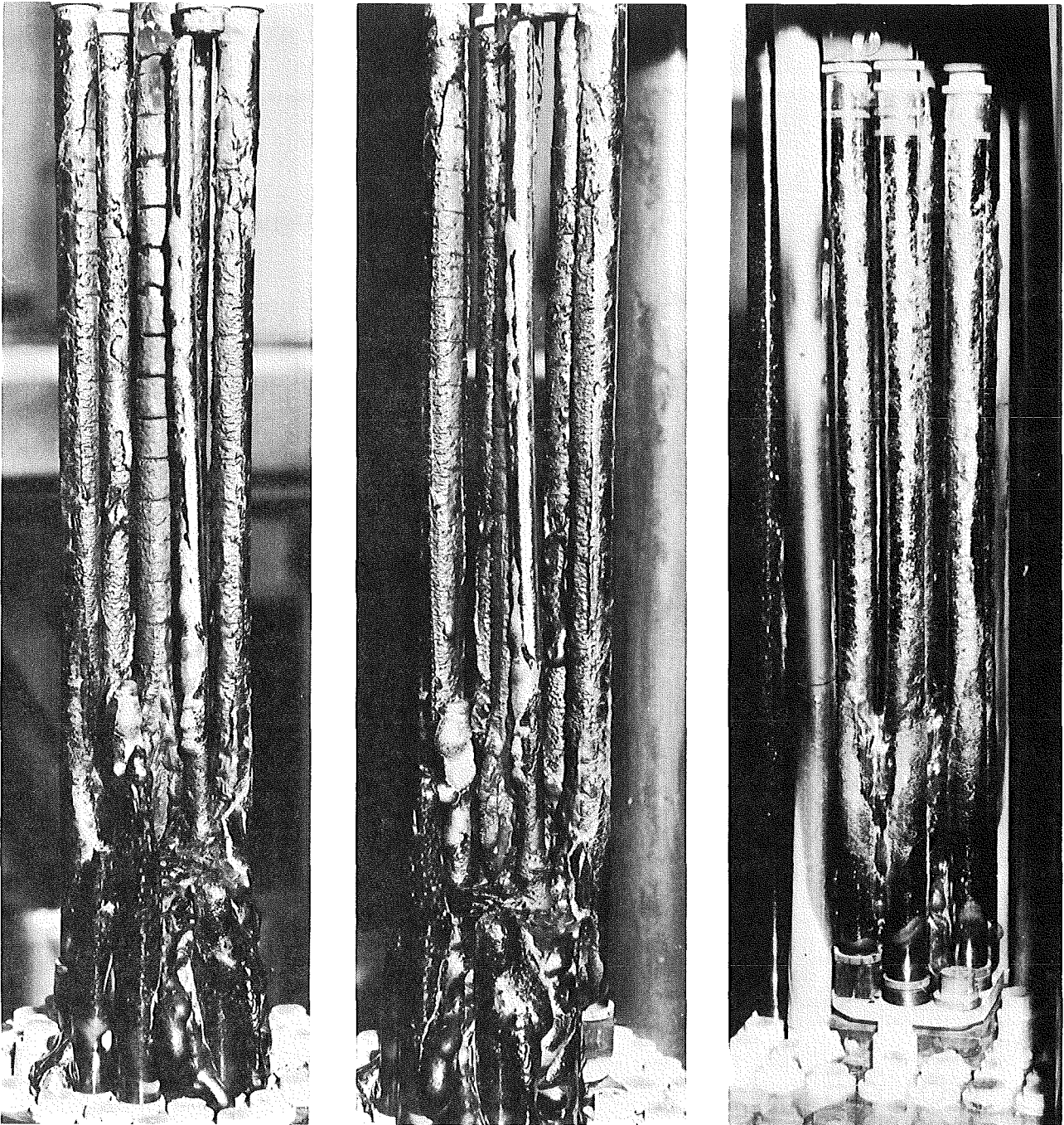
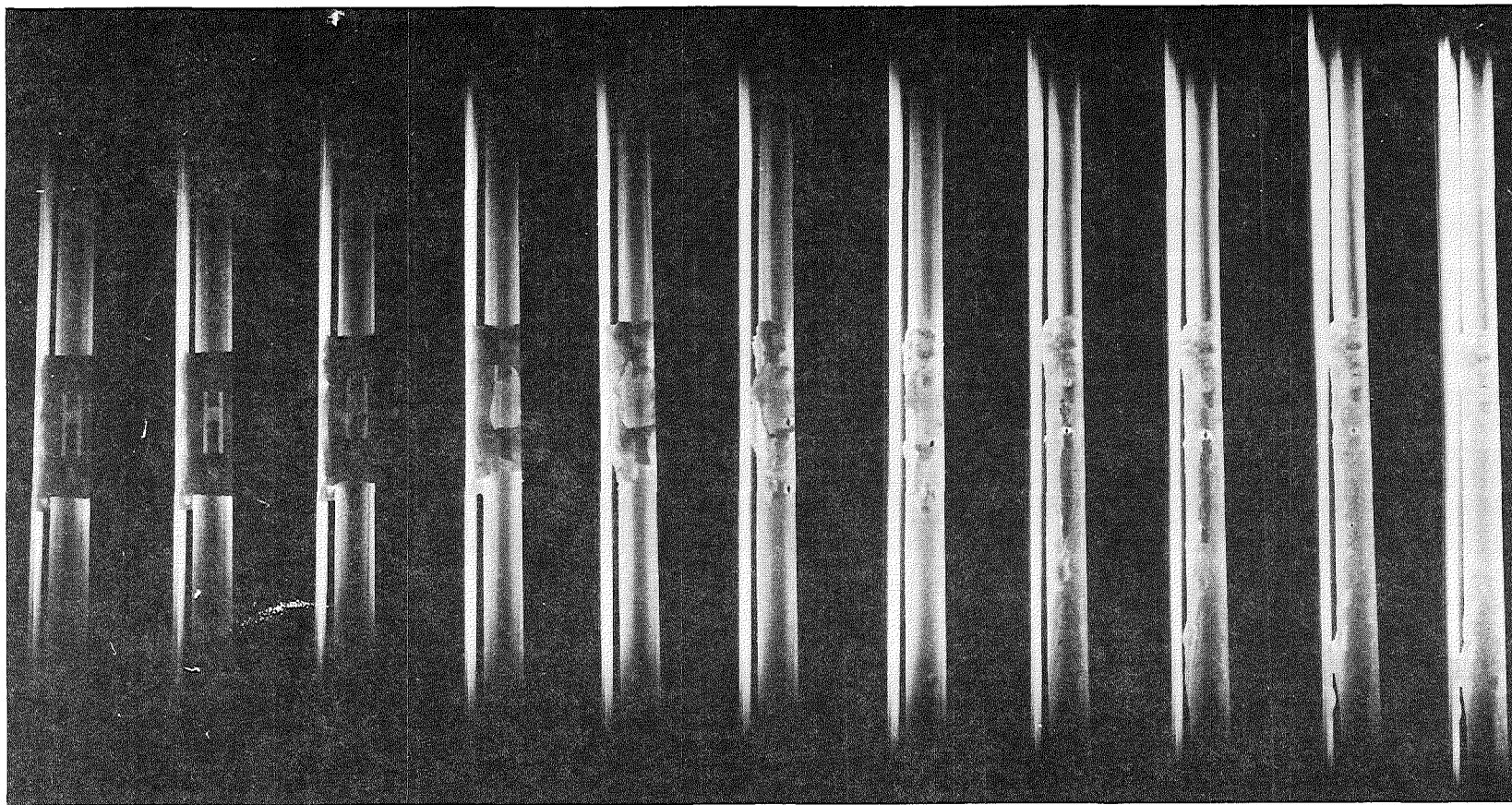


ABB. 4241-2:

IN HE AUFGEHEIZTES BÜNDEL. DIE MAXIMALE TEMPERATUR DES ZENTRALSTABES BETRUG 2200 °C. DIE LEISTUNG IM ZENTRALSTAB ERREICHTE NUR 1/10 DER LEISTUNG IN DEN 6 UMGEBENDEN STÄBEN.



GFK PNS/RBT-17

1339	1344	1399	1458	1499	1540	1549	1586	1613	1677	1691
1329	1348	1395	1441	1466	1505	1543	1613	1631	1674	1693

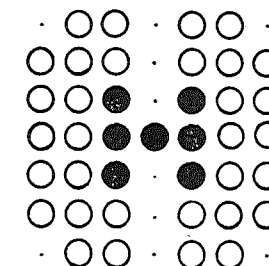


ABB. 4241-3:

ABSCHEMELZVERHALTEN DES ABSTANDSHALTERS IN DER BÜNDELANORDNUNG IN OXIDIERENDER ATMOSPHÄRE. DER ZENTRALSTAB ENTHÄLT VOLLPELLETS. DIE TEMPERATUREN (°C) SIND AUF GEGENÜBERLIEGENDEN SEITEN GEMESSEN: DIE OBERE AUF DER HÜLLE 1 CM ÜBER DEM ABSTANDSHALTER, DIE UNTERE AUF DEM ABSTANDSHALTER.

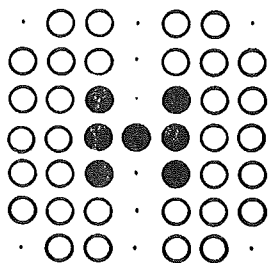
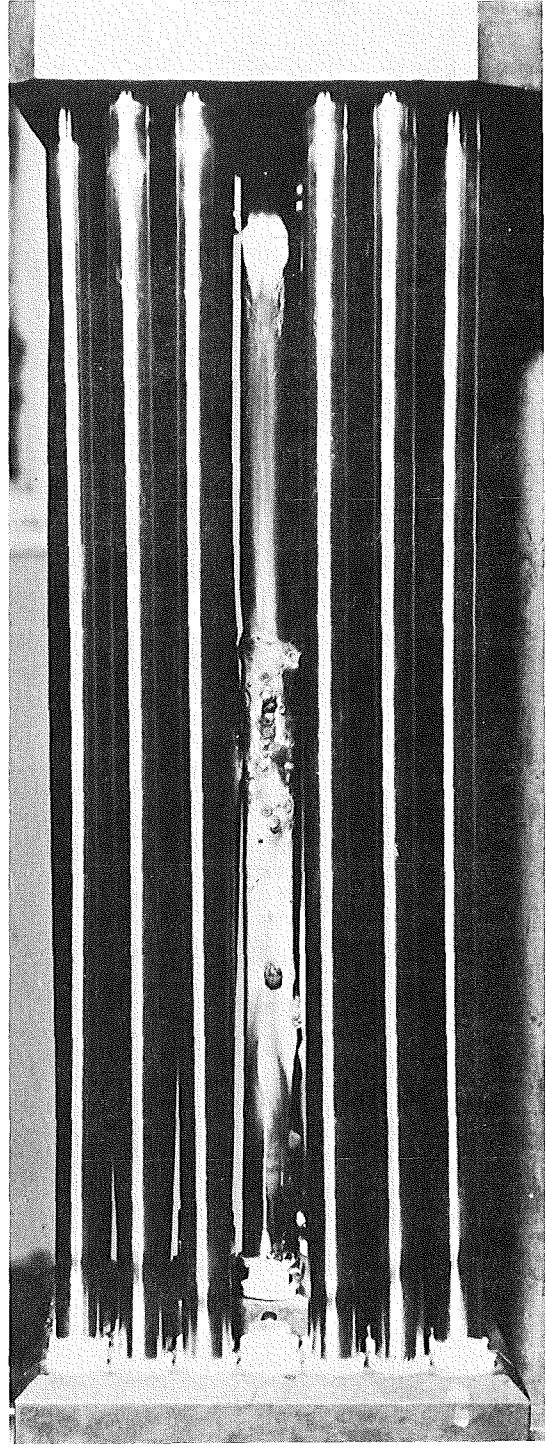
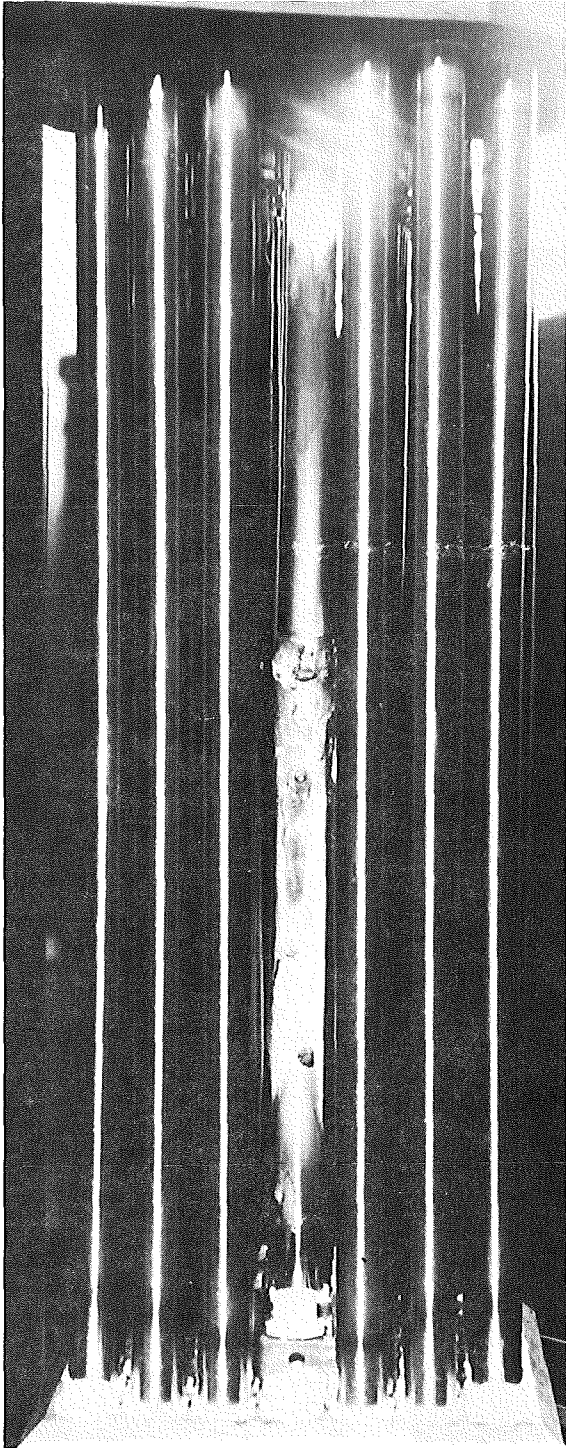


ABB. 4241-4:
RESTE DES ABSTANDSHALTERS, DER AM
ZENTRALSTAB AUS VOLLPELLETS DURCH AUF-
HEIZEN AUF 1700 °C ABGESCHMOLZEN WURDE
(GEGENÜBERLIEGENDE SEITEN).

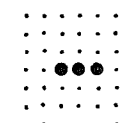
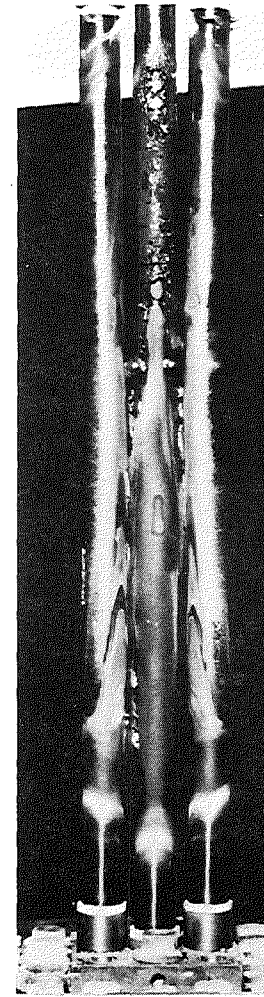
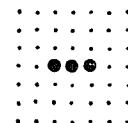
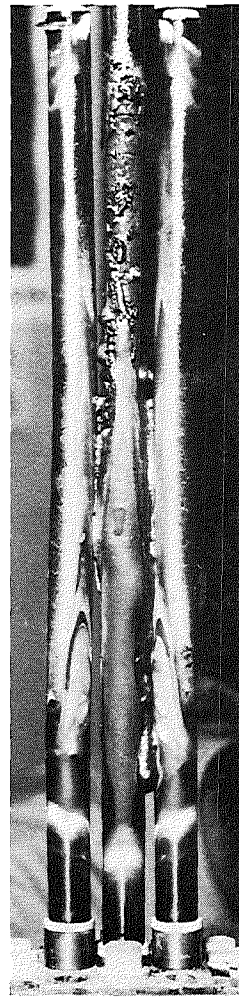
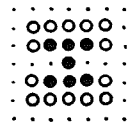
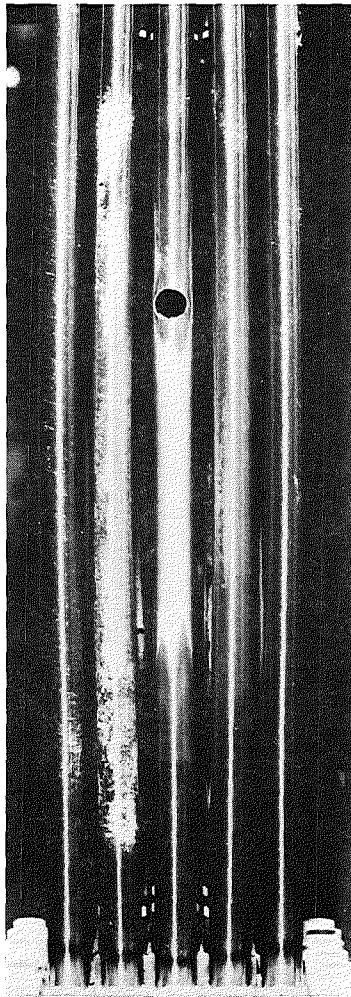
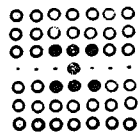
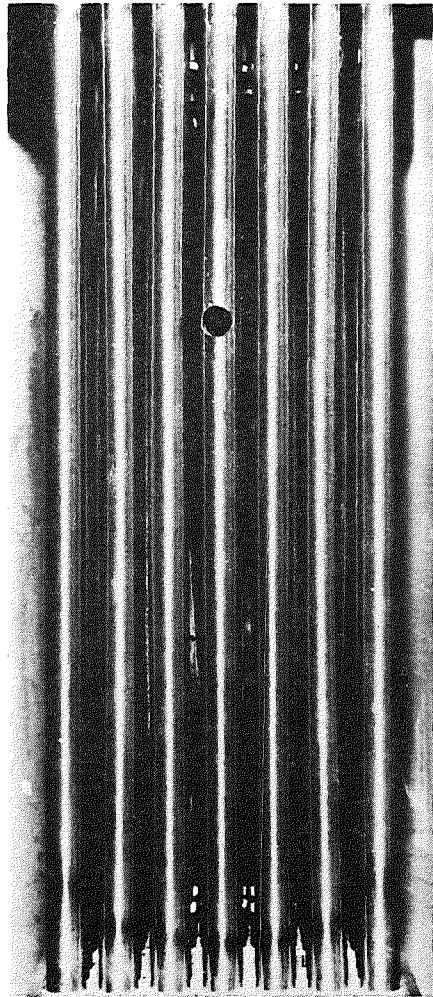


ABB. 4241-5:

IN OXIDIERENDER ATMOSPHÄRE AUFGEHEIZTES BÜNDEL. DIE TEMPERATUR DES ZENTRALSTABES ERREICHTE 2050 °C.
ES STAND NUR DIE HÄLFTE DER ZUR VOLLEN OXIDATION NOTWENDIGEN SAUERSTOFFMENGE ZUR VERFÜGUNG.

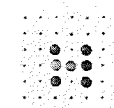
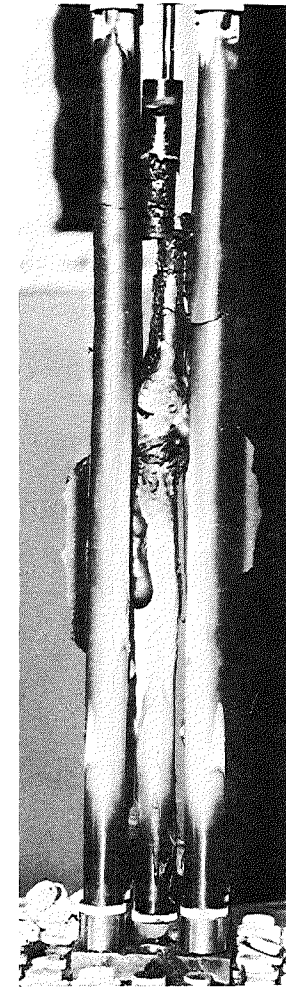
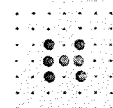
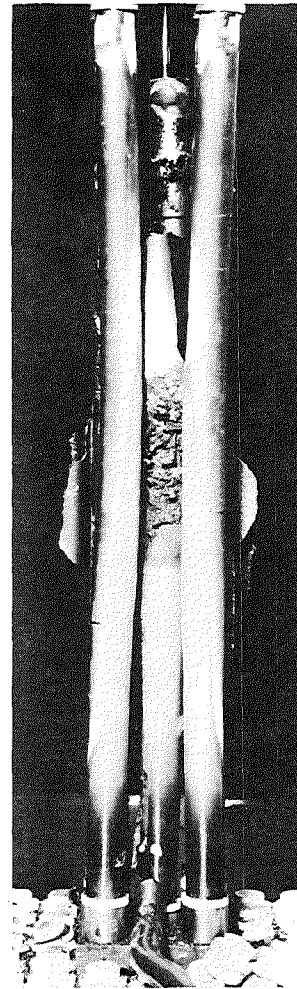
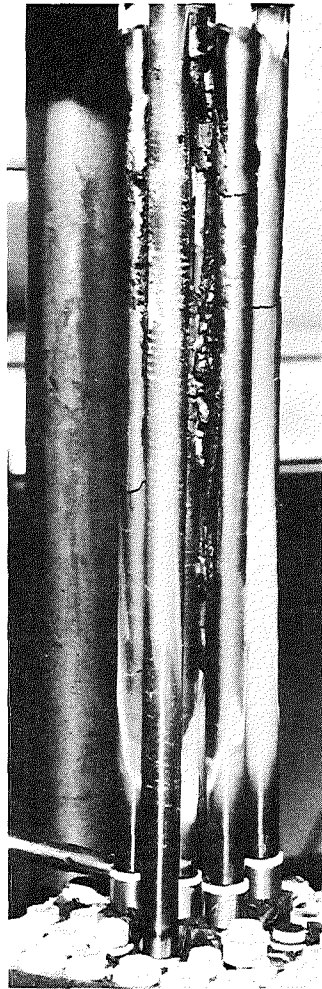
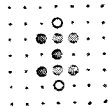
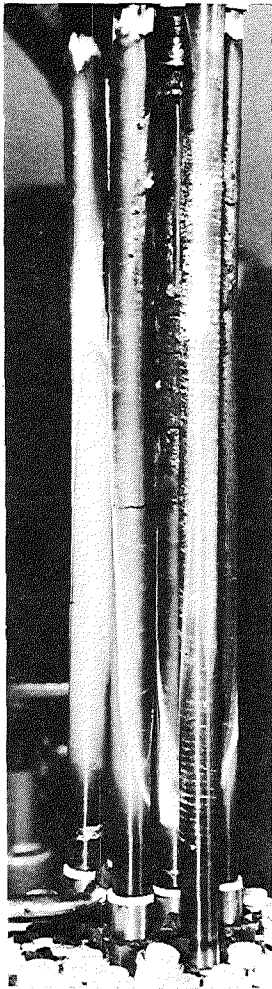


ABB. 4241-6:

IN OXIDIERENDER ATMOSPHÄRE AUFGEHEIZTES BÜNDEL. DIE TEMPERATUR DES ZENTRALSTABES ERREICHTE 1950°C . IM MITTEBEREICH SIEHT MAN DIE RESTE EINES ABSTANDSHALTERS. ZUSÄTZLICHER SAUERSTOFF WURDE VON EINER SEITE IN DAS BÜNDEL GEBLASEN (ROHR AM BODEN DES BILDES).

4243 Versuche zur Erfassung und Begrenzung der Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten beim Coreschmelzen.

(H. Albrecht, V. Matschoß, K. Nolte, H. Wild, IRCH; D. Perinic, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka, RBT-PA; M.F. Osborne, Delegierter der US-NRC)

Einleitung

Die wesentlichen Arbeiten im Berichtszeitraum lassen sich wie folgt zusammenfassen:

1. Abschluß der Freisetzungsversuche mit inaktivem Schmelzgut;
2. Bereitstellung der Meßtechnik für Versuche mit aktivem Schmelzgut;
3. Abschluß des Probetriebes der Fissium-Anlage, in der für das weitere Versuchsprogramm Pellets aus UO_2 mit Beimischungen der wichtigsten Spaltprodukte in schwach aktiver Form hergestellt werden;
4. Durchführung erster Freisetzungsversuche mit schwach aktivem Schmelzgut (Fissium bzw. aktivierten Stahl- und Zircaloy-Proben);
5. Vorbereitungen zum Umbau der Schmelzanlage SASCHA für Schmelzversuche mit Coriummengen im kg-Bereich.

1. Freisetzungsversuche mit inaktivem Schmelzgut

Die in früheren Berichten (1,2,3) beschriebenen Versuche mit inaktiven Corium-Proben von 30 g wurden mit 2 weiteren Experimenten unter Argon (bei 1,5 bar, $T_{\max} = 2550/2620^{\circ}C$) abgeschlossen.

Die wichtigsten Ergebnisse, die z.T. schon an anderer Stelle (2,3,4) diskutiert wurden, seien hier noch einmal zusammengestellt.

Die Freisetzung der Corium-Komponenten

Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zr, Sb, Sn und U

hängt in folgender Weise von den verschiedenen Versuchsparametern ab:

Temperatur: Es wurde eine Zunahme um 2 Größenordnungen im Intervall 2100°C ...2900°C ermittelt; dies gilt für

- die Atmosphären Luft und Argon
- Aufheizgeschwindigkeiten von 120°C/min
- Haltezeiten von 2-8 min bei maximaler Temperatur.

Atmosphäre: Luft und Argon hatten bis zum Einsetzen des Stahlsiedens (s.u.) für die meisten der o.g. Elemente einen ähnlichen Einfluß auf die Freisetzung, vgl. Abb. 4243 -1; wesentlich niedrigere Werte ergaben sich jedoch für Uran unter Argon, weil offenbar ein Teil des UO_2 unter Sauerstoffabgabe in UO bzw. U übergeht und diese beiden Spezies einen wesentlich geringeren Dampfdruck aufweisen als UO_2 (5).

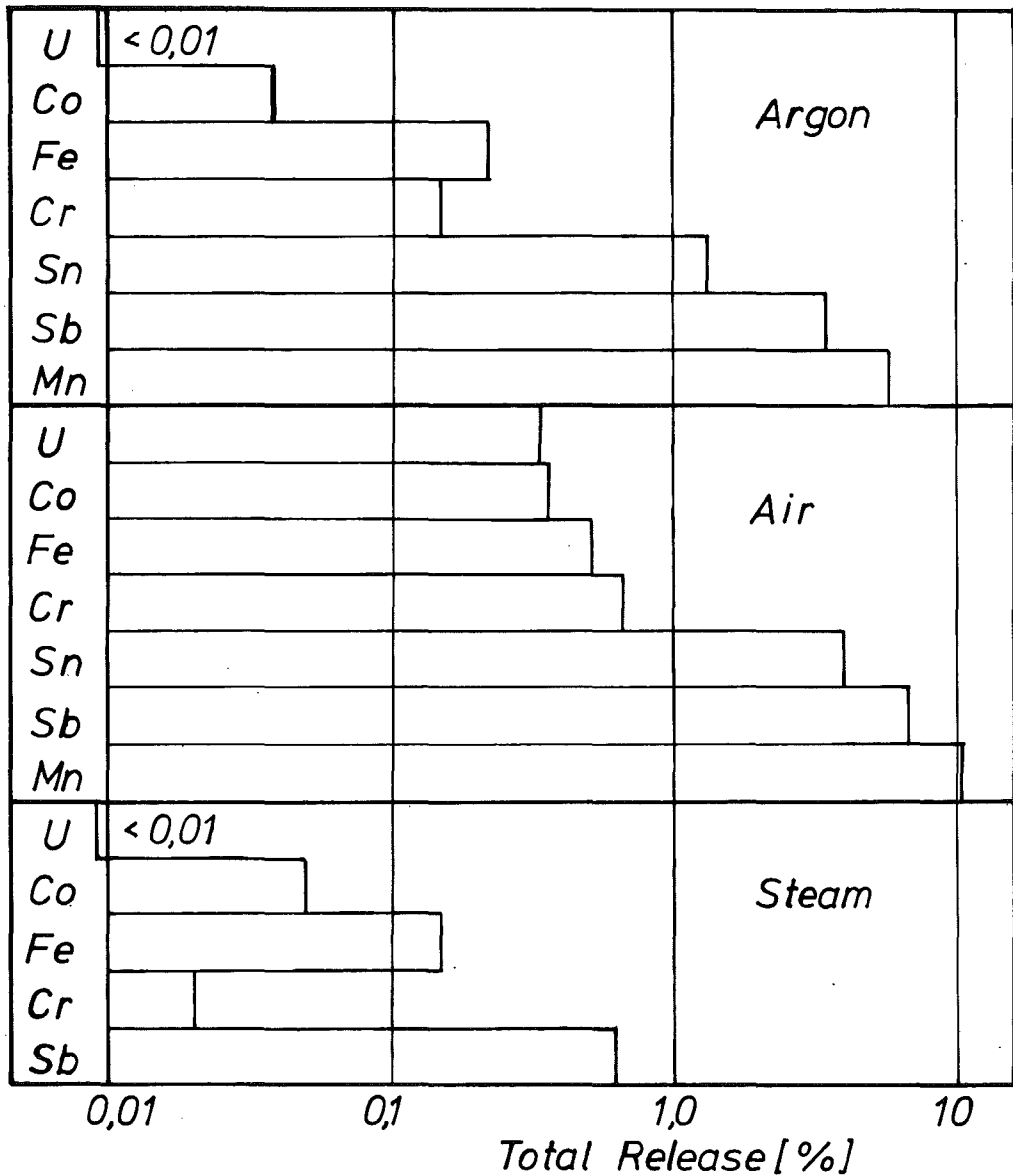
Unter Wasserdampf war die Freisetzung durchschnittlich um eine Größenordnung geringer als unter Luft. Dies hatte auch zur Folge, daß sich mit der bisherigen Analysenmethode (Aktivierungsanalyse) für $T \leq 2500^\circ C$ wegen einer starken Streuung der Ergebnisse kein konsistentes Bild über die Temperaturabhängigkeit der Freisetzung gewinnen ließ.

Druck: Bei Temperaturen $T > 2500^\circ C$ hängt die Freisetzung vom Druck ab, weil durch ihn die Siedetemperatur T_s der metallischen Corium-Komponenten bestimmt wird. Für Corium-E unter Argon gilt z.B. (3,4):

$$\begin{aligned} T_s &= 2600^\circ C && \text{bei } 0,8 \text{ bar} \\ T_s &= 2800^\circ C && \text{bei } 2,2 \text{ bar.} \end{aligned}$$

Wie die Tabelle 4243-1 am Beispiel von 4 Elementen zeigt, nahm die Freisetzung bei Überschreitung des Siedepunktes unter Argon sehr stark zu; unter Luft war dieser Effekt weniger stark ausgeprägt, und unter Wasserdampf trat er - wahrscheinlich infolge der gegenüber Luft noch verstärkten Oxidationswirkung - in dem hier betrachteten Temperaturbereich (bis 2900°C) überhaupt nicht in Erscheinung.

Die Strömungsgeschwindigkeit beeinflusst das Transportverhalten der freigesetzten Produkte, insbesondere der leichter flüchtigen Stoffe wie Mn, Sb und Sn. Bei 10 l/min Durchsatz und gleicher Gesamtfreisetzung gelangt ein 3-10 fach höherer Anteil dieser Produkte auf die Meßfilter als bei 1 l/min.



Temperature : 2700±100°C

Pressure : 1,5 - 2 bar

Abbildung 4243-1: Einfluß der Atmosphäre auf die Freisetzung der Corium-Komponenten. In den Einzelwerten sind die Ablagerungen im Transportsystem und auf den Meßfiltern enthalten. Angaben für Mo und Zr sind weggelassen, weil bei der aktivierungsanalytischen Bestimmung dieser Elemente in Gegenwart von Uran große Unsicherheiten auftreten, vgl. (2).

Tabelle 4243 -1: Freisetzung einiger Elemente im Temperaturbereich des Siedepunktes T_s der metallischen Corium-Komponenten (Fe,Cr,Ni) in Prozent der Ausgangszusammensetzung. Für jede Atmosphäre ist links eine Spalte mit Ergebnissen für $T < T_s$ und rechts eine Spalte für $T > T_s$ aufgeführt.

	Argon		Luft		Wasserdampf	
	p (bar)	T_{max} (°C)	p (bar)	T_{max} (°C)	p (bar)	T_{max} (°C)
Fe	1.9	0.8	1.5	1.0	1.5	1.5
Cr	2650	2750	2600	2800	2560	2900
Sb	0,16	7,6	0,16	1,29	0,03	0,14
U	0,21	7,1	0,23	1,55	0,02	0,10
	3,5	13,4	3,2	12,7	0,52	3,01
	0,006	1,2	0,016	0,39	0,002	0,01

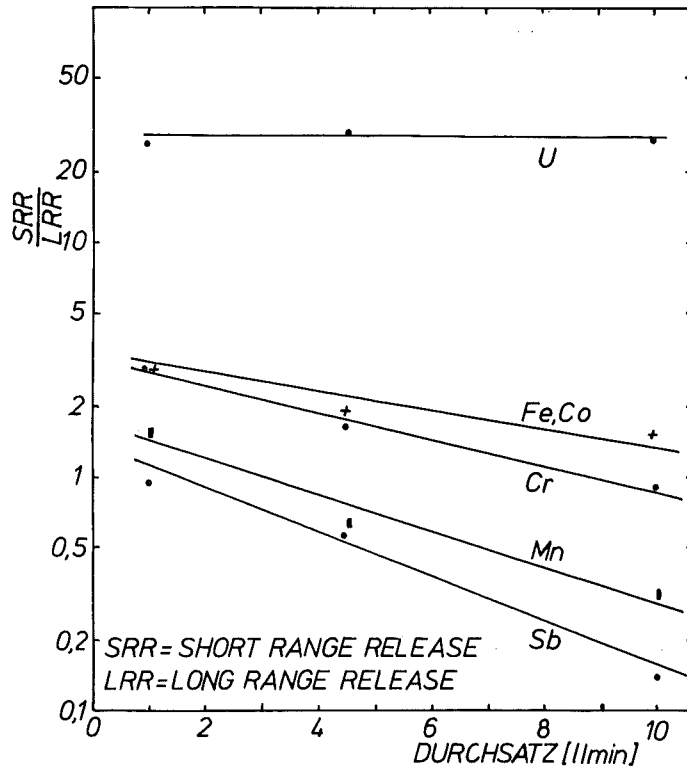


Abbildung 4243 -2: Einfluß des Gasdurchsatzes bzw. der Strömungsgeschwindigkeit auf das Transportverhalten der freigesetzten Produkte; $SRR/LRR > 1$ bedeutet: auf den Glasteilen des Transportsystems wird ein höherer Anteil abgelagert als auf den Membranfiltern, die sich in ca. 1 m Abstand vom Schmelztiegel befinden.

Dieser Sachverhalt kommt in Abb.4243 -2 zum Ausdruck, wo das Verhältnis

$$\frac{SRR}{LRR} = \frac{\text{Masse der FP auf dem Glassystem direkt über dem Tiegel}}{\text{Masse der FP auf dem Filter}}$$

(FP = Freisetzungsprodukte)

über dem Gasdurchsatz aufgetragen ist.

Diskussion

Bei Überlegungen zur Reaktorsicherheit sind diese Ergebnisse für die Freisetzung aus einer im RDB befindlichen Kernschmelze unter folgenden Gesichtspunkten zu bewerten:

- a) Da bei einem LWR-Coreschmelzenunfall der Atmosphärendruck über der Schmelze mit Sicherheit mehr als 2 bar beträgt und andererseits die mittlere Temperatur der Schmelze wohl kaum über 2700^oC liegt, ist die erhöhte Freisetzung infolge von Siedevorgängen der oben beschriebenen Art nicht als realistisch anzusehen. Für Sicherheitsbetrachtungen sollte man daher die Werte der Abb.4243 -1 verwenden, die durch Experimente ermittelt wurden, in denen keine Siedevorgänge auftraten.
- b) Bei den bisherigen Versuchen mit 30 g Schmelzgut war ein hohes Oberflächen/Volumen-Verhältnis gegeben; es ist daher zu erwarten, daß sich bei künftigen Versuchen mit größeren Schmelzgutmassen niedrigere Werte für die prozentuale Freisetzung ergeben.
- c) Durch Konvektionsströme in der Kernschmelze ist nach Fontana (6) eine erhebliche Verstärkung der Freisetzung zu erwarten. Dieser Effekt tritt aufgrund der induktiven Schmelzgutaufheizung auch bei den vorliegenden Versuchen in Erscheinung. Eine Untersuchung von H. Reineke (7) hat sogar gezeigt, daß die Baddurchwirbelung infolge der elektromagnetischen Kräfte (f = 50...400 kHz) wesentlich stärker ist als infolge der freien Konvektion. Die angegebenen Freisetzungswerte sind also auch aus diesem Grund als konservativ zu bezeichnen.

2. Aufbau eines γ -Meßplatzes zur on-line Messung der Freisetzung von aktivem Schmelzgut

Zur on-line Messung von Freisetzungserzeugnissen aus aktivem Schmelzgut (aktivierte Stahl- und Zircaloyproben bzw. Fissium) wurde die Filterstrecke in der Weise umgebaut, daß die auf den Membranfiltern abgeschiedenen Aerosole aufgrund ihrer Aktivität während des Versuches kontinuierlich gemessen werden können (Abb. 4243 -3).

Der zu diesem Zweck in die Filterbox eingebaute Ge(Li)-Detektor zeigte zunächst eine stark verschlechterte Energieauflösung, wenn der Hochfrequenz-generator der Schmelzanlage eingeschaltet war. Durch sorgfältige Abschirmung und Isolierung des gesamten Detektorsystems sowie durch Verwendung einer separaten elektrischen Spannungsversorgung ließ sich dieser Einfluß jedoch ausschalten.

An der Rückseite des neu konstruierten Filterhalters befand sich in 15 mm Entfernung das Eintrittsfenster des Ge(Li)-Detektors. Dieser Abstand ist für einen zusätzlichen Bleiabsorber vorgesehen, der zwischen Filterhalter und Detektor eingeschoben wird, wenn die Aktivität auf dem Filter zu einer zu hohen Totzeit führt.

Durchführung der on-line Messungen

Die on-line γ -Messung wird während der Aufheizphase eines Schmelzexperimentes bei etwa 600°C begonnen. Dabei wird mit einer Meßzeit von jeweils 50-100 sec eine Folge von 2048-Kanal-Spektren aufgenommen und auf Magnetband geschrieben (Übertragungszeit: ca. 0,8 sec). Parallel dazu wird die Temperatur/Zeitkurve aufgenommen, so daß sich jedes Meßintervall eindeutig einem Temperaturintervall zuordnen läßt. Da der Temperaturanstieg pro Intervall höchstens 200°C beträgt, erhält man bei einer maximalen Schmelzbadtemperatur von z.B. 2600°C mindestens 10 γ -Spektren (vgl. Abb. 4243-4) und damit einen nahezu kontinuierlichen Verlauf der Temperaturabhängigkeit der Freisetzung.

Allerdings müssen hier folgende Einschränkungen gemacht werden:

- a) Die erhaltenen Spektren liefern keine Werte für die Gesamtfreisetzung, sondern nur für den auf die Membranfilter gelangenden Anteil;
- b) Für einige Nuklide, die auch bei den höchsten Temperaturen eine relative Freisetzung $\leq 1\%$ aufweisen, wie z.B. Zr-95, reicht eine Meßzeit von 100 sec nicht aus, um eine auswertbare γ -Linie zu erhalten.

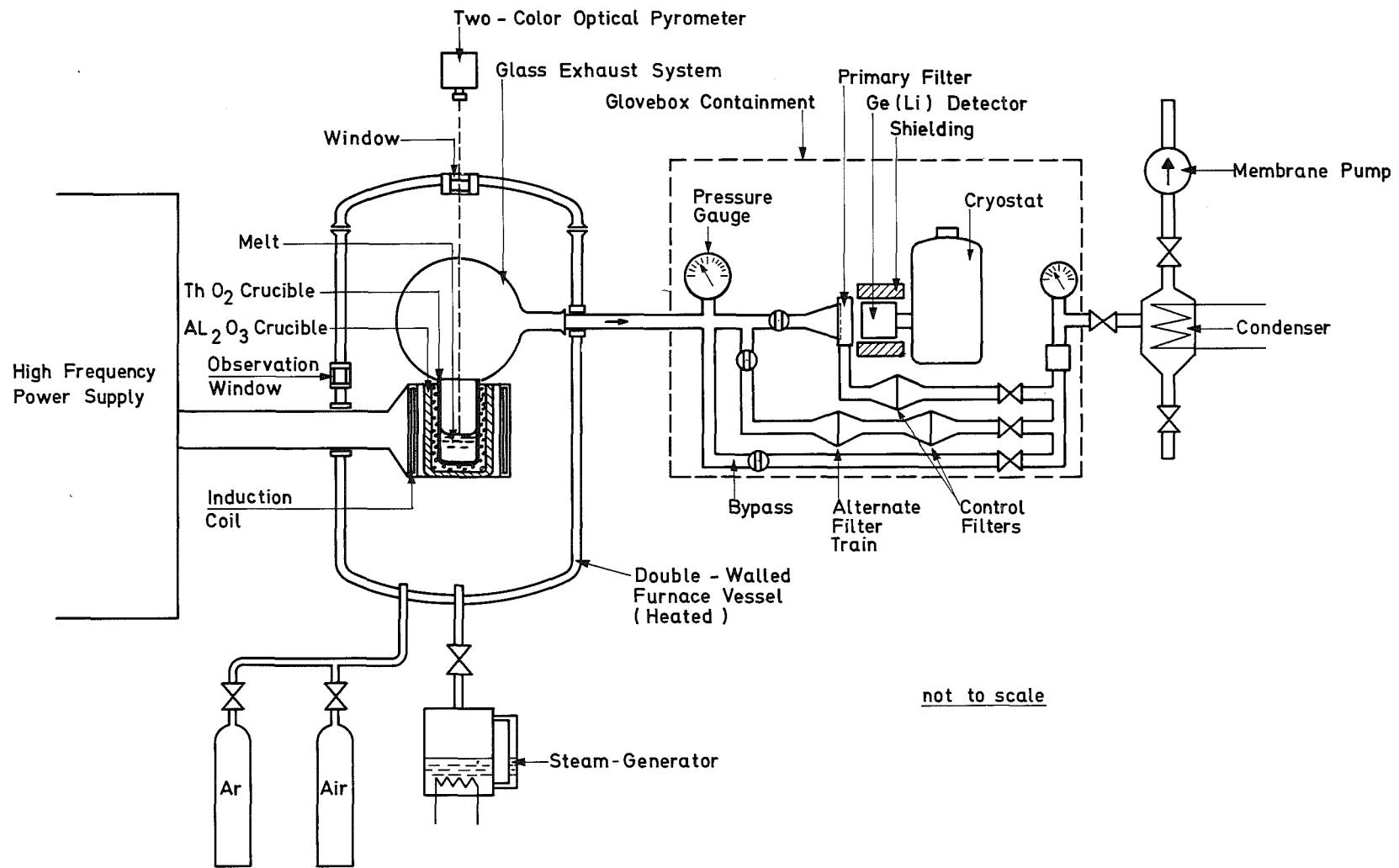


Abbildung 4243 -3: Experimental Apparatus for Core Melt Release Studies

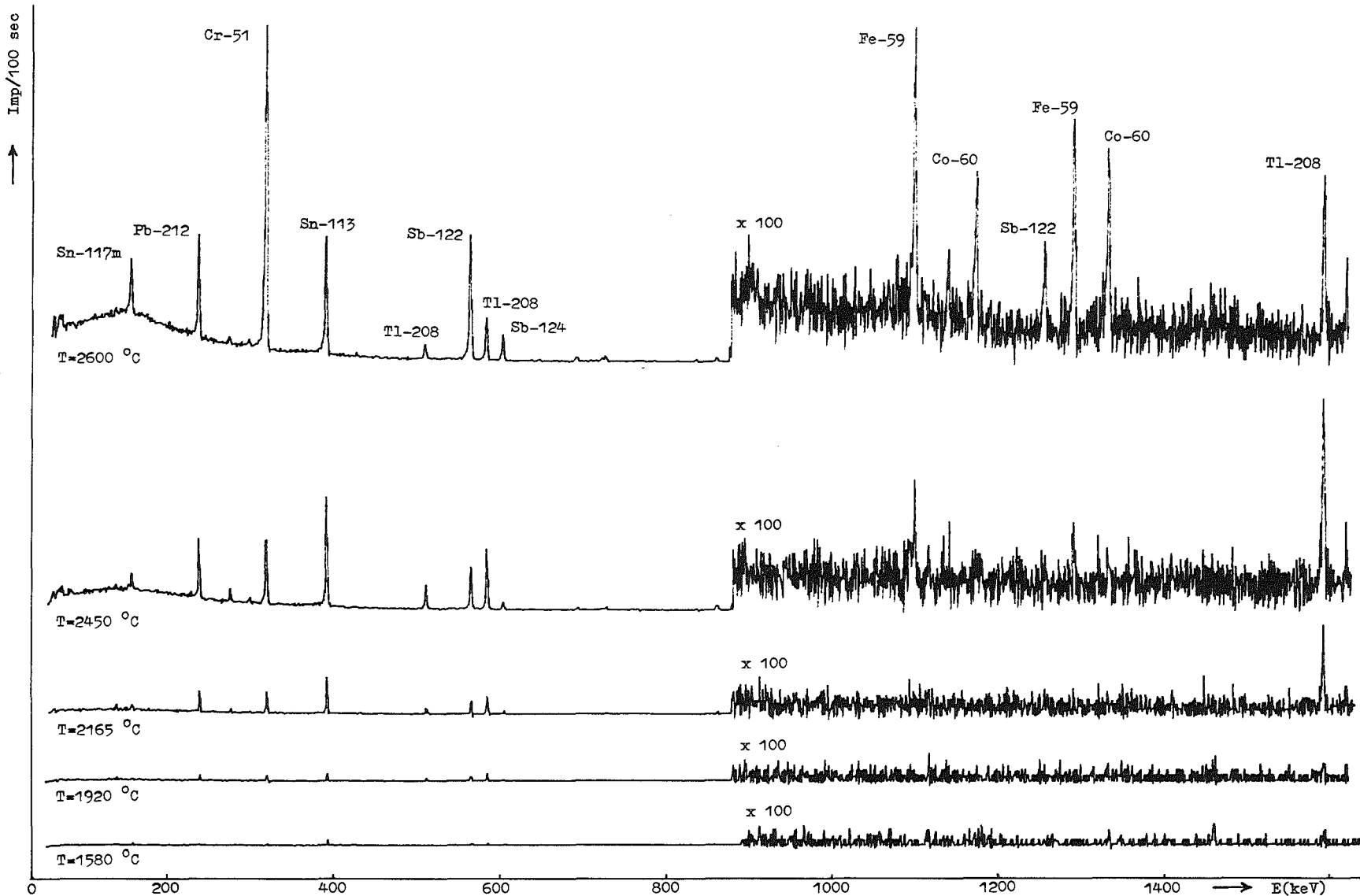


Abbildung 4243-4: Gamma-Spektren der freigesetzten Corium-Komponenten (die Peaks von Pb-212 und Tl-208 stammen von Zerfallsprodukten des ThO_2 -Tiegels).

In diesen Fällen erhält man die Freisetzungsergebnisse erst durch die nachfolgend beschriebenen off-line Messungen.

Durchführung von off-line Messungen

Nach Beendigung eines Freisetzungsversuches werden der Tiegel mit dem Schmelz-
gut und alle Teile der Spaltprodukt-Transportstrecke ausgebaut, auf denen sich
nennenswerte Anteile (> 1 %) der freigesetzten Produkte niedergeschlagen haben.
Es handelt sich dabei um

- die direkt über dem Tiegel montierte Glasglocke
- 2 Glasrohre von zusammen 30 cm Länge
- alle Filterhalter mit den Haupt- und Kontrollfiltern
- das Jodfilter mit etwa 75 cm³ des AgNO₃-imprägnierten Katalysatorträgers
AC-6120

Die Summe der auf diesen Teilen gefundenen Einzelaktivitäten liefert dann einen
Wert für die Gesamtfreisetzung der einzelnen Elemente.

3. Fissium-Herstellung

Unter Fissium ist ein Gemisch aus UO₂ und verschiedenen Spaltproduktkompo-
nenten zu verstehen. Diese Komponenten repräsentieren Spaltprodukte mit ähnli-
chen chemischen und physikalischen Eigenschaften, ihre Konzentration richtet
sich nach dem vorgegebenen Abbrand. Bei aktivem Fissium enthalten die Kompo-
nenten ein radioaktives Tracernuklid.

Für die Freisetzungsversuche ist vorläufig die Herstellung von Fissium mit
zwei verschiedenen Spezifikationen vorgesehen. Fissium I enthält die leichter
flüchtigen Spaltproduktvertreter, während in Fissium II die schwerer flüchti-
gen enthalten sind. Im Folgenden soll hauptsächlich über die Herstellung von
aktivem Fissium I berichtet werden, weil hierfür bereits erste praktische
Erfahrungen vorliegen. Die Zusammensetzung von Fissium I ist in Tab. 4243-2
wiedergegeben.

Tabelle 4243 -2: Fissium I-Spaltprodukt-Komponenten

Element bzw. Verbindung	Masse (mg) ^{a)}	Nuklid	Halbwertszeit	Bestrahlungsdauer ^{b)}	Aktivität (mCi)
CsJ+Cs ₂ CO ₃	71+384	Cs-134	2,1 a	7,8 min	0,5
MoO ₃	592	Mo-99	66 h	75 min	4
Se	37,5	Se-75	120 d	310 min	0,5
Te	37,5	J-131 ^{c)}	8 d	8 h	1
Cd	13,2	Cd-115	53 h	5 h	2,7
Sb	2,5	Sb-124	60 d	13 h	0,5

a) Die Angaben gelten für eine 100 g Charge und entsprechen einem Abbrand von 40 000 MWd/t

b) Bei einem Neutronenfluß von $8 \cdot 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

c) Die dem o.g. Abbrand entsprechende J-Menge wird durch CsJ eingebracht. Für Te gibt es keinen geeigneten Tracer, allenfalls Te-131^m mit 30 h HWZ und niedrigem Bildungsquerschnitt.

3.1. Beschreibung der Anlage FIFA zur Herstellung von aktivem Fissium

Die Arbeiten zur Herstellung von aktivem Fissium werden in 5 gasdichten Edelstahlboxen über Manipulatoren durchgeführt (Abb. 4243 -5). Die Boxen sind miteinander verbunden, damit ein Transport von Material ohne Schleusvorgang möglich ist. Zur Strahlenabschirmung sind die Boxen mit 250 mm dicken Wassertanks umgeben.

In Box 1 befindet sich das Isotopenlager, eine Präzisionswaage (Genauigkeit $\pm 0,1 \text{ mg}$) und eine Dosiervorrichtung. Die Box 2 enthält eine Presse und eine Vorrichtung zum Öffnen von Quarzampullen. Das Vermessen der kaltgepreßten Pellets erfolgt mit einem fest eingebauten Mikrometer in Box 3; in dieser Box befindet sich auch ein Sinterofen für die Fissium II-Herstellung. Die Vorrichtung zum Einschweißen der Pellets in Schlauchfolie ist in Box 4 montiert, während Box 5 für den späteren Einbau einer Anlage zum Einschweißen der Fissium-Pellets in Zirkaloyrohre vorgesehen ist.

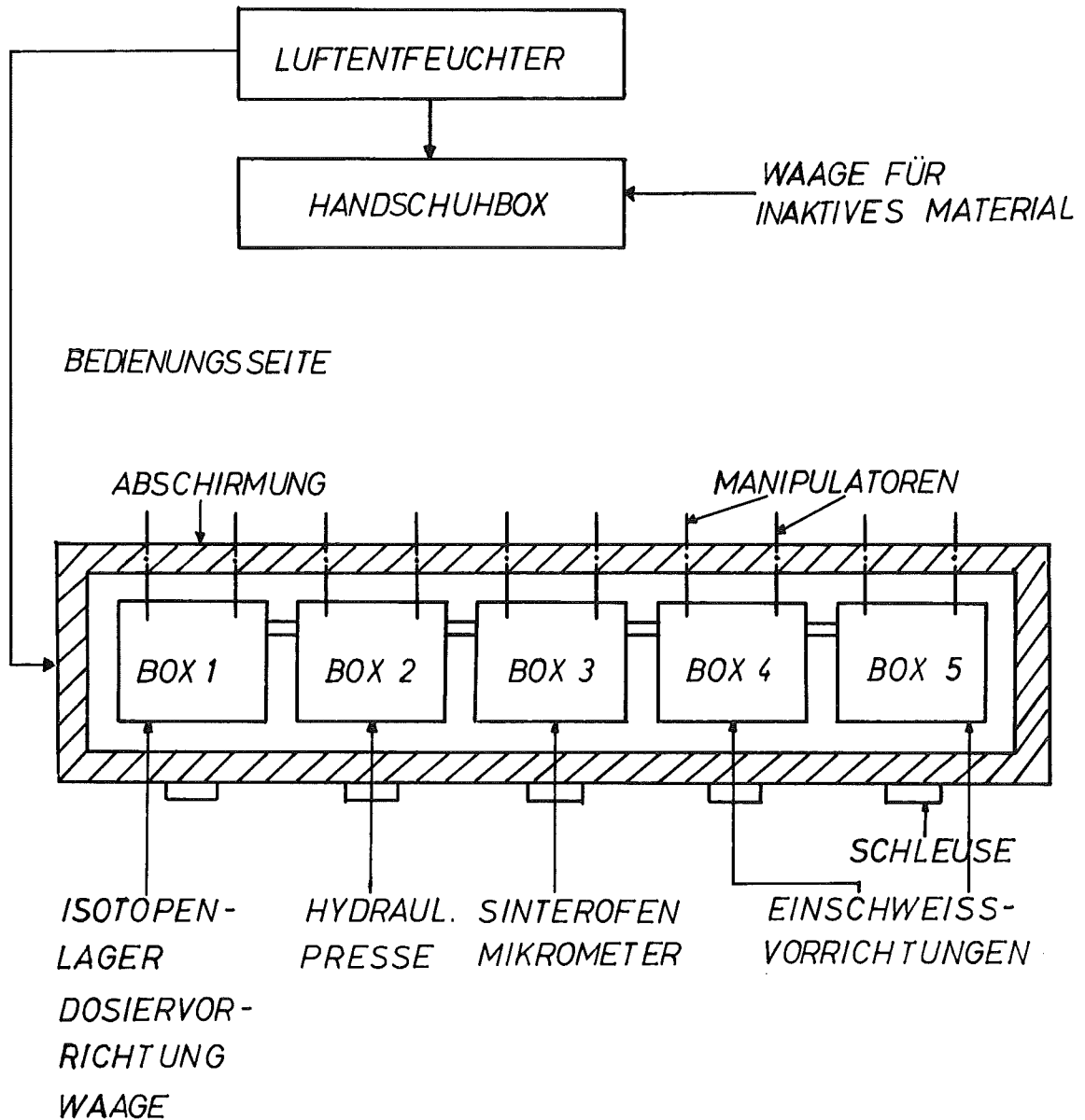


Abbildung 4243-5: Anlage zur Herstellung schwach aktiver Fissium-Pellets

Im gleichen Raum befindet sich ferner eine Handschuhbox zum Einwiegen der inaktiven Fissium-Komponenten in Quarzampullen.

Wegen der z.T. hygroskopischen Eigenschaften der Chemikalien wird die Zuluft zu allen Boxen über eine Trocknungsanlage auf ca. 15 % Restfeuchte reduziert. Außer einer Präzisionswaage (Genauigkeit $\pm 0,1$ mg, wie oben) enthält die Box einen Exsikkator mit P_2O_5 als Trockenmittel, in dem die Vor-

ratsbehälter mit den inaktiven Chemikalien und die Bestrahlungskapseln gelagert werden.

Der Betrieb der Anlage mit aktivem Material wurde Mitte Juni 1977 aufgenommen.

3.2. Arbeitsschritte bei der Fissium I-Herstellung

Bei der Herstellung von Fissium I werden die im folgenden ausführlich erläuterten 5 Arbeitsschritte durchgeführt:

- Dosieren der inaktiven Fissium-Bestandteile in Quarzampullen
- Aktivierung am FR 2
- Herstellung von Fissium I-Pulver
- Pressen der Pellets
- γ -spektrometrische Untersuchung.

3.2.1. Dosieren der Komponenten

Die Fissium-Komponenten werden in einer Handschuhbox unter trockener Luftatmosphäre (s.o.) in Bestrahlungskapseln aus Quarzglas eingewogen. Die Quarzampullen werden mit einem Stopfen verschlossen und außerhalb der Box bei Kühlung des Inhalts mit flüssigem N_2 zugeschmolzen. Die Menge der einzuwiegenden Materialien richtet sich nach dem vorgegebenen Abbrand (ca. 40000 MWd/t) und der Chargengröße. Die Herstellung von 100 g Chargen erwies sich als sinnvoll, da diese Menge gut zu handhaben ist und außerdem die Komponenten noch mit ausreichender Genauigkeit zu dosieren sind.

3.2.2. Aktivierung der Fissium-Komponenten am FR 2

Die Bestrahlungszeiten richten sich nach den in Tab. 4243-2 angegebenen Werten. Wegen der aus der Aktivierung von kurzlebigen Störnukliden resultierenden unterschiedlichen Kühlzeit muß die Bestrahlung am FR 2 nach einem festgelegten Zeitplan erfolgen. Nach der Aktivierung von Cs, Mo, Se, Te und Cd sind 3 Tage Kühlzeit zum Abklingen kurzlebiger Aktivitäten ausreichend, lediglich bei Sb muß wegen Sb-122 mit 2,7 d Halbwertszeit eine Kühlzeit von 30 d eingehalten werden. Die kurzen Halbwertszeiten von Mo-99 (66 h) und J-131 (8,04 d)

erfordern die Bestrahlung möglichst kurz vor der Herstellung der Fissium-Pellets. Die Bestrahlungsbedingungen sind außerdem so gewählt, daß die Aktivität dieser beiden Nuklide höher liegt als bei den anderen Komponenten mit längerer Halbwertszeit.

Durch Probestrahlungen wurde nachgewiesen, daß die Ausgangsstoffe keine Verunreinigungen enthalten, die nach der Aktivierung den γ -spektroskopischen Nachweis der Freisetzungsprodukte stören.

3.2.3. Herstellung von Fissium I-Pulver

Nach der Bestrahlung am FR 2 werden die Quarzampullen in Box 2 geöffnet; hierbei werden die Spitzen der Ampullen mit einer Diamantscheibe angeritzt und über eine Kante abgebrochen. Nach dem Öffnen erfolgt das Wiegen in Box 1. Dann wird der Ampulleninhalt zu dem bereits im Mischbehälter dosierten UO_2 -Pulver geschüttet; durch Rückwiegen der leeren Ampullen werden Verluste durch an der Wand festhaftendes Material erfaßt. Nach 20 min Mischzeit in der Spexmühle erfolgt das Chargieren des Fissium-Pulvers für den anschließenden Preßvorgang über die Dosiervorrichtung in Box 1. Auf das Mischen unter Schutzgas wird verzichtet, da die Freisetzungsexperimente in der überwiegenden Mehrzahl unter oxidierenden Bedingungen durchgeführt werden.

3.2.4. Pressen der Fissium-Pellets

Für das Pressen der Pellets ergibt sich aufgrund von Voruntersuchungen folgende Vorschrift: gepreßt wird mit einer teilbaren Matrize bei einem Druck von 3 t/cm^2 . Das Pelletgewicht ist auf 5 g und der Pelletdurchmesser auf 10 mm festgelegt. Das verwendete UO_2 -Pulver (Lieferfirma: RBU) weist folgende Eigenschaften auf:

Dichte:	2,29 g/cm^3
O:U :	2,11
U-235 :	0,340 %.

Die Matrize wird vor jedem Preßvorgang mit einem Ölfilm benetzt, denn bei der ursprünglich vorgesehenen trockenen Verpressung erhalten die Pellets eine zu geringe mechanische Festigkeit. Das verwendete Öl hat beim Einsatz des Fissiums in den Freisetzungsversuchen keinen Einfluß, da der Ölfilm bereits bei Tempe-

raturen unter 600°C verdampft.

Nach dem Wiegen und Ausmessen mit einem Mikrometer werden die Pellets in Schlauchfolie eingeschweißt. Die fertigen Pellets weisen eine Dichte von $5,8 \text{ g/cm}^3$ und eine Höhe von 11 mm auf.

3.2.5. γ -spektrometrische Untersuchung der Fissium-Pellets

Die Bestimmung der Aktivität der Fissium-Komponenten in den Pellets durch γ -Spektroskopie ermöglicht Aussagen über die beim Mischen erreichte Homogenität des Fissium-Pulvers und über etwaige Material-Verluste während des Herstellungsvorgangs. Bei der Untersuchung der ersten Charge von 20 Pellets zeigte sich, daß die Einzelaktivitäten der Pellets nur um durchschnittlich $\pm 9,6 \%$ vom Mittelwert abwichen. Diese Homogenität ist als hinreichend gut zu bezeichnen, da sich das chemische Verhalten der Spaltprodukte bei Konzentrationsunterschieden von $\pm 10 \%$ nicht wesentlich ändert.

4. Freisetzungsexperimente mit schwach aktivem Fissium

Mit der in Kapitel 2 beschriebenen Versuchsanordnung wurden zwei Experimente (S-172/S-173) durchgeführt, bei denen die Corium-Proben statt eines UO_2 -Pellets ($\approx 10 \text{ g}$) zwei Fissium-Pellets $\approx 5 \text{ g}$ mit der in Tab. 4315-2 angegebenen Zusammensetzung enthielten. Die wichtigsten Versuchsparameter sind nachfolgend aufgeführt:

Atmosphäre	:	Luft
Druck	:	1,5 bar
Durchfluß	:	5 l/min
Schmelzgut	:	30 g Corium-E mit 2 Fissium-I-Pellets
Aufheizgeschwindigkeit	:	$120^{\circ}\text{C}/\text{min}$
Maximaltemperatur	:	$2150^{\circ}\text{C}/2000^{\circ}\text{C}$
on-line Messung im Temperaturbereich	:	$500-1250^{\circ}\text{C}/1380-2000^{\circ}\text{C}$
Dauer eines Meßintervalls:		60 sec

Ergebnisse

In Abb. 4243 -6 ist der - größtenteils on-line gemessene - Verlauf der Filterbeaufschlagung über der Schmelzguttemperatur aufgetragen.

Tabelle 4243 -3: Verteilung der freigesetzten Spaltprodukt-Elemente in Prozent vom Ausgangsinventar. Die oberen Werte beziehen sich jeweils auf Versuch S-172 ($T_{\max} = 2150^{\circ}\text{C}$), die unteren auf Versuch S-173 ($T_{\max} = 2000^{\circ}\text{C}$)

	Se	Cs	Sb	Mo	Cd	Te
Glasglocke	3,88	4,65	0,75	0,40	7,51	8,03
	2,08	3,71	0,32	0,26	5,04	3,85
Glasrohr 1 + 2	1,02	1,41	0,29	0,03	<1,5	<1,5
	0,76	1,26	0,11	0,06	1,10	<1,5
Meßfilter	23,64	20,08	3,06	2,10	26,35	31,85
	22,58	22,6	1,80	1,64	29,11	38,24
Summe	28,54	26,14	4,10	2,53	33,86	39,88
	25,42	27,57	2,23	1,96	35,25	42,09
Restaktivität im Tiegel *)	73,3	55,3	91,1	85,1	Zum Meßpkt. zu geringe Aktivität	
	89,0	45,7	89,3	103,6		

*) Im Vergleich zu den anderen Werten der Tabelle ist die Unsicherheit dieser Angaben am größten, weil sich die γ -Absorption im Schmelzgut und in der Tiegelwand bisher nicht exakt erfassen ließ.

Diese Abbildung enthält auch eine Kurve für Te-131^{m} , einem Nuklid, das bei der Herstellung von J-131 aus Te-130 entsteht und trotz seiner kurzen Halbwertszeit zum Versuchszeitpunkt noch eine meßbare Aktivität aufwies.

Bei Cd-115 dagegen reichte die Aktivität nicht aus, um in den kurzen Zeitintervallen der on-line-Messung auswertbare γ -Linien zu erhalten. Die eingetragenen Meßpunkte stammen daher aus der Auswertung der Filterproben nach dem Freisetzungsversuch.

Eine Darstellung von Ergebnissen für Jod kam nicht infrage, weil Jod von den Membranfiltern nur in geringem Umfang zurückgehalten wurde. Ein Integral-

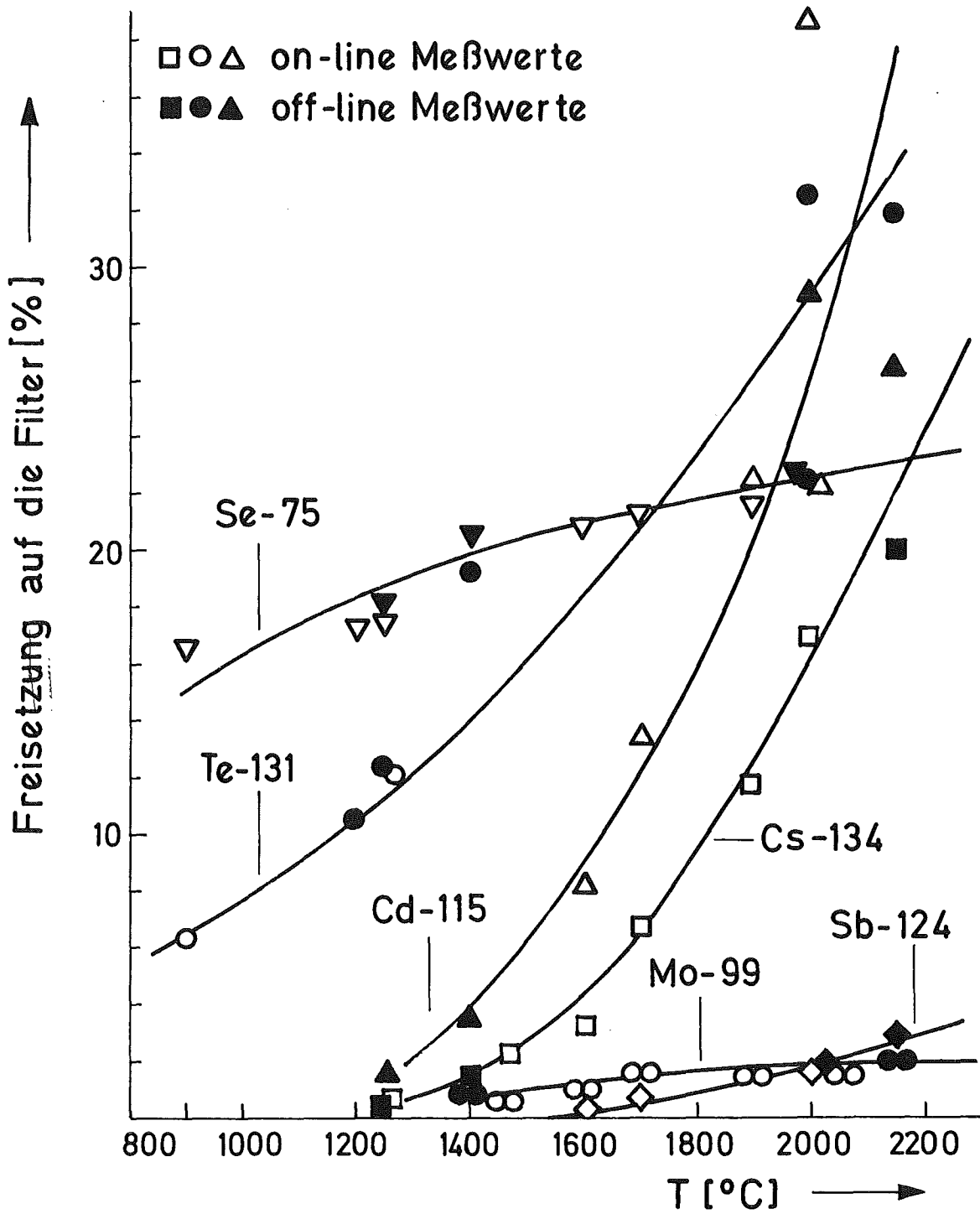


Abbildung 4243 -6: Freisetzung der Fission-Komponenten als Funktion der Temperatur

wert für die Jodfreisetzung während des gesamten Experiments ließ sich jedoch durch Ausmessung des nachgeschalteten Jod-Adsorptionsfilters bzw. des Schmelzgutes nach dem Versuch gewinnen.

In Tab. 4243 -3 ist die nach dem Versuch gemessene Verteilung der Fissium-Nuklide auf der Glasglocke, den beiden Glasrohren der Transportstrecke und den Meßfiltern angegeben. Da alle Fissium-I-Nuklide im Vergleich zu Sb eine ähnliche oder höhere Flüchtigkeit aufweisen, ist nach Abb. 4243 -2 zu erwarten, daß der höchste Anteil der freigesetzten Produkte auf den Meßfiltern abgeschieden wird. Dies wird durch Tab 4243-3 in vollem Umfang bestätigt.

Diskussion der Ergebnisse (vgl. Abb 4243 -6)

Cs: Cs ist in Form von CsJ und Cs_2CO_3 im Fissium enthalten, wobei 90 % als Carbonat vorliegen. CsJ ist eine bis oberhalb ihres Siedepunktes (1280°C) thermisch stabile Verbindung, Cs_2CO_3 zersetzt sich dagegen bei 610°C . Ohne Wechselwirkung mit anderen Komponenten wäre aufgrund des hohen Dampfdrucks von elementarem Cs ab 610°C mit einer erheblichen Freisetzung zu rechnen. Da die Verflüchtigung aber erst oberhalb 1200°C beginnt, erscheint eine Wechselwirkung des Cs mit der UO_2 -Matrix unter Bildung von Cs_2UO_4 wahrscheinlich.

Se: Die Versuche zeigten, daß Se bereits ab ca. 700°C in gut meßbarem Umfang freigesetzt wird. Dieses Verhalten entspricht den physikalischen Eigenschaften von Se-Metall (Sdp. 685°C). Oberhalb von 1500°C ist dagegen keine Steigerung der Se-Freisetzung mehr zu beobachten. Daher ist anzunehmen, daß sich Verbindungen bilden, die die weitere Freisetzung von Se verhindern.

Te: Im Gegensatz zu Se zeigt Te bis über 2000°C eine ansteigende Tendenz der Freisetzung. Te liegt als Spaltprodukt zunächst elementar im Brennstoff vor, bei höheren Temperaturen und ausreichendem Sauerstoffangebot wird es jedoch zunehmend zu TeO_2 oxidiert.

Cd: Auch Cd wird offenbar während der Aufheizphase oxidiert, denn Cd-Metall müßte oberhalb des Siedepunktes von 765°C in stark zunehmendem Ausmaß abgedampft werden. Bei 1300°C wurden jedoch erst 2 % des Cd-115 auf dem Meßfilter registriert, bei 2150°C waren es dagegen 38 %. Diese Steigerung läßt auf die Bildung von CdO schließen, das bei 1555°C sublimiert.

Mo: Für Mo, das in Form von MoO_3 im Fissium enthalten war, wurde oberhalb von 1200°C eine starke Freisetzung erwartet, doch sie betrug bei 2150°C nur ca. 3 %. Man kann daraus auf Reaktionen mit anderen Schmelzgutkomponenten schließen unter Bildung von geringer flüchtigen Verbindungen.

Sb: Neben Mo erwies sich Sb als die am wenigsten flüchtige Komponente der Fissium-I-Spaltprodukte. Der freigesetzte Anteil von 4 % bei 2150°C lag jedoch höher als bei den Versuchen mit inaktivem Corium, wo die Freisetzung von Sb als Stahl- bzw. Zircaloybestandteil untersucht wurde. Der Unterschied läßt sich u.U. damit erklären, daß das Sb im einen Fall in der Metallphase der Schmelze enthalten war, im anderen Fall in der Oxidphase des Fissium-Pellets.

J: Bis zum Ende der beiden Versuche war alles J-131 aus den Schmelzproben freigesetzt; dies ergab sich durch die gammaspektrometrische Nachuntersuchung der Tiegel. Ob allerdings die Freisetzung des aktiven Jods für das gesamte im Schmelzexperiment eingesetzte Jod repräsentativ ist, läßt sich bis jetzt noch nicht sagen. Inaktives Jod ist nämlich als CsJ im Fissium enthalten, aktives Jod befindet sich dagegen in einer Tellur-Matrix, da das J-131 durch Bestrahlung von Te erzeugt wurde. Aus der unterschiedlichen chemischen Form und Umgebung kann sich ein differierendes Freisetzungsverhalten ergeben; es sind deshalb weitere Untersuchungen der Restschmelze zur Klärung dieser Frage geplant.

5. Umbau der Schmelzanlage SASCHA

Die bereits 1976 begonnenen Arbeiten (1,2) zur Leistungserhöhung der Schmelzanlage wurden planmäßig fortgesetzt.

Die zum Lieferumfang gehörende Kombination HF-Stromdurchführung-Induktor wurde fertiggestellt. Bei dem Induktor handelt es sich um den Referenz-Induktor, mit dem bei den Abnahmeprüfungen eine Wärmeleistung im Werkstück von 30 kW nachgewiesen werden soll.

Nachdem mit einem Mittelfrequenzgenerator der Spannungsabfall an der Stromdurchführung und dem Induktor gemessen war, konnte der Schwingkreis anhand von Hochrechnungen für die vorgesehene Arbeitsfrequenz von 30-40 kHz ausgelegt werden.

Wegen der notwendigen Heißwasserkühlung mußten die Bauteile gemäß TRD802, Zwergdampfkessel, gebaut und geprüft werden.

Das zur Temperierung und Intensivierung der Induktorkühlung bestellte Heißwasser-Heiz-Kühlaggregat wurde ausgelegt, konstruiert und ging in die Herstellung.

Nach eingehenden Konsultationen beim TÜV wurden im Einvernehmen mit dem Gewerbeaufsichtsamt Karlsruhe die bei der Errichtung anzuwendenden technischen Regelwerte fixiert. Die von der Herstellungsfirma erstellten Zeichnungsunterlagen wurden geprüft und für die Fertigung freigegeben. Außerdem wurden alle notwendigen TÜV-Prüfungen an den Einzelkomponenten abgeschlossen.

Bei der Abnahme der neuen Kühlwasserversorgung hat sich die Vermutung bestätigt, daß der Solldruck im Versuchsraum bei der erforderlichen Wassermenge nicht gehalten werden kann. Es mußte deshalb zusätzlich eine Druck-erhöhungsanlage bestellt werden.

Die endgültige Montage der neuen Komponenten und der Probetrieb mit Schmelzgutmassen ≥ 1 kg ist für die Monate Oktober-Dezember 1977 vorgesehen.

Literatur

- (1) PNS-Halbjahresbericht 1976/1, KFK-2375, 404 (1976)
- (2) PNS-Halbjahresbericht 1976/2, KFK-2435, 400 (1977)
- (3) 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, (AED-Conf-76-455-034)
- (4) H. Albrecht, M.F. Osborne, H. Wild:
Experimental Determination of Fission and Activation Product Release During Core Meltdown, ANS Thermal Reactor Safety Meeting, Sun Valley, Idaho, 31. Juli - 5. Aug. 1977
- (5) W. Breitung: Verdampfung von oxidischen Kernbrennstoffen und ihr Einfluß auf die Spaltstoffentmischung in Reaktorbrennstäben und auf den Brennstoffdampfdruck unter Störfallbedingungen, KFK-2240, Juni 1976
- (6) M.H. Fontana: An Estimate of the Enhancement of Fission Product Release from Molten Fuel by Thermally Induced Internal Circulation, Nucl. Appl. & Techn. 9, 364 (1970)
- (7) H.H. Reineke: persönliche Mitteilung

4244/4245 Zustand, Reaktionsverhalten, Technologie und Stoffdaten
von LWR-Materialien beim Coreschmelzen

(H.Holleck, S.Nazaré, G.Ondracek, A.Skokan, IMF I)

I. Einleitung

Die geplanten und laufenden Arbeiten über Werkstoffprobleme beim Coreschmelzen umfassen

- die chemische Wechselwirkung zwischen Coriumschmelzen und Beton (Phasen, Phasenverteilung, Verteilung der Spaltprodukte, Erstarrung, Einfluß des Oxydationsgrades; betr.4244)
- das Verdampfungsverhalten der Komponenten (betr.4244)
- die Abschätzung der Oberflächenspannungen und Dichten von flüssigen Coriumphasen (betr.4245)
- die Stahlphasensegregation und -oxydation im Beton (betr.4244).

Zur Überprüfung dieser Arbeiten im Rahmen des Coreschmelzprogrammes sowie zu ihrer Orientierung auf die Frage nach der Notwendigkeit der Simulation großer Kernschmelzen wurde die Werkstoffproblematik anhand der bisher vorliegenden wesentlichsten Ergebnisse zusammengefaßt.

II. Der Coreschmelzunfall als Werkstoffproblem

Der Coreschmelzunfall ergibt sich als Konsequenz der höchst unwahrscheinlichen Annahme, daß das gesamte Kühlsystem eines Leichtwasserreaktors gleichzeitig versagt. Betrachtet man das Containment beispielsweise eines Druckwasserreaktors als thermodynamisches System, so ist dessen Zustand durch seine Zustandsgrößen bestimmt, nämlich

- die Konzentration seiner Komponenten, gegeben durch die Coreeinbauten
- den Druck, gegeben durch die herrschende Wasserdampfatosphäre
- die Temperatur, gegeben durch die Spaltwärme.

Der totale Ausfall der Kühlung hat eine drastische zeitabhängige Änderung dieser Zustandsgrößen und damit einen instabilen Zustand zur Folge: den (hypothetischen) Coreschmelzunfall.

Die extremen Bedingungen, unter denen sich ein solcher Unfall ereignen könnte, schließen seine Untersuchung im realistischen Integraltest aus. Zur Beschreibung seines zeitlichen Verlaufs wurden daher im Rahmen des deutschen Coreschmelzprogrammes Computercodes ausgearbeitet, die vor allem die Änderung der Temperatur als zentraler Zustandsvariablen als Funktion der Zeit beschreiben [2,6,7,11]. Sie basieren auf Modellvorstellungen und sind damit entweder unexakte Darstellungen der realen Situation oder exakte Darstellungen des unrealen Modells; d.h. in jedem Falle Näherung.

Der zeitliche Ablauf eines Coreschmelzunfalles läßt sich in vier Perioden aufteilen, nämlich

- das Aufheizen des Cores
- das Niederschmelzen bzw. das Zusammenbrechen des Cores
- die Bildung einer Coreschmelze im Reaktordruckbehälter
- die Bildung einer Coreschmelze nach Versagen des Reaktordruckbehälters im Beton.

In jede dieser Perioden gehen Materialfragen über zwei Problemkreise ein:

- den stofflichen Aufbau des Systems in der jeweiligen Unfallperiode
- die Eigenschaften der Komponenten bzw. Phasen des Systems in der jeweiligen Unfallperiode.

Dabei hängen beide Probleme insofern eng zusammen, als jede Änderung des stofflichen Aufbaus gemäß den jeweils herrschenden Zustandsbedingungen eine entsprechende Änderung der Eigenschaften zur Folge hat. - Die Untersuchung dieser Werkstoffprobleme erfolgte zunächst durch labormaßstäbliche Experimente unter simulierten Unfallbedingungen bzw. theoretische Abschätzungen durch Extrapolation aus experimentell zugänglichen Bereichen [8, 14,16]. Inwieweit die Ergebnisse und ihre Verknüpfungen auf realistische Unfalldimensionen zutreffen, ist iterativ sorgfältig zu prüfen und wird möglicherweise die Erwägung größerer Experimente in bestimmten Fällen begründen.

III. Der stoffliche Aufbau während des Coreschmelzunfalles

Es ist das Ziel der Arbeiten zum hypothetischen Coreschmelzunfall, seinen Ablauf zu verstehen und ihn eventuell zu beherrschen. Was die Materialprobleme angeht, so sind während der vierten Phase des Unfalls - wenn Kernschmel-

ze in Kontakt mit dem Betonfundament kommt - die kürzlichen Untersuchungen zum stofflichen Aufbau des Systems während dieser Phase von besonderem Interesse. Die wesentlichsten Ergebnisse zusammen mit denjenigen der zeitlich vorhergehenden Phasen werden im folgenden zusammengefaßt.

Da Coreschmelzen im eigentlichen Sinne während der ersten Periode des Unfalles nicht stattfindet, werden diese Materialprobleme im Rahmen der Notkühlung behandelt. In der zweiten Unfallperiode dagegen beginnt bei etwa 2100 K der Schmelzvorgang am Brennstab [5]. In oxydierender oder teiloxydierender Atmosphäre wird die äußere Oberfläche der Zry-4-Brennstabhüllen oxydiert, an der inneren Oberfläche der Zry-4-Hülle kommt es zur Reaktion mit dem UO_2 -Brennstoff, der teilweise reduziert wird. Das Zircalloy nimmt Sauerstoff auf und schmilzt.

Der stoffliche Aufbau des Systems in der nun beginnenden dritten Unfallperiode wird durch die Bildung einer Coreschmelze

- durch Wechselwirkung zwischen den Corekomponenten und
- durch Wechselwirkung der Corekomponenten mit der Unfallatmosphäre bestimmt.-

Die stoffliche Zusammensetzung dieser Coreschmelze kann variieren, je nachdem, welche Corekomponenten (UO_2 , Zry, Stahl, Inconel, Spaltprodukte; die Regel-Stabkomponenten wurden vernachlässigt) unter welcher Atmosphäre (Wasserdampf, Wasserstoff, Sauerstoff, Luft; nichtoxydierend bis volloxydierend) einschmelzen [11]. Tab.4244/4245-1 zeigt eine solche mögliche Ausgangszusammensetzung (Corium A) unter Einbeziehung der wichtigsten Spaltprodukte (hier für einen überhöht angenommenen Abbrand von 10%). Deren Verteilung und Konzentration bestimmt die Wärmequellichte in den Coreschmelzphasen und damit die Nachwärmeleistung, die wiederum - zusammen mit dem Schmelzpunkt der Phasen - über den Zeitpunkt der Erstarrung der Schmelze entscheidet. - Die entsprechend der Ausgangszusammensetzung (Corium A, E) und Unfallatmosphäre (nicht - bis volloxydierend) gebildeten Kernschmelzen (Corium AX ... oder EX ...) sind allein im volloxydierten Zustand einphasig oxidisch, sonst dagegen aus einer metallischen und einer oxidischen Schmelzphase zusammengesetzt [10].

Komponente	Mol-%	Gew. %
Zry	26.6	18
Stahl	39.6	17
UO ₂	28.6	59.36
Zr	0.99	0.69
Ce	0.52	0.56
Sr(+Ba)	0.60	0.40
Nd(+S.E.)	1.18	1.31
Mo(Tc)	0.97	0.72
Ru(+Pd,Rh)	0.36	0.36
Fl. Sp.Pr	1.57	1.6

Tab.. 4244/4245-1: Zusammensetzung von Corium A mit Spaltprodukten in Mol% und Gew.%

Wie die freien Bildungsenthalpien in Abb.4244/4245-1 bereits voraussagen und Experimente bestätigen, besteht die oxidische Schmelzphase anfänglich hauptsächlich aus (U~~Zr~~)O₂ in die zunehmend oxidierte Stahlkomponenten (Cr₂O₃, FeO, NiO) einschmelzen. Die metallische Schmelzphase dagegen hat stahlähnliche Zusammensetzung.

Die Zweiphasigkeit der Coriumschmelzen hat eine inhomogene Verteilung der Spaltprodukte zur Folge. Die leicht oxidierbaren Seltenen Erden (siehe Abb.4244/4245-1) werden sich unmittelbar in der oxidischen Schmelzphase lösen, während die Spaltprodukte Mo und Tc erst mit zunehmendem Oxidationsgrad - ähnlich wie die Stahlkomponenten - folgen. Die Spaltprodukte mit Edelmetallcharakter dagegen (Ru, Pd, Rh) verbleiben in der metallischen Phase, während die Spaltprodukte mit hohem Dampfdruck, wie die Alkalimetalle sowie Jod und Tellur sich wahrscheinlich schon

verflüchtigt haben, bevor die Schmelze gebildet ist.

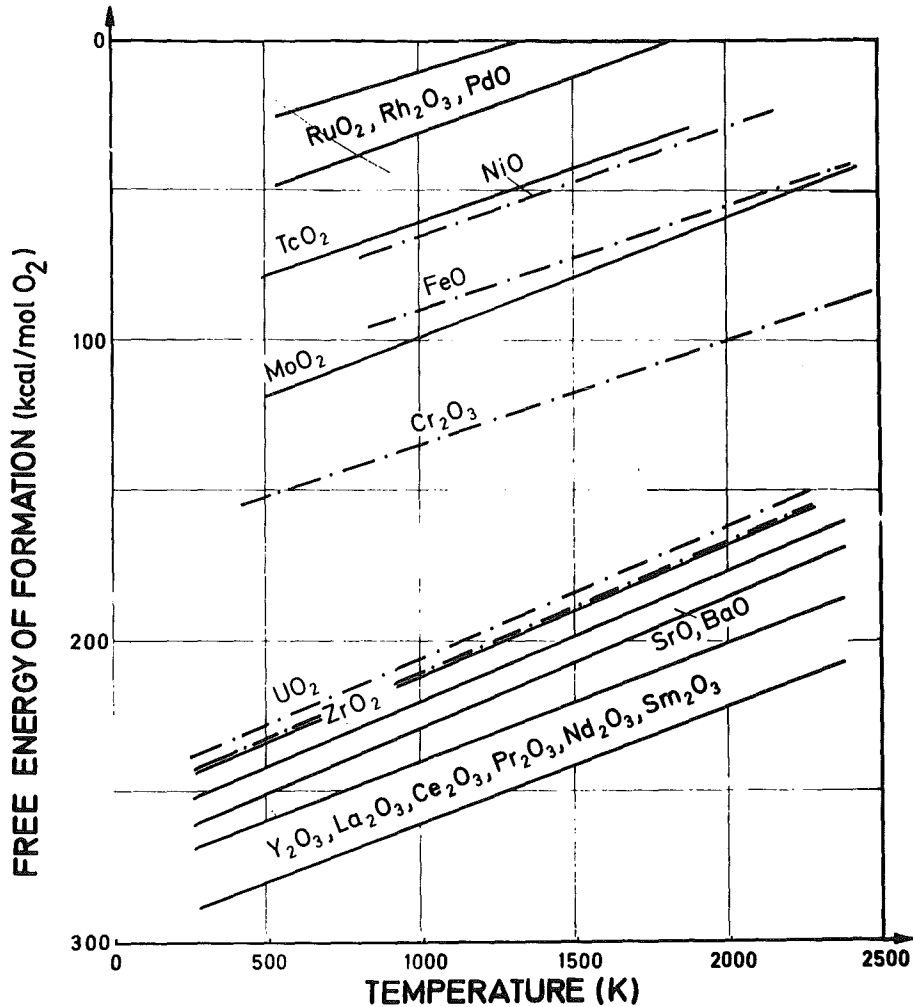


Abb.4244/4245-1: Freie Bildungsenthalpien von Oxiden der Corekomponenten und Spaltprodukte

In den diesen Ergebnissen zugrunde liegenden Experimenten konnten mehrere Spaltprodukte durch ihnen chemisch sehr ähnliche Elemente simuliert werden. Ce und Nd repräsentieren die übrigen dreivalenten Seltenen Erden, Strontium steht auch für Barium, Molybdän auch für Technetium. Ruthenium substituiert alle Edelmetalle und nur Zirkon steht allein für sich selbst. Wie bereits erwähnt, wurden die Spaltproduktkonzentrationen einem etwa dreifach überhöhten Abbrand (10%) entsprechend eingesetzt, um ihre Wirkung klarer herauszuheben.

Nach den bisherigen Coderechnungen ist mit einem Versagen des Reaktordruck-

behälters innerhalb der ersten 30 min nach Bildung der Coreschmelze zu rechnen [7,11]. Zu Beginn der vierten Unfallperiode - Coreschmelze im Beton - ändert sich die stoffliche Zusammensetzung derselben - nun Corium (A+R) ... und Corium (E+R) ... genannt - daher durch das zusätzliche Einschmelzen des Reaktordruckbehälterstahls [16]. Es ist anzunehmen, daß eine zweiphasige Coreschmelze nun mit dem silikatischen Beton in Wechselwirkung tritt. Nach bisherigen experimentellen Ergebnissen

- gibt der Beton sein Wasser in drei Temperaturbereichen ab [16]
- schmilzt der Beton in dem in Abb.4244/4245-2 durch die DTA-Kurve angegebenen Temperaturbereich [12]
- mischt sich der Beton komplett mit der oxidischen Coriumschmelzphase [17]

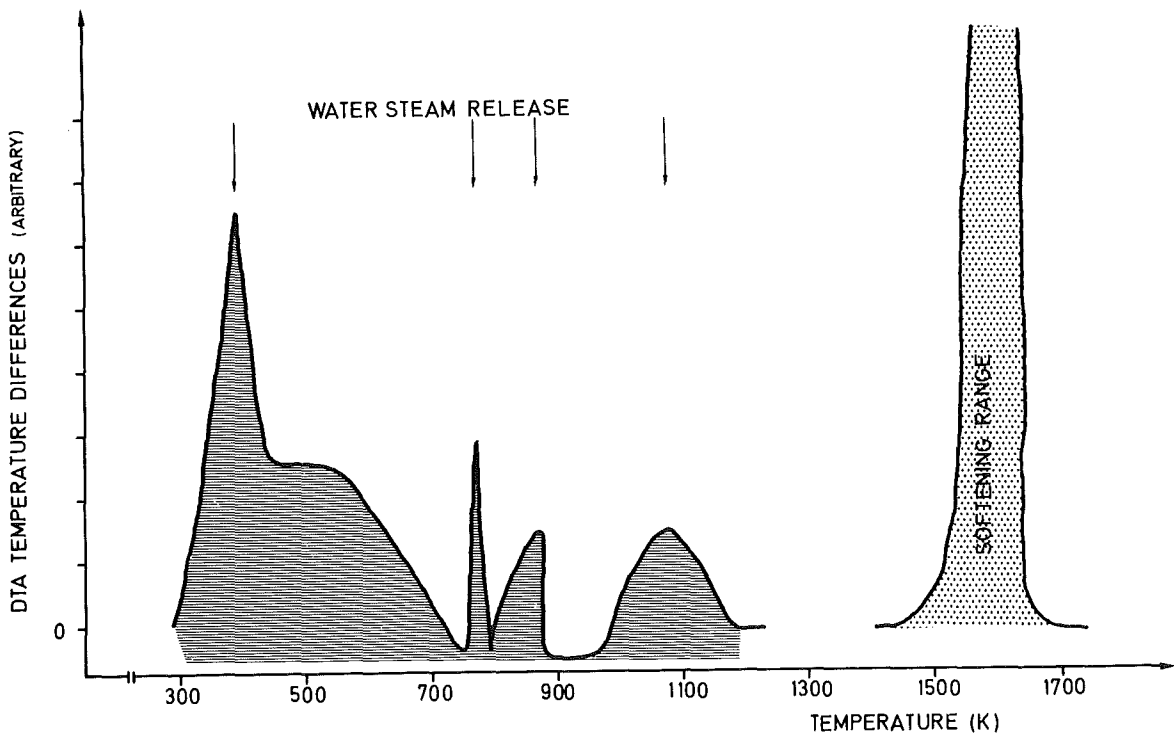


Abb.4244/4245-2: Temperaturbereiche der Wasserabgabe und des Schmelzens von silikatischen Beton

und bildet eine neue oxidische Schmelzphase, deren experimentell näherungsweise ermittelte Erweichungstemperatur in Abhängigkeit von der Konzentration der oxidischen Coriumphase bzw. der Betonkomponente in Abb.4244/4245-3 wiedergegeben sind [10,17].

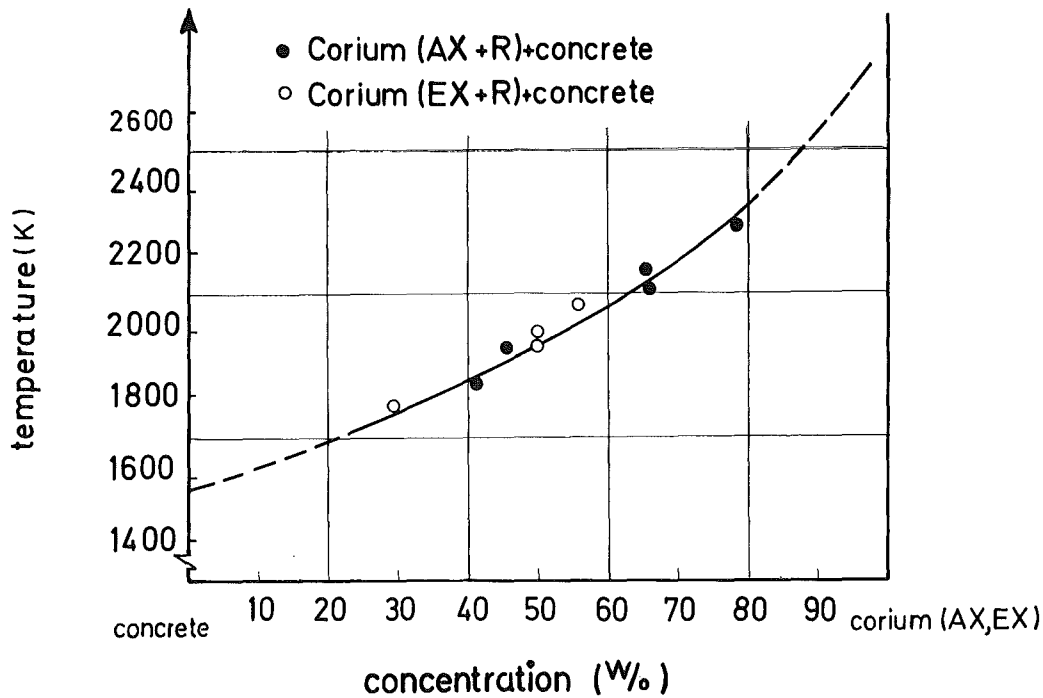


Abb.4244/4245-3: Erweichungstemperaturen der Wechselwirkungsprodukte aus Corium-Oxidphase und Beton

Die so entstandene neue oxidische Schmelzphase ordnet sich über der stahl-ähnlichen metallischen Schmelzphase an. Wegen der Benetzungsunterschiede ist diese Anordnung bei Experimenten in Wolfram-Tiegeln (Abb.4244/4244-4b) eindeutiger als bei Experimenten in Thoriumoxid-Tiegeln (Abb.4244/4244-4a). Letztere dürfte die tatsächlichen Verhältnisse im Coreschmelzunfall realistischer widerspiegeln, da die oxidische Schmelzphase den Beton benetzt.

Dieser stoffliche Aufbau in der vierten Periode läßt die Schlußfolgerung zu, daß der Betonzerstörungsprozeß thermisch gesteuert ist (Betonschmelzen). Die oxidische Schmelzphase, welche den Beton sowohl aufschmelzen als seine Komponenten lösen kann, greift diesen weniger stark an als die Metallphase. Die Erosionsergebnisse von Großversuchen, bei denen Stahlschmelzen in Beton gegossen wurden [3] behalten daher wie bereits

früher vorausgesagt [12] ihre Relevanz. Hier ist immer zu beachten, dass von wasserhaltigem Zementbeton ausgegangen wird, d.h., daß die Verwendung anderer anders gebundener Betone (Bitumenbeton oder Kunstharzbeton) vorläufig nicht in Betracht gezogen ist.

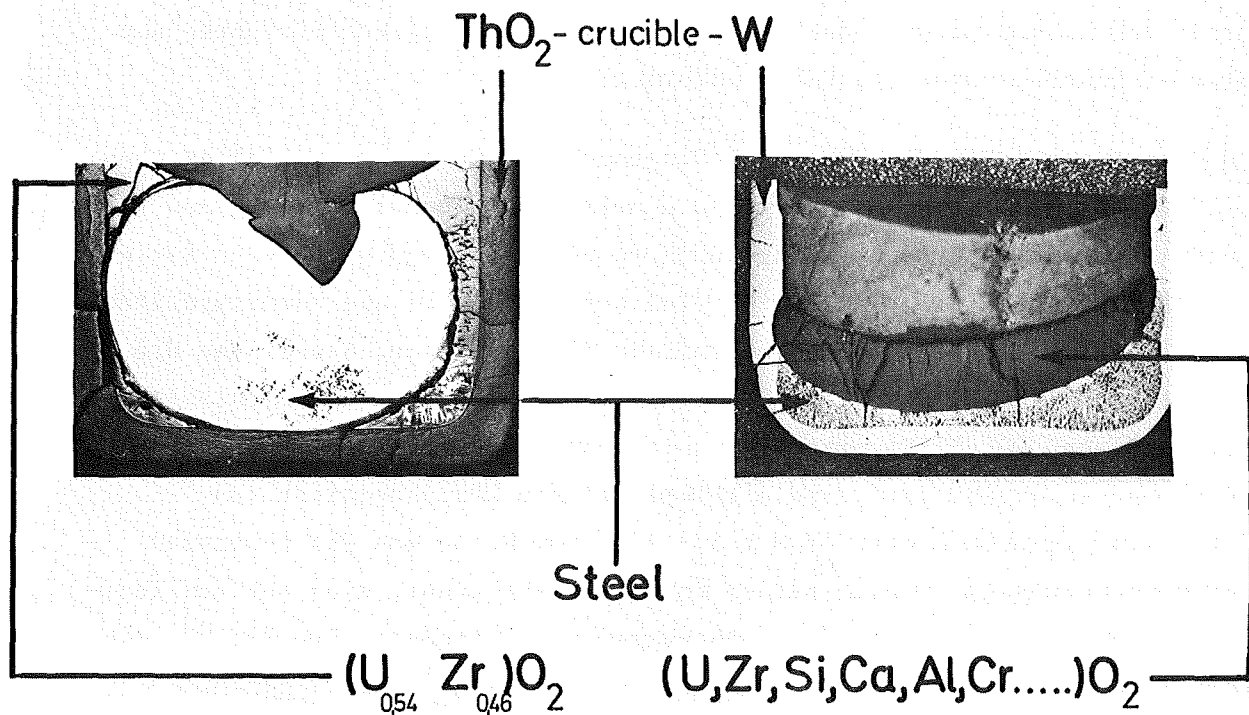


Abb.4244/4245-4: Geometrische Anordnung der oxidischen und der metallischen Phase in
- Corium (AX₂+R)+Beton-Schmelzen in ThO₂-Tiegeln (a)
- Corium EX₂ im W-Tiegel (b)

IV. Eigenschaften von Coreschmelzphasen und -komponenten

In den im ersten Abschnitt erwähnten Rechenprogrammen zur Beschreibung des zeitlichen Verlaufs eines Coreschmelzunfalles spielt die Änderung der Temperatur als Zustandsvariable eine entscheidende Rolle. Sie bestimmt den Beginn der Abschmelzperiode ebenso wie das mögliche Erstarren von Schmelzphasen des Coriums im Reaktordruckbehälter oder der Corium AX, EX + R +

Beton-Schmelze. Welche Temperatur zu welchem Zeitpunkt und an welchem Ort herrscht, wird durch die Wärmebilanzen zwischen Wärmequellen (Nachwärmeleistung der Spaltprodukte und exotherme Wechselwirkungswärmen) [4,7,8,10] und Wärmesenken (Wärmekapazitäten der Corekomponenten und Coriumschmelzphasen, Wärmetransport durch Strahlung, Leitung und Konvektion, latente Wärmen wie Schmelz- und Verdampfungswärmen) entschieden. Die Kenntnis der Eigenschaften der Komponenten und Phasen in den verschiedenen Unfallperioden wie Schmelztemperaturen, Wärmekapazitäten, Wärmeleitfähigkeiten, Emissionsgrade und Viskositäten, aber auch Dichten, Ausdehnungskoeffizienten und Oberflächenspannungen ist daher erforderlich.

Da ihre Messung bei den Zustandsbedingungen des Coreschmelzunfalles wenn nicht unmöglich, so doch mindestens schwierig, aufwendig und ungenau ist, wurde zunächst ihre Abschätzung durch rechnerische und graphische Extrapolation versucht [14]. So ergibt sich beispielsweise die Wärmekapazität der komplexen Coriumphase durch einfache Extrapolation. Stellt man die verfügbaren Wärmekapazitäten für eine große Anzahl von intermetallischen Verbindungen, Metall-Sauerstoff-Verbindungen, Elementen und Halogeniden zusammen, so ergibt sich eine mittlere atomare Wärmekapazität von $8,1 \pm 1,4 \text{ c/g} \cdot \text{atom K}$ oder $33,9 \pm 5,9 \text{ J/g} \cdot \text{atom K}$. Da man die chemische Zusammensetzung der verschiedenen Coreschmelzen kennt, kann man nun ihre Wärmekapazität am Schmelzpunkt näherungsweise errechnen. Sie ist für die flüssigen Phasen der verschiedenen Corium EX-Typen in Abb.4244/4245-5 wiedergegeben.

In ähnlich extrapolativer Weise wurden einige Wärmeleitfähigkeiten ermittelt. Ein Vergleich verfügbarer Daten zur Wärmeleitfähigkeit im flüssigen Zustand am Schmelzpunkt zeigt, daß konstante Verhältnisse existieren für die Wärmeleitfähigkeit im festen und diejenige im flüssigen Zustand am Schmelzpunkt, wie beispielsweise für Metalle, deren Atome 12 nächste Nachbarn im Gitter besitzen ($\lambda_{\text{fest}} : \lambda_{\text{flüssig}} = 2,0 \pm 0,4$). Ein entsprechender Wert für ionische Verbindungen ($\lambda_{\text{fest}} : \lambda_{\text{flüssig}} = 1,16$) kann als erste Näherung auch für Oxide benutzt werden, wobei allerdings mit größeren Unsicherheiten zu rechnen ist als bei Metallen. - Mit Hilfe dieser Verhältniszahlen läßt sich die Wärmeleitfähigkeit flüssiger Coriumphasen am Schmelzpunkt dann abschätzen, wenn man deren Wärmeleitfähigkeit am Schmelzpunkt im festen Zustand kennt. Um letztere für die Metallphase von Corium EX1

Corium Melt Type		Melting Point (K)	Heat Capacity at the Melting Point (cal/g K) (J/g · K)	Viscosity (cP) (mPa · s)	Thermal Conductivity (at the Melting Point) $\left[\frac{\text{cal}}{\text{cm K s}} \right] \left(\frac{\text{J}}{\text{cm} \cdot \text{K} \cdot \text{s}} \right)$
AX1	Metal phase	~2275	0.085 (0.356)	3.4 (at ~2675 K) 5.4 (at ~2275 K)	
	Oxide phase	~2675	0.071 (0.297)	5.7 (at ~2675 K)	
EX1	Metal phase	~2275	0.129 (0.540)	5.4 (at ~2275 K)	0.049 (0.205)
	Oxide phase				
EX2	Metal phase	~1825	0.146 (0.611)	2.1 (at ~2675 K) 5.4 (at ~1875 K)	0.044 (0.184)
	Oxide phase	~2675	0.080 (0.335)	5.7 (at ~2675 K)	0.008 (0.033)
EX3		~2075	0.202 (0.846)	4.3 (at ~2075 K)	

Abb. 4244/4245-5: Eigenschaften von Corium-Phasen im flüssigen Zustand an ihren Schmelzpunkten

zu bestimmen, wurde dieses gemäss der in Abb. 4244/4245-6 schematisch gezeigten technologischen Schrittfolge hergestellt.

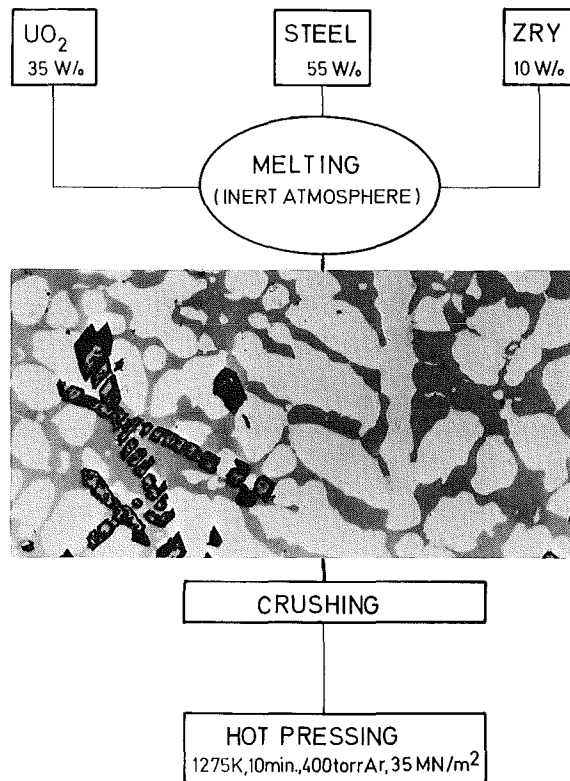


Abb.4244/4245-6: Zur Herstellung von Corium EX1

Wärmeleitfähigkeitsmessungen (bis 1200 K) /14/ an so hergestellten Corium EX1-Proben und ihre Extrapolation zum Schmelzpunkt ($\lambda_{\text{fest}} = 0,41 \frac{\text{J}}{\text{cm Ks}}$) lieferten unter Verwendung der Verhältniszahl (2,0) die in Abb.4244/4245-5 wiedergegebene Leitfähigkeit für Corium EX1. Eine entsprechende Extrapolation für Stahl ergibt näherungsweise die Wärmeleitfähigkeit der stahlähnlichen Metallphase von Corium EX2 im festen Zustand. ($\lambda_{\text{fest}} = 0,736 \frac{\text{J}}{\text{cm Ks}}$) und über die Verhältniszahl (2,0) die Wärmeleitfähigkeit für diese Phase im flüssigen Zustand (Abb.4244/4245-5). - Die Wärmeleitfähigkeit der oxidischen $\text{U}_{0,54}\text{Zr}_{0,46}\text{O}_2$ -Phase von Corium EX2 im festen Zustand ($\lambda_{\text{fest}} \approx 0,038 \frac{\text{J}}{\text{cm Ks}}$) lässt sich aus den Wärmeleitfähigkeiten ihrer Komponenten UO_2 und ZrO_2 über eine für Mischkristalle von Phononenleitern gültige Beziehung errechnen /1/. Aus ihr ergibt sich mit der Verhältniszahl der Wärmeleitfähigkeit für ionische Verbindungen

(1,16) in erster Näherung die in Abb.4244/4245-5 angegebene Wärmeleitfähigkeit der oxidischen Phase von Corium EX2 im flüssigen Zustand.

Zur theoretischen Abschätzung der Viskosität am Schmelzpunkt erwies sich die Andrade-Gleichung

$$\eta_s = 612 \cdot 10^{-4} V_M^{-2/3} \sqrt{T_S \cdot A} \quad [\text{cP}]$$

(A = Atomgewicht in g; V_M = Molvolumen in cm^3 ; T_S = Schmelzpunkt in K)

als geeignet /14/. Sie ergab z.B. mit dem Atomgewicht, Molvolumen und Schmelzpunkt von UO_2 dessen Viskosität bei 3123 K zu 5,7 cP /14/. Aufwendige Experimente lieferten mit einem $\text{UO}_{2,03}$ (bei R.T.) am Schmelzpunkt eine Viskosität von 4,6 cP /15/. Die für flüssige Coriumphasen errechneten Viskositäten sind in Abb. 4244/4245-5 wiedergegeben. Bei der Berechnung wurden Temperaturabhängigkeiten von Metallen und die Tatsache, daß Coreschmelzen mehrere Komponenten besitzen, berücksichtigt /14/. Inzwischen ist ein experimenteller Wert für die metallische Phase von Corium EX2-Schmelze veröffentlicht worden (6,8 cP) /19/, der den errechneten (5,4 cP, siehe Abb. 4244/4245-5) im Bereich der Fehlergrenzen hinreichend gut bestätigt.

V. Zusammenfassung

Die Materialprobleme im Zusammenhang mit einem hypothetischen Coreschmelzunfall lassen sich in zwei Problemkreisen erfassen: einen über den stofflichen Aufbau der Phasen und Komponenten und einen über deren Eigenschaften in jeder zeitlichen Unfallperiode. Wesentliche bisherige Ergebnisse sind, dass

- die Coreschmelzen über den grössten Zeitraum des Unfallverlaufs zweiphasig sind
- die oxidische Phase der Coreschmelzen von einer $(\text{U,Zr})\text{O}_2$ -Schmelze ausgeht, die metallische Phase dagegen stahlähnliche Zusammensetzung hat.
- die Elemente der metallischen Phase in der Reihenfolge Cr-Fe-Ni oxidieren und in die Oxidschmelze übergehen
- die Spaltprodukte heterogen in den Phasen verteilt sind, wobei anfänglich die Mehrzahl von ihnen, später alle mit Ausnahme der Edelmetalle in der oxidischen Schmelzphase gelöst sind

- die oxidische Schmelzphase von Corium den aufschmelzenden Beton löst und ihre Erstarrungstemperatur dabei sinkt.
- die oxidische Schmelzphasen mit gelösten Betonkomponenten und die metallische Coriumschmelzphase segregieren, wobei die Metallphase unter der Oxidphase liegt
- Eigenschaften der flüssigen Phasen von Coreschmelzen durch experimentell gestützte rechnerische und graphische Extrapolation näherungsweise bestimmbar sind.

VI. Literatur

- /1/ ABELES B.
Phys. Rev. 131-II (1963) 1906
- /2/ ALSMEYER H., BARLEON L., MICHAEL J., MÜLLER U., REIMANN M.
Fachberichte der Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Mannheim (1977) 225
- /3/ DAHLGREN D.A. POWERS D.A., MUIR J.F., BUTCHER B.M.
OECD-CSNI Rep. Nr.13 (1976) SNI 8/32
- /4/ DICKNES K., JARNELL J., BENDT P.J., SPENRAD B.
ORNL/NUREG 14 (1977)
- /5/ HAGEN S., HOFMANN P., MALAUSCHEK H., POLITIS C., SKOKAN A.
OECD-CSNI Report Nr.13 (1976) SNI 8/30
- /6/ HASSMANN K., ARTNIK J.
Fachberichte der Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Mannheim (1977) 213
- /7/ HASSMANN K., ARTNIK J., BADUR A., PERTRI W.
BMFT-RS 72a,b (1975) c (1976)
- /8/ HOFMANN P., HOLLECK H., POLITIS C., SKOKAN A.
KFK - 2242 (1976)
- /9/ HOFMANN P.
KFK - 2220 (1976)
- /10/ HOLLECK H., NAZARE S., ONDRACEK G., SKOKAN A.
Proc. ANS Thermal Reactor Safety Meeting, Sun Valley (1977) Nr.133
- /11/ MAYINGER F., REINECKE H.
OECD-CSNI-Report Nr.13 (1976) SNI 8/29
- /12/ NAZARE S., ONDRACEK G.
PNS-Halbjahresbericht KFK - 2435 (1977) 04.24.5
- /13/ NAZARE S., ONDRACEK G., SCHULZ B.
KFK - 2217 (1975) 34
- /14/ NAZARE S., ONDRACEK G., SCHULZ B.
nuclear technology 32 (1977) 239
- /15/ PALINSKI R.
BMFT-RS 80 (1977) 29

- /16/ PEEHS M.
Fachberichte der Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Mannheim,
(1977) 229
- /17/ SKOKAN A., HOLLECK H.
Fachberichte der Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Mannheim,
(1977) 233
- /18/ SKOUTAJAN R., BAUKAL W., NIXDORF J.
BMFT - RS 197 (1976)
- /19/ VINOGRADOV B.G., ARSENTIEV P.P.
Steel in the USSR 5 (1975) 145

4246 Experimente zur Simulation großer Kern-
schmelzen (Vorprojekt)
(D.Perinić, B.Kammerer, H.Knauß, A.Mack,
B.Stuka, RBT/IT)

1. Auslegung der Schmelzanlage

Es wurden Untersuchungen zur Ausbreitung der Schmelze in Beton-
tiegeln sowie Berechnungen zu max. erreichbaren Temperaturen für
Schmelzen in Beton durchgeführt. Unter Annahme der vorgesehenen
Nettoheizleistungen von 0,213 bzw. 0,987 MW für die 100 und
1000 kg Schmelzen und unter Vernachlässigung der Reaktionsenergien
wurden Grenztemperaturen von 2100 bzw. 2200 °C errechnet. Die
Tiegel sind dabei zur Abschirmung der Abstrahlungsverluste mit
einem Deckel zugedeckt. Es wurde deutlich, daß zur Erreichung
von Schmelztemperaturen um 2400 °C, wo eine rasche Auflösung von
UO₂ erfolgt, eine höhere Leistungseinspeisung als zur Simulation
der von der Spaltproduktrestleistung herrührenden Wärmestromdichten
an der Schmelzfront erforderlich ist.

Bei diesem Temperaturniveau werden Schmelzfrontausbreitungsge-
schwindigkeiten von rd. 0,2 mm/s erwartet. Es sind also Halte-
zeiten für Schmelzen in der Größenordnung von einer Stunde nur
dann möglich, wenn die Induktionsspule mit einer hochschmelzenden
Keramikschiicht gegen Schmelzdurchbruch gesichert wird.

Das Gutachten der Fraunhofer Gesellschaft Berghausen<sup>+) zur Frage
der Wasserstoff- bzw. Wasserdampf-Explosion an der Schmelzanlage
für 1000 kg wurde fertiggestellt. Wegen der hohen Temperatur des
Gasraumes (> 2000 °C) wird unter einer Wasserdampfatmosphäre der
entstehende Wasserstoff mit an Sicherheit grenzender Wahrscheinlich-
keit in Form einer stillen Verbrennung zu Wasser oxidiert, so daß
eine Explosion auszuschließen wäre. Zur Abdeckung der äußerst ge-
ringen Restunsicherheit einer Explosion wird mit maximalem Über-
druck von 6,5 bar gerechnet.</sup>

^{+) Institut für Chemie der Treib- und Explosivstoffe}

Bei Eintreten einer Wasserdampfexplosion wäre konservativ dagegen mit einer insgesamt freiwerdenden Energie von $2 \cdot 10^8 \text{ J}$ zu rechnen, was einem TNT Äquivalent von 42,5 kg entspräche. Durch verschiedene Sicherheitsmaßnahmen, u.a. Einbau von schnellschließenden Ventilen für die Induktorkühlung und damit bedingte Begrenzung des Wasserinhalts im Sicherheitsbehälter könnte die Gefahr einer Wasserdampfexplosion auf ein vertretbares Restrisiko reduziert werden.

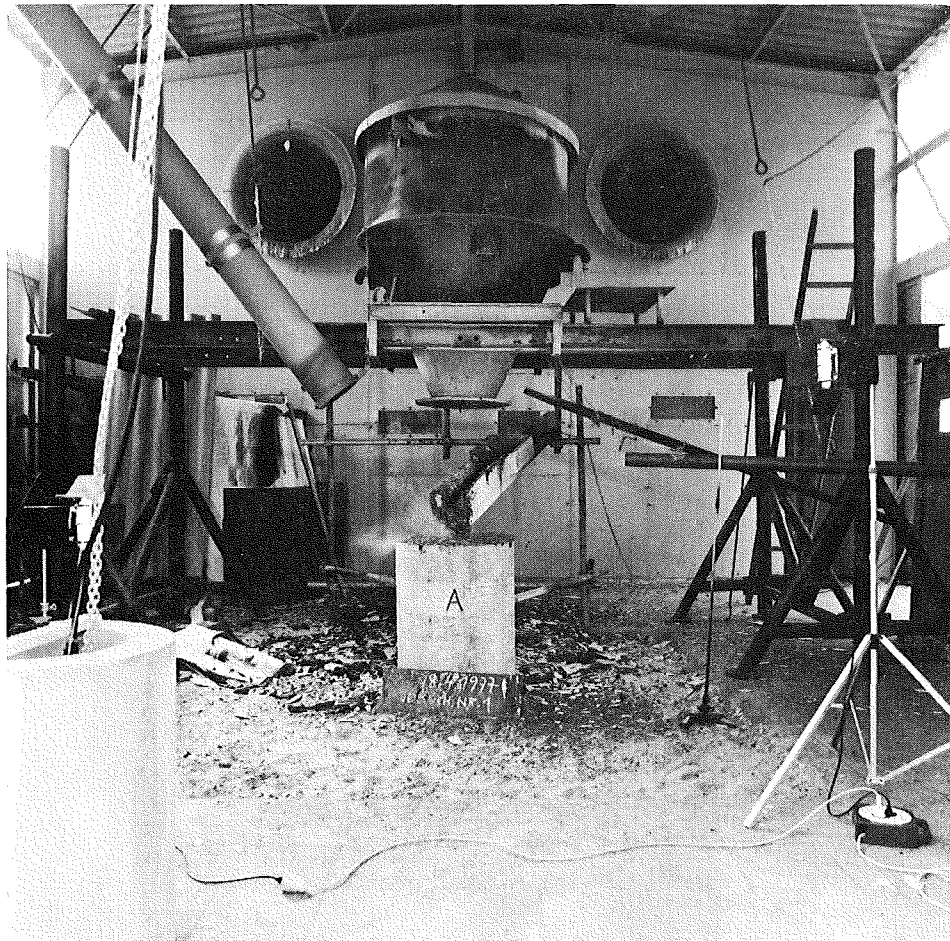


Abb. 4246 -1:
Schmelzanlage für Zündung von max. 600 kg
Thermit-Reaktionspulver

2. Versuche

Zur Entwicklung der Tiegeltechnologie und der Versuchsmeßtechnik sowie zur Untersuchung der Phänomenologie der Schmelze/Beton-Reaktion wurden Versuche mit Thermit-Schmelzen in Betontiegeln durchgeführt (Abb. 4246 -1).

Die Betontiegel wurden als Zweischalentiegel ausgeführt. Der innere Tiegel - bestehend aus Reaktorbeton - wurde zur Verhinderung des Schmelzdurchbruchs mit zehn Lagen eines Glasfasergewebes bewehrt (ein Tiegel mit Stahlbewehrung). Die äußere Schale bestand aus einem Asbestzementrohr, dazwischen ein Spalt gefüllt mit Wolle aus hochschmelzender Keramik (Abb. 4246 -2). Der Beton wurde in Anlehnung an die Biblis-Spezifikation hergestellt:

Portland Zement	PZ350F	14,3 %
Rheinsand 0 ... 2 mm		32,6 %
Rheinkies 2 ... 8 mm		19,6 %
Rheinkies 8 ... 16 mm		26,1 %
Wasser		7,4 %

Abb. 4246 -2:
Schnitt durch die
Tiegelwandung

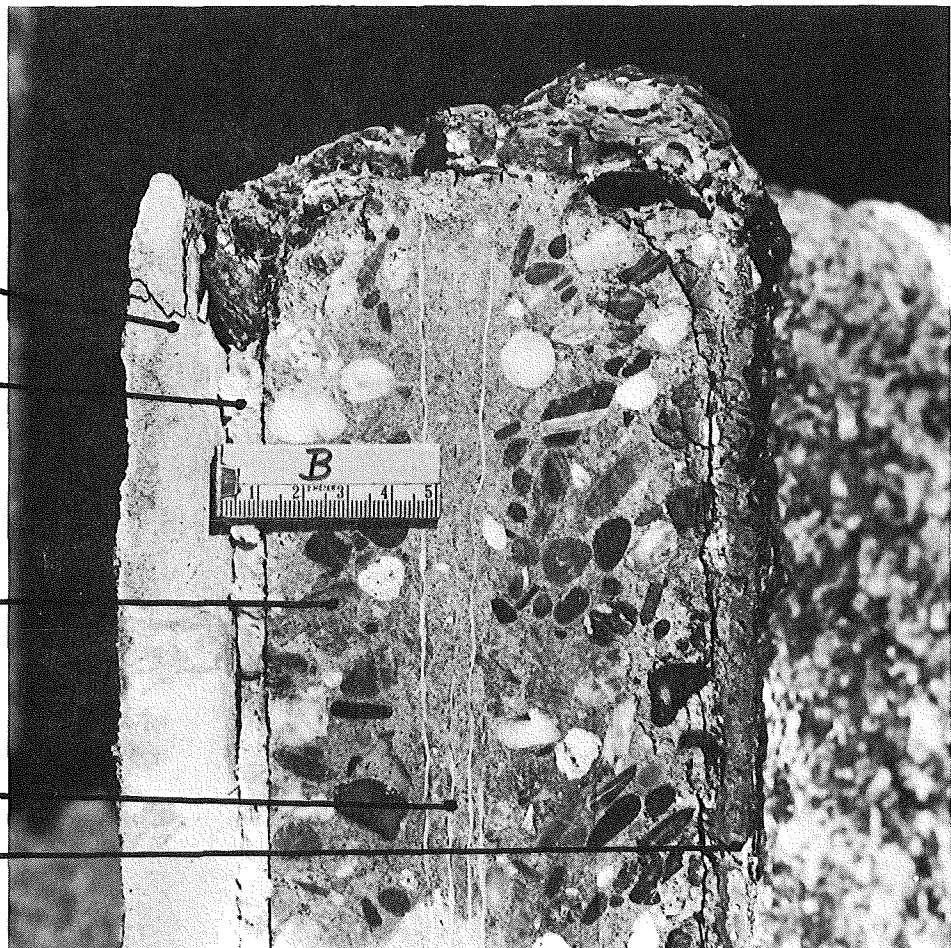
Asbestzementrohr

Keramikwolle

Beton

Glasfaser

Schmelze



Die Tiegel hatten Massen zwischen 435 und 555 kg. Die Betondichte nach einer Naßlagerung von > 30 d betrug $\sim 2,5 \text{ t/m}^3$.

Die Thermitschmelze wurde in einem Reaktionsbehälter oberhalb des Versuchstiegels gezündet und nach Ablauf der Reaktion in den Tiegel abgelassen. Bei einem Versuch wurde die Thermit-Reaktionsmischung direkt im Versuchstiegel gezündet. Es wurden Thermitschmelzen zweier Zusammensetzungen eingesetzt:

- a) Metallphase: Fe $\sim 50\%$
Oxidphase : Al, Fe $\sim 50\%$

- b) Metallphase: Fe, Cr, Ni $\sim 50\%$
Oxidphase : Al, Fe, Cr, Ni $\sim 50\%$

Pro Tiegel wurde max. 250 kg Schmelze abgegossen.

Beim Eingießen der Schmelze wurde eine Verhältnistemperatur zwischen 2900 und 3100 °C pyrometrisch gemessen (500 nm, 580 nm).

Bei den Versuchen wurde eine online Meßtechnik eingesetzt. Folgende Messungen und Aufzeichnungen wurden durchgeführt:

- zwei Zweifarben-Pyrometer
- max.neun Thermoelemente im Beton
- max.fünf Eintauchthermometer
- Körperschallsonde
- Dampfdetektor
- Gasprobenahme
- Gasprobenahme mit Temperaturmessung
- zwei Filmkameras
- Fernsehkamera

Die Versuche ergaben bezüglich der Tiegeltechnologie sehr zufriedenstellende Ergebnisse. Es ist bei keinem Versuch zum Ausbruch der Schmelze gekommen trotz der sehr schmalen Restwandstärke, die in einem Fall sogar bis auf 55 mm reduziert war. Die Risse an der Außenseite des Betontiegels hatten eine max. Breite von 2 ... 5 mm.

In dem Temperaturbereich oberhalb 2000°C ist die Reaktion der Schmelze mit dem Tiegel außerordentlich stark. Es kommt zu einer heftigen Umwälzung des Schmelzbades durch die aufsteigenden Wasserdampfblasen, die das Auswerfen eines großen Schmelzanteils aus dem Tiegel bewirken. Von der eingegossenen Schmelzmasse verbleibt im Tiegel nur rd. 30%.

Es kommt zu einer raschen Abkühlung der Schmelzbadoberfläche von 3000°C auf 2000°C in 10...20 s trotz der heftigen Umwälzung. Durch Vergleichsmessung mit Eintauchthermometer und Pyrometer konnten Temperaturdifferenzen der Schmelzinnen- und -oberflächentemperaturen zwischen 60 und 300 K gemessen werden.

Ähnlich wie in kleinen Versuchen mit Corium-Schmelzen kam es immer zu einer Trennung der Metall- und Oxidphasen. Die Metallschmelze lag immer am Boden des Schmelzbades.

Aus einer Ausgangs-Zylindergeometrie entstand bei allen Versuchen mit Metall/Oxidschmelzen eine birnenförmige Kaverne.

Die gesamten Eindringtiefen der Schmelzfront betragen axial 70 mm und radial 46 mm. Bei den 250 kg Thermiterschmelzversuchen in Betontiegeln wurde eine starke Abhängigkeit der Schmelzfrontgeschwindigkeit von der Schmelzbadtemperatur festgestellt. Bei Schmelzbadtemperaturen von 3000°C bis 1500°C reichten die axialen Aufschmelzgeschwindigkeiten von 40 mm/min. bis 5 mm/min, was im Temperaturbereich bis etwa 1800°C mit früher gemessenen Werten gut übereinstimmt. Die radialen Aufschmelzgeschwindigkeiten waren stets geringer.

Als bemerkenswertes Ergebnis soll das Verhalten der rein oxidischen Schmelze erwähnt werden. Bei diesem Versuch kam es zu keinem nennenswerten Eindringen der Schmelze in den Beton (axial 0, radial < 5 mm) trotz des verhältnismäßig niedrigen Erstarrungspunktes der Schmelze (Al/Fe Mischoxid $\sim 1200^{\circ}\text{C}$), was ggfs. durch niedrige Dichte und schlechte Wärmeleitfähigkeit erklärt werden kann (Abb. 4346-3).

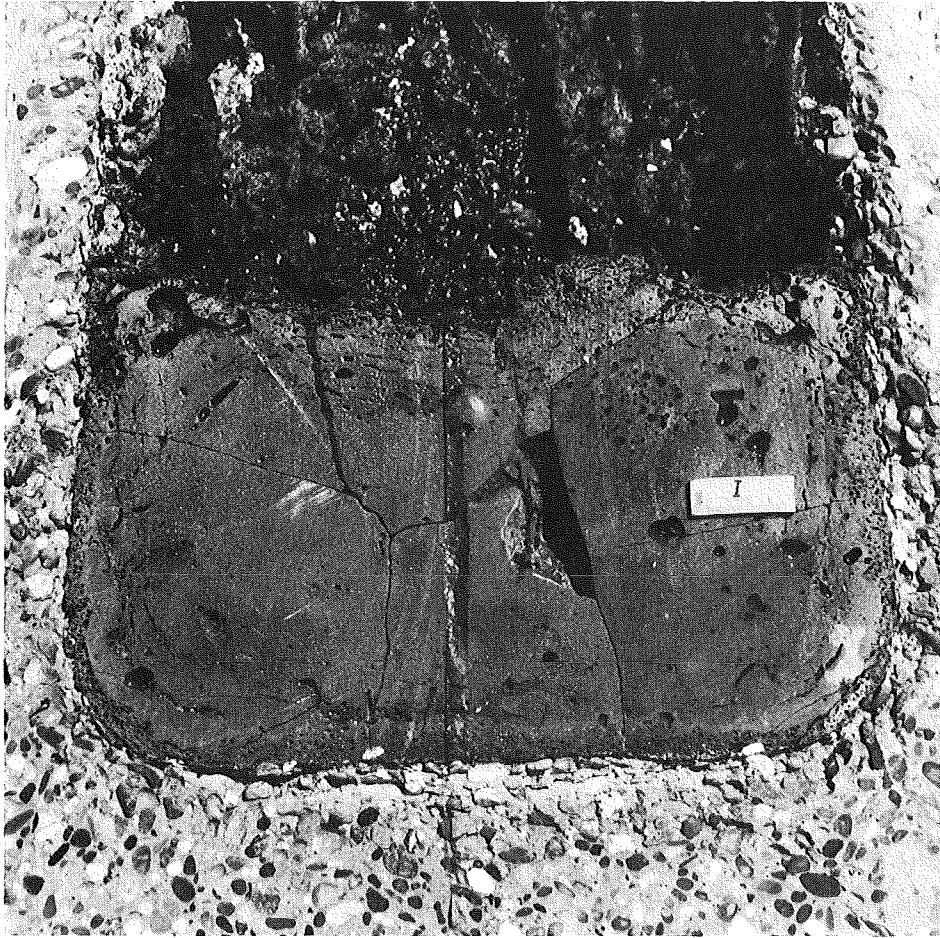


Abb. 4246 -3:
Schnitt durch den reinoxidischen Regulus

An die Schmelzfront schließt sich eine dehydrierte Betonschicht von max. 45 mm und an diese eine teilweise dehydrierte Schicht von max. 55 mm an.

Die erstarrte Oxidschmelze ist sehr porös und beinhaltet verspritzte Metalleinschlüsse sowie ganze Kiesel. Dagegen ist der Metallregulus kompakt.

4247 Hydrodynamische und thermische Modelle zur Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton

(H. Alsmeyer, L. Barleon, J. Koster, I. Michael, U. Müller, M. Reimann, IRB)

1. Problemstellung

Bei einem hypothetischen Kühlmittelverluststörfall eines Leichtwasserreaktors wird die Nachzerfallswärme durch die Kernnotkühlung abgeführt. Bei einem Versagen dieser Kühlung würde der Reaktorkern niederschmelzen und nach Durchschmelzen des Druckgefäßes auf das Betonfundament des Sicherheitsbehälters fließen.

In der vorliegenden Darstellung soll zunächst versucht werden, den gesamten Vorgang der Wechselwirkung zwischen Kernschmelze und Beton qualitativ zu beschreiben. Für die Probleme der Eindringgeschwindigkeit der Schmelze in den Beton und der Gasfreisetzung aus dem Beton werden physikalische Modelle entwickelt und quantitative Ergebnisse angegeben.

2. Darstellung des gesamten Ablaufs (Bild 4247-1)

Im Ausgangszustand des hier vorgestellten Modells ist die heiße Kernschmelze (Corium A+R) gleichmäßig über den Betonboden verteilt.

Die Kernschmelze liegt in zwei Phasen, einer oxidischen Schmelze ($UO_2 + ZrO_2$) und einer zunächst nicht oxidierten metallischen Schmelze (Stahl) vor. Legt man einen LWR mit einer thermischen Leistung von 3000 MW zugrunde, so ergeben sich für die beiden Phasen Schichthöhen von jeweils 0,6 m. Die Nachwärme wird nur in der oxidischen Schmelze freigesetzt.

Die Abfuhr von Speicherwärme und Nachwärme aus der Kernschmelze erfolgt nach oben vorwiegend durch Strahlung an die Wände des Sicherheitsbehälters. Der große nach unten gerichtete Wärmestrom führt zu einem Aufschmelzen der Silikatanteile des Betons.

Mit dem Aufschmelzen ist die Freisetzung des im Beton chemisch und physikalisch gebundenen Wassers (5-10 %) gekoppelt. Der dabei entstehende Wasserdampf bildet einen instabilen Dampffilm zwischen Beton und Kernschmelze, von dem sich Dampfblasen ablösen. Der Wärmestrom von der Kernschmelze zum Beton wird im wesentlichen von der Ausbildung dieser Dampfschicht beeinflusst. Die aufsteigenden Dampfblasen durchströmen die Kernschmelze, wobei sie eine heftige Rührwirkung verursachen. Im Nachlauf der sich ablösenden Blasen wird das erschmolzene Silikat in Form kleiner Tröpfchen mitgerissen.

Beim Durchströmen der Blasen durch die metallische Schmelze wird der Wasserdampf unter der Bildung von Metalloxiden zu Wasserstoff reduziert. Diese Oxidationsprodukte sind ebenso wie das erschmolzene Silikat in der oxidischen Phase der Kernschmelze löslich.

3. Wärmeübergang und Strömungsvorgänge beim abschmelzenden Beton

Für die quantitative Erfassung des Wärmeübergangs wird zunächst die Betonzerstörung betrachtet unter der Voraussetzung, daß auf die Betonoberfläche ein hoher Wärmestrom aufgeprägt wird. Der in den Beton eindringende Wärmestrom verursacht Aufheizung des Betons, Gas- und Wasserfreisetzung und Abschmelzen der Silikate. Dabei wird in einer kurzen Anlaufphase ein Temperaturprofil aufgebaut. Ist die Schmelztemperatur der Silikate an der Betonoberfläche erreicht, so wird das Schmelzgut kontinuierlich entfernt. Im eingelaufenen, quasistationären Zustand bewegt sich die Schmelzfront mit konstanter Geschwindigkeit nach unten. Die Wasser- und Gasfreisetzungsfrenten laufen dann in festen Abständen voraus. Für diesen Fall wird der Abschmelzvorgang nach Bild 4247-2 durch die Lösung eines gekoppelten Systems von quasistationären, eindimensionalen Wärmeleitungsgleichungen aufgefaßt. Die Koppelung erfolgt durch die Temperaturrandbedingungen und durch Energiegleichungen an der Schmelzfront und an den Gas- und Wasserfreisetzungsfrenten. Ein mit diesem Modell

berechnetes Beispiel eines Temperaturprofils wird in Bild 4247-3 wiedergegeben, woraus die geringe Eindringtiefe bei der Betonzersetzung ersichtlich ist.

Wird bei der Betonzersetzung ein ausreichender Volumenstrom von gasförmigen Produkten (Wasserdampf und CO_2) freigesetzt, so bildet sich zwischen Betonoberfläche und Schmelze ein Gasfilm aus. Das Ablösen der Blasen vom instabil geschichteten Gasfilm erfolgt ähnlich wie beim Filmsieden /1/ in einem regelmäßigen Strömungsmuster (Bild 4247-4). Für die Wellenlänge λ folgt aus der dreidimensionalen Theorie von TAYLOR-HELMHOLTZ /2/, daß im Bereich

$$2\pi a < \lambda < \infty$$

kleine Störungen instabil anwachsen, wobei

$$\lambda_{\text{theor}} = 2\pi \sqrt{3}a$$

die wahrscheinlichste Wellenlänge der zu beobachtenden Störung ist ($a = \text{Laplace-Konstante}$).

Eine rotationssymmetrische Strömungszelle der Abmessungen λ^2 wird in Bild 4247-5 dargestellt. Das freigesetzte Gas strömt von außen nach innen durch den Dampffilm der Dicke δ auf die Blasenbildungsstelle zu. Die Abmessungen r_i und δ^* der Strömungszelle sind der Wellenlänge λ proportional. Die Filmdicke δ der Dampfschicht läßt sich durch Integration von Kontinuitäts- und Impulsgleichung in Abhängigkeit von der Gasmassenstromdichte bestimmen.

Mit dieser Filmdicke kann aus einer Energiebilanz der gesamte, durch Wärmestrahlung und Wärmeleitung von der Schmelze an den Beton übertragene Wärmestrom berechnet werden. Damit folgt aus dem Betonzerstörungsmodell eine Zersetzungsgeschwindigkeit, woraus sich wiederum eine Gasmassenstromdichte ergibt. Dadurch

wird eine starke Koppelung der einzelnen Modelle bewirkt. Werden Nußelt- und Grashofzahlen mit der Laplace-Konstanten als charakteristischer Länge definiert, so kann eine Wärmeübergangsbeziehung abgeleitet werden /3/, die eine iterative Lösung des Problems zuläßt und eine starke Verwandtschaft zu den Beziehungen für Filmsieden an horizontalen Flächen aufweist.

Aus einer Energiebilanz von anfallender Nachwärme, den abgeführten Wärmeströmen und der Reaktionswärme zur Bildung von Eisenoxid, kann die zeitliche Änderung der Temperaturen in der Schmelze bestimmt werden. Bei Betrachtung der Vorgänge über längere Zeiträume muß berücksichtigt werden, daß sich die thermophysikalischen Daten der Schmelze verändern. Mit der Lösung von Silikaten in der oxidischen Schmelze ist eine Erniedrigung von Schmelzpunkt und Dichte der Schmelze verbunden.

4. Ergebnisse

Zur Überprüfung der grundlegenden hydrodynamischen Modellvorstellungen zum Abschmelzen von Beton wurden einfache Modellexperimente an sublimierendem CO_2 -Eis unter Wasser (Bild 4247-6) und an einem "Betonsimulator", bestehend aus abschmelzendem Xylol und sublimierendem CO_2 -Schnee, in Wasser (Bild 4247-7) durchgeführt. Die Experimente bestätigen die Vorstellungen zu Dampffilm- und Dampfblasen-Bildung.

In Bild 4247-8 sind Berechnungen von Abschmelzgeschwindigkeit und Wärmestromdichte für silikatischen Beton mit 5 bzw. 10 % Wasseranteil in Abhängigkeit von der Temperatur einer Stahlschmelze wiedergegeben. Die Rechnungen stimmen mit einem Vergleichsexperiment von SANDIA /3/ überein, bei dem Stahl von 1700°C auf Beton gegossen wurde. Bei diesem Experiment wurde ebenfalls starke Blasenentwicklung beobachtet. Wie im unteren Teil von Bild 4247-8 dargestellt, ist der Strahlungsanteil $(Q/A)_{\text{rad}}$ am Gesamtwärmestrom $(Q/A)_G$ bei hohen

Temperaturen der Schmelze sehr groß.

Das vorstehend erläuterte Modell ist die Basis eines Rechenprogramms, das das Verhalten der Kernschmelze über längere Zeiten beschreiben soll.

Literatur:

- /1/ P.J. Berenson, "Film-boiling heat transfer from a horizontal surface", J. Heat Transfer, Trans. ASME, 83, 351-357 (1961)
- /2/ Milne-Thomson, Theoretical Hydrodynamics, 5th Ed., 1974, 15.54
- /3/ H. Alsmeyer, L. Barleon, J. Koster, I. Michael, U. Müller, M. Reimann "Ein Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton", KFK 2395 (1977)
- /4/ "Light Water Reactor Safety Research Program", Sandia Laboratories Quarterly Report, January-March 1976, SAND 76-0369

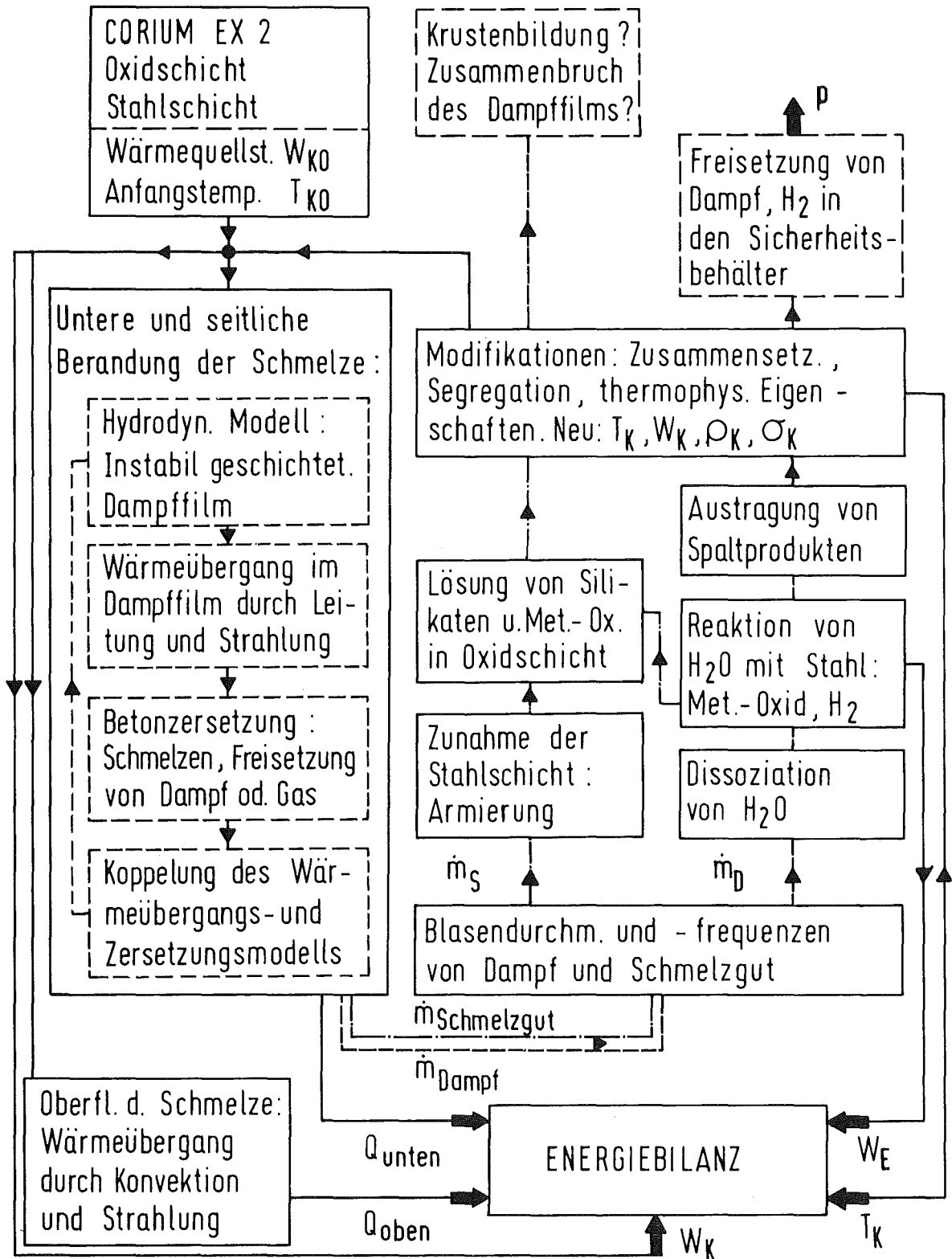
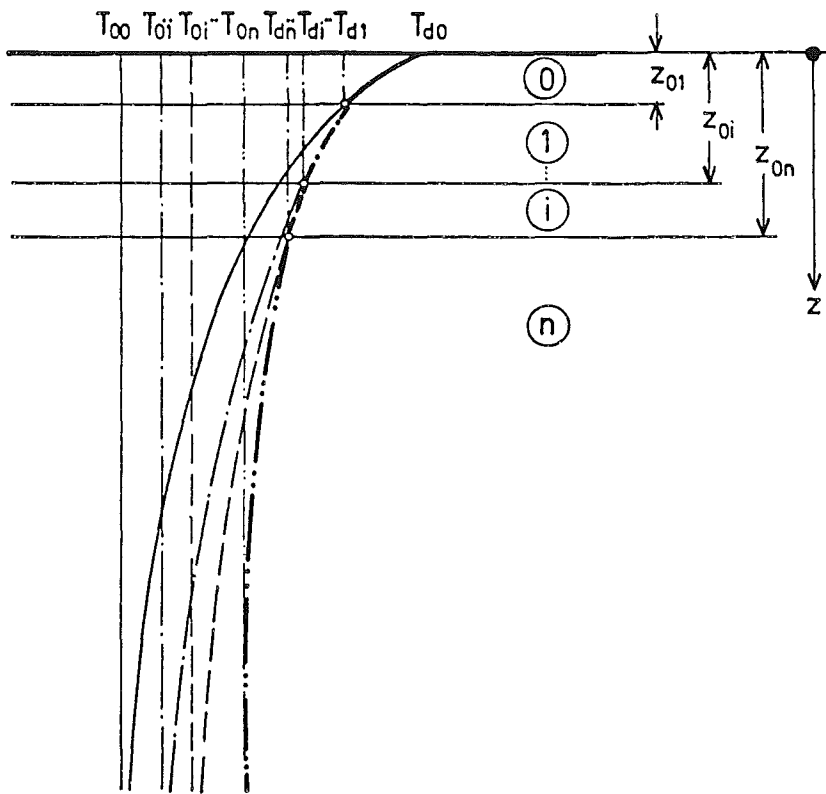


Bild 4247-1 Flußdiagramm zur Beschreibung der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton



QUASISTATIONÄRE ENERGIEGLEICHUNG

$$\xi (\rho c)_{effi} \frac{dT_i}{dz} = k_{effi} \frac{d^2 T_i}{dz^2}$$

RANDBEDINGUNGEN

$$z = 0: \vartheta_0 = T_{d0} - T_{oo};$$

$$(1 - (\sum \psi)_o) \rho_b \xi h_{d0} = Q/A + k_{effo} \left(\frac{\partial T_o}{\partial z} \right)_{z=0}$$

$$z = z_{oi}: \vartheta_{i-1} = T_{di} - T_{oi-1};$$

$$\psi_i \rho_b \xi h_{di} = -k_{effi-1} \left(\frac{\partial T_{i-1}}{\partial z} \right)_{z=z_{oi}} + k_{effi} \left(\frac{\partial T_i}{\partial z} \right)_{z=z_{oi}}$$

$$z = z_{oi}: \vartheta_i = T_{di} - T_{oi};$$

$$z \rightarrow \infty: \vartheta_n = 0$$

LÖSUNG DER QUASISTATIONÄREN ENERGIEGLEICHUNG

$$\vartheta_i = (T_{di} - T_{oi}) \exp \left\{ - \left(\frac{\rho c}{k} \right)_{effi} \xi (z - z_{oi}) \right\}$$

Bild 4247 -2 Ausbildung des Temperaturprofiles im abschmelzenden Beton

$$Q/A = 113.1 \text{ W/cm}^2$$

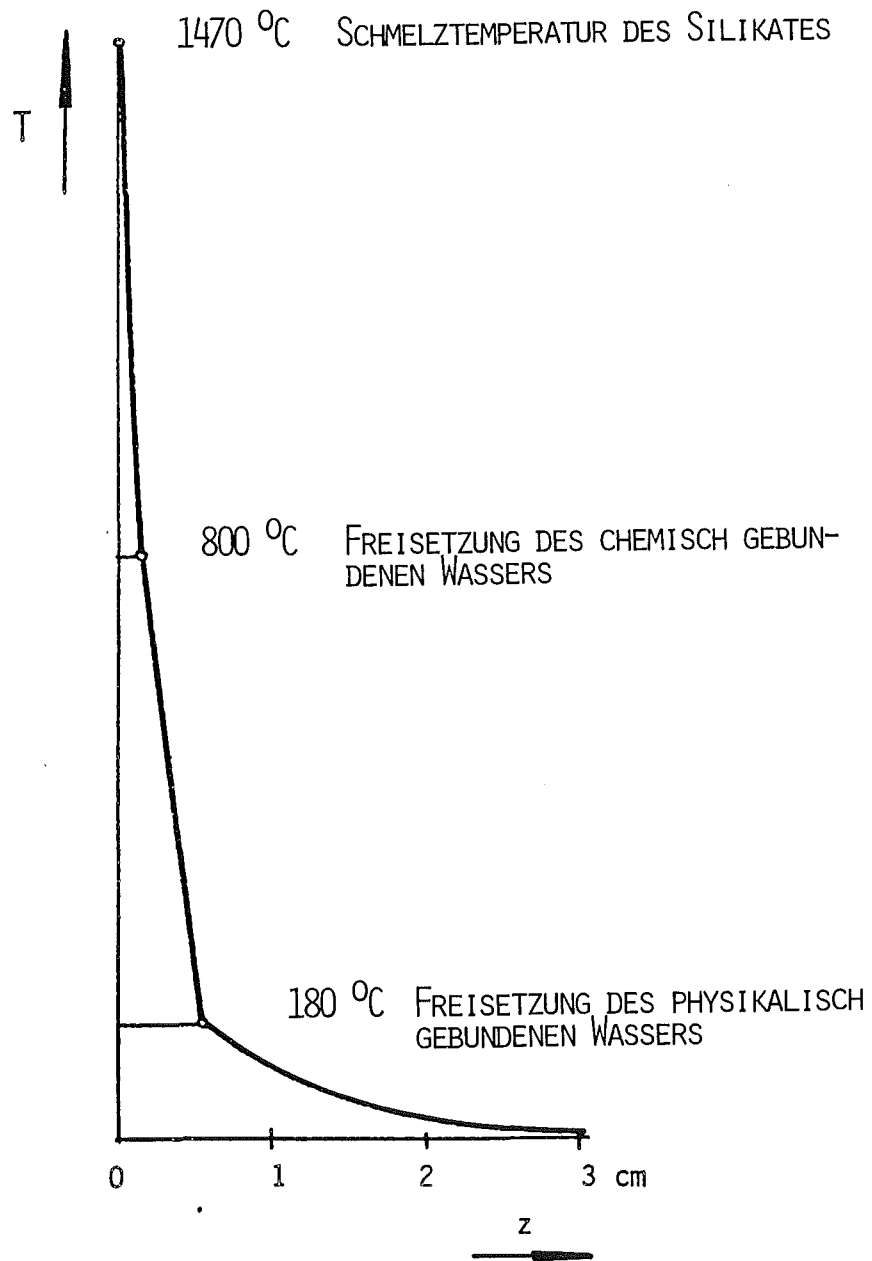


Bild 4247-3 Berechnetes Temperaturprofil in Beton mit silikatischen Zuschlägen unter hoher thermischer Belastung

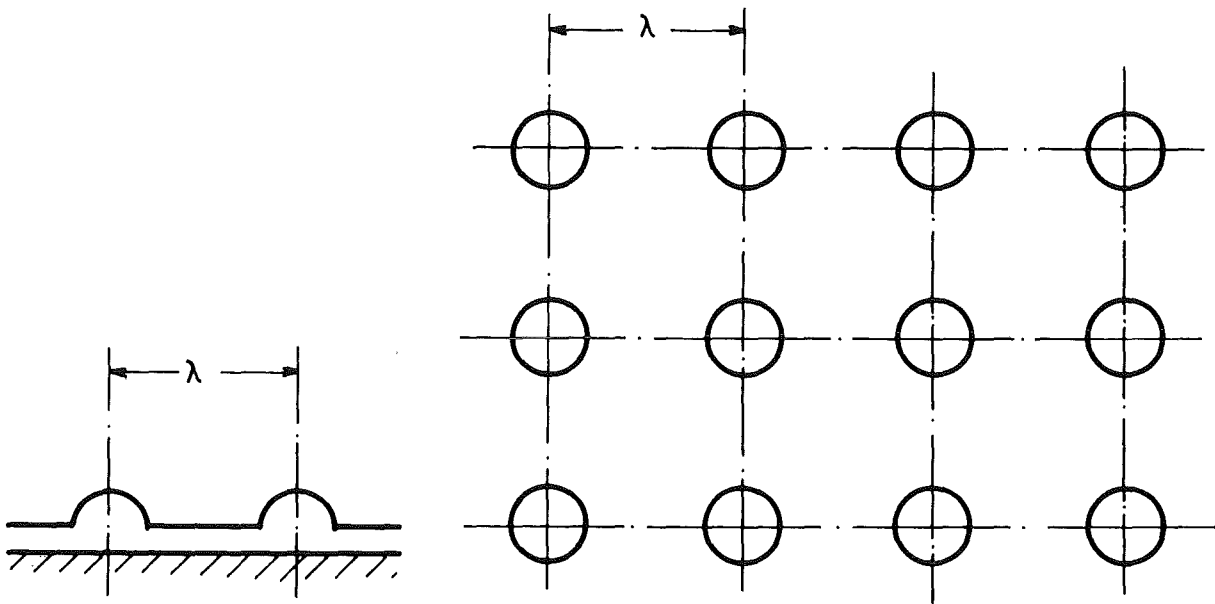


Bild 4247-4 Aufteilung der Blasenbildungsstellen nach der Theorie von Taylor-Helmholtz

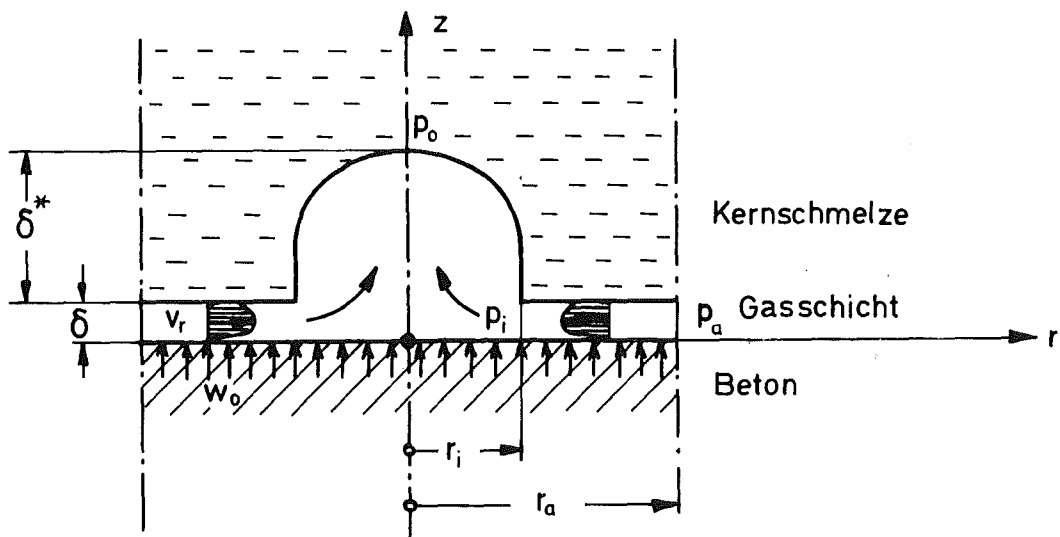


Bild 4247-5 Bildung einer Gasblase

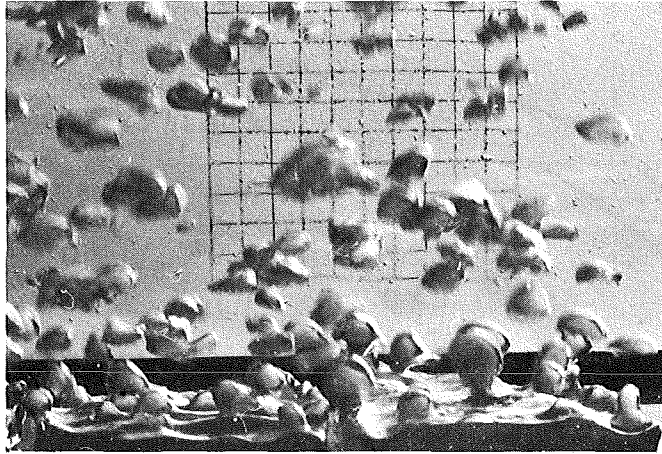


Bild 4247 -6 Sublimierendes Trockeneis unter Wasser

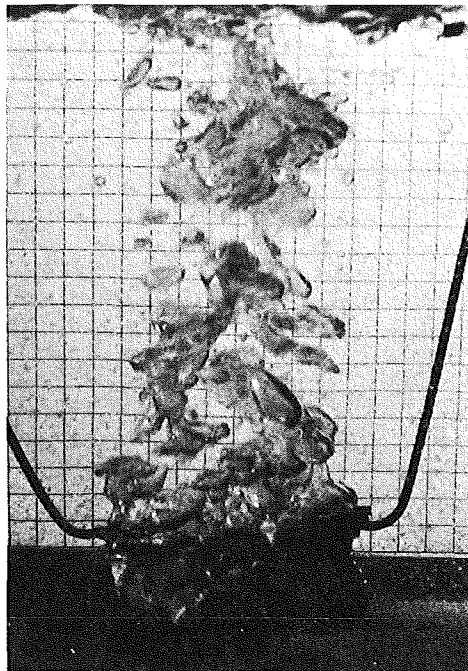


Bild 4247 -7 Gasblasenentwicklung an einem Betonsimulator,
bestehend aus abschmelzendem Xylol mit einge-
lagertem Trockeneis

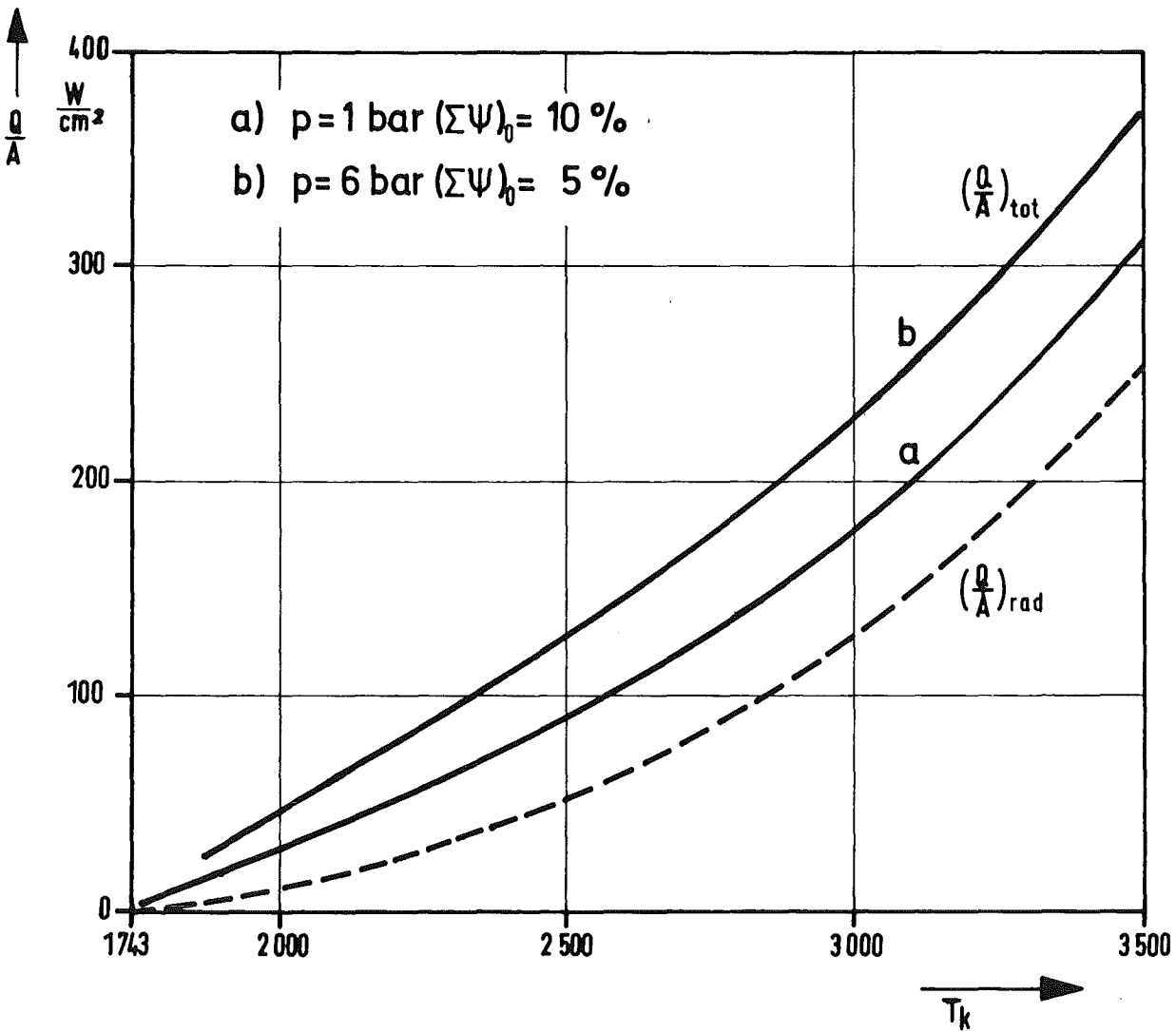
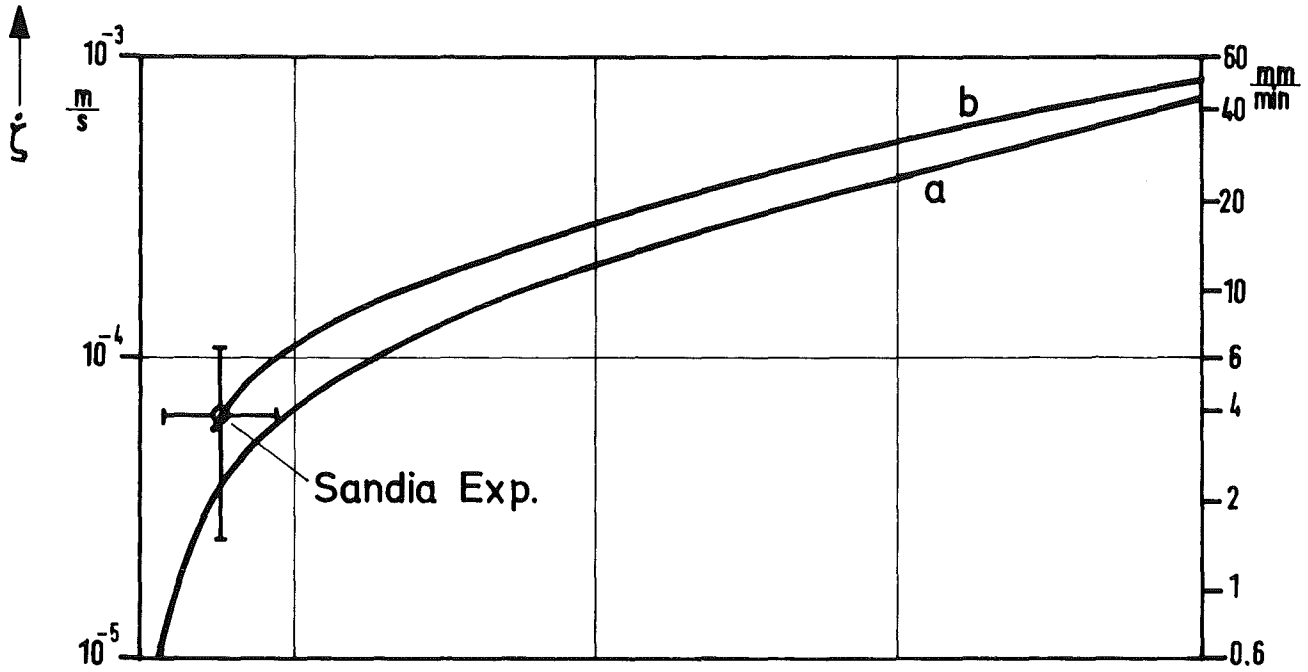


Bild 4247 -8 Abschmelzen einer horizontalen Betonschicht unter flüssigem Stahl: Abschmelzrate und Wärmestromdichte

4300 AUSBREITUNGS- UND REAKTIONSVORGÄNGE VON NUKLEAREN
 SCHADSTOFFEN BEI SCHWEREN STÖRFÄLLEN

4310 Untersuchungen der zeitabhängigen Ausbreitungs- und Reaktions-
 vorgänge von Spaltprodukten und Aerosolen bei schweren Störfällen

4311 Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und
 Aerosolen in LWR-Containments

(H. Bunz, C. Sack, W. Schöck)

Die Vorbereitungen für die ersten Kondensationsexperimente standen im Mittelpunkt der Arbeiten im Berichtszeitraum. Dabei galt es, während der Fertigstellung des Versuchsstandes die zugehörige Peripherie soweit aufzubauen, daß die Endmontage möglichst beschleunigt wird.

Dies ist umso wichtiger geworden, als sich eine erhebliche Überschreitung des Liefertermins für den Versuchsstand ergab.

Auch die Vorausrechnungen der Kondensationsversuche sind soweit fortgeschritten, daß die Ergebnisse beim Beginn der Experimente zum Vergleich vorliegen.

1. Modelltheorie

1.1 Temperaturfunktionen

Schwerpunkt der Arbeiten am NAUA-Code im 1. Halbjahr 1977 war die Einarbeitung von Temperaturfunktionen für die in der bisherigen Code-Version Mod1a konstant angenommenen physikalischen Größen wie Viskosität des Trägergases, Verdampfungswärme usw. Die Aufstellung der Funktionen selbst sowie die Beschaffung der geeigneten Daten wurde bereits im letzten Halbjahresbericht [1] beschrieben. Wie dort bereits vermutet, ergaben die Rechnungen mit der nun vorliegenden Version Mod2 keine großen Abweichungen gegenüber den mit Mod1a berechneten Ergebnissen. Das Beispiel in Abb. 4311-1 wurde mit den Daten des Falls W1 der Sensitivity Studie [2] berechnet, d.h. mit Kondensation am Aerosol.

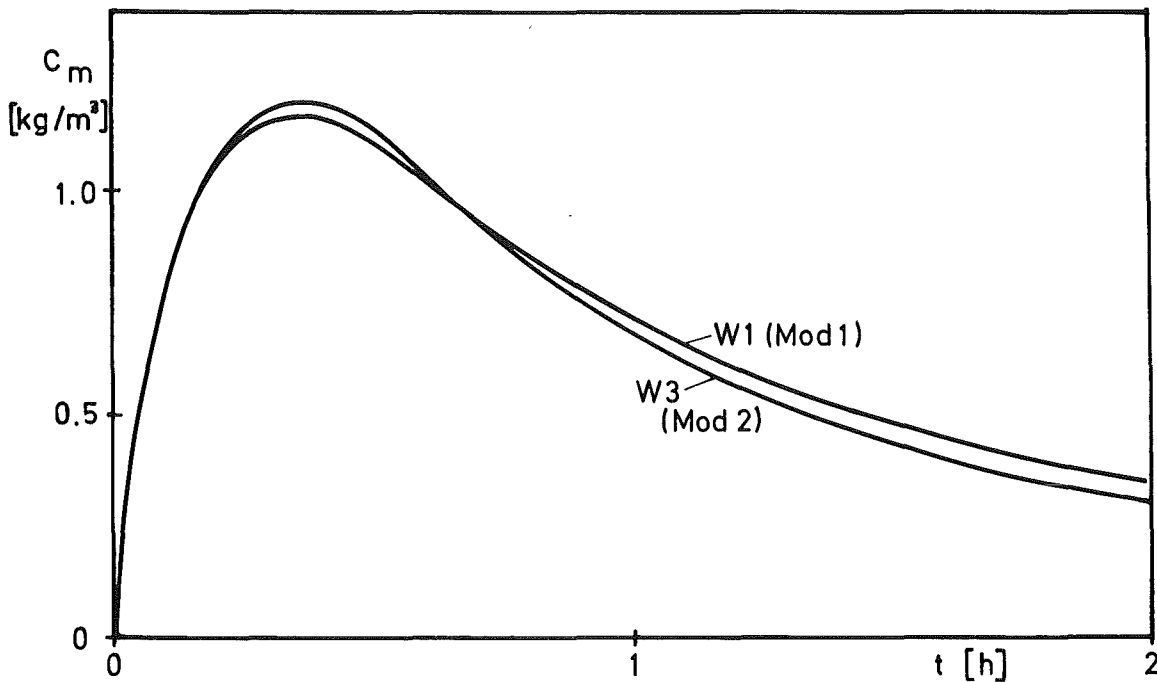


Abb. 4311-1: Vergleich der Modellversion Mod1a und Mod2

Daß die Unterschiede zur bisherigen Version relativ klein sind, liegt hauptsächlich daran, daß die Viskosität des Luft-Wasserdampf-Gemisches, die in alle Aerosolabbauprozesse eingeht, im interessierenden Temperaturbereich nur wenig variiert. Mit Sicherheit aber ist die Wirksamkeit der Temperaturfunktionen kleiner als diejenige der verschiedenen aerosolphysikalischen Partikelparameter.

Die Rechenzeit hat sich durch die Einführung der Temperaturfunktionen nicht erhöht; sie konnte durch Verbesserungen in der Struktur der Unterprogramme sogar leicht reduziert werden.

1.2 Vorausrechnung der Kondensationsexperimente im NAUA-Versuchsstand

Zur Messung der Kondensation von Wasserdampf an Partikeln ist es notwendig, in dem Versuchsvolumen eine genau definierte Übersättigung herzustellen. Im NAUA-Versuchsstand wird dazu die adiabatische Expansion des gesättigten Luft-Wasserdampf-Gemisches benutzt. Dies ist die einzige Methode, die eine über das Volumen homogene Zustandsänderung bewirkt.

Es gilt daher, Druck und Temperatur, insbesondere aber die Wasserdampf-
bilanz in Abhängigkeit von der Expansion zu berechnen. Besonders kritisch
ist dabei die Berücksichtigung der Kondensationswärme. Die bisherigen
Berechnungen waren von einem einfachen $T^{-1/3}$ -Gesetz ausgegangen, wie es
bei der Expansion idealer Gase angewandt werden kann, was aber zu einer
starken Überschätzung des kondensierbaren Wasserdampfes führt.

In dem nun vorliegenden Modell werden schrittweise adiabatische Ex-
pansionen berechnet, wobei genauere Zustandsgleichungen als bisher ver-
wendet werden [3]. Die bei der Kondensation frei werdende latente
Wärme bildet einen Hauptbestandteil der Energiebilanz. D.h. bei ein-
setzender Wasserdampfkondensation wird die adiabatische Abkühlung des
Gasgemisches wesentlich reduziert. Abb. 4311-2 zeigt die Wasserdampf-
bilanz bei der Expansion. Dargestellt ist der Wasserdampfgehalt ϱ_D
und der Gehalt an kondensiertem Dampf ϱ_F (Tröpfchen), wobei die Ordinate
in Einheiten des jeweiligen Sättigungsdampfgehalts ϱ_S geteilt ist. Der
Nullpunkt der Abszisse wurde hier willkürlich bei $\varrho_D + \varrho_F = \varrho_S$ ange-
nommen.

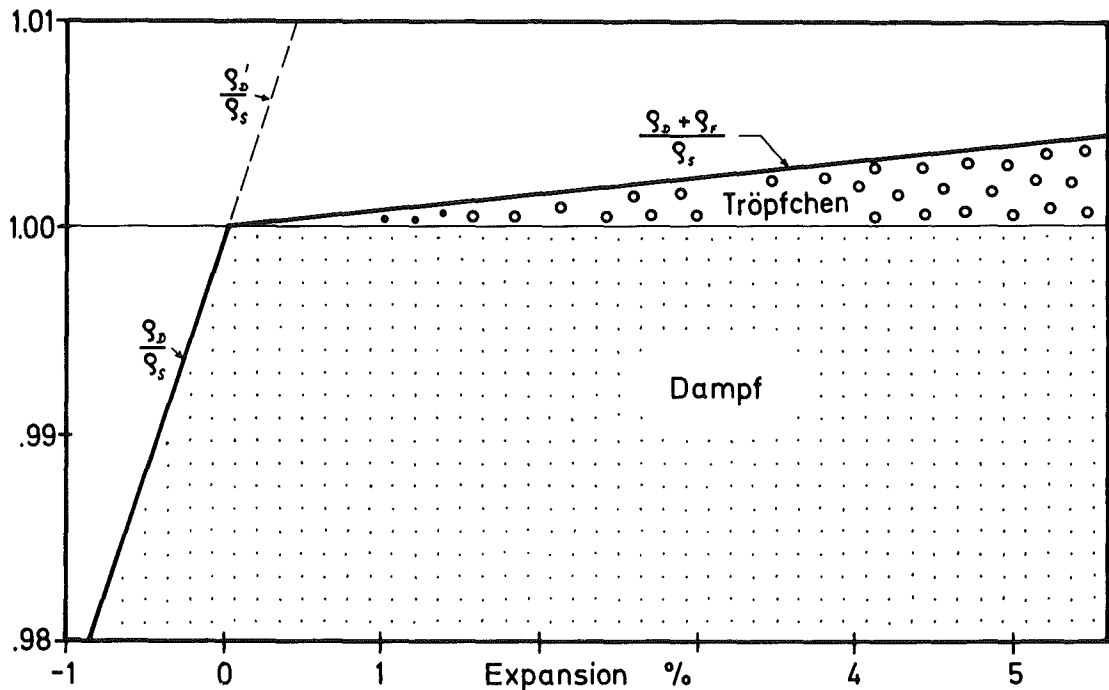


Abb. 4311-2: Wasserdampfbilanz im Bereich des Sättigungspunkts als
Funktion der Expansion des Versuchsvolumens

Im Bereich unterhalb des Sättigungspunkts nimmt φ_D sehr stark zu. Ohne Kondensation, d.h. ohne Aerosol, würde sich diese Kurve auch über den Sättigungspunkt hinaus fortsetzen und zu einer starken Übersättigung φ'_D führen. Die frei werdende Kondensationswärme bei der Kondensation am Aerosol führt jedoch zu einem ausgeprägten Knick in der Kurve, und die tatsächlich kondensierte Wassermenge φ_F ist wesentlich kleiner als die zum selben Expansionswert gehörige Übersättigung ohne Kondensation.

Die Volumenänderung im Versuchsstand beträgt maximal 200 l; das sind 6% des Gesamtvolumens. Die dadurch frei werdende kondensierbare Wasserdampfkonzentration beträgt bei 130°C knapp 10 g/m³. Das ist für genaue Aerosolmessungen bereits zu viel, so daß mit der vorliegenden Expansionsvorrichtung alle Untersuchungsbedingungen zur Wasserdampfkondensation am Aerosol erreicht werden können.

Die Abbildung zeigt aber auch, daß es relativ unkritisch ist, den Sättigungszustand vor der Expansion genau zu erreichen. Infolge des steilen Anstiegs des Dampfgehalts unterhalb des Sättigungspunkts wird der Sättigungszustand sehr schnell erreicht, ohne daß dabei nennenswerte Anteile des Expansionshubs verbraucht werden.

1.3 Vergleich NAUA - CORRAL

Im Februar dieses Jahres wurde uns der Rechencode CORRAL II zugesandt*). Nach Durchführung einiger Änderungen, die notwendig waren, um das Programm an die IBM-Rechenanlage der GfK anzupassen, wurde eine Reihe von Rechnungen zum Vergleich mit dem NAUA-Modell durchgeführt.

Dazu wurde mit CORRAL der Partikelabbau im Containment ohne Sprayeinwirkung nachgerechnet. Das Ergebnis ist in Abb. 4311-3 dargestellt.

Die NAUA-Rechnungen D1, D5 und D6, die mit Anfangsfreisetzungen von 1%, 0,12% bzw. 2,5% vom Core berechnet sind, zeigen die bekannten Unterschiede in den Abbauraten. Es ist hier nochmals hervorzuheben, daß beim Aerosolabbau eine hohe Anfangsfreisetzung keine konservative Annahme

*) CORRAL II ist eine bei Battelle Columbus Laboratories erstellte verbesserte Version von CORRAL

darstellt, sondern daß langfristig gerade hohe Massenkonzentrationen schneller abgebaut werden.

Ähnliche Unterschiede ergeben sich durch den Einfluß der Wasserdampfkondensation. Kurve D1 ist mit Kondensation nur an der Wand, Kurve W1 mit Kondensation nur am Aerosol gerechnet.

Im Gegensatz zu diesen verschiedenen Möglichkeiten des Aerosolverhaltens, wie sie mit NAUA berechnet werden, steht das Ergebnis der Berechnung mit CORRAL. Da CORRAL eine fest vorgegebene Zeitfunktion für den mittleren Partikeldurchmesser benutzt und keine Wechselwirkung der Partikeln berücksichtigt, ergibt sich in allen Fällen die in der Abbildung gestrichelte Abbaukurve.

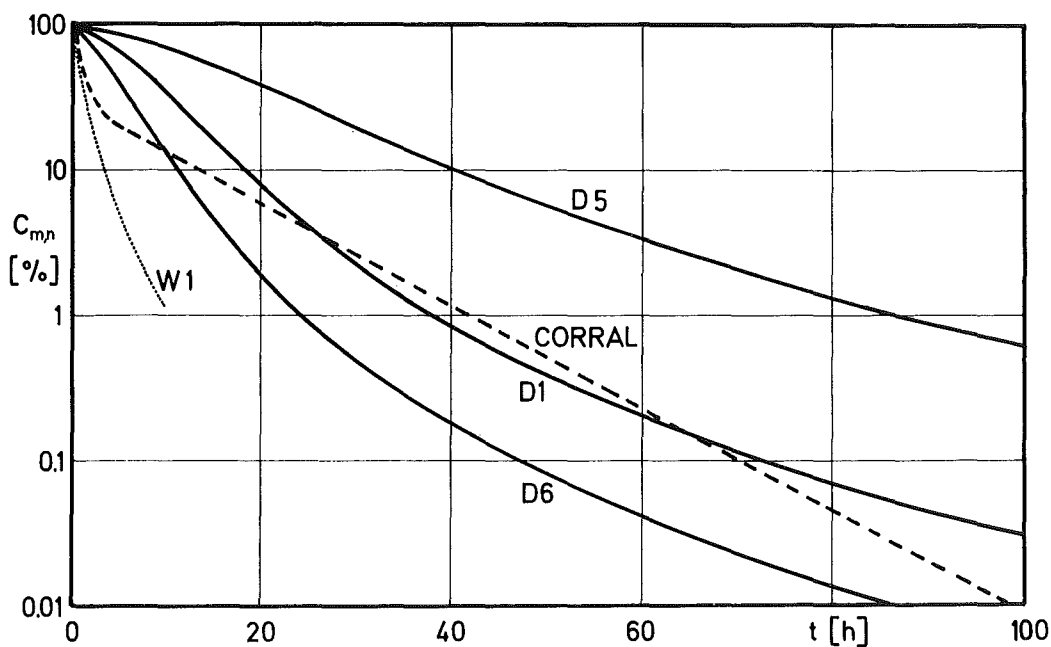


Abb. 4311-3: Normalisierte Massenkonzentration im Containment für verschiedene Fälle. Vergleich NAUA - CORRAL

Es zeigt sich hier wieder sehr deutlich, daß der Aerosolabbau nur mit Berücksichtigung der mikroskopischen Prozesse richtig berechnet werden kann und daß eine empirische Abbaufunktion nicht auf unterschiedliche Fälle angewendet werden darf.

2. Beschreibung der Versuchsanlage

2.1 Versuchsstand

In den vorangegangenen Berichten wurden laufend Verbesserungen in der Konstruktion des Versuchsstandes erwähnt. Nachdem jetzt die Fertigung abgeschlossen ist, kann die endgültige Beschreibung gegeben werden.

Der Versuchsstand besteht aus einem thermostatisierten Edelstahlkessel von 3,4 m³ Volumen. Die Betriebsdaten sind 150°C und 7 bar. Abb. 4311-4 zeigt die Konstruktion des Kessels. Die Flansche (9) im Boden und Deckel sind für Versorgungsanschlüsse erforderlich, während die Flansche auf dem zylindrischen Teil für die Meßinstrumentierung vorgesehen sind. Die untere Reihe von vier Flanschen NW 200 (7) nimmt die optischen Meßgeräte auf, die oberen drei Flansche NW 150 (6) sind für die Messung der thermophysikalischen Daten instrumentiert.

Das Flußschema für die Versorgungsanlagen für Gas, Dampf und Thermostatisierung sind in Abb. 4311-5 dargestellt. Die Thermostatisierung erfolgt durch auf die Kesselwand gewickelte Kupferrohre, die von dem Hauptthermostaten mit dem Wärmeträgeröl gespeist werden. In den Flanschen sind Zusatzrohrwicklungen angebracht, um Kaltstellen zu vermeiden. Diese Hilfskreise werden aus dem Hilfsthermostaten gespeist, der über einen Differenzregler eine gleichbleibende Übertemperatur von ca. 1 Grad gegen den Hauptthermostaten beibehält.

Zur Dampfversorgung ist ein Elektrodampfkessel angeschlossen. Der Dampf wird vor Eintritt in das Versuchsvolumen in einem Wärmetauscher auf die richtige Temperatur abgekühlt.

Der zur adiabatischen Volumenänderung benutzte Kompensator ist innen am Deckel angeschweißt. Die Bedienung erfolgt pneumatisch derart, daß die im Kompensator befindliche Luft in einen Abblasetank strömt. Durch Einstellen des Drucks im Kompensator und im Tank kann der Hub und die Expansionsgeschwindigkeit geregelt werden.

Als Sicherheitseinrichtungen sind Berstscheiben und Sicherheitsventile am Versuchskessel bzw. am Dampfkessel angebracht. Wesentlich wichtiger ist jedoch eine zusätzliche Temperaturbegrenzung der Thermostate bei

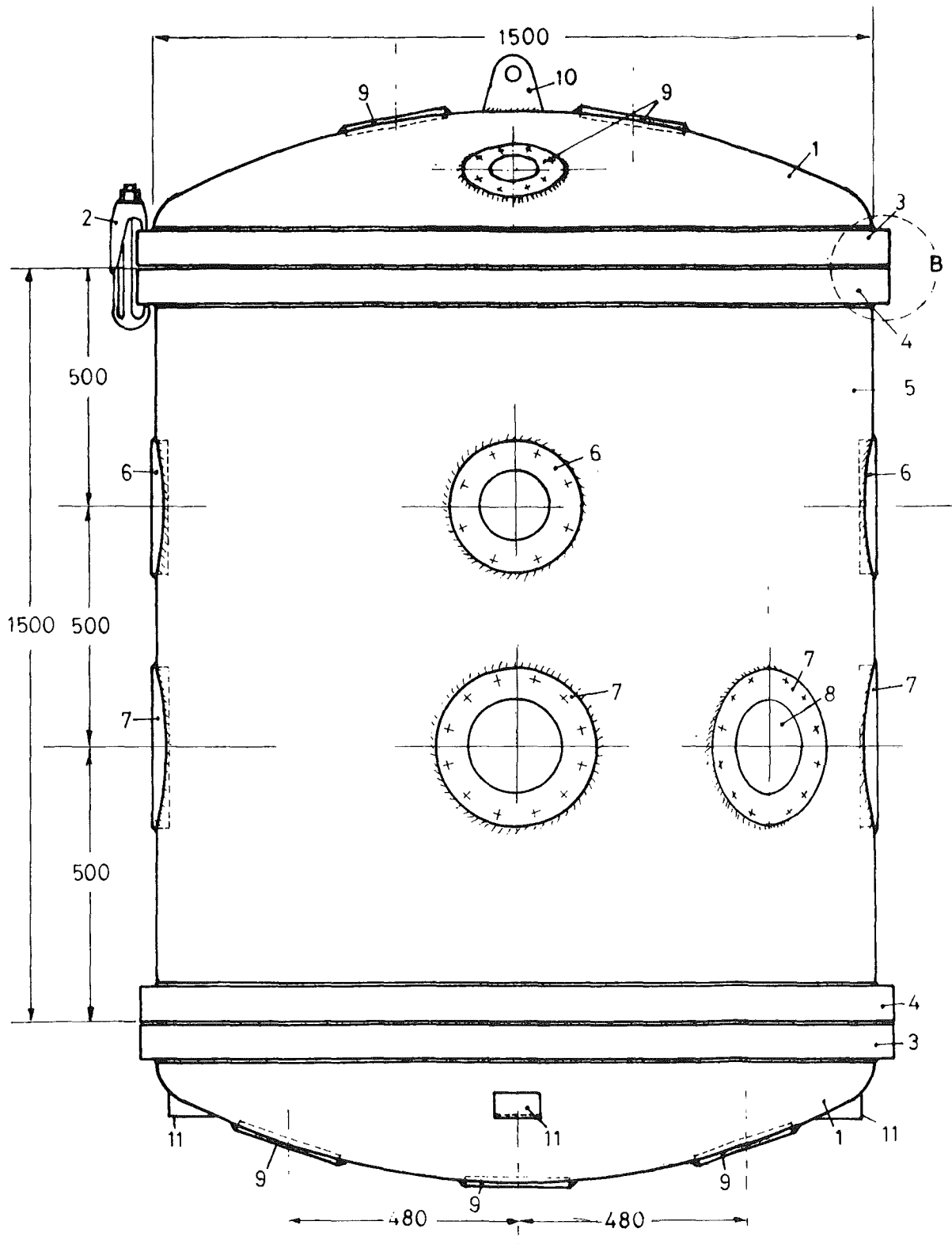


Abb. 4311-4: Konstruktion des NAUA-Versuchsbehälters

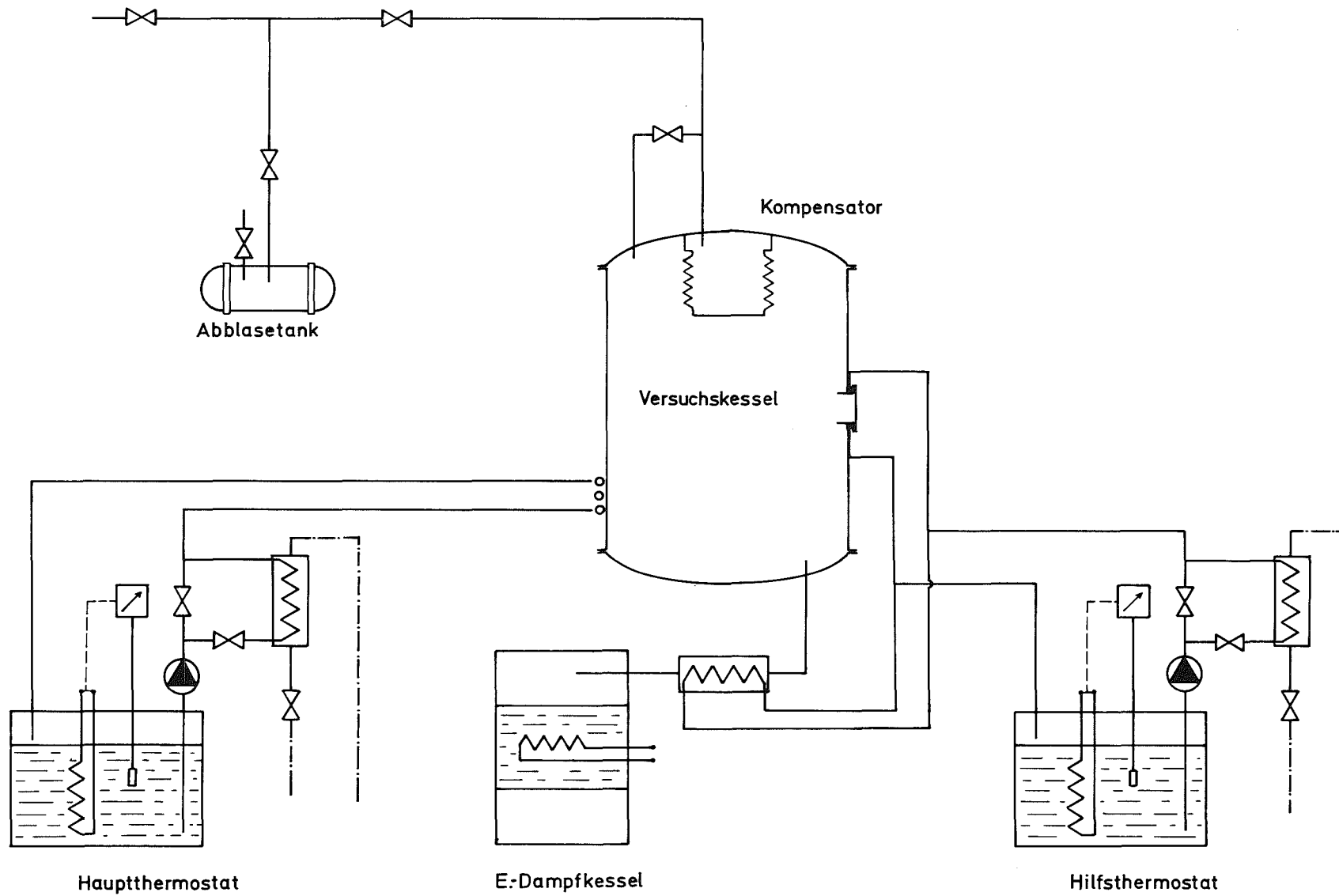


Abb. 4311-5: Flußschema der Versorgungsaggregate

150°C. Solange diese Temperatur nicht überschritten wird, kann auch der Druck im Kessel nicht über den Auslegungsdruck, d.h. den Totaldruck des gesättigten Luft-Wasserdampf-Gemisches hinaus ansteigen.

2.2 Meßtechnik

Die Schwierigkeiten bei der Konzeption der Meßtechnik entstehen ausschließlich dadurch, daß gängige Meßgeräte nicht in der heißen wasserdampfgesättigten Atmosphäre einsetzbar sind, oder aber nicht schnell und genau genug messen. Somit wurde in fast allen Fällen der Einsatz unkonventioneller Methoden erforderlich.

2.2.1 Temperatur

Die Temperaturmessung ist mit einer Ausnahme unproblematisch und erfolgt mit Thermoelementen und Halbleiterfühlern. Außerordentlich schwierig ist dagegen die Messung der Gastemperatur bei der adiabatischen Expansion. Gefordert werden eine hohe Temporaturauflösung von $< 0,1^{\circ}\text{C}$ und eine möglichst hohe Zeitauflösung, die im Zehntelsekundenbereich liegen muß. Diesen Anforderungen genügt kein kommerzielles Gerät. Es existieren lediglich Halbleiterfühler, die eine gute Temporaturauflösung ($\Delta T/T < 10^{-4}$) mit einer akzeptablen Zeitkonstanten von 0,4 s vereinen. Die Zeitauflösung ist für den vorliegenden Verwendungszweck keineswegs optimal, jedoch sind diese Thermistoren mit Abstand die schnellsten verfügbaren Temporaturaufnehmer. Ihr Nachteil ist, daß sie nur für den Einsatz in einer Umgebung mit maximal 70% relativer Feuchte geeignet sind. Bei den NAUA-Experimenten werden sie deshalb mit einem Teflonüberzug versehen, was sich nachteilig auf die Zeitauflösung auswirkt. Der optimale Kompromiß zwischen Meßgeschwindigkeit und Isolation gegen Feuchte wird experimentell ermittelt, wobei eine Reduzierung der Lebensdauer des Aufnehmers zugunsten der Zeitauflösung in Kauf genommen werden muß.

Mehrere Chargen von Thermistoren wurden kalibriert, da die Kennlinien erhebliche Streuungen aufweisen. Als backup-System bei Ausfällen während eines Experimentes ist jeweils ein Cu-Con-Thermoelement vorgesehen. Die Gastemperatur im Kessel wird zwischen Wand und Achse an fünf verschiedenen Stellen gemessen. Dazu sind insgesamt 21 elektrische Durch-

führungen erforderlich, die in der wasserdampfgesättigten Atmosphäre kurzschlußfrei bleiben und außerdem dem Druck und der Temperatur im Versuchsstand standhalten müssen. Es werden keramische Durchführungen mit Kupferseele verwendet, die auf tragenden Stahlrohren sitzen. Die Kupferseele ist mit der Keramik und die Keramik mit dem Stahlrohr verlötet; diese Komponenten nehmen den Druck auf. Teflonhülsen sorgen für die elektrische Isolation. Die Stahlrohre sind in einem der Flansche NW 150 am Kessel verschweißt.

Die Thermistoren werden aus einer gemeinsamen Spannungsversorgung gespeist; die Versorgungsspannung wird mit den Meßdaten zusammen registriert, um Langzeitschwankungen berücksichtigen zu können.

Bei den Thermoelementen wird die Thermospannung direkt gemessen.

2.2.2 Druck

Die Druckmessung erfolgt konventionell mit DMS-Aufnehmern. Die Aufnehmer sind kommerziell, ebenso das Versorgungsgerät. Diese Druckmessung dient ausschließlich der Kontrolle und Überwachung, da sie relativ ungenau ist. Die Aufnehmer befinden sich am Hauptvolumen, am Kompensator und am Abblasetank.

2.2.3 Wasserdampfgehalt

Zur Messung des Wasserdampfgehaltes bei der adiabatischen Expansion und Kondensation wird eine Methode mit einer ebenso hohen Auflösung wie bei der Temperaturmessung benötigt. Das verwendete Kapazitätsmanometer besitzt eine totale Genauigkeit von $< 10^{-4}$ und eine sehr hohe Zeitauf-
lösung. Mit diesem Manometer können je nach der Einsatzmethode als Absolut- oder Differenzdruckmesser alle benötigten Total- oder Partialdrücke gemessen werden. Mit dem Wasserdampfpartialdruck als Meßgröße ist dann der gesuchte Wasserdampfgehalt leicht auszurechnen.

2.2.4 Aerosol

Über das Tröpfchengrößenspektrometer wurde bereits berichtet. Für die Messung des Tröpfchenwachstums bei der Expansion wird außerdem eine photometrische Messung am Tröpfchenkollektiv durchgeführt, die eine größere Empfindlichkeit als die Messung an Einzeltröpfchen besitzt. Dabei wird die Lichtstreuung und -Extinktion gleichzeitig gemessen.

Die Zeitauflösung dieser optischen Messungen ist wesentlich größer als die aller anderen eingesetzten Meßmethoden, so daß hierfür eine vom allgemeinen Datenerfassungssystem abgetrennte Registrierung der Daten vorgenommen werden muß. Die Meßsignale sowohl des Tröpfchengrößenspektrometers als auch des Photometers werden daher mit einem Vielkanalanalysator erfaßt und über eine separate Lochstreifenstanze ausgegeben.

2.3 Datenerfassung

Wegen der großen Zahl und der erheblichen Unterschiedlichkeit der zu messenden Daten mußte das Datenerfassungssystem besonders sorgfältig geplant werden und eine genügende Flexibilität für unvorhergesehene Modifikationen besitzen. Ein Prozeßrechner, der diese Eigenschaften prinzipiell besitzt, scheidet aus Kostengründen aus. Ein weiteres Argument gegen einen Prozeßrechner ist, daß ausnahmslos alle Meßwerte über zumeist komplizierte Kalibrierfunktionen in die physikalischen Meßgrößen umgerechnet werden müssen. Dies gilt insbesondere für die schnelle Gastemperatur. Für solche Rechnungen ist ein Prozeßrechner wiederum zu langsam und zu umständlich zu programmieren; solche Rechnungen werden rationeller an der Rechenanlage der ADI durchgeführt. Aus diesen Gründen wurde unter Verzicht auf maschinelle Prozeßsteuerung einem freilaufenden Datenerfassungssystem der Vorzug gegeben. Die Prozeßsteuerung bleibt in der Hand des Bedienungspersonals, wobei allerdings die Entscheidungen weitgehend vom Meßsystem indiziert werden.

Das verwendete Datenerfassungssystem besitzt eine für alle Aufgaben ausreichende Flexibilität. Wesentliche Merkmale sind:

- programmierbares Digitalvoltmeter
- 64 Linearisierungsprogramme (32 davon frei wählbar)
- individuelle Kanalprogrammierung
- zwei verschiedene Meßprogramme pro Kanal
- zwei unabhängige Abtastprogramme
- Grenzwert- und Alarmgeber
- zwei unabhängige Ausgabegruppen mit Halbleiterzwischenpeicher von 4 K-bytes Kapazität

Die Vielfalt der Programmiermöglichkeiten erlaubt es, allen Betriebsarten des Versuchsprogramms gerechtzuwerden. Für die zuerst durchzuführenden Kondensationsversuche ist folgende Funktionsart vorgesehen.

In der Aufheizphase des Versuchsstands (über Nacht) und während der unmittelbaren Vorbereitung des Experiments fragt das Datenerfassungssystem alle Meßwerte in angemessenen Zeitintervallen ab und gibt sie auf Lochstreifen aus. Die Daten, die Grenzwerte überschreiten, lösen einen Alarm aus und werden zusätzlich im Klartext ausgedruckt.

Während des eigentlichen Expansionsexperiments, das maximal 10 s dauert, werden die schnellen Meßwerte Gasvolumen, Gastemperatur, Wasserdampfpartialdruck und optische Meßsignale zusätzlich zu den anderen langsamen Daten, jedoch unabhängig davon und mit der höchstmöglichen Geschwindigkeit registriert. In diesem Fall übernimmt das Datenerfassungssystem auch die Steuerung für alle notwendigen Abläufe, die von Hand zeitlich nur ungenau gestartet werden könnten.

Nach erfolgter Expansion und Kondensation ist eine Erholungsphase notwendig, während der sich das Temperaturgleichgewicht im Versuchsstand einstellt und die Pufferspeicher im Datenerfassungssystem leergeschrieben werden. Anschließend kann ein weiterer Versuch durchgeführt oder der Versuchsstand abgefahren werden. Im letzten Fall arbeitet das Datenerfassungssystem wie in der Aufheizphase.

Literatur:

- [1] H. Bunz et al., Untersuchungen zur Wechselwirkung von Spaltprodukten und Aerosolen in LWR-Containments. Projekt Nukleare Sicherheit, Halbjahresbericht 1976/2, KFK 2435 (1977)
- [2] G. Haury, W. Schöck, Parameterrechnungen mit dem NAUA-Modell, (1976) unveröffentlicht
- [3] VDI-Wasserdampfatafeln, VDI Hrsg., 7. Auflage, Berlin 1968

4320 Theoretische und experimentelle Untersuchungen der Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole.

(H. Dilger, J. Hiller, W. Hübschmann, K. Nester, H. Schüttelkopf, P. Thomas, S. Vogt, ASS)

Im Rahmen des übergeordneten Zieles der Entwicklung von Modellen zur Berechnung von Strahlendosen nach einem angenommenen Störfall wurden folgende Einzeluntersuchungen durchgeführt: Ausbreitungsversuche (Abschnitt 1), Einfluß der Bodenrauigkeit auf die Ausbreitungsparameter (Abschnitt 2), Tetraonflüge (Abschnitt 3), Feldmessungen (Abschnitt 4), statistische Analyse gemessener meteorologischer Daten (Abschnitt 5).

1. Ausbreitungsversuche

1.1 Durchführung der Versuche

(J. Hiller, H. Schüttelkopf, P. Thomas)

Im 1. Halbjahr 1977 wurden die fünf in Tab. 4320-1 angegebenen Ausbreitungsversuche durchgeführt. Bei allen Versuchen wurden simultan die Tracer CBr_2F_2 in 60 m und $CFC1_3$ in 100 m Höhe von Plattformen des meteorologischen Mastes freigesetzt und ihre Konzentrationsverteilung in zwei Sammelperioden à 30 min Dauer bestimmt. Die Probenahme erfolgte jeweils automatisch an mehr als 55 Positionen. Die Entfernungen der Probenahmestellen zur Quelle betragen zwischen 0,1 und 11 km.

Tab. 4320-1 Durchgeführte Ausbreitungsversuche

Laufende Nr.	Datum	Probenahmezeit	Kategorie
44	18.1.	19.30 - 20.30	D
45	25.2.	14.10 - 15.10	D
46	15.3.	20.00 - 21.00	E/F
47	20.4.	14.00 - 15.00	A
48	24.5.	21.00 - 22.00	D

1.2 Ermittelte Ausbreitungsparameter

(P. Thomas)

Die aus den bisher durchgeführten Versuchen ermittelten Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z sind in den Abb. 4320-1 und -2 getrennt für die Emissionshöhen 60 m und 100 m dargestellt. Versuche, während denen die gleiche Ausbreitungskategorie herrschte, sind gemittelt zusammengefaßt:

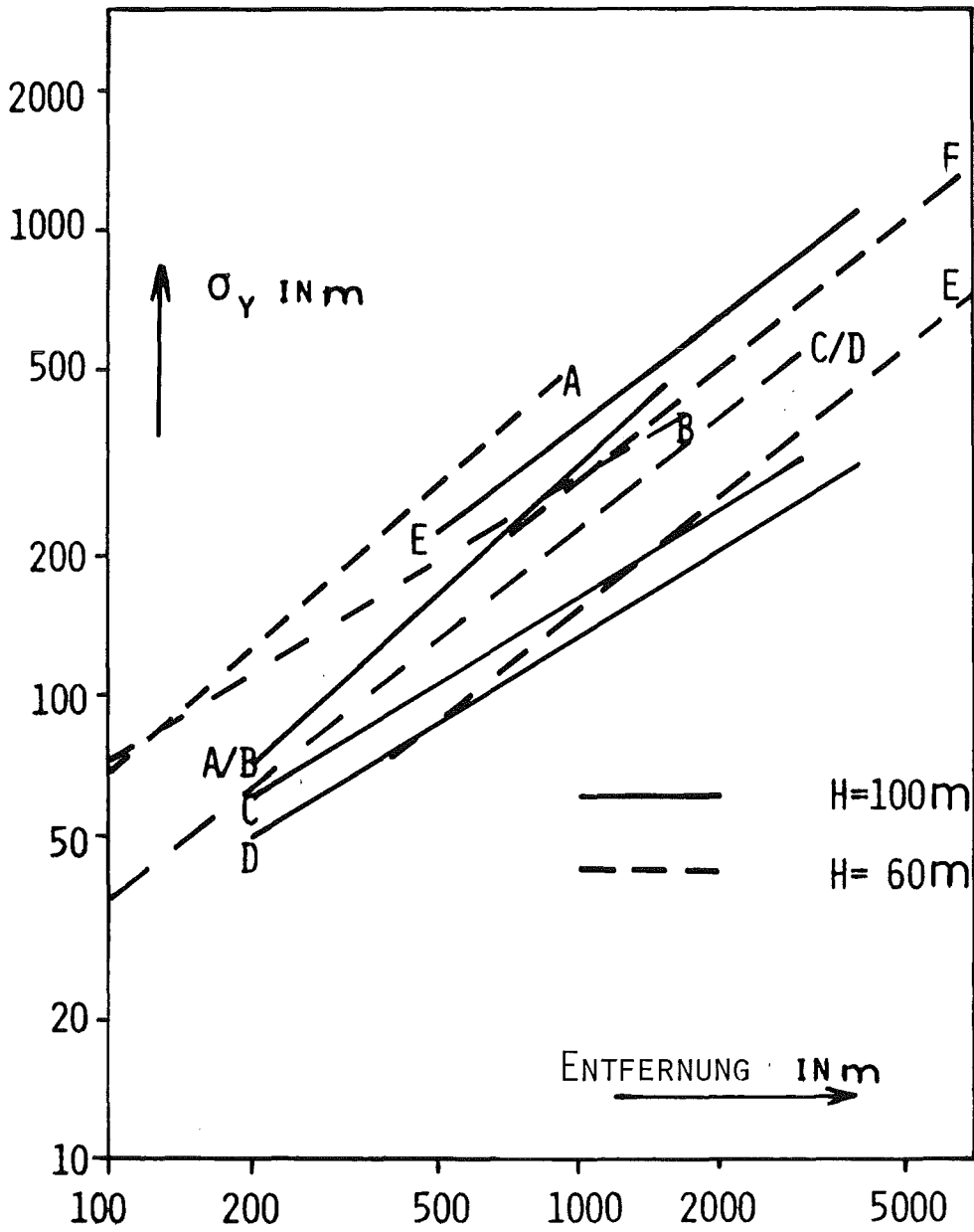
Die zusammengefaßten Ausbreitungsparameter können im Falle der Kategorien A und D allerdings nicht als mittlere oder häufigste Parameter dieser Kategorie angesehen werden. Dazu liegen in der Kategorie A in statistischer Hinsicht zu wenige Versuche vor. In der Kategorie D decken sie den Turbulenzbereich nicht gleichmäßig ab. Die meisten D-Versuche waren am Tage bei relativ hoher Turbulenz durchgeführt worden. Nächtliche D-Lagen, mit relativ niedriger Turbulenz, sind in diesen σ -Kurven nicht berücksichtigt. Liegen die zusammengefaßten σ -Kurven benachbarter Kategorien im Vergleich zu den Fehlerbreiten der σ -Kurven der Einzelversuche dicht beieinander, so wurden die Versuche dieser beiden Kategorien zusammengefaßt, z.B. Kategorie A und B in Abb. 4320-1.

Bei F-Versuchen mit 100 m Emissionshöhe lagen die Konzentrationswerte nur an wenigen Sammelstellen über der Nachweisgrenze. Eine Auswertung dieser Versuche ist nicht möglich.

2. Der Einfluß der Bodenrauigkeit auf die Ausbreitungsparameter

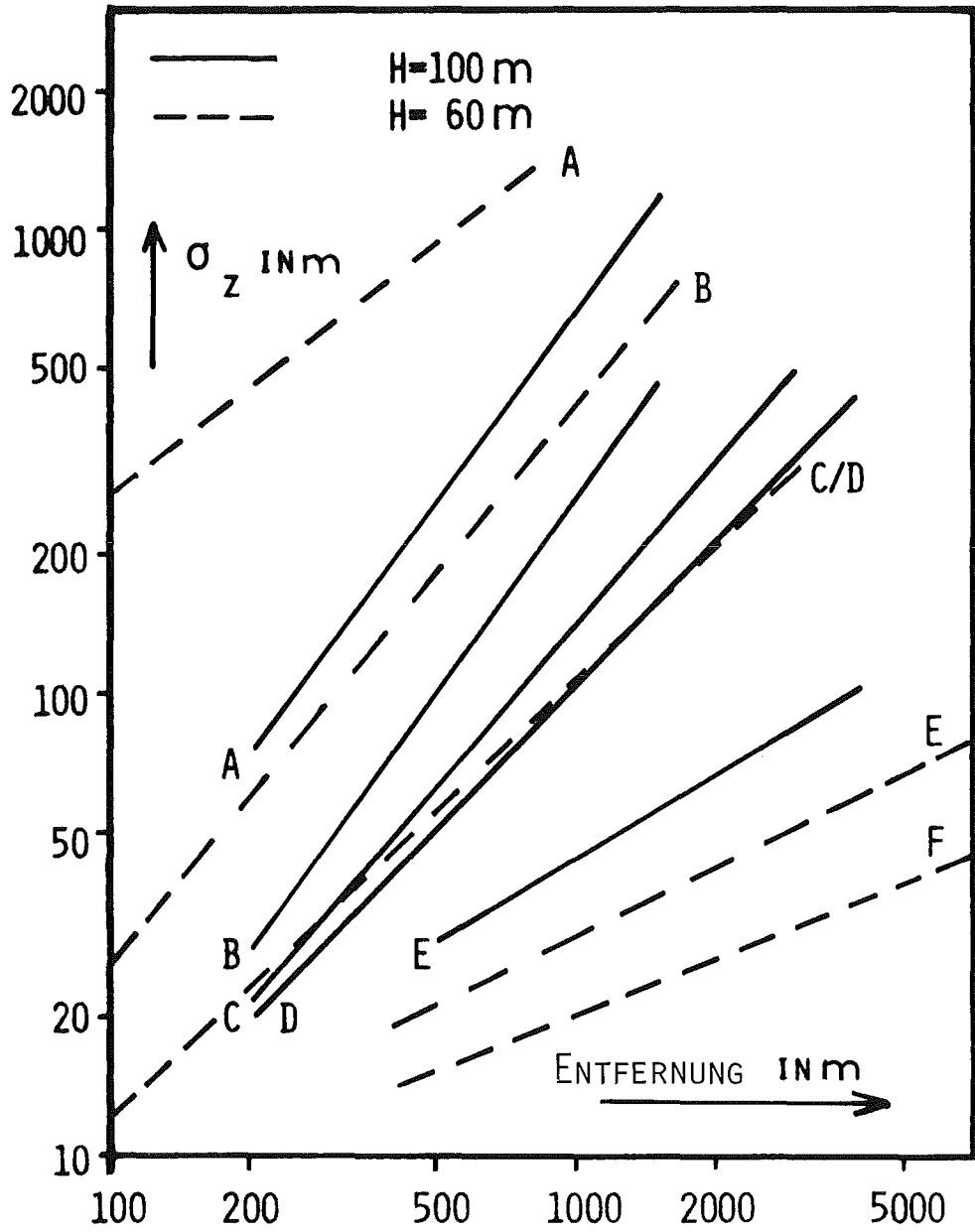
(K. Nester)

Um die in Karlsruhe experimentell bestimmten Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z an Standorten mit unterschiedlicher Bodenrauigkeit verwenden zu können, ist eine Transformation dieser Parameter auf andere Rauigkeiten erforderlich. Diese Transformation erfolgt durch eine Änderung der Kategorienzuordnung in den experimentell bestimmten Kurvenscharen σ_y und σ_z (Basiskurvenscharen). Das bereits früher entwickelte, von den Pasquill-Gifford'schen Ausbreitungsparametern ausgehende Transformationsverfahren / 1 / wird durch die Einbeziehung der Austauschlängen modifiziert. Dieses modifizierte Verfahren setzt voraus, daß die σ -Parameter sich als Potenzfunktion der Entfernung darstellen lassen.



GfK

ABB. 4320-1 GEMITTELTE HORIZONTALE AUSBREITUNGSPARAMETER σ_Y



GfK

ABB. 4320-2 GEMITTELTE VERTIKALE AUSBREITUNGSPARAMETER σ_z

Als Basiskurvenschar für σ_z wird die am Kernforschungszentrum in Karlsruhe für eine Quellhöhe von 100 m Höhe und eine Rauigkeitslänge von $z_0 = 1,5$ m geltende Kurvenschar verwendet. Das Verfahren ist in / 2 / beschrieben.

Das Ergebnis der Transformation des Ausbreitungsparameters σ_z auf $z_0 = 0,3$ m im Vergleich zur Basiskurvenschar ist in Abb. 4320-3 dargestellt. Wie erwartet, ist die Verschiebung in den Kategorien B, C, D am größten und bei Kategorie E am kleinsten.

Der Ausbreitungsparameter σ_y wird nicht nur von der Stabilität und der Rauigkeit sondern auch von Drehungen der Windrichtung und der Struktur der Grenzfläche bestimmt.

Bei stärkeren Winddrehungen während eines Experiments war eine Auswertung der Meßergebnisse durch Anpassung einer Gaußverteilung nicht möglich, so daß diese Fälle nicht in den Ergebnissen enthalten sind. Bei den nächtlichen Versuchen (Kategorien E und F) spielt der Einfluß der Rauigkeit auf σ_y gegenüber anderen Effekten eine untergeordnete Rolle. Rauigkeitskorrekturen an den σ_y -Kurven für diese Kategorien sind deshalb nicht erforderlich.

Die Berücksichtigung des Einflusses der Oberflächenstruktur erfolgt durch das Einführen des additiven Terms σ_t^2 , s. Gleichung (1).

$$(1) \quad \sigma_y^2 = \sigma_t^2 + \sigma_{y0}^2 x^{2p_y}$$

Die ursprünglichen σ_y -Kurven, die den Term σ_t^2 nicht enthalten, werden entsprechend modifiziert. Der zweite Term des modifizierten Ansatzes ist wieder eine Potenzfunktion, auf die sich nun die Rauigkeitstransformation anwenden läßt. Die Modifikation der ursprünglichen σ_y -Kurven und die Transformation für σ_y sind ebenfalls in / 2 / beschrieben.

Das Ergebnis der Transformation für $z_0 = 0,3$ m ist im Vergleich zu $z_0 = 1,5$ m in Abbildung 4312-4 wiedergegeben. Die Verschiebung entspricht etwa der Differenz zwischen den Kategorien. Für die meteorologischen Bedingungen von Karlsruhe vermindert sich das Maximum der Konzentration im Jahresmittel aufgrund der kleineren Ausbreitungsparameter bei einer Rauigkeitslänge von 0,3 m gegenüber dem

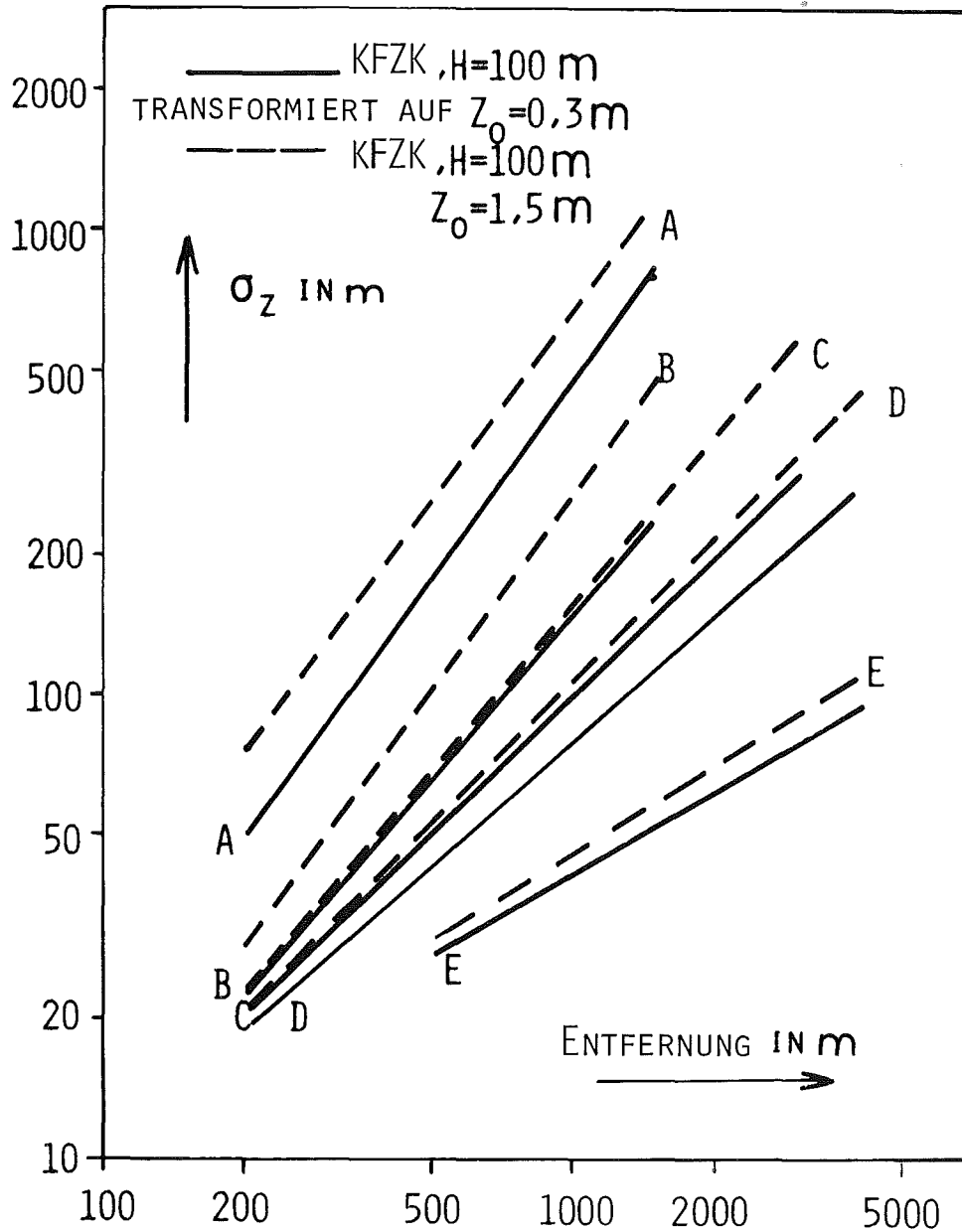


ABB. 4320-3 VERGLEICH DES AUSBREITUNGSPARAMETERS σ_z FÜR $Z_0 = 1,5\text{ m}$ UND $Z_0 = 0,3\text{ m}$

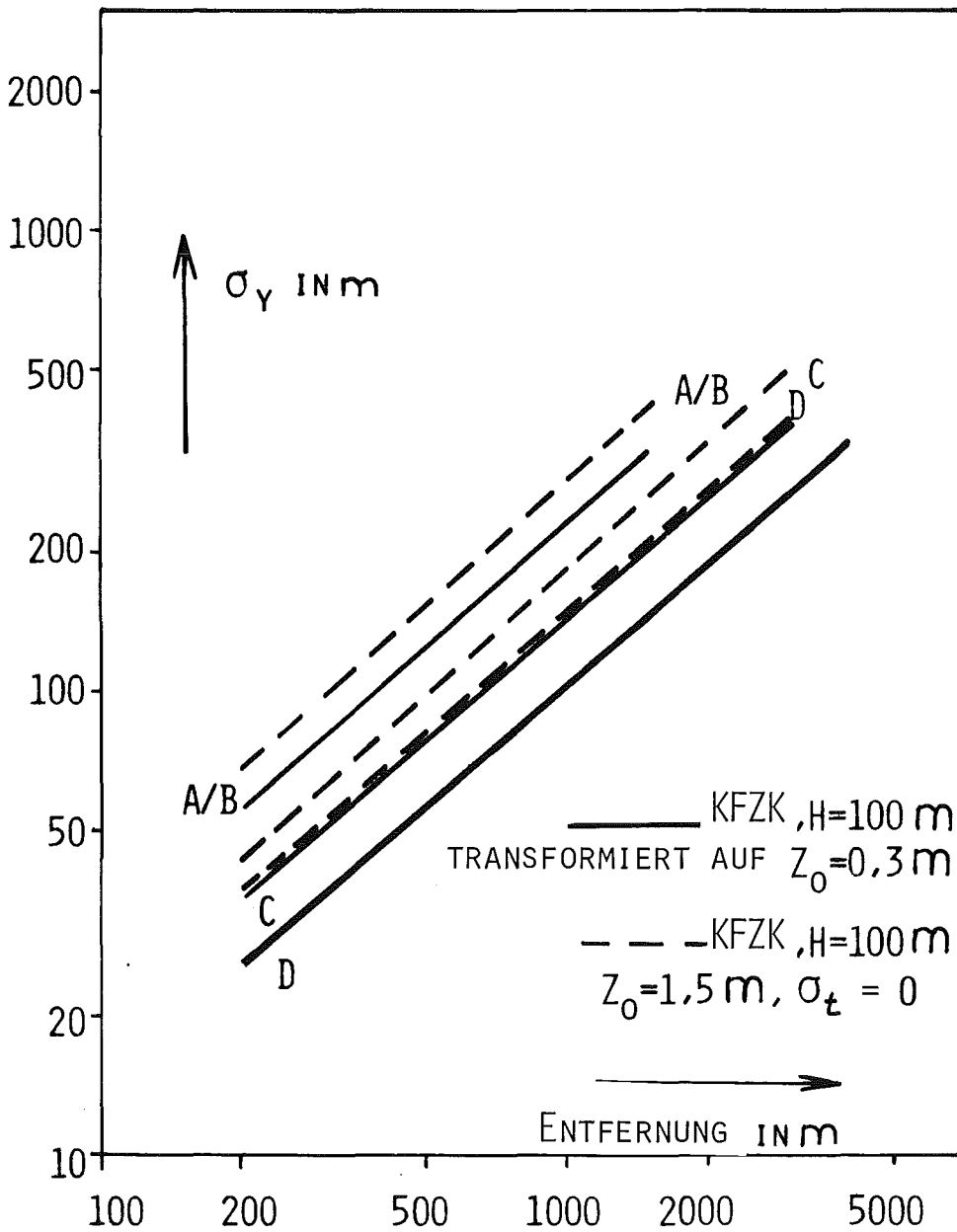


ABB. 4320-4 VERGLEICH DES AUSBREITUNGSPARAMETERS σ_Y FÜR $Z_0 = 1,5$ m UND $Z_0 = 0,3$ m

Wert bei einer Rauigkeitslänge von 1,5 m etwa um den Faktor 1,5.

Literatur:

- / 1/ K. Nester: Abschätzung des Einflusses der Rauigkeit auf die Diffusionsparameter für verschiedene Stabilitätszustände der Atmosphäre, Staub-Reinhaltung der Luft, 36, 1976, Nr. 9

- / 2/ K. Nester, W. G. Hübschmann, P. Thomas: The Influence of Ground Roughness on Atmospheric Diffusion; Proceedings of the 4th Int. Clean Air Congress, Tokyo, May 1977

3. Ausbreitung von Schadstoffen im Mesoscale

3.1 Tetroonortung mit Hilfe des WF3-Radars

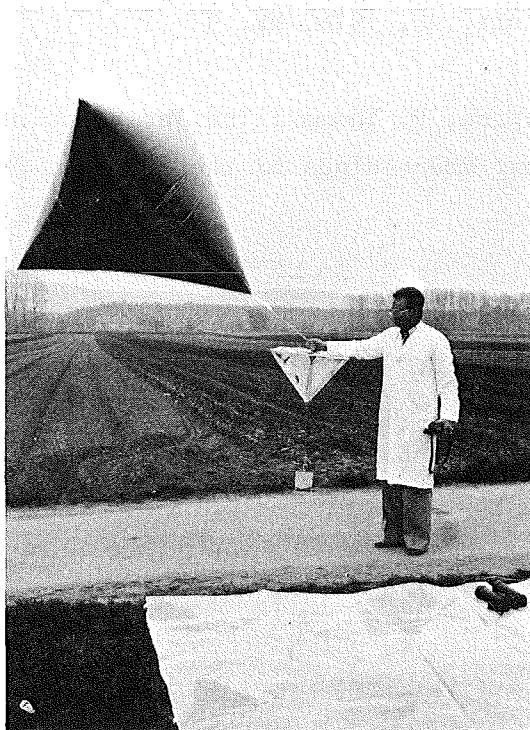
(P. Thomas, S. Vogt)

Über die Methode, mittels radarverfolgter Tetroonflüge die Ausbreitung von Schadstoffen im Mesoscale (10 - 100 km) zu untersuchen, wurde in den PNS-Halbjahresberichten 1976/I, KFK 2375 und 1976/II, KFK 2345 berichtet.

In Zusammenarbeit mit dem Meteorologischen Institut der Universität Karlsruhe (MIK) wurden am 24. 2. 1977 in der Nähe des KKW Philippsburg zwei Tetroonflüge durchgeführt. Diese ersten Tetroonflüge dienten dazu, Erfahrungen mit der Experimentiertechnik zu sammeln und die Reichweite des WF3-Radars zu testen. Außerdem wurden die Bahndaten gesammelt, um Eingabedaten für die noch zu erstellenden Auswerteprogramme zu erhalten. An den Tetroons hingen zwecks besserer Radarortung etwa 175 g schwere Aluminiumreflektoren (Abb. 4320-5).

Beim ersten Flug wurde die eingestellte Flughöhe von 750 m nach ca. 16 min erreicht. Der Tetroon stieg aber weiter und erreichte in der 42. Minute seine maximale Höhe von 1030 m. Danach stellte sich die Flughöhe bei etwa 900 m ein. Bei der Berechnung des Ballastes werden Temperaturen und Druck im gewünschten Flugniveau aus Bodenwerten extrapoliert. Das erklärt die Differenz zwischen theoretischer und praktischer Flughöhe. Beim zweiten Flug pendelte sich der Tetroon bei etwa 450 m ein.

Abb. 4320-5 Tetroon vor dem Start



Bei den Flügen verlief die Flugbahn vor Erreichen des eingestellten Flugniveaus nicht gleichmäßig ansteigend, sondern der Tetroon sank zeitweilig ab oder stieg deutlich langsamer an. Dies ist weitgehend auf den Untergrund zurückzuführen, wie die Abb. 4320-6 zeigt. Sobald sich der Tetroon dem Rhein näherte und ihn überflog, geriet er in Gebiete, in denen negative Vertikalgeschwindigkeiten vorherrschten. Der Vergleich beider Flugbahnen zeigt die starke Windrichtungsscherung in der unteren Luftschicht. Während am Erdboden Ostwind herrschte, drehte der Wind mit zunehmende Höhe auf Süd und erreichte in 700 m Höhe SSW. Über eine Höhendifferenz von 700 m lag eine Scherung von über 120° vor.

Das Radar verlor den ersten Tetroon nach 47 Minuten. Der Höhenwinkel betrug dabei $2,7^{\circ}$, die Schrägentfernung 19 km. Die Verfolgung des zweiten Tetroons wurde nach 30 Minuten abgebrochen. Der Höhenwinkel betrug zu diesem Zeitpunkt $3,9^{\circ}$, die Schrägentfernung 5,0 km.

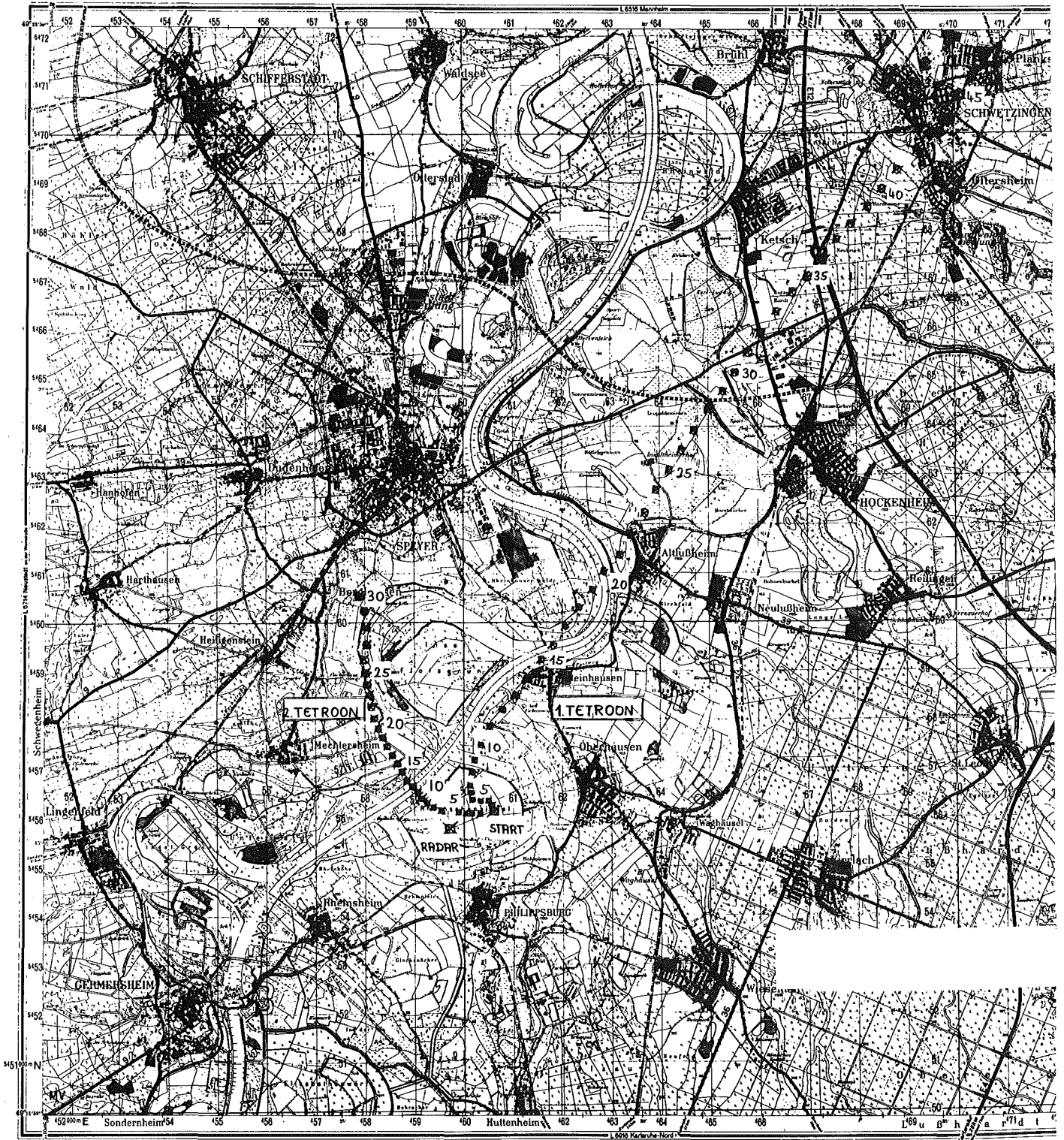


ABB. 4320-6 FLUGVERLAUF (DIE ZAHLEN BEDEUTEN DIE ZEIT IN MINUTEN NACH DEM START).

Die gewonnenen Daten geben qualitative Hinweise auf die atmosphärische Ausbreitung bei Schwachwindlage, starker Konvektion und Windrichtungsscherung.

3.2 Tetroonortung mit Hilfe des MBVR 120

Wie ebenfalls im PNS-Halbjahresbericht 1976/II, KFK 2345 beschrieben, sollen die Tetroons mit Transpondern ausgerüstet werden, um die Reichweite des Radars zu erhöhen. Dies ist ohne Umbauten am Radar möglich, wenn von der Firma Philips entwickelte Transponder zusammen mit dem Philips-Radar MBVR 120 eingesetzt werden. Ein Versuch mit dem MBVR 120 mit und ohne Transponder fand am 28.3.1977 in Bremen statt.

Da der bei Philips vorhandene Transponder noch zu schwer für einen Tetroon und außerdem zu teuer ist, um seinen Verlust tragen zu können, wurde er in einem zweisitzigen Sportflugzeug untergebracht. Seine Antenne ragte aus dem seitlichen Kabinenfenster.

Startplatz war der Bremer Flughafen. Der Radarstandort befand sich etwa 20 km östlich davon bei Oyten. Der Pilot flog zuerst eine vereinbarte Dreiecksstrecke um den Radarstandort. Die Flughöhe betrug zwischen 100 und 300 m Höhe, die weiteste Schrägentfernung 31 km. Das Radar verfolgte den Transponder mithilfe seines automatischen Nachführsystems. Daß der Transponder und nicht das Flugzeug verfolgt wurde, demonstrierte der Pilot dadurch, daß er in bestimmten Abständen eine 360°-Schleife flog. Sobald die Verbindungslinie Transponder-Radar durch den Flugzeugkörper unterbrochen wurde, geriet der Transponder in den Funk Schatten. Für diesen Moment war das Echo des Flugzeugkörpers und das durch reflektierte Bodenechos bedingte Rauschen größer als das zurückgestrahlte Transpondersignal.

In der zweiten Flugphase steuerte der Pilot das Flugzeug in einer Flughöhe von etwa 300 m ü. Gr. in geradliniger Richtung weg vom Radar. Während des Fluges verfolgte wiederum das Radar den Transponder mit Hilfe der automatischen Nachführung. Vereinbarungsgemäß wendete der Pilot über Bremerhaven und flog dann zum Radarstandort zurück. Die Schrägentfernung betrug am Wendepunkt 62,6 km.

Der eingesetzte Transponder ist wegen seiner vielen Funktionsmöglichkeiten für Tetroonflüge zu aufwendig, zu schwer und zu teuer. Nach dem erfolgreichen Vorexperiment wird Philips den Transponder so weit abmagern, daß er bezüglich Funktion, Gewicht und Preis für radarverfolgte Tetroonflüge geeignet ist. Die Leistungsfähigkeit des MBVR 120 wurde anschließend mit zwei Tetroons getestet, die nur mit Aluminiumreflektoren bestückt waren. Der Start des ersten Tetroons erfolgte bei kräftigen Windböen. Die gewünschte Flughöhe sollte 400 m betragen. Ein genaues Austarieren war infolge der Windböen nicht möglich. Der Tetroon geriet schon nach etwa 15 min Flugzeit in eine dichte Schneewolke. Der Radarkontakt ging verloren. Die Schrägentfernung betrug zu diesem Zeitpunkt fast 4 km, der Höhenwinkel $8,5^{\circ}$ und die Höhe über Grund 585 m.

Der zweite Start erfolgte, als die Schneeschauertätigkeit etwas nachgelassen hatte, jedoch bei erhöhter Windgeschwindigkeit. Ein Austarieren des Tetroons war unmöglich. Ersatzweise wurde versucht, das Ballastgewicht wie beim ersten Tetroon einzustellen. Beim Start jedoch ging Ballast verloren, da der Tetroon einige Zeit am Boden schleifte. Infolgedessen stieg der Tetroon weit über die gewünschte Flughöhe. Nach 41 min verlor das Radar bei einem Höhenwinkel von $2,3^{\circ}$ und einer Schrägentfernung von 27,7 km den Kontakt mit dem Tetroon, als dieser in eine Schneewolke geriet.

Die Vorversuche zeigten die Vorteile eines Transponders, wenn niedrig fliegende Objekte über große Entfernungen verfolgt werden sollen. Das schlechte Wetter verdeutlichte das besonders eindrucksvoll. Die tiefhängenden Schneewolken und Schneeschauer reflektierten die Radarsignale so stark, daß diese Reflexe das Echo des Aluminiumreflektors "zudeckten". Die Ortung mithilfe des frequenzverschobenen Transpondersignals wurde dagegen durch Schneefall und Wolken nicht gestört.

5. Auswertungen meteorologischer Messungen

5.1 Niederschlagsstatistik

(S. Vogt)

Bei der Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre spielt

der Effekt des Auswaschens durch Niederschlag eine wichtige Rolle. Für Unfallberechnungen unter probabilistischen Gesichtspunkten, wie z.B. im Teilprojekt 4330, interessiert vor allem die ununterbrochene Andauer des Niederschlages und die Niederschlagssumme während eines "Niederschlagsereignisses".

Hierzu wurden die 10-min-Werte des Niederschlagmeßgerätes am Kernforschungszentrum Karlsruhe für die Jahre 1974, 1975 und 1976 ausgewertet. Während dieser drei Jahre wurden 2520 Niederschlagsereignisse gezählt, dies entspricht 100 %. Die Andauer eines Niederschlagsereignisses ergibt sich durch Addition aufeinanderfolgender 10-min-Werte. Zeigte ein 10-min-Wert keinen Niederschlag an, so ist die Andauer eines Niederschlagsereignisses beendet.

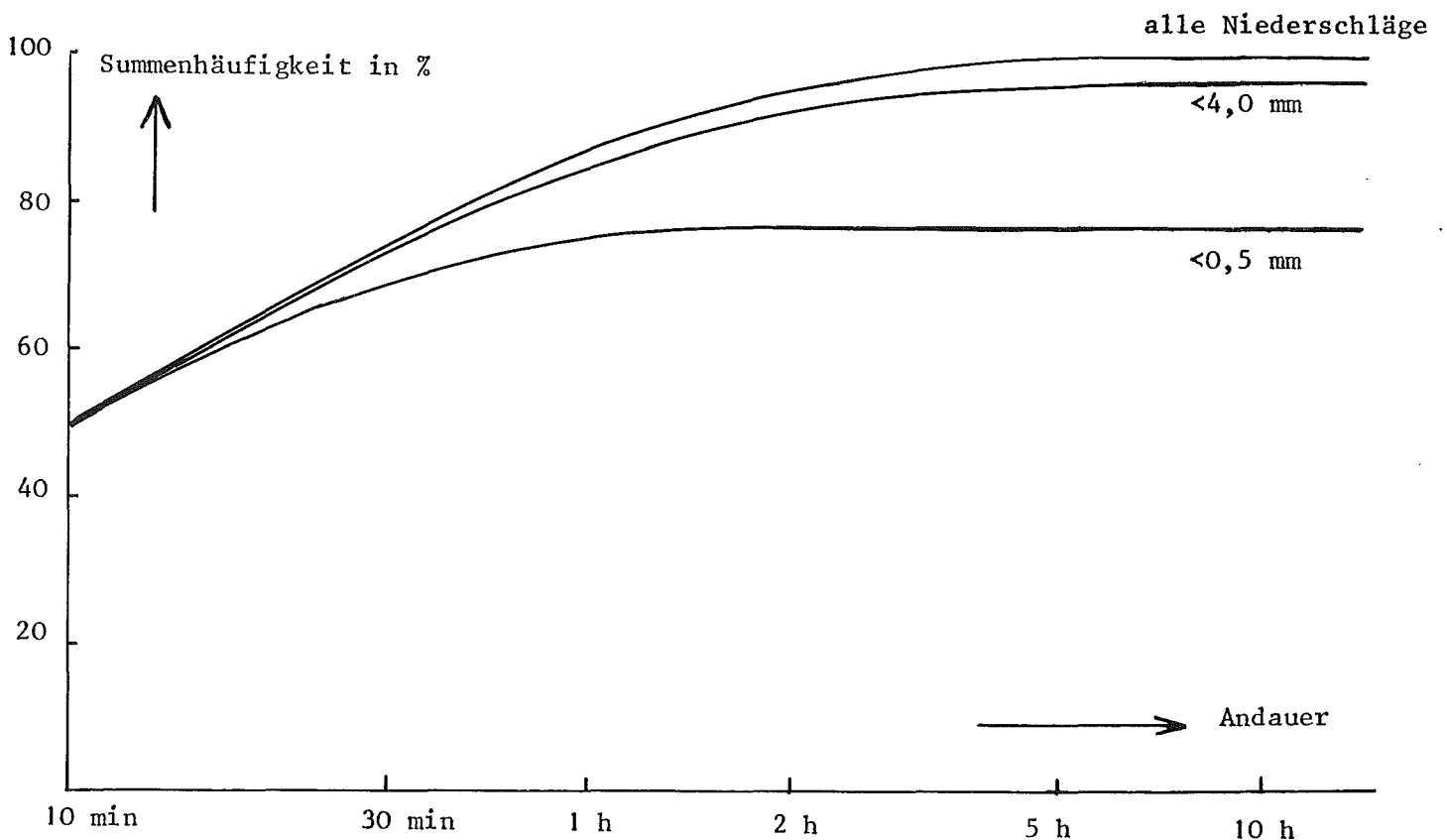


Abb. 4320-7 Summenhäufigkeit der Niederschlagsereignisse in Abhängigkeit der zeitlichen Andauer

In Abb. 4320-7 ist die Summenhäufigkeit der Niederschlagsereignisse über der zeitlichen Andauer aufgetragen. Die Summenhäufigkeit ist in drei Stufen der Niederschlagssumme aufgeschlüsselt. Die unterste Kurve umfaßt diejenigen Niederschläge, deren Niederschlagssumme unter 0,5 mm betrug (insgesamt 75,9 %), die mittlere Kurve Niederschläge mit einer Gesamtmenge unter 4,0 mm, (zusätzlicher Anteil 20,4 %). Die restlichen Niederschläge (3,7 %) erbrachten mehr als 4,0 mm Regen. In etwa der Hälfte aller Fälle dauert ein Niederschlag nur 10 Minuten; etwa 5 % aller Niederschläge dauerten dagegen länger als 2 Stunden. Die längste Andauer wurde im September 1976 mit 19 Stunden registriert. Die Niederschlagssumme betrug dabei etwa 53 mm.

5.2 Übertragbarkeit eines Bestimmungsschemas der Ausbreitungskategorie auf ----- andere Standorte -----

(H. Dilger)

Aus den Untersuchungen von Dilger und Nester /1/ ergab sich, daß neben den direkten Methoden zur Bestimmung der Ausbreitungskategorie in Einzelsituationen nur eine einzige indirekte Methode brauchbar ist, nämlich die Bestimmung der Ausbreitungskategorie mit Hilfe des Temperaturgradienten dT/dz und der horizontalen Windgeschwindigkeit \bar{u} . Offen blieb, inwieweit man das zugehörige an einem Standort gewonnene Einteilungsschema auf andere Standorte übertragen kann. Von dieser Frage hängt es u. a. ab, ob die Ausbreitungsparameter, die am Standort des KFZK bestimmt wurden, auch in Einzelfällen an anderen Standorten verwendbar sind.

Um diese Frage zu untersuchen, wurden die Einteilungsschemata von Polster (PO) /2/ und Dilger/Nester (DN) /1/ (beide basieren auf dT/dz und \bar{u}) zur Berechnung der Ausbreitungskategorien in Jülich (Jü), Philippsburg (Ph) und Karlsruhe (Ka) im 1. Halbjahr 1974 verwendet. In Abb. 4320-8 sind für diese drei Standorte die Häufigkeitsverteilungen der Kategorien nach den beiden Einteilungsschemata dargestellt.

Bei idealer Übertragbarkeit müßte der Unterschied zwischen den Häufigkeitsverteilungen an jedem Standort gleich sein. In Abb. 4320-8 entsprechen die hellen Flächen diesem Unterschied. Bedingt durch die verschiedenen Häufigkeitsverteilungen der Windgeschwindigkeit und des Temperaturgradienten an den drei Standorten sind aber auch die Unterschiede zwischen den Häufigkeitsverteilungen der Ausbreitungskategorien verschieden. Die verschiedene Größe der hellen Flächen an den einzelnen Standorten für die entsprechenden Kategorien ist ein Maß für die Abweichung von der idealen Übertragbarkeit. In Tab. 4320-2 ist der halbe Betrag des Unterschieds (da auf ein Schema bezogen), sein Mittelwert MWU und seine mittlere Abweichung η von MWU für die einzelnen Kategorien aufgeführt.

Kat	A	B	C	D	E	F
Jü	1,1	1,7	1,5	2,9	6,1	1,3
Ka	1,7	3,2	1,1	2,3	3,3	1,6
Ph	0,1	1,7	3,1	0,4	6,1	1,1
MWU	1,0	2,2	1,9	1,9	5,2	1,3
η	0,6	0,7	0,8	0,9	1,2	0,2

Tab. 4320-2 Abweichung der Kategorienhäufigkeit bei der Anwendung der Schemata von Dilger/Nester und Polster auf drei Standorte

Alle Angaben in %

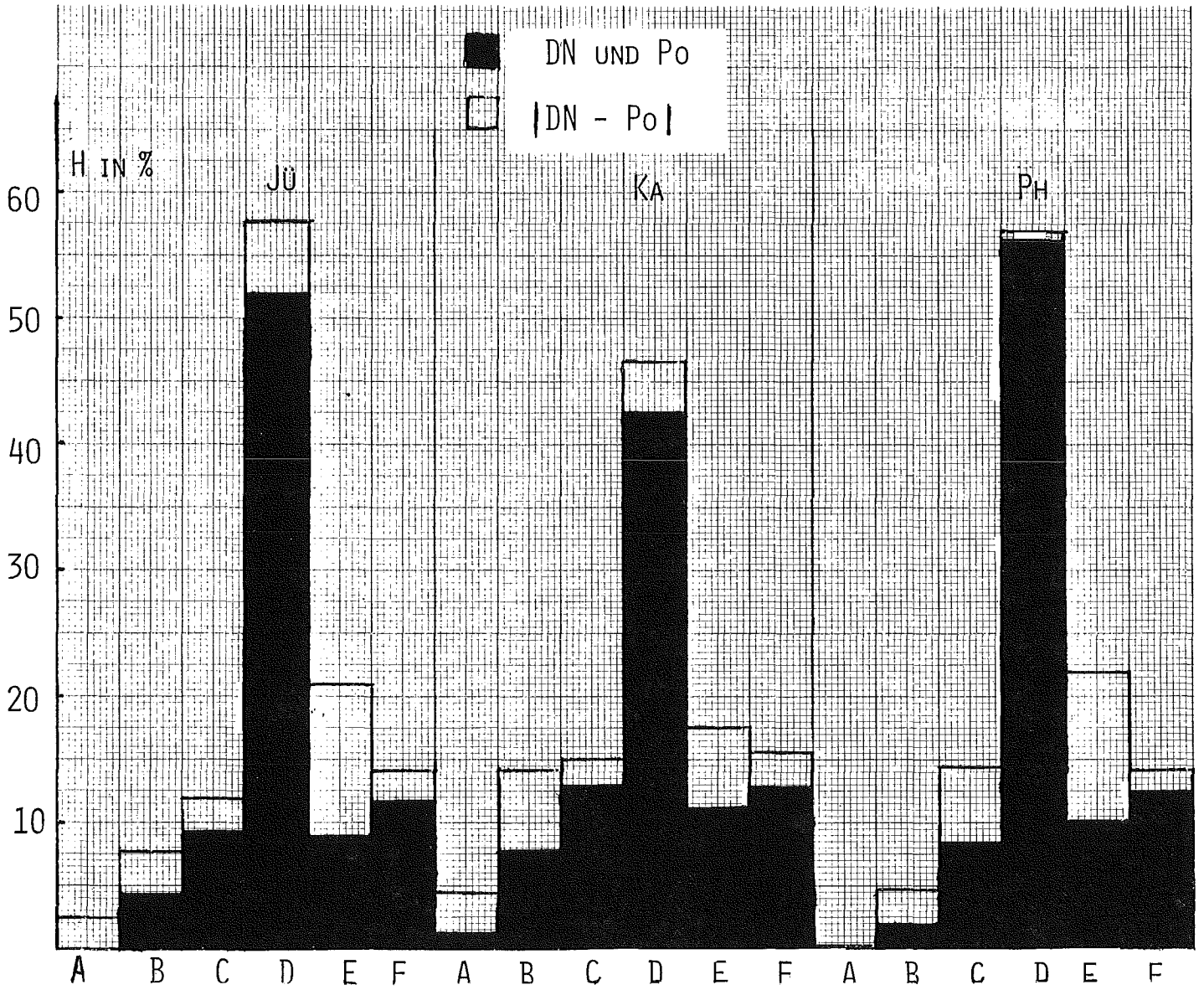


ABB. 4320-8 HÄUFIGKEITSVERTEILUNGEN AN DEN VERSCHIEDENEN STANDORTEN NACH DEN BEIDEN EINTEILUNGSSCHEMATA

Aus Tabelle 4312-2 ist zu entnehmen, daß z.B. bei Kategorie D die mittlere Abweichung η des halben Mittelwerts der Unterschiede MWU 0,9 % beträgt; d.h. im Mittel wird bei der hier vorgenommenen Standortübertragung der Schemata die Kategorie D um 0,9 % falsch bestimmt. Der kleinste Fehler wird bei Kategorie F mit 0,2 %, der größte Fehler bei Kategorie E mit 1,2 % gemacht. Der relativ große Fehler bei Kategorie E ist darauf zurückzuführen, daß bei dieser Kategorie die beiden Schemata sehr unterschiedliche Häufigkeiten liefern (vgl. Abb. 4320-8). Da die standortspezifischen Abweichungen im Mittel bei den einzelnen Kategorien zwischen 0,2 und 1,2 % der Gesamtzahl der Fälle liegt, ist eine Standortübertragung der beiden untersuchten Schemata mit einem vertretbaren Fehler möglich.

Literatur:

- /1/ Dilger, H. und Nester, K.: Aufstellung und Vergleich verschiedener Schemata zur Bestimmung der Ausbreitungskategorie, Met. Rdsch. 28 (1975) 12-17
- /2/ Polster, G.: Erfahrungen mit Strahlungs-Temperaturgradient- und Windmessungen als Bestimmungsgrößen der Diffusionskategorien, Met. Rdsch. 22 (1969) 170-175

4. Windfluktuationmessungen über Feld-Wiesengelände

(H. Dilger)

Wie im vorhergehenden Bericht (PNS HJ-Bericht 1976/2, KFK 2345) beschrieben, sollen durch diese Messungen die Turbulenz- und Rauigkeitsparameter über einem Gelände mit niedrigerer Rauigkeitslänge als im KFZK bestimmt werden.

Seit Ende Januar 1977 liegen analog registrierte Meßwerte der in 15 m Höhe in der Nähe der Ortschaft Spöck montierten Vektorfahne vor. Wegen einer erforderlichen Nachrüstung des automatischen Datenerfassungsgeräts kann dieses erst im 2. Halbjahr 1977 im Dauerbetrieb eingesetzt werden. Eine erste Auswertung der Streuung der Vertikalfluktuationen σ_{ϕ} wurde für den Monat Februar vorgenommen. Dabei wurden 10-min-Mittelwerte von σ_{ϕ} aus Spöck nach den im KFZ bestimmten Ausbreitungskategorien eingeteilt. In der Tabelle 4320-3 sind für die einzelnen Kategorien die Mittelwerte von $\overline{\sigma_{\phi}}$ aus Spöck aufgeführt.

Ausbreitungskategorie	A	B	C	D	E	F
KFZ σ_ϕ in Grad in 100 m Höhe	>15,0	11,1-15,0	7,6-11,0	3,6-7,5	2,1-3,5	0,0-2,0
Spöck $\overline{\sigma_\phi}$ in Grad in 15 m Höhe	11,2	7,4	5,1	4,5	2,7	2,3

Tab. 4320-3 Mittelwerte der Streuung der Vertikalfluktuationen $\overline{\sigma_\phi}$ für die einzelnen Kategorien am Meßplatz in Spöck (für Februar 1977)

Für die neutrale Kategorie D ergeben sich in 15 m über dem Gelände mit Rauigkeitsstufe II niedrigere σ_ϕ -Werte als in 100 m über Gelände mit Rauigkeitsstufe III. Auffallend ist der relativ hohe Mittelwert in Kategorie F. Die Korrelationstabelle ergibt eine größere Anzahl von Situationen mit σ_ϕ zwischen 4° und 5° in Spöck, während im KFZ σ_ϕ nur zwischen 0° und 2° liegt. Das bedeutet, daß sich zu diesen Zeiten in Spöck noch keine stabile Schichtung ausgebildet hatte. Die Mittelwerte bei den labilen Ausbreitungskategorien A - C liegen erwartungsgemäß in Spöck wegen der geringeren Meßhöhe niedriger als am KFZ. Insgesamt dürften sich die Mittelwerte bei einem größeren Wertekollektiv und im Laufe des Jahres noch etwas verschieben.

4320 -TUH Erstellung und Erprobung eines neuen Rechenprogramms für die Berechnung der Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre unter instationären Bedingungen in ausgedehnten bebauten Regionen
(H. Schultz, E. Voelz, C.D. Wüneke, Arbeitsgr. f. Technischen Strahlenschutz der T.U. Hannover)

Mit der Version A des Rechenprogramms XPIC, mit der die Ausbreitung einer Schadstoffwolke in der Atmosphäre mit der "particle-in-cell"-Methode simuliert wird, sind u.a. die nachfolgenden Einflüsse und Programmgrößen untersucht worden, um ihre Wirkung auf die Belastungsberechnung festzustellen. Damit sollen mögliche Fehlerquellen gefunden und ausgemerzt oder wenigstens in ihrer Größenordnung bekannt gemacht werden.

1. Zufallszahlengenerator

Die Teilchenpositionen werden beim ersten Rechenschritt durch einen Zufallszahlengenerator festgelegt. Bei einer begrenzten Teilchenzahl kann man Teilchenklumpungen nicht ganz vermeiden, die sich bei der Konzentrationsberechnung in den folgenden Rechenschritten fortpflanzen. Bei Belastungsberechnungen wirken sich diese Klumpungen wegen der Summation über viele Zellen aber zumeist kaum aus, wie Kontrollrechnungen gezeigt haben. Von Gegenmaßnahmen, wie z.B. durch zellenweise Anpassung der Statistik an die Quellverteilung, wurde deshalb vorläufig abgesehen.

2. Anzahl der repräsentativen Teilchen

Um die Konzentrationsverteilung angemessen wiedergeben zu können, sollten mindestens 3 Teilchen in einer Zelle zur Konzentration beitragen. Eine Kontrollrechnung mit 15 % weniger Teilchen ergibt geringfügig geringere Belastungswerte ($\approx 1\%$), so daß eine Änderung in dieser Größenordnung kaum einen Einfluß haben dürfte.

3. Relative Lageänderungen des Wolkenbezugspunktes

Durch das expandierende Gittersystem kann bei festgehaltenem Abstand zwischen Erdboden und Quellhöhe eine Lageänderung des Wolkenbezugspunktes innerhalb einer Zelle eintreten. Es zeigt sich, daß diese Verschiebung die Belastung nur geringfügig beeinflusst. Verlagerungen des Wolkenbezugspunktes vom Zellenrand zur Zellenmitte erzeugen etwas höhere Konzentrationen in der Mitte der Wolke, was auf eine geringfügig kleinere berechnete Teilchendiffusionsgeschwindigkeit zurückzuführen ist.

4. Dimensionierung des Systems und der einzelnen Zellen

Das Zellen-System sollte zu Beginn der Rechnung und auch später so groß gewählt werden, daß die anfängliche Wolke gerade noch hineinpaßt, damit die Dimensionen einer einzelnen Zelle möglichst klein bleiben. Je größer ihre anfänglichen Dimensionen gewählt werden, desto kleiner werden die berechneten Diffusionsgeschwindigkeiten. Dadurch wird die Konzentration auf der Wolkenzentrallinie erhöht und bei einer erhöhten Quelle die anfängliche Belastung am Erdboden erniedrigt. Die Ausdehnung Δx_i einer Zelle sollte daher relativ an die sich ausbreitende Wolke angepaßt werden, wobei für eine anfänglich normalverteilte Wolke mit der Standardabweichung σ_{x_i} wenigstens $3\Delta x_i \leq \sigma_{x_i}$ sein sollte.

5. Mittelwertbildung

Die ausgleichende Mittelwertbildung verursacht im Verlauf der Rechnung ungenaue Konzentrationswerte, solange die Zellendimensionen nicht an die Gradienten der Teilchenverteilung angepaßt sind. So bewirkt sie bei anfänglich zu hohen Bodenzellen, daß nahe am Boden eine zu hohe Konzentration bzw. Belastung vorgetäuscht wird, obwohl die Teilchen erst den Oberteil einer Zelle und nicht den Boden erreicht haben. Um eine unzulässige Verfälschung der Belastung nahe der Quelle durch diesen Effekt zu verhüten, wird am Erdboden eine zusätzliche Schicht eingeführt, die dort dem Konzentrationsgradienten besser angepaßt ist.

6. Zeitschrittwahl

Bei der numerischen Näherungslösung der hier zugrundegelegten Transport- und Diffusionsgleichung durch ein Differenzenschema läßt sich zwischen räumlicher und zeitlicher Schrittweite (Δx_i bzw. Δt) formal für die Diffusion folgender Zusammenhang ableiten: $2 K_i \cdot \Delta t \leq \Delta x_i \cdot \Delta x_i$. Die in Version A insgesamt benutzte Rechenmethode scheint aber in vielen Fällen weitgehend unabhängig von dieser Einschränkung zu sein. Selbst wenn der Zeitschritt doppelt so groß, wie danach erlaubt, gewählt wurde, traten nur nahe zur Quelle hin höchstens 10% höhere Belastungswerte auf. Diese Abweichung läßt sich aber dadurch erklären, daß sich die Konzentrationsgradienten, und damit auch die Diffusionsgeschwindigkeiten, bei einer auseinander laufenden Einzelwolke stetig verkleinern. Je länger also der Zeitschritt, desto länger bewegen sich die Teilchen mit der höheren anfänglichen Diffusionsgeschwindigkeit und täuschen so eine zu schnelle Ausbreitung vor.

Die Bedingungen im Abschnitt 2 bis 6 sind durch die numerische Rechenmethode gegeben. Sie sind weitgehend beschreibbar und können durch zusätzlichen Aufwand an Rechenzeit und Speicherkapazität in der Rechenanlage in der erforderlichen Weise berücksichtigt werden.

7. Bedingungen am Systemrand

Die Randbedingungen am Erdboden können im "particle-in-cell"-Modell auf unterschiedliche Weisen nachgebildet werden. Im Gaußschen Rauchfahnenmodell wird durch eine symmetrische Spiegelquelle eine totale Reflexion am Erdboden erzeugt, deren Einfluß sich sofort und überall auswirkt. Demgegenüber nähert sich ein Teilchen im "particle-in-cell"-Modell dem Erdboden mit einer abnehmenden Diffusionsgeschwindigkeit und wird sich dort stauen, weil es keine Bewegung gegen den Konzentrationsgradienten ausführen kann. Dieser Teilchenstau über der Reflexionsschicht pflanzt sich nur langsam und zeitlich verzögert in die darüberliegenden Schichten fort. Es entsteht dadurch über dem Erdboden nur eine ungefähr 10% höhere Belastung gegenüber dem Rauchfahnenmodell. Diese Abweichung ist physikalisch begründet und gibt

einen wirklichkeitsgetreuen Unterschied zum Rauchfahnenmodell wieder.

Von den bisher beschriebenen Effekten werden die meisten, soweit notwendig, in Version A automatisch berücksichtigt. Lediglich der Zeitschritt muß noch individuell an die Wolkendimensionen und evtl. meteorologische Parameter angepaßt werden.

Auch bei der Version B, bei der ein sehr großes Zellensystem abschnittsweise abgearbeitet wird, wurde damit begonnen, durch eine entsprechende Automatisierung eine bessere Einsatzfähigkeit zu gewährleisten. Bei dieser Version ist es wegen der begrenzten Speicherkapazität der Rechenanlagen notwendig, die Windfelddaten und Diffusionsgeschwindigkeiten für die Zellen ecken extern zu speichern und abschnittsweise, in "Sektionen", entsprechend den jeweiligen Teilchenkoordinaten einzulesen. Sobald bei unterschiedlichen Teilchenkoordinaten die Anzahl der sektionsweisen Datenein- und -ausgaben einen vorgegebenen Wert übersteigt, wird deshalb eine automatische Neusortierung der Teilchen nach den x-Koordinaten programmiert.

Eine weitere Rechenzeitverkürzung kann durch geeignete Optimierung des Rechenablaufs bei der Konzentrationsberechnung und bei der Übergabe von Datenfeldern erzielt werden.

Mit der Version B wurden Belastungsberechnungen in einem $2 \times 4 \text{ km}^2$ großen Gebiet mit 60.000 Zellen bei neutraler Wetterlage durchgeführt, wobei für das Windfeld ein vertikales Geschwindigkeitsprofil gemäß

$$u_x(z) = u_x(H_s) \cdot (z/H_s)^{0.28}$$

mit $u_x(H_s)$ Advektionsgeschwindigkeit in Emissionshöhe H_s , hier $u_x(H_s) = 5 \text{ m/s}$

und eine höhenabhängige horizontale Winddrehung um den Winkel $\alpha = -40^\circ$ auf der Höhe der Durchmischungsschicht H_D gemäß

$$u_y(z) = u_x(z) \cdot \sin\left(\frac{\alpha \cdot z}{H_D}\right)$$

angesetzt wurde.

In Abbildung 1 ist die Belastung, d.h. das Konzentrationszeitintegral am Erdboden, - für die Konzentration einer 15 m hohen Zellschicht am Erdboden, - in Form von Isoplethen aufgetragen. Im Vergleich ist auch die Belastung infolge einer Schadstoffwolke bei konstanter Windgeschwindigkeit in x-Richtung $u_x=5\text{m/s}$ eingetragen.

In beiden Fällen ist die Emissionshöhe $H_s = 100\text{ m}$ und werden die Diffusionskoeffizienten nach der statistischen Theorie benutzt. Die Verlagerung der Isoplethen im Uhrzeigersinn infolge der Windrichtungsscherung ist deutlich erkennbar.

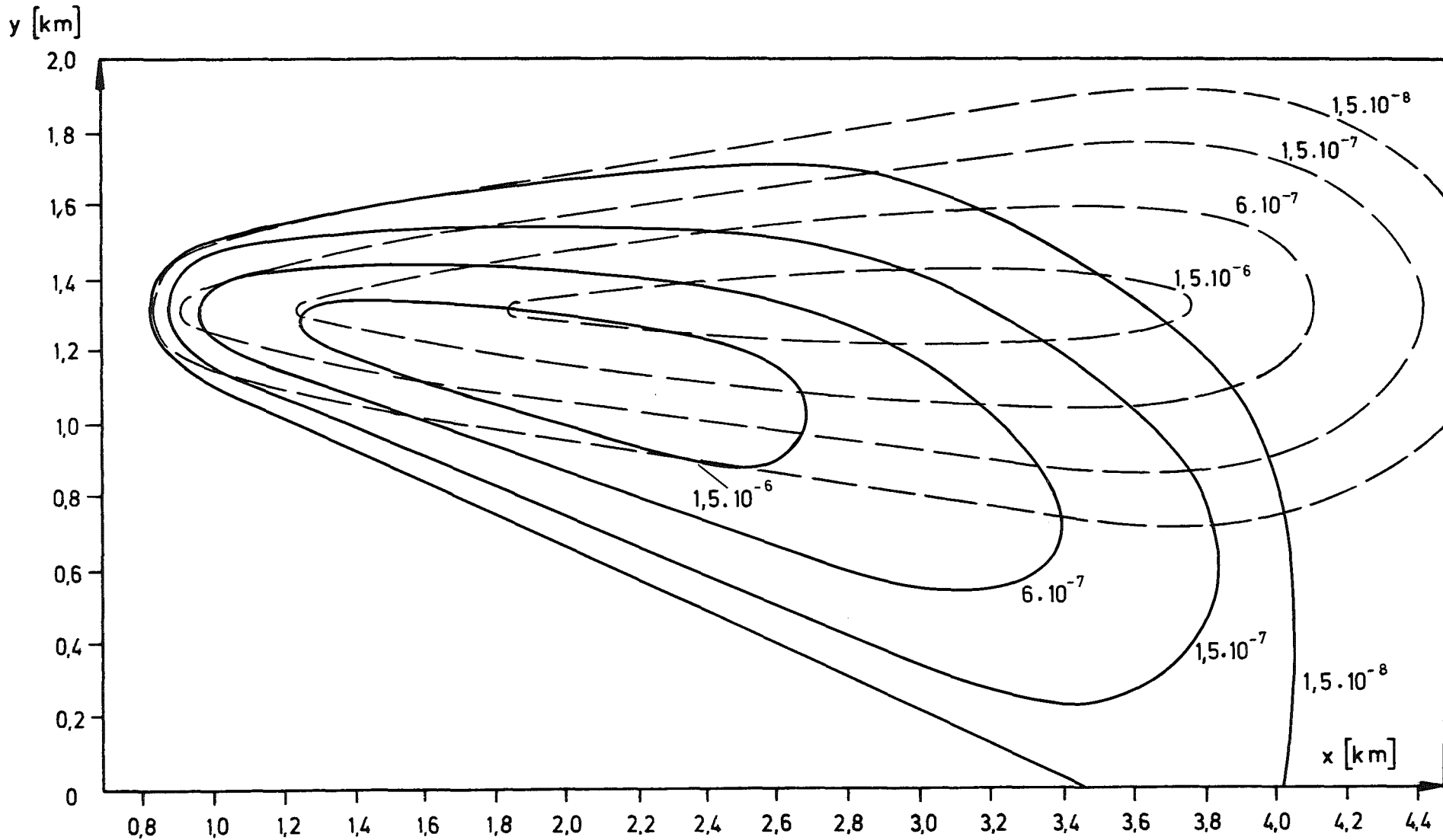


Abb. 1 Isoplethen der Belastung am Erdboden (Konzentrationszeitintegral [s/m^3]) nach 800 s bzw. nach 30 Zeitschritten $\Delta t = 20$ s, ausgehend von einer Gaußwolke zur Zeit $t = 200$ s, Zellenabmessungen $\Delta x \cdot \Delta y \cdot \Delta z = 40 \cdot 40 \cdot 15 \text{ m}^3$, Emissionshöhe $H_s = 100$ m
 ----- homogenes Windfeld $u_x = \text{konst} = 5$ m/s
 ————— vertikales Windprofil und höhenabhängige Windrichtungsscherung um den Winkel $\alpha = -40^\circ$ auf 200 m

4330 Untersuchung der radiologischen Folgen von Reaktorunfällen unter probabilistischen Gesichtspunkten.

4331 Rechenmodelle zur Berechnung der Ortsdosen
(W. Hübschmann, S. Vogt, ASS)

Die Ortsdosisverteilung bei vier ausgewählten Wetterlagen und zwei speziellen Unfällen an einem Druckwasser-Reaktor.

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) erstellt GfK/PNS das Unfallfolgenmodell. Dieses Modell hat die Aufgabe, die durch die freigesetzten Schadstoffe verursachten Schäden und Risiken gesundheitlicher Art zu ermitteln.

Über das Programmsystem UFO (= Unfallfolgen) wurde in /1/ berichtet. Im 1. Halbjahr 1977 wurden die Unfallfolgen, d.h. akute Todesfälle, Tod durch Krebs und genetische Schäden für einen Standort berechnet.

Der Stichprobenumfang setzt sich aus $115 \cdot 36 \cdot 2 = 8\ 280$ Ergebnissen zusammen (115 Wettersituationen, 36 sektorale Bevölkerungsverteilungen und 2 Unfälle). Die im folgenden dargestellten Dosisverteilungen stellen eine Auswahl der mit dem Programmteil UFO-BAS (= Unfallfolgen-Basisprogramm) berechneten Ergebnisse dar. Dabei wird der Einfluß der Wetterabläufe anhand von zwei Unfällen und vier Wetterabläufen sowie der Beitrag der verschiedenen Belastungspfade zur gesamten Knochenmarksdosis anhand eines Unfalls und eines Wetterablaufs gezeigt.

Zugrunde gelegt wird ein deutscher Druckwasser-Reaktor mit einer thermischen Leistung von 3731 MW. Das Spaltproduktinventar zum Zeitpunkt des Abschaltens ist nuklidspezifisch in Tab. 4330-1 aufgelistet.

Folgende zwei Unfälle wurden von der GRS untersucht:

Tab. 4330-1 Aktivitätsinventar des Reaktorkerns

Nr.	Radionuklid	Inventar in MCi
1	Kobalt-58	1,27
2	Kobalt-60	0,983
3	Krypton-85	0,792
4	Krypton-85m	27,0
5	Krypton-87	52,6
6	Krypton-88	76,4
7	Rubidium-86	0,0373
8	Strontium-89	105
9	Strontium-90	5,3
10	Strontium-91	128
11	Yttrium-90	5,72
12	Yttrium-91	133
13	Zirkon -95	178
14	Zirkon -97	176
15	Niob -95	176
16	Molybden -99	191
17	Technetium-99m	166
18	Ruthen -103	137
19	Ruthen -105	97,9
20	Ruthen. -106	39,6
21	Rhodium-105	65,9
22	Tellur -127	7,68
23	Tellur -127m	1,51
24	Tellur -129	39,1
25	Tellur -129m	6,58
26	Tellur -131m	15,6
27	Tellur -132	145
28	Antimon -127	7,93
29	Antimon -129	41,3
30	Iod -131	104
31	Iod -132	150
32	Iod -133	202
33	Iod -134	232
34	Iod -135	181
35	Xenon-133	199
36	Xenon-135	40,7
37	Cesium-134	13,8
38	Cesium-136	4,51
39	Cesium-137	7,06
40	Barium-140	186
41	Lanthan -140	193
42	Cer -141	180
43	Cer -143	159
44	Cer -144	109
45	Praseodym -143	155
46	Neodym -147	73,2
47	Neptunium-239	2140
48	Plutonium-238	0,127
49	Plutonium-239	0,0289
50	Plutonium-240	0,0322
51	Plutonium-241	6,04
52	Americium-241	0,0035
53	Curium-242	1,42
54	Curium-244	0,115
	Summe	6.365,24

- Unfall AH δ : Überdruckversagen nach 30.4 h - bis dahin Leckrate 2,5 Vol. %/d für $p \geq 1.7\text{bar}$ - ohne Filter - ohne Sprühsystem, Ausfall der Nachkühlsysteme (Sumpfbetrieb)
- Unfall A-1,2: Leckrate 0,25 Vol. %/d - Berücksichtigung der Störfallfilter - 2 Nachkühlsysteme - Gebäudesprühsystem in Betrieb von 0,3 h - 1.3 h.

In Tab. 4330-2 ist der kumulative Anteil des Kerninventars, der in die Atmosphäre freigesetzt wird, in Abhängigkeit der Zeit dargestellt. Diese Daten wurden von der GRS bereitgestellt.

Da die Freisetzung sich zum Teil über mehrere Tage erstreckt, zum Teil Änderungen der Freisetzungsrates innerhalb von Minuten auftreten, können die Daten nicht in dieser Form als Eingabe für UFO-BAS verwendet werden. Der Freisetzungsverlauf wurde daher nach Absprache mit der GRS modifiziert.

Die gesamte in die Atmosphäre emittierte Aktivität aller Nuklide beträgt bei Unfall AH δ 392 MCi und bei Unfall AH 1,2 11,9 MCi.

Zur Darstellung der Ergebnisse werden vier Wetterabläufe ausgeprägten Eigencharakters ausgewählt, s. Tab. 4330-3. Es handelt sich um Wetterabläufe, welche am Kernforschungszentrum Karlsruhe registriert wurden. Dargestellt wird die Kurzzeit-Knochenmarksdosis D_{ges} eines Erwachsenen, die sich zusammensetzt aus:

- Direktstrahlung aus der radioaktiven Wolke D_{Wol}
(Abschirmfaktor 0,33),
- γ -Strahlung der am Boden abgelagerten Stoffe über 24 h, D_{Bod} ,
(Abschirmfaktor 0,33).
- Inhalation radioaktiver Stoffe, D_{Inh} ,

jeweils unter der Ausbreitungsachse.

Tab. 4330-2 Kumulativer Anteil des Kerninventars, der in die Atmosphäre freigesetzt wird.

Unfall, Höhe der Frei- set-	Freiset- zungsrate thermi- scher Energie	Zeit	Nuklidgruppen							
			Kr-Xe	I [*] org.	I [*] elem.	Cs,Rb	Te,Sb	Ba,Sr	Ru ^{**}	La ^{***}
AH δ H=10 m	1,85·10 ⁷ cal/s	0 - 74 min	3.8-5	3.6-7	2.4-5	6.5-5	5.0-7	7.5-9	0.	0.
		0 - 85 min	1.2-4	9.1-7	8.9-5	1.2-4	1.1-5	7.1-6	2.1-6	2.1-7
		0 - 2 h	6.9-4	4.9-6	4.2-4	3.5-4	5.9-5	3.9-5	1.2-5	1.2-6
		0 - 5 h	3.7-3	2.6-5	8.3-4	6.3-4	5.6-4	7.0-5	4.7-5	7.4-6
		0 - 30 h	3.0-2	2.1-4	1.1-3	7.6-4	7.8-4	8.4-5	6.2-5	1.0-5
		0 - 30.6 h	8.9-1	6.2-3	9.7-3	8.4-4	9.0-4	9.2-5	7.0-5	1.2-5
		0 - 100 h	1.0	7.0-3	1.1-2	8.5-4	9.1-4	9.3-5	7.1-5	1.2-5
A-1,2 H=100m	0	0 - 10 min	4.2-7	9.4-12	2.0-10	5.8-10	1.2-12	1.2-14	0.	0.
		0 - 30 min	1.5-6	3.3-11	5.6-10	1.4- 9	2.9-12	2.9-14	0.	0.
		0 - 1 h	3.1-6	7.0-11	8.4-10	1.8- 9	3.6-12	3.6-14	0.	0.
		0 - 5 h	1.6-5	3.5-10	1.1- 9	2.2- 9	4.3-12	4.3-14	0.	0.
		0 - 15 h	4.7-5	1.1- 9	1.2- 9	2.3- 9	4.7-12	4.7-14	0.	0.
		0 - 50 h	1.6-4	3.5- 9	1.7- 9	2.4- 9	4.7-12	4.7-14	0.	0.
		Grenzwert	3.0-2	6.8- 7	6.8- 7	2.4- 9	4.7-12	4.7-14	0.	0.
PWR 2 H=10 m	1,19·10 ⁷ cal/s	0 - 30 min	9.0-1	7.0- 3	7.0- 1	5.0- 1	3.0- 1	6.0- 2	2.0- 2	4.0- 3

* Organisches Jod wird dem elementaren Jod zugeschlagen. Der Fehler ist vernachlässigbar, da die

Freisetzungsraten von organischem Jod klein sind.

** Beinhaltet Ru, Rh, Co, Mo, Tc

*** Beinhaltet Y, La, Zr, Nb, Ce, Pr, Nd, Np, Pu, Am, Cm

Nr.	Charakter	Ausbreitungskategorie	Windgeschwindigkeit in 60 m Höhe	Emissionsbeginn
1	Starker Westwind	D, neutral	6 - 7 m/s	1 Uhr
2	sommerliche Hochdrucklage, nach 16 h Niederschlag	B, labil	1,5 - 2,4 m/s, später auf 6,5 m/s zunehmend	12 Uhr
3	nächtlicher klarer Himmel	F, stabil	von 3,1 auf 0,6 m/s abnehmend, dann auf 4,2 m/s zunehmend	22 Uhr
4	mehrständiger Regen (10 - 14 h, gesamt 6,25 mm)	D, Regen	6 - 8 m/s	10 Uhr

Tab. 4330-3 Ausgewählte Wetterlagen

Die Kurzzeit-Inhalationsdosis D_{Inh} beinhaltet die in den ersten 7 Tagen absorbierte Dosis sowie die Hälfte der vom 8. bis 30. Tag absorbierten Dosis. Man kann davon ausgehen, daß diese Kurzzeitdosis bei der Ermittlung akuter Strahlenschäden heranzuziehen ist. Unter den verschiedenen Organ- und Teilkörperdosen ist die Knochenmarkdosis D_{ges} fast ausschließlich verantwortlich für den akuten Strahlentod. Der Verlauf der Dosen wird bis 500 km bzw. so weit gezeichnet, bis der Quotient aus maximaler Dosis und aktueller Dosis mehr als 5 Zehnerpotenzen beträgt.

Vergleicht man anhand von D_{ges} die gesundheitlichen Auswirkungen der zwei Unfälle, (s. Abb. 4330-1 und 4330-2), so zeigt sich, daß die Mortalitätsschwelle für akuten Strahlentod, nach /2/ etwa 200 rem, - nur bei Wetterablauf Nr. 4 für Unfall AH δ erreicht wird.

Bei Unfall AH δ steigt D_{ges} bei den Wetterabläufen Nr. 2 und Nr. 4 in einer Entfernung von etwa 100 km bzw. 80 km wieder an. Die Erklärung ist für Wetterablauf Nr. 2 aus Tab. 4330-3 ersichtlich: Nach 16 Stunden Transportzeit findet ein vierstündiger Niederschlag statt. Auch bei Wetterablauf Nr. 4 setzt nach 8 Stunden erneuter Niederschlag ein. Dieser bewirkt eine erhöhte Ablagerung am Boden und läßt die Bodenstrahlung ansteigen.

Bei Unfall A-1,2 (Abb. 4330-2) werden überwiegend Edelgase freigesetzt, die sich nicht ablagern und die nicht ausgewaschen werden. Daher ist der Dosisverlauf in den einzelnen Wetterabläufen nicht mit den Verläufen bei dem Unfall AH δ vergleichbar. Die Strahlung vom Boden ist nahezu null (im Maximum $1,0 \cdot 10^{-6}$ rem), und trägt daher zur Gesamtstrahlung D_{ges} nur unwesentlich bei.

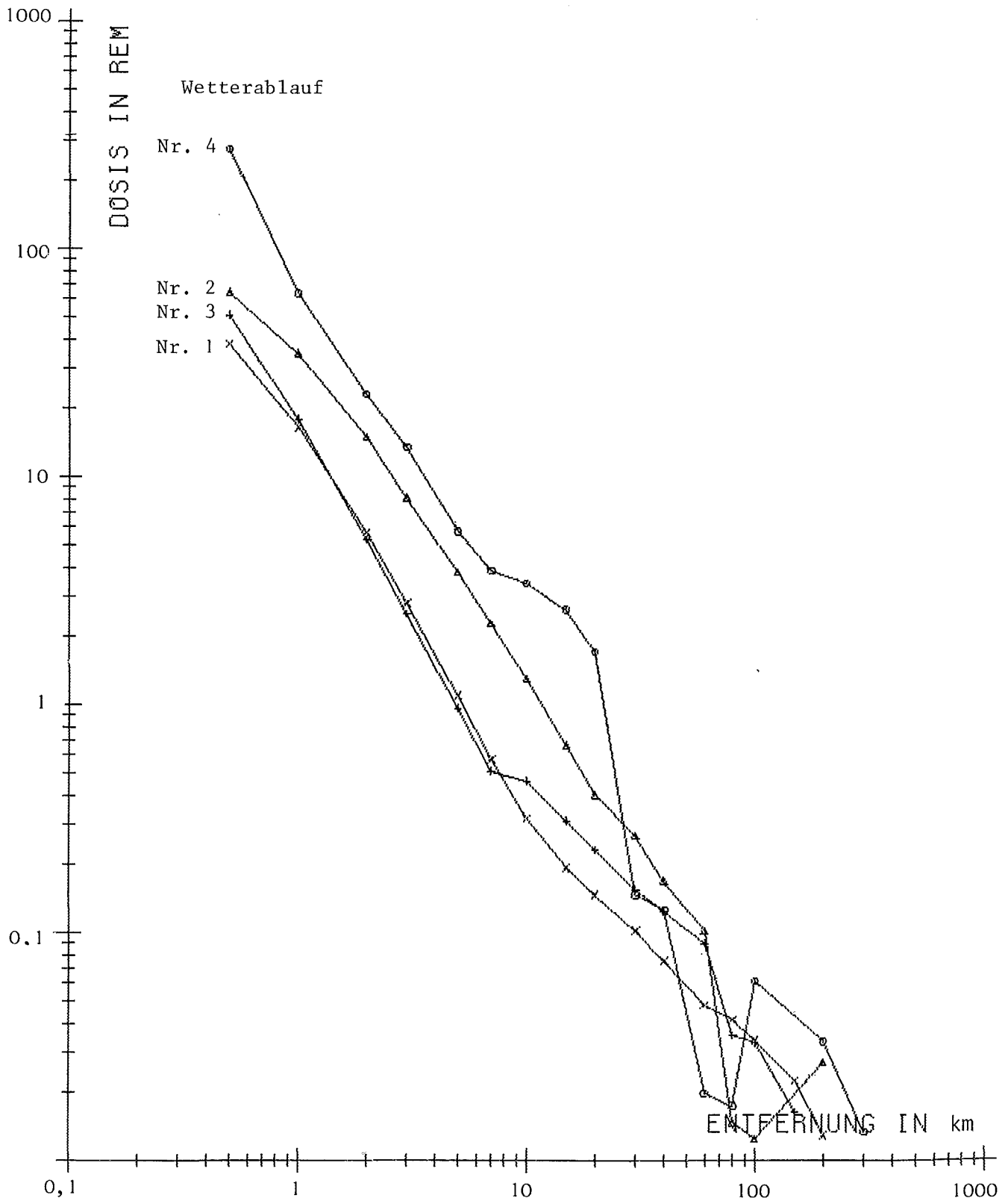


ABB. 4330-1 KNÖCHENMARKSDOSIS UNFALL AH-8

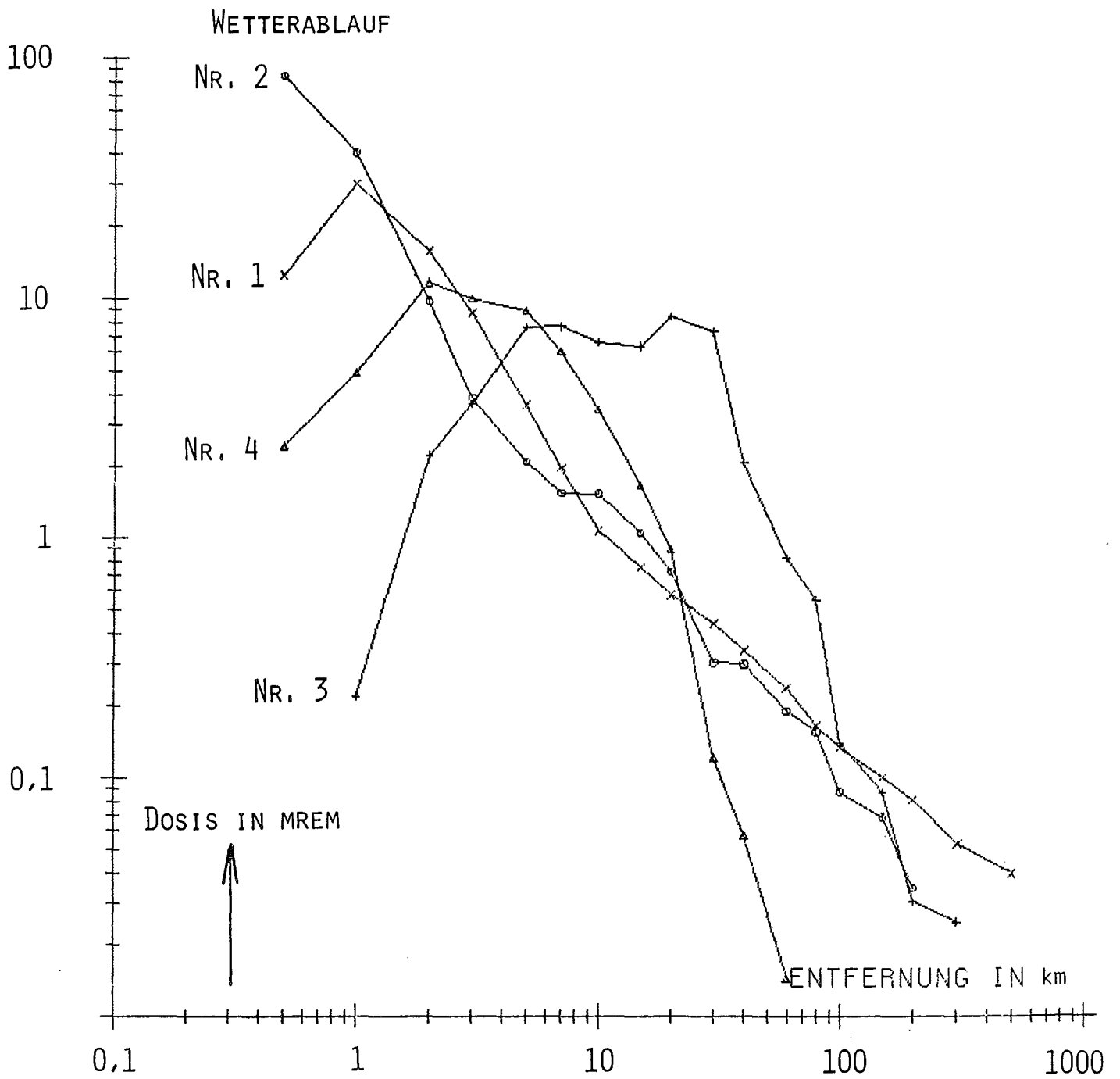


ABB. 4330-2 KNOCHENMARKSDOSIS UNFALL A-1.2

In der Abb. 4330-3 ist die Kurzzeit-Knochenmarksdosis für den Infall AH 8 und den Wetterablauf Nr. 4 nach obigen drei Belastungspfaden aufgeschlüsselt dargestellt. Das Beispiel zeigt, daß selbst in diesem Fall die Strahlung aus der Wolke und durch Inhalation allein nicht zu akutem Strahlentod führt; erst die Strahlung der am Boden abgelagerten Aktivität kann bei genügend langem Aufenthalt akute Strahlenschäden bewirken.

Dies zeigt die große Bedeutung der Aktivitätsmessungen im betroffenen Gebiet, der schnellen und gezielten Räumung und der eventuellen späteren Dekontaminierung dieses Gebietes.

Literatur:

/1/ Projekt Nukleare Sicherheit, 10. Halbjahresbericht 1976/II, KFK 2345

/2/ Reactor Safety Study, final version, WASH-1400

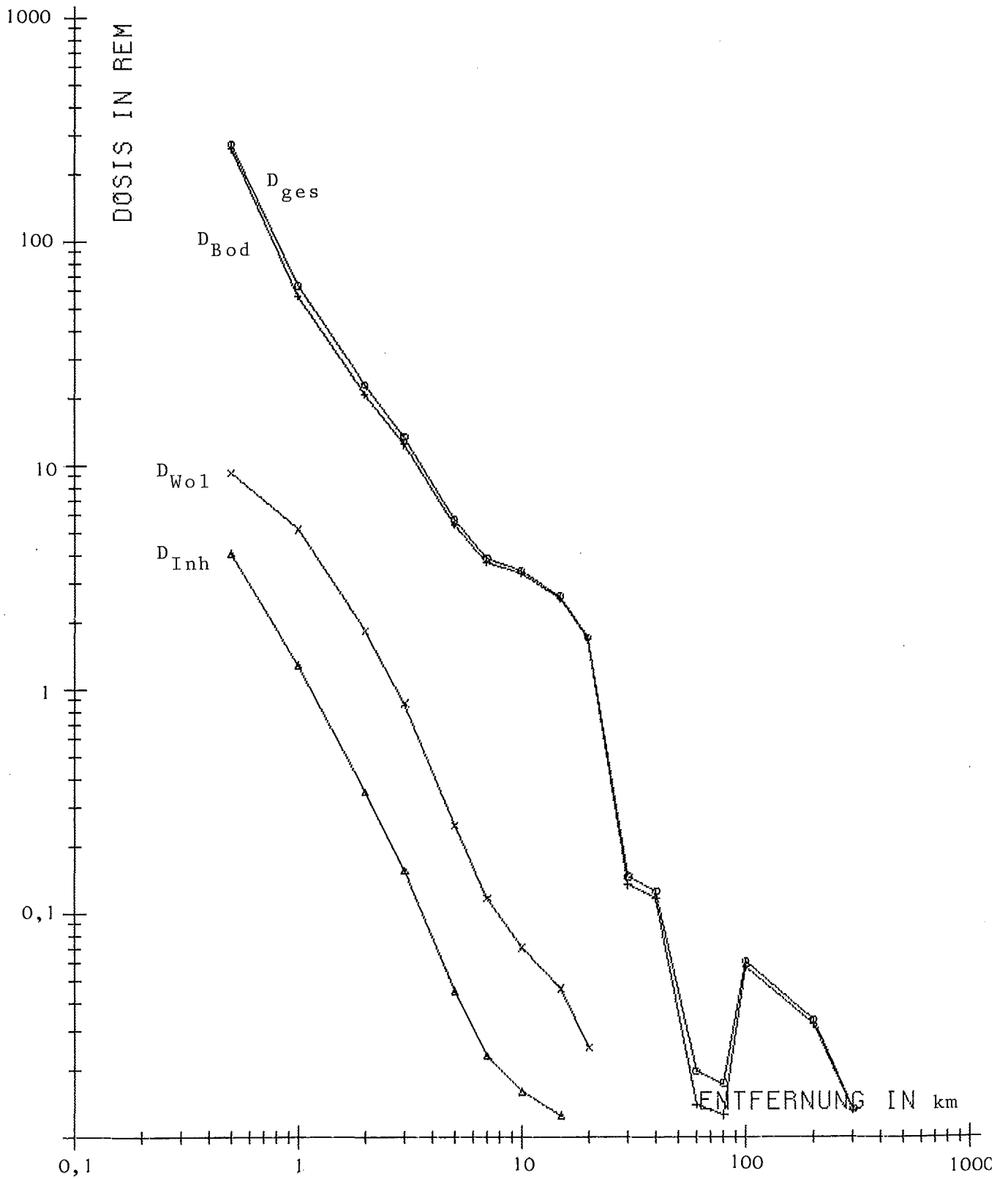


Abb. 4330-3 Knochenmarksdosis Wetterablauf Nr. 4 Unfall AH 8

4332 Rechenmodelle zur Berechnung der Schäden

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

Im Berichtszeitraum wurde der Programmteil UFO-DOWI (= Unfallfolgenmodell-Dosis-Wirkungs-Modell) des Unfallfolgenmodells in der Version für die Phase A der deutschen Reaktor-Risiko-Studie (DRS) fertiggestellt und getestet. Die Konzeption des gesamten Unfallfolgenmodells ist in Abb. 4332-1 gezeigt. Das Teilprogramm UFO-BAS (siehe 4331) beinhaltet das meteorologische Ausbreitungsmodell und berechnet ortsabhängige Aktivitätskonzentrationen und weitere für die Dosisberechnung notwendige Größen. UFO-DOWI übernimmt diese Daten und ermittelt mit Hilfe der Dosis-, Schadens- und Evakuierungsmodelle die möglicherweise auftretenden gesundheitlichen Schäden der Bevölkerung.

Das Kernstück von UFO-DOWI stellt das Dosismodell dar, das die zur Ermittlung der Schäden benötigten Dosen berechnet. Diese Dosen hängen zum einen vom Expositionspfad und dem betrachteten Organ ab, zum anderen beeinflusst aber auch die zu ermittelnde Schadensart die Vorschrift zur Berechnung der Dosen, da diese und die darauf angewendeten Dosis-Wirkungs-Beziehungen aufeinander abgestimmt sein müssen. Schließlich greift auch das Evakuierungsmodell in das Dosismodell ein, indem es die Integrationszeiträume bei der Berechnung der externen Dosis durch Strahlung von am Boden abgelagerten Aktivitäten festlegt. Diese Abhängigkeit der Dosisberechnung von den drei Parametern Organ, Expositionspfad und Schadensart ist in Abb. 4332-2 veranschaulicht. Die in UFO-DOWI angewendeten Modelle zur Dosisberechnung, die sich an die amerikanische Reactor Safety Study (WASH-1400) anlehnen, sind für die in der DRS betrachteten Schadensarten

- akute Todesfälle
- Krebsinzidenz
- genetisch signifikante Dosen

in den Abb. 4332-3a bis c als Schnitte durch den Würfel der Abb. 4332-2 gezeigt.

Im Rahmen der DRS werden die Dosis-Wirkungs-Beziehungen des Schadensmodells von der GSF und das Evakuierungsmodell vom IfU bereitgestellt.

Für einige Einzelbeispiele wurden erste exemplarische Ergebnisse erzielt, die in /1/ dokumentiert sind. In einer Reihe von Gesprächen wurden Unklarheiten, die sich aus dem Bericht WASH-1400 ergaben, beseitigt /2,3/, mögliche Änderungen der Radionuklidliste diskutiert /4/ und Absprachen über Annahmen zur deutschen Risikostudie getroffen /5/.

Im Zusammenhang mit der Abschätzung der radiologischen Belastung über den Ingestionspfad (= Inkorporation von Radionukliden durch Nahrungsmittelaufnahme) geht der altersabhängige Nahrungsmittelverbrauch als wichtiges Parameterfeld ein. Da bislang für deutsche Verhältnisse keine Datensätze vorliegen (wie sie z.B. im USNRC-Regulatory Guide 1.109 für amerikanische Verhältnisse zusammengestellt sind), wurde in einer Untersuchung unter Zugrundelegung von einer Reihe von deutschen Einzeluntersuchungen ein Satz von altersabhängigen Nahrungsmittel-Verbrauchsdaten erarbeitet /6/. Die durchschnittlichen Verbrauchs-Daten der wichtigsten Nahrungsmittel sind in Tab. 4332-1 zusammengestellt.

Aus aktuellem Anlaß wurde ein russischer Bericht über Jod-Dosisfaktoren übersetzt und bearbeitet /7/.

Schließlich wurde ein Bericht über das PNS Jahreskolloquium-1976 gegeben /8/.

Referenzen

- /1/ A. Bayer, F. Horsch, W. Hübschmann, M. Schückler, S. Vogt
Risikostudie zur Sicherheitsbeurteilung von Kernkraftwerken mit
Druckwasserreaktor für einen Standort in der Bundesrepublik
Deutschland
Unfallfolgenmodell, Phase A, Zwischenbericht, Juni 1977 (unveröffentlicht)

- /2/ A. Bayer, M. Schückler, W. Hübschmann, S. Vogt
Notiz
über das "Consequence Model" der "Reactor Safety Study, WASH-1400"
März 1977 (unveröffentlicht)
- /3/ A. Bayer
Nachtrag zu /2/, Juni 1977 (unveröffentlicht)
- /4/ A. Bayer
Amerikanische Änderungsvorschläge zur Radionuklidliste der
"Reactor Safety Study"
Mai 1977 (unveröffentlicht)
- /5/ W. Hübschmann, A. Bayer
Dosis-Wirkungs-Beziehungen
Bericht vom
14.2.77, GRS Garching (unveröffentlicht)
- /6/ R. Kalckbrenner
Altersabhängige Nahrungsmittel-Verbrauchsdaten zur Ermittlung
der radiologischen Belastung über den Ingestionspfad
Juni 1977 (unveröffentlicht)
- /7/ G. V. Arkhangel'skaya et al.
Unterlagen für die Normierung und Direktiven für die maximal
zulässigen Inkorporationswerte radioaktiver Jodisotope in den
Organismus des Menschen (1975)
übersetzt von Rosemarie Corssen, bearbeitet von A. Bayer
Bericht KFK-tr-513 (1977)
- /8/ A. Bayer, M. Dalle Donne
Jahreskolloquium 1976 des Projekts Nukleare Sicherheit der GfK
KfK Nachrichten 9, 1 (1977) 30-34

Tab. 4332-1: Altersabhängige Nahrungsmittel-Verbrauchsdaten

Nahrungsmittel	Nahrungsmittel-Verbrauchsdaten				Durchschnittl. Person	Überschreitungs-faktor 1)
	Kleinkinder	Kinder	Jugendliche	Erwachsene		
Getreide	20	36	57	80	70	2
Kartoffel	-	21	48	89	73	3
Gemüse	18	41	49	56	52	2
Blatt-Gemüse	6	25	31	37	34	2
Wurzel-Gemüse	12	16	18	19	18	2
Früchte	40	84	96	90	90	1,2
Fleisch und Fleischprodukte	3	30	55	79	68	1,2
Milch und Milchprodukte (ohne Butter)	216	96	86	104	102	4
Frisch-Milch	216	76	61	71	72	4
Fisch und Fischprodukte						
- Salzwasser	-	2.8	4,7	6.6	5.7	4
Fisch und Fischprodukte						
- Süßwasser	-	0.15	0.26	0.37	0.32	65
Trinkwasser	180	330	440	440	422	
Atemluft 2)	1900	3700	6300	6620	6130	

1) Faktor, um den der jeweilige durchschnittliche Verbrauch von gewissen Bevölkerungsgruppen (z.B. Eigenproduzenten) - also nicht nur von einer Einzelperson - überschritten werden kann

2) Einheit = $\frac{m^3}{yr}$

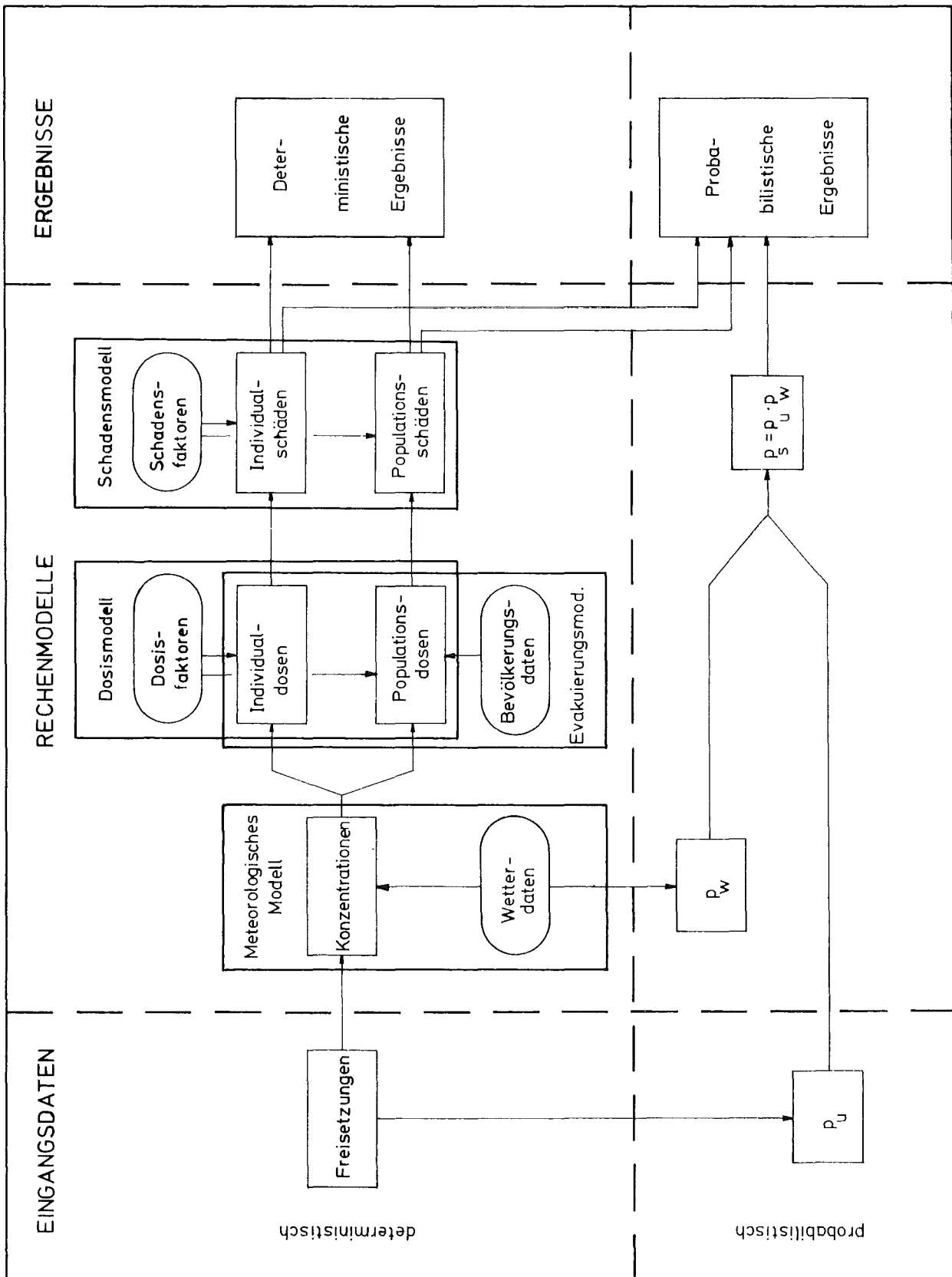


Abb. 4332-1: Konzept des Unfallfolgenmodells der Risiko-Studie
 (p_u = Eintrittswahrscheinlichkeit eines Unfalls
 p_w = Häufigkeit einer Wetterlage)

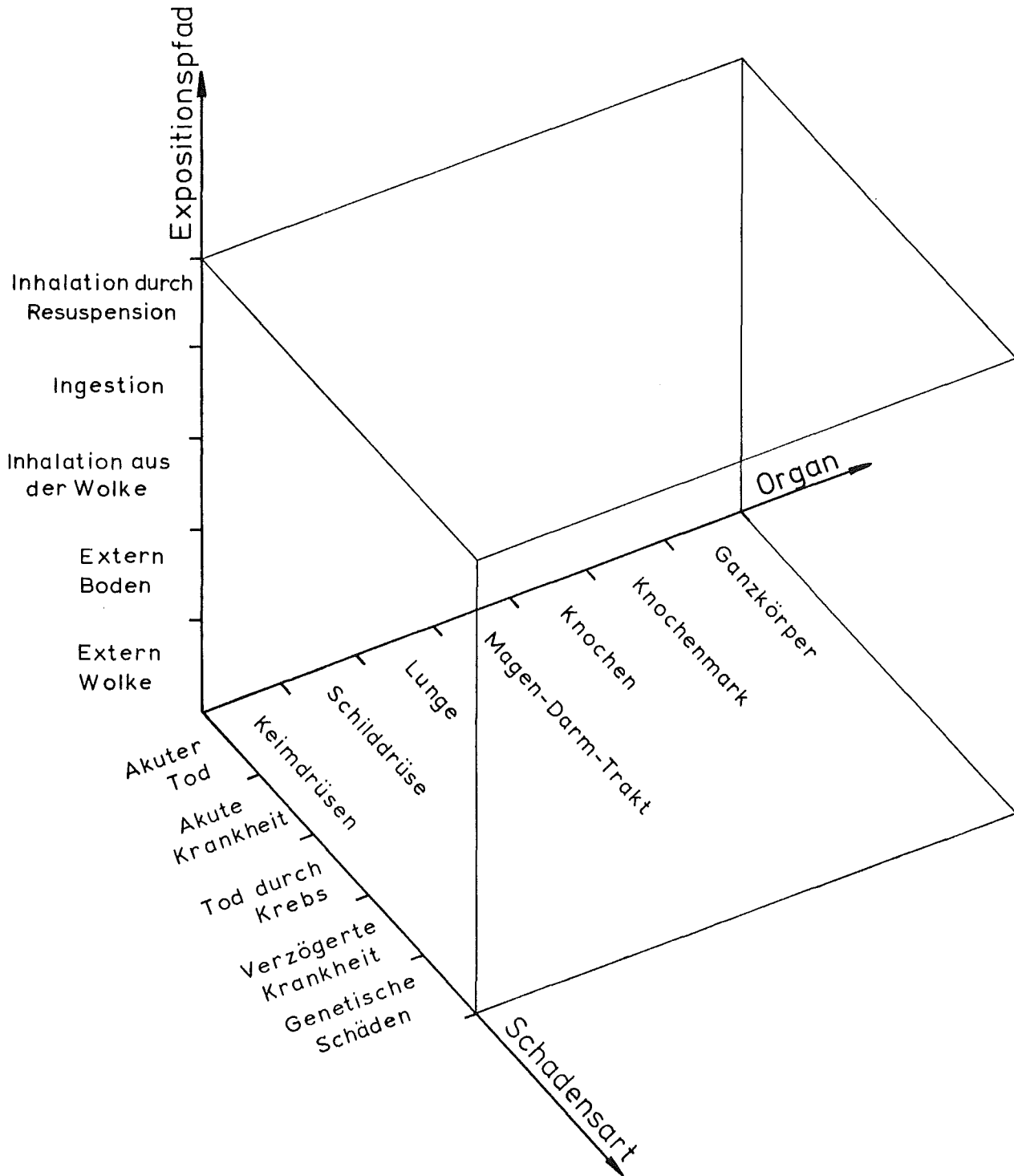


Abb. 4332-2: Parameterabhängigkeit der Dosisberechnung in UFO-DOWI

Ganzkörper	—	—	—	—	—
Knochenmark	$T_W = T_D$	$T_W = T_E$	$T_A = T_D$ $T_W = 7d/30d$ 1)	—	—
Knochen	—	—	—	—	—
Magen-Darm-Trakt	$T_W = T_D$	$T_W = T_E$	$T_A = T_D$ $T_W = 7 d$	—	—
Lunge	$T_W = T_D$	$T_W = T_E$	$T_A = T_D$ $T_W = 365 d$	—	—
Schilddrüse	—	—	—	—	—
Keimdrüsen	—	—	—	—	—
	Extern Wolke	Extern Boden	Inhalation Wolke	Ingestion	Inhalation Resuspension

T_W = Wirkungsdauer der Bestrahlung

T_D = Durchzugsdauer der radioaktiven Wolke

T_A = Dauer der Aufnahme von Radionukliden

$$T_E = \begin{cases} 4 \text{ h bei Evakuierung} \\ 1 \text{ d bei sofortiger Umsiedlung (falls die Ganzkörperdosis in 7 d 200 rem übersteigen würde)} \\ 7 \text{ d sonst} \end{cases}$$

1) Die Dosis vom 8. bis 30. Tag wird nur zur Hälfte addiert

Abb. 4332-3a: Schema der Dosisberechnung in UFO-DOWI
Schadensart: Akute Todesfälle

Ganzkörper	$T_W = T_D$	$T_W = 50 \text{ a}$ 2)	$T_A = T_D$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = \infty$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = 10 \dots 50 \text{ a}$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3) 5)
Knochenmark	$T_W = T_D$	$T_W = 50 \text{ a}$ 2)	$T_A = T_D$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = \infty$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = 10 \dots 50 \text{ a}$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3) 5)
Knochen	$T_W = T_D$	$T_W = 50 \text{ a}$ 2)	$T_A = T_D$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = \infty$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = 10 \dots 50 \text{ a}$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3) 5)
Magen-Darm-Trakt	$T_W = T_D$	$T_W = 50 \text{ a}$ 2)	$T_A = T_D$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = \infty$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = 10 \dots 50 \text{ a}$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3) 5)
Lunge	$T_W = T_D$	$T_W = 50 \text{ a}$ 2)	$T_A = T_D$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = \infty$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3)	$T_A = 10 \dots 50 \text{ a}$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 3) 5)
Schilddrüse	$T_W = T_D$ 1)	$T_W = 50 \text{ a}$ 1) 2)	$T_A = T_D$ $T_W = 30 \text{ d}$ 1) 4)	$T_A = \infty$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 1) 3)	$T_A = 10 \dots 50 \text{ a}$ $T_W = 10 \dots 50 \text{ a}$ 1) 3) 5)
Keimdrüsen	—	—	—	—	—

Extern Wolke Extern Boden Inhalation Wolke Ingestion Inhalation Resuspension

T_W = Wirkungsdauer T_D = Durchzugsdauer der Wolke T_A = Aufnahmedauer

- 1) 10 % der bösartigen Erkrankungen führen zum Tod
- 2) Integrationszeitraum u.U. unterbrochen durch Evakuierung und Umsiedlung. Bodenaktivität evt. reduziert durch Dekontamination.
- 3) Dosis-Wirkungs-Faktoren nehmen aufgrund der natürlichen Sterberate mit der Zeit nach der Inkorporation ab. Betrachtete Integrationszeiträume: 0 - 10a, ..., 40 - 50a
- 4) Dosis durch J-131 wird nur zu einem Zehntel berücksichtigt
- 5) Aufnahme in 10-Jahres Zeiträume unterteilt: 0-10a, ..., 40 - 50a

Abb. 4332-3b: Schema der Dosisberechnung in UFO-DOWI

Schadensart: Krebsinzidenz

Ganzkörper	—	—	—	—	—
Knochenmark	—	—	—	—	—
Knochen	—	—	—	—	—
Magen-Darm-Trakt	—	—	—	—	—
Lunge	—	—	—	—	—
Schilddrüse	—	—	—	—	—
Keimdrüsen	$T_W = T_D$	$T_W = 50 \text{ a}$	$T_A = T_D$ $T_W = 10..50\text{a}$	$T_A = \infty$ $T_W = 10..50\text{a}$	$T_A = 10..50\text{a}$ $T_W = 10..50\text{a}$
	Extern Wolke	Extern Boden	Inhalation Wolke	Ingestion 2)	Inhalation Resuspension 3) 2)

T_W = Wirkungsdauer der Bestrahlung

T_D = Durchzugsdauer der radioaktiven Wolke

T_A = Dauer der Aufnahme von Radionukliden

1) Integrationszeitraum u.U. unterbrochen durch Evakuierung und Umsiedlung. Bodenaktivität evt. reduziert durch Dekontamination.

2) Dosis-Wirkungs-Faktoren nehmen aufgrund der natürlichen Sterberate mit der Zeit nach der Inkorporation ab. Betrachtete Integrationszeiträume: 0 - 10 a, ..., 40 - 50 a

3) Aufnahme in 10-Jahres Zeiträume unterteilt: 0 - 10 a, ..., 40 - 50 a

Abb. 4332-3c: Schema der Dosisberechnung in UFO-DOWI

Schadensart: Genetisch signifikante Dosis

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)

Die im 2. Halbjahr 1976 beschriebenen Arbeiten zur Optimierung eines flüssigen Reinigers für Dekontaminationszwecke wurden mit der Prüfung weiterer Grundsubstanzen auf Dekontaminationswirkung, thermische Stabilität und Schaumverhalten fortgesetzt.

Aus allen für Reinigungszwecke geeigneten Substanzen, die bei Temperaturen $\geq 200^{\circ}\text{C}$ thermisch stabil sind, wurden zuerst schaumregulierte Reinigergrundmischungen hergestellt und getestet. Die reinigungsintensivste wässrige Tensidmischung wurde dann mit und ohne Zugabe von Komplexbildnern - in Abhängigkeit vom pH-Wert - an kontaminierten Edelstahlproben auf ihr Reinigungsvermögen gegenüber Radionukliden untersucht.

Abschließend wurde durch Zumischen mehrerer wirksamer Komplexbildner in einem Reiniger die Dekontaminationswirkung optimal eingestellt und die Ergebnisse an kontaminierten Edelstahl-, Glas- und PVC-Bodenproben sowie an anstrichbeschichteten Oberflächen nachgewiesen.

1.1 Thermische Stabilität

Die zu prüfenden Substanzen wurden 24 Stunden bei 60°C und 10 bis 20 Torr im Vakuumtrockenschrank entwässert. Anschließend wurde die thermische Stabilität mit Hilfe der D-ifferential-Thermoanalyse (DTA) ermittelt. Als Vergleichssubstanz diente bei ca. 1000°C ausgeglühtes

Aluminiumoxidpulver: Bei festgelegter Aufheizgeschwindigkeit und vorgewählter Endtemperatur von 400°C wurden alle Vorgänge aufgezeichnet.

1.2 Schaumwerte

Die Schaumentwicklung und- beständigkeit wurde mit dem Reibschaumgerät nach Dr. H. Wilmsmann bestimmt.

1.3 Dekontaminationswirkung

1.3.1 Herstellung der Kontaminationsträger

Kontaminationsträger der Größe 25 mm x 25 mm x 1 bis 5 mm Stärke wurden mit 0,1 ml einer schwach salz- oder/und salpetersauren Radionuklidmischung, welche ^{144}Ce , ^{106}Ru , ^{137}Cs , und ^{60}Co in annähernd gleicher Konzentration enthält (spez. Aktivität der Lsg. ca 2 $\mu\text{Ci/ml}$) kontaminiert und bei 40°C zwei Stunden eingetrocknet.

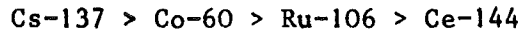
1.3.2 Dekontaminationsprüfungen

Zwei kontaminierte Plättchen wurden an einem Edelstahlrührstab befestigt und bei 500 Upm 2 x 10 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.

1.4 Reinigergrundmischung

Durch Mischen mehrerer nichtionogener Fettaminoxäthylate mit Polymerisationsprodukten aus Polyalkoholen, Propylenoxiden und Äthylenoxiden konnte eine schaumregulierte wässrige Reinigergrundmischung hergestellt werden, die konventionellen Schmutz sehr gut sowie Radionuklide mäßig entfernt. Die besten Dekontaminationszwecke (siehe Tab. 4411-1) wurden in stark sauren (pH ~ 2) und stark alkalischen (pH~10) Lösungen gefunden,

wobei die Entfernbarkeit in der Reihenfolge



abnahm. Eine Verdopplung der Dekontaminationsdauer von 10 auf 20 Minuten ergab nur eine unwesentliche Steigerung der Effektivität.

1.4.1 Reinigergrundmischungen, die einen Komplexbildner enthalten

Ziel dieser Untersuchungen war es mit thermisch stabilen Komplexbildnern die Dekontaminationswirkung der Zitronensäure, die $< 200^{\circ}\text{C}$ thermisch stabil ist, zu erreichen.

Den Versuchsergebnissen (Tab. 4411-1 B bis E) lassen sich nachfolgende Tatsachen entnehmen:

- Aminoazetat-zusätze verbesserten die Dekontaminationswirkung. Die besten Ergebnisse wurden mit alkalisch (pH=10) eingestellten Dekontaminationslösungen erreicht.
- Methylphosphorsäureester-zusätze verbesserten die Ergebnisse in sauer eingestellten Lösungen nur geringfügig. In alkalischen Lösungen waren die Dekontaminationswerte schlechter als in der Reinigergrundmischung.
- Polyphosphat-zusätze ergaben sehr gute Resultate. Untersuchungen in sauer eingestellten Lösungen konnten wegen der Hydrolyse der Polyphosphate nicht durchgeführt werden.

Aufgrund dieser Resultate sind

- aminoacetat- und polyphosphathaltige bessere,
- methylphosphorsäureesterhaltige wesentlich schlechtere Dekontaminationsreiniger als zitronensäurehaltige Produkte.

Alle aus thermisch stabilen Komplexbildnern aufgebauten Reiniger ergaben in schwachsauren Lösungen (pH ~6) die schlechtesten Ergebnisse.

1.4.2 Reinigergrundmischungen, die mehrere Komplexbildner enthalten

Alkalische Reiniger aus Polyphosphat und Aminoacetat sowie Polyphosphat, Aminoacetat und Natriumfluorid (Tab. 4411-1 F + G) zeigten noch bessere Dekontaminationsergebnisse als Reinigergrundmischungen mit nur einem Komplexbildner.

Für die Entfernbarekeit der Einzelnuclide gilt die gleiche Reihenfolge wie bei der Reinigergrundmischung. Die Verdoppelung der Dekontaminationsdauer brachte eine geringe Steigerung der Effektivität.

1.4.3 Optimierter Reiniger

Auf Grund der bisherigen Erkenntnisse wurde die Rezeptur überarbeitet und an bzw. mit den nun hergestellten Reiniger die wichtigsten Untersuchungen durchgeführt.

- Die nach dem Dekontaminieren an verschiedenen Oberflächen gefundenen Werte (Tab. 4411-2) ergaben, daß die Dekontaminationswirkung des entwickelten alkalischen Reinigers im Vergleich zum Papan-Dekopan geringfügig verbessert werden konnte.
- Die für die störungsfreie Aufarbeitung der radioaktiven Abwässer (z.B. durch Verdampfung) erforderlichen Schaumwerte konnten reduziert werden und erhöhen sich selbst bei der Aufkonzentrierung um das Zwanzigfache nicht (Tab. 4411-3).
- Die für das Bituminieren des Reinigerrückstandes erforderliche thermische Stabilität bis mindestens 200°C (Tab. 4411-3) wurde geringfügig überschritten.

Die Arbeiten zu diesem Thema werden in Kürze abgeschlossen.

Nach der Lösung bzw. Klärung nachfolgender Punkte:

1. Beseitigung der Trübung des Reinigerkonzentrates durch Zusätze von thermisch stabilen Lösungsvermittlern und
2. prüfen der Entfernbareit von Fe-59 und Cr-57 mit und ohne Natriumfluoridzusatz im Reinigerkonzentrat,

wird die Herstellung dieses Reinigers als Lizenz vergeben und ein Abschlußbericht veröffentlicht.

Tab.: 4411-1 Dekontaminationsergebnisse in Abhängigkeit vom pH-Wert

Reinigerzusammensetzung	pH-Wert der Dekolösung ^{†)}	R e s t a k t i v i t ä t i n %							
		nach 10 Minuten				nach 20 Minuten			
		Ce-144	Ru-106	Cs-137	Co-60	Ce-144	Ru-106	Cs-137	Co-60
A, Reinigergrundmischung (waschaktive Substanzen im Wasser)	2	0,8	3,5	0,2	0,4	0,7	3,2	0,2	0,4
	4	17,2	8,3	0,1	0,8	15,7	7,7	0,1	0,6
	6	36,0	19,8	0,1	3,8	34,8	18,0	0,1	3,6
	8	30,1	15,1	0,1	2,2	29,8	13,5	<0,1	1,9
	10	22,6	8,9	0,1	4,4	22,4	8,4	<0,1	4,1
B, A + 10 Gew.% Zitronensäure	2	0,4	3,0	<0,1	0,2	0,3	2,5	<0,1	0,2
	4	0,6	1,5	0,1	0,2	0,6	1,4	<0,1	0,2
	6	0,6	0,7	0,1	0,4	0,5	0,6	0,1	0,3
	8	0,5	0,5	0,1	0,3	0,4	0,5	0,1	0,3
	10	2,7	0,9	0,1	0,6	2,4	0,9	0,1	0,6
C, A + 10 Gew.% Aminoacetat	2	0,4	1,6	<0,1	0,3	0,3	1,2	<0,1	0,3
	4	0,5	2,3	0,1	0,3	0,4	2,0	0,1	0,3
	6	0,9	3,3	0,1	0,3	0,5	3,0	<0,1	0,3
	8	0,6	0,9	0,1	0,3	0,5	0,6	<0,1	0,3
	10	0,5	0,4	0,1	0,3	0,4	0,2	<0,1	0,3
D, A + 10 Gew.% Methyphosphorsäure- ester	2	0,8	2,5	0,1	0,4	0,5	2,7	0,1	0,3
	4	1,2	6,6	<0,1	0,4	1,0	5,6	0,1	0,2
	6	44,7	20,7	<0,1	4,2	39,0	18,1	0,1	2,9
	8	26,1	14,5	0,1	6,1	26,0	14,0	0,1	4,9
	10	32,3	12,5	0,1	7,4	31,4	10,1	0,1	4,9
E, A + 10 Gew.% Polyphosphat	8	0,6	0,2	<0,1	0,3	0,5	0,1	<0,1	0,3
	10	0,7	0,4	0,1	0,4	0,5	0,1	<0,1	0,3
F, C + E	8	0,5	0,3	0,1	0,3	0,4	0,1	<0,1	0,2
	10	0,4	0,1	<0,1	0,2	0,3	0,1	<0,1	0,2
G, F + 2% NaF	8	0,5	0,3	0,1	0,3	0,4	0,2	<0,1	0,2
	10	0,5	0,3	0,1	0,3	0,4	0,1	<0,1	0,3

†) Dekontaminationslösung enthält 1 Gew.% Reiniger und 99% dest. Wasser

Tab. 4411-2: Dekontaminationsergebnisse an verschiedenen Oberflächen

Dekontaminationsmittel	Kontaminations-träger	R e s t a k t i v i t ä t i n %							
		nach 10 Minuten				nach 20 Minuten			
		Ce-144	Ru-106	Cs-137	Co-60	Ce-144	Ru-106	Cs-137	Co-60
Papan-Dekopan	Edelstahl	0,4	0,5	0,1	0,3	0,4	0,5	<0,1	0,3
	Epoxidbeschichtung	0,6	0,4	0,1	0,4	0,6	0,4	0,1	0,4
	PVC-Bodenbelag	0,5	1,5	0,7	1,2	0,4	1,0	0,6	1,1
	Glas	0,4	0,5	0,1	0,3	0,4	0,4	0,1	0,3
optimierter Reiniger	Edelstahl	0,4	0,3	0,1	0,3	0,2	0,3	<0,1	0,2
	Epoxidbeschichtung	0,5	0,3	0,1	0,3	0,5	0,3	<0,1	0,3
	PVC-Bodenbelag	0,5	0,4	0,5	0,4	0,4	0,4	0,5	0,4
	Glas	0,4	<0,1	0,1	0,2	0,4	<0,1	<0,1	0,2

Tab. 4411-3: pH - Wert, thermische Stabilität und Schaumwerte der entwickelten Reiniger

Dekontaminations- mittel	pH-Wert	Thermische Stabilität ⁺⁾ Zersetzungsbeginn °C		Schaumentwicklungsrate (ml/min) bei 95°C der Lösungen		Schaumbeständigkeit in min bei 95°C der Lösungen	
		endotherm	exotherm	0,5%ig	10%ig	0,5%ig	10%ig
Papan-Dekopan	4,5	145	-	20	30	<0,5	<0,1
optimierter Reiniger	9,2	-	209	10	<5	<0,5	<0,1

^{+) nach 24 Stunden Entwässerung bei 60°C und 10 bis 20 Torr im Vakuumtrockenschrank}

2. Dekontamination metallischer Oberflächen mit Salzschnmelzen

(D. Hentschel, ABRA)

Die Laborarbeiten zu diesem Thema wurden, wie berichtet, mit Versuchen an kontaminierten Proben aus den Kernkraftwerken Obrigheim und Lingen unter Verwendung der Flamm-spritzapparatur mit geschmolzenem Kaliumdihydrogenphosphat als Dekontaminationsmittel beendet. An diese Experimente schloß sich dann eine Phase an in der in Zusammenarbeit mit der Firma Kraftanlagen Heidelberg der mögliche Aufbau eines Gerätes für eine technische Realisierung dieses Dekontaminationsverfahrens geplant und zusammengestellt wurde.

Aus den vorangegangenen Berichten über dieses Thema geht hervor, daß bei der Dekontamination von Oberflächen mit geschmolzenem Kaliumdihydrogenphosphat in dünnen Schichten zwei Punkte, nämlich die Erwärmung des Werkstücks auf die Schmelztemperatur des Salzes und die Dosierung des Salzes, von besonderer Bedeutung sind. Aus diesem Grunde wurde hierauf bei der Konzipierung einer Apparatur, mit der die technische Realisierung des Verfahrens demonstriert werden sollte, besonders geachtet. Nach mehreren Gesprächen und Versuchen bei den entsprechenden Firmen wurde schließlich folgender Versuchsaufbau festgelegt:

- Als Wärmequelle diente eine Induktionsglühanlage (AEG Elotherm), die zur Einhaltung der Versuchstemperatur mit Thermo-elementen gesteuert werden konnte.
- Für die Versprühung des Salzes wurde eine Bepuderungsanlage (Fa. A. Platsch), die mit stufenlos regulierbarer Vibrationsdosierung, regelbarer pneumatischer Förderung und Aufpralldüse ausgerüstet war, benutzt.

Um die geeigneten Versuchsbedingungen zu ermitteln wurden zunächst Heiz- und Sprühversuche an einem nicht radioaktiv kontaminierten Rohrstück durchgeführt. Abb. 4411-1 zeigt schematisch den Versuchsaufbau, der mit dem zur Dekontamination eingesetzten Versuchsstand identisch ist. Als Ergebnisse dieser Experimente sind zu nennen:

- Umfangreiche Versuche am System Natronlauge/Kaliumpermanganat (AP) zeigten, daß diese Lösung kein eigentliches Dekontaminationsmittel darstellt. Es greift lediglich, wie später gezeigt wird, die kontaminierte Oberfläche so an, daß das eigentliche Dekontaminationsmittel eine bessere Wirkung erzielt. Abtrags- und Dekontaminationsversuche rechtfertigen die Aussage, daß die Wirkung in einem Bereich von 18 bis 9 g Natronlauge und 3 bis 2 g Kaliumpermanganat pro 100 ml Wasser gleich bleibt.
- Das Ergebnis, daß 1%-ige Oxalsäure im Verhältnis Dekontaminationswirkung zu anfallender Abfallmenge gegenüber höheren Konzentrationen am effektivsten ist, konnte bestätigt werden.
- Reine Oxalsäurelösungen ergaben gegenüber den im folgenden beschriebenen Lösungskombinationen die besten Dekontaminationsergebnisse (RA um 10% für ^{144}Ce bzw. 30% für ^{60}Co).
- Dibasisches Ammonium- bzw. Natriumcitrat zeigt keine guten Dekontaminationseigenschaften (Restaktivitäten nicht unter 60% für ^{144}Ce und ^{60}Co nach 2 Stunden) Ein Zusatz von EDTA bringt keine Verbesserung.
- Die Kombinationen dibasisches Ammonium- bzw. Natriumcitrat/Oxalsäure ergeben Dekontaminationswerte, die mit den in 1%-iger Oxalsäure erhaltenen, vergleichbar sind. Hier fällt auf, daß die Kombinationen, die weniger Zitronensäure enthalten, bessere Dekontaminationsergebnisse, speziell für ^{144}Ce , liefern. Wegen der nicht guten Verträglichkeit des Ammoniums mit den Fixierungsmethoden für den radioaktiven Abfall sollte man den Ergebnissen mit dibasischem Natriumcitrat mehr Bedeutung beimessen.

Aus diesen Ergebnissen wurden nun Oxalsäure und die Kombination dibasisches Natriumcitrat/Oxalsäure ausgewählt, mit denen Versuche an Proben, die mit alkalischer Permanganatlösung vorbehandelt waren, durchgeführt. Die bisherigen Ergebnisse sind in der Tabelle 4411-6 zusammengefaßt. Daraus ist ersichtlich, daß durch die Vorbehandlung die Dekontaminationswirkung dieser Mittel erheblich verbessert wird. Weiterhin kann man in diesem Fall auch stark verdünnte Dekontaminationsmittel einsetzen, um zum gleichen Erfolg zu gelangen. Wie die Tabelle jedoch zeigt, bringt die Vorbehandlung mit der konzentrierten AP-Lösung schlechtere Ergebnisse. Das bedeutet, daß durch weitere Versuche die optimale Konzentration gesucht werden muß.

- Die Salzkörnung darf nicht zu fein sein; eine Körnung zwischen 0.2 bis 0.35 mm hat sich als Optimum gezeigt.
- Der Förderdruck muß möglichst gering sein, damit das Salz nicht aus dem Rohr herausgeblasen wird.
- Eine Düse zum Besprühen war nachteilig. Deswegen wurde späterhin nur mit dem Schlauch gesprüht.
- Die Temperatur in der Rohrinnenfläche läßt sich auch dann gut steuern, wenn die Meßstelle zur Steuerung der Glühanlage an der Rohraußenwand angebracht ist.

Mit diesen Erfahrungen wurden nun zwei Dekontaminationsversuche bei der Gerätedekontamination der ADB durchgeführt. Als Dekontaminationsobjekte dienten zwei Rohrstücke aus den Kondensatablaufrohren des Dampfumformers des Kernkraftwerk Lingen (Werkstoff 1.4550, Länge ca 500 mm, li \varnothing 230 mm, Wandstärke 20 mm). In den Rohren wurde vor Beginn des Versuchs lediglich die Dosisleistung gemessen. Dann wurde eine bestimmte Zeit mit Salz besprüht, nachwirken gelassen, das Salz mit Dampfstrahl entfernt, die Dosisleistung gemessen und der Versuch wiederholt. Nach den Versuchen wurden die Rohrstücke zunächst optisch begutachtet. Rohr 1 zeigte z.T. blanke Stellen, teilweise eine Salzkruste bestehend aus polymeren Kaliummetaphosphat, was, wie sich nachträglich rekonstruieren ließ, auf eine fehlerhafte Anbringung des Thermoelements zurückzuführen war. Rohr 2 war an den Rohrenden dunkelgrau und in der Mitte blank, was bedeutet, daß nur dort die Temperatur ausreichend hoch war. Aus diesen Rohren wurden nun Stücke herausgeschnitten (s. Abb. 4411-2). Zur Bestimmung der auf den Proben verbliebenen Aktivität wurden die herausgeschnittenen Stücke solange mit Salzsäure behandelt bis sich keine Aktivität auf der Oberfläche mehr nachweisen ließ. In dieser Lösung wurde nun die Aktivität (Co-60) quantitativ bestimmt und auf die Probenoberfläche umgerechnet. Da die Oberflächenkontamination der Rohre aus vorangegangenen Experimenten bekannt ist, war es damit möglich, die prozentuale Restaktivität zu ermitteln.

Die Einwirkzeiten, Dosisleistungsmeßwerte, spezifischen Oberflächenaktivitäten nach der Behandlung sowie die berechneten Restaktivitäten sind in Tabelle 4411-4 zusammengefaßt. Daraus ist ersichtlich, daß man zufriedenstellende Dekontaminationsergebnisse (Restaktivitäten ~ 5%) mit diesem

Verfahren dann erzielen kann, wenn die Temperatur genügend hoch ist (300°C) und die Salzschrift gleichmäßig verteilt ist, was bei Rohr 2 in der Mitte (Proben 3 u. 4) der Fall war. Die Ergebnisse entsprechen dann denen, die im Laborversuch erzielt werden konnten.

Abb. 4411-1: Versuchsaufbau zur technischen Demonstrationsanlage für die Dekontamination mit Salzschnelzen (schematisch)

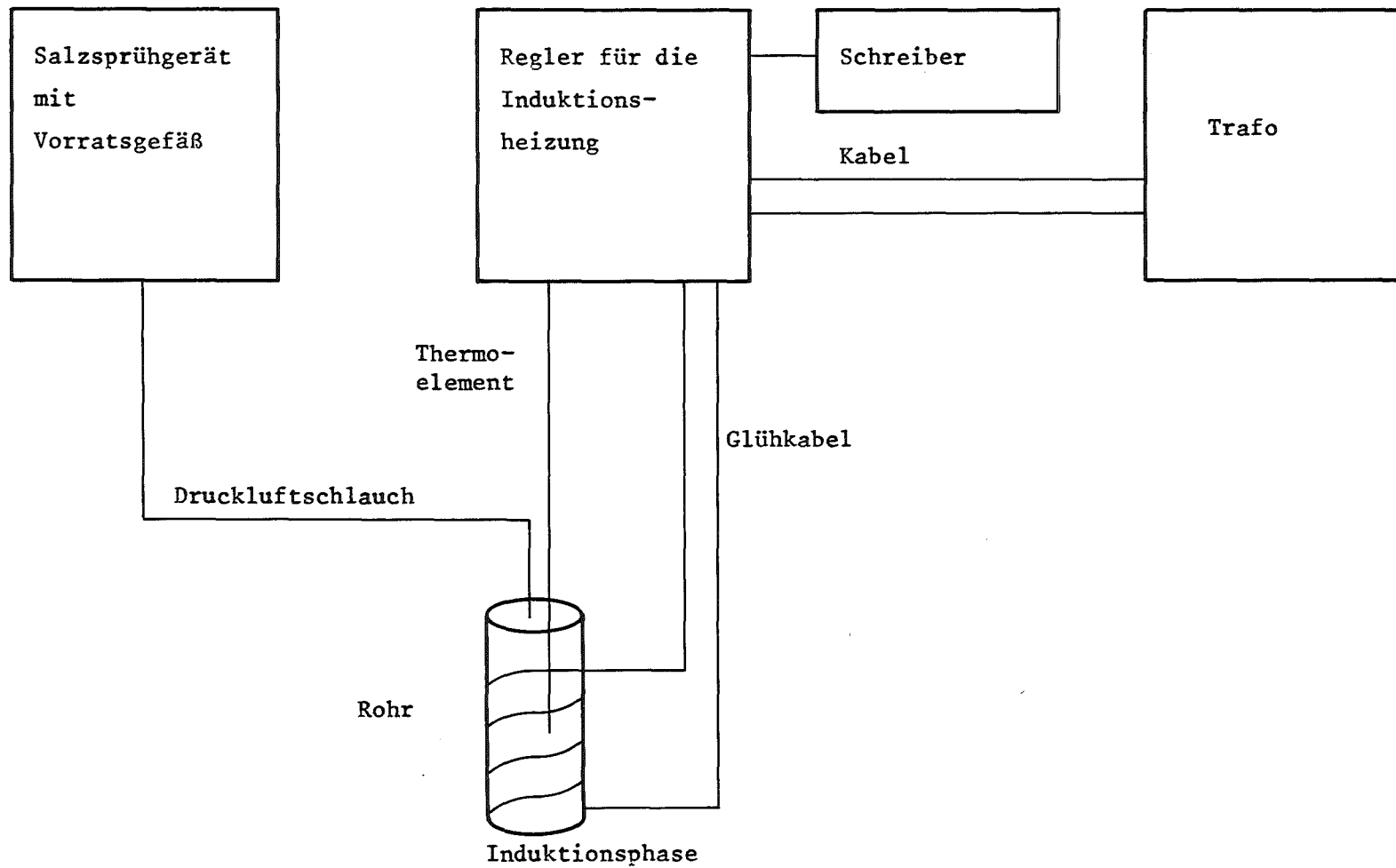
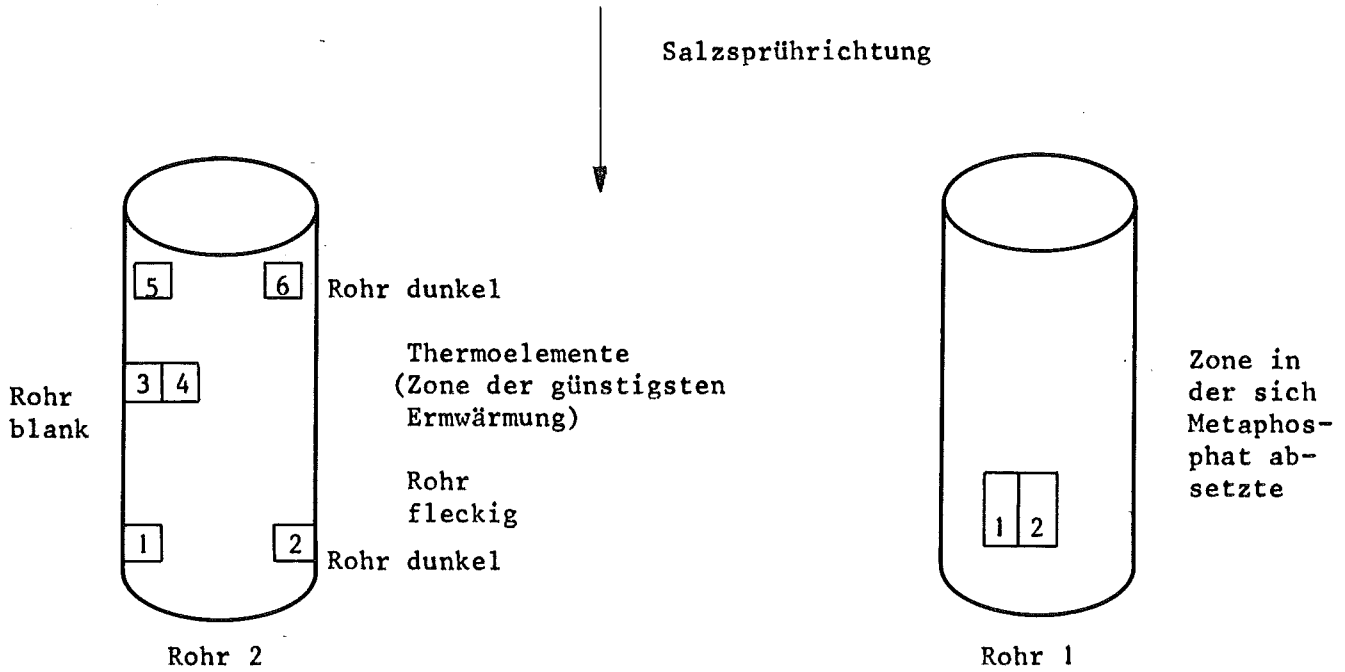


Abb. 4411-2: Aussehen der Rohrstücke und Probennahme
für die Auswertung (Tab. 4411-4)



Tab. 4411-4: Dekontaminationsergebnisse mit Kaliumdihydrogenphosphat an Rohren aus dem Kernkraftwerk Lingen (s. dazu auch Abb. 4411-2)

Rohr Nr.	Sprüh- +)Einwirkzeit min	Restaktivität $\frac{DL^+ \text{ nach}}{DL \text{ vor}} \cdot 100$	Probe-Nr.	Anhaftende Restaktivität $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-2}$	Restaktivität ⁺⁺⁾ ^{60}Co %
1	80	33%	1	0,4	27
			2	0,4	27
2	45	35%	1	0,6	40
			2	0,8	53
			3	0,07	5
			4	0,1	7
			5	0,9	60
			6	1,5	100

+) Dosisleistung in der Rohrmitte. DL vor = 150 bzw. 250 mrem \cdot h⁻¹

++) Aktivität vor der 1,5 $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-2}$

In Laborversuchen erzielte Restaktivität nach 45-Minuten-Behandlung: 2,5%

3. Optimierung der Dekontamination großer Komponenten

(D. Hentschel, ABRA)

Um das Dekontaminationsverhalten der eingesetzten Chemikalien und die notwendigen Einwirkzeiten zu ermitteln wurden im Autoklaven kontaminierte Edelstahlproben zunächst mit der konzentrierten Lösung 8 x 15 Minuten lang behandelt. Nach jedem 15-Minuten Schritt wurde die Aktivität bestimmt. Anschließend wurde mit den halb- bzw. viertelkonzentrierten Lösungen in der gleichen Weise verfahren. Die untersuchten Lösungen sind der Tabelle 4411-5 zu entnehmen. Zur Klärung der Dekontaminationswirkung von alkalischen Permanganatlösungen wurden entsprechende Untersuchungen durchgeführt. Hier wurden 2,25%-, 9,0%- und 18,0%-ige Lösungen mit einem Kaliumpermanganatgehalt von 0-3 g eingesetzt.

Bei den AP-Versuchen wurden die Proben 1 Stunde mit der Permanganatlösung vorbehandelt, die Restaktivität bestimmt und zwei Stunden lang in die eigentliche Dekontaminationslösung getaucht. Hier wurde nach einer Stunde noch eine Zwischenmessung durchgeführt.

Zur Klärung der Frage, ob es möglich ist, die die Konzentration der Dekontaminationslösungen durch das Arbeiten in einem fließenden Medium zu senken, wurde ein Dekontaminationskreislauf zusammengestellt, in dem die Lösungen ständig umgepumpt werden können. Dieser Kreislauf wird derzeit aufgebaut, mit den entsprechenden Versuchen wird in diesen Tagen begonnen.

Bei den Untersuchungen über die Dekontaminationswirkung der einzelnen, in der Reaktortechnik am häufigsten eingesetzten Dekontaminationschemikalien in Abhängigkeit von deren Konzentration an kontaminierten Edelstahlproben konnten folgende Ergebnisse erzielt werden (s. auch Tabelle 4411-5):

Tab. 4411-5: Dekontaminationsergebnisse mit den untersuchten
Lösungen

Dekontaminationsmittel	Zusammensetzung (wenn keine weitere Angabe: g/100 ml)	Restaktivität in % nach			
		1 h		2 h	
		¹⁴⁴ Ce	⁶⁰ Co	¹⁴⁴ Ce	⁶⁰ Co
Oxalsäure	0.02 m/l = 0.25	24,4	48,3	16,6	41,7
	0.08 m/l = 1.0	14,8	34,2	11,7	29,9
	0.4 m/l = 5.0	11,2	34,2	9,8	32,9
	0.8 m/l = 10.0	10,1	33,1	9,6	30,9
Ammoniak-Citronensäure (AC)	8,5 g Citr., 1,5 g NH ₃	74,5	77,0	68,8	74,2
	1/2 Konzentration	68,6	70,8	64,0	64,4
	1/4 Konzentration	70,2	85,3	63,5	80,9
Dibasisches Natriumcitrat	8,12 g Citr., 3.42 g NaOH	76,8	81,5	68,5	74,8
	1/2 Konzentration	73,6	89,7	70,2	87,6
	1/4 Konzentration	78,0	86,3	73,0	80,2
Ammoniak-Citronensäure/EDTA (ACE)	8,5 g Citr., 1,5 g NH ₃ , 0,4 g EDTA; 1/2 Konzentration	71,0	78,3	66,3	71,7
	1/4 Konzentration	77,4	79,6	61,0	65,0
		74,5	78,8	69,5	71,5
Dibasisches Natriumcitrat EDTA	8.12 Citr., 3.42 g NaOH, 0.4 g EDTA; 1/2 Konzentration	80,1	82,2	72,9	77,0
	1/4 Konzentration	80,0	85,2	65,4	82,2
		83,3	87,9	77,7	80,0
Citronen-/Oxalsäure	6,3 g Citr. 2,1 Ox mit NH ₃ pH 3	30,0	19,6	27,2	17,6
	1/2 Konzentration	34,0	30,0	29,5	28,8
	1/4 Konzentration	9,4	45,5	4,8	43,7
Citronen-/Oxalsäure	5.52 Citr., 2,5 g Ox, 0.8 g NH ₃	10,7	51,5	6,5	32,0
	1/2 Konzentration	25,6	41,0	13,0	36,6
	1/4 Konzentration	31,3	51,8	25,5	45,6

Tab. 4411-5 : Dekontaminationsergebnisse mit den untersuchten Lösungen (Fortsetzung)

Dekontaminationsmittel	Zusammensetzung (wenn keine weitere Angabe: g/100 ml)	Restaktivität in % nach			
		1 h		2 h	
		¹⁴⁴ Ce	⁶⁰ Co	¹⁴⁴ Ce	⁶⁰ Co
Citronen-/ Oxalsäure	4,25g Citr., 3,8 g Ox,	16,8	37,9	14,6	35,2
	0,75 g NH ₃	24,2	40,2	19,9	37,8
	1/2 Konzentration	33,0	48,8	17,2	43,5
Natriumcitrat Oxalsäure	5,0 g Citr., 2,5 g Ox,	72,8	47,5	59,2	39,1
	1,8 g NaOH	67,8	41,4	56,5	35,5
	1/2 Konzentration	83,2	47,0	73,0	40,7
Natriumcitrat Oxalsäure	3,26 g Citr., 3.0 g Ox,	30,7	35,6	17,8	32,4
	1,4 g NaOH	33,0	34,1	30,0	32,5
	1/4 Konzentration	55,5	37,5	38,2	32,6

Tab. 4411-6: Dekontaminationsergebnisse an Proben, die vor der Dekontamination mit alkalischer Kaliumpermanganatlösung (AP) behandelt wurden

Zusammensetzung der AP g/100 ml	Restaktivität/% nach 1 h AP- Behandlung ¹⁴⁴ Ce ⁶⁰ Co		Zusammensetzung der Dekontaminations- lösungen in g/100 ml H ₂ O	Restaktivität / % nach			
				1h		2h	
				¹⁴⁴ Ce	⁶⁰ Co	¹⁴⁴ Ce	⁶⁰ Co
18 g Natronlauge + 3 g Kaliumper- manganat	80,2	87,2	3,26 Citronens. 3,0 Oxals. 1,4 NaOH 1/4 Konzentration	4,6	3,5	3,5	3,2
	85,8	90,6		8,3	4,3	6,0	3,0
	84,0	87,0	1,0 Oxalsäure 0,25 Oxalsäure	3,6	3,5	3,2	3,0
	79,3	83,8		24,2	67,5	11,1	9,0
	84,1	86,7	8,5 Citronens. 1,5 NH ₃ , 0,4 EDTA 1/4 Konzentration	8,5	21,7	7,8	17,8
	90,0	85,6		55,8	47,0	44,0	35,5
9 g Natronlauge +2 g Kaliumper- manganat	80,0	86,5	3,26 Citronens. 3,0 Oxals., 1,4 NaOH 1/4 Konzentration	16,3	5,0	12,7	4,2
	87,2	95,5		13,5	8,2	10,2	6,5
	90,1	90,9	1,0 Oxalsäure 0,25 Oxalsäure	7,5	7,1	6,9	6,5
	84,8	90,5		9,6	5,4	9,3	4,5
	92,1	89,0	8,5 Citronens., 1,5 NH ₃ 0,4 EDTA 1/4 Konzentration	12,5	19,0	9,0	14,5
	86,5	90,3		31,0	36,9	25,8	32,7

4412 Wanderung langlebiger Transuranisotope (z.B. Pu-239, Am-241)
im Boden und in geologischen Formationen

Wanderung langlebiger Transurane

(A. Jakubick, ABRA)

Durchgeführte Arbeiten

Für die Entnahme von Bodenproben zur Pu-239 Bestimmung erwies sich eine Wiese ca. 9 km SW von Heidelberg als geeignet. Die Entnahmestelle war eben und ohne Bäume oder Gebüsch. Der Boden war nachweislich seit dem Beginn der Zeitgeschichte des Fallouts nicht gestört. An einer Fläche von 1500 cm² wurden 2 cm dicke Bodenschichten abgetragen, wobei jede Bodenprobe nicht weniger als 3000 g wog. Das Hauptproblem bei der Probenahme und Probenaufbereitung bestand darin eine Querkontamination zu vermeiden und Proben zu gewinnen die für die Tiefe repräsentativ sind.

Die Pu-239 Analysen wurden nach der HASL-Methode vom LFE durchgeführt. Die gefundene Pu-239 Tiefenverteilung ist in Abb. 4412-1 dargestellt. Die Verteilung ist ein Ergebnis der gleichzeitigen Effekte eines unregelmäßigen Inputs durch Fallout und einer kontinuierlichen Abwanderung in die Tiefe. Dementsprechend wurde eine Computersimulation dieser Prozesse nach dem Modell:

$$M(t) = M_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + \sum_i R_i \tau \left[1 - \exp\left(-\frac{t-t_i}{\tau}\right) \right] H(t-t_i) - \left[1 - \exp\left(-\frac{t-t_i+1}{\tau}\right) \right] H(t-t_i - 1)$$

$M(t)$, M_0 = Menge der Kontamination in mCi/km² zur Zeit t bzw. $t = 0$.
 τ = mittlere Verweilzeit in Jahren

R_i = jährliche Ablagerungsrate in mCi/km² · a

$H(t-t_i) = 0$; für $t < t_i$
 $H(t-t_i) = 1$; für $t \geq t_i$;

Als Transportparameter wurde τ benutzt. Die erste Wahl von τ war zufälliger Natur. Anschließend erfolgte eine Prüfung auf trial-and-error Basis. Dies wurde durch eine schrittweise Approximation fortgesetzt.

Die Ergebnisse für die erste Bodenschicht wurden errechnet, indem die repetitive Prozedur der Gl. 1 mit der gesamten Sequenz der jährlichen Gesamtablagerungsdaten R durchgeführt wurde. Für jede nachfolgende tiefere Bodenschicht der Pu-output wurde als input R_i betrachtet. Die Gültigkeit von τ (Tab. 4412-1) wurde durch Vergleich der gerechneten Kontaminationswerte mit gemessenen Kontaminationen aus dem Feld nachgeprüft.

Die Bestimmungen unterhalb von 12 cm waren etwas unsicher, da das Verhältnis Kontaminationsoutput zu Untergrund sich nicht mehr deutlich vom Verhältnis Kontamination zu Untergrund unterschied. Diese relativ hohe Aktivitätsfluktuation liegt wahrscheinlich in der partikularen Natur der PuO_2 -Kontamination.

Erzielte Ergebnisse

Wenn die Halbwertszeit der Kontaminationsabnahme $T_{1/2} = 0,693 \times \tau = 3,5$ Jahre benutzt wird, ergibt sich die Migrationsgeschwindigkeit von 50% der PuO_2 -Kontamination für den untersuchten tonlehmigen Boden als

$$v (\text{PuO}_2) = \frac{\text{Dicke der Bodenschicht}}{\text{Migrationshalbwertszeit}} = 0,59 \text{ cm/a}$$

Um der Migrationsgeschwindigkeit $v (\text{PuO}_2)$ eine physikalische Bedeutung zu geben, muß die bestimmte Geschwindigkeit in eine Beziehung zu den Bedingungen des Transfers gesetzt werden. Als Erstes bot sich dazu die infiltrierte Menge der Niederschläge während der Migrationsperiode an.

Etwa 500 m westlich von der Pu-Probenahmestelle wurden unter ähnlichen Oberflächenverhältnissen HTO-Tracer Experimente durchgeführt. Der Bodentyp war im Grunde der gleiche.

Die mittlere Bewegung des HTO-Tracer zeigte während einer einjährigen Periode eine Perkolationsgeschwindigkeit des Wassers von ca. 130cm/a. Die beobachtete Grundwasserspense war ca. 30,2% des jährlichen Niederschlags. Daraus wurde die Schlußfolgerung gezogen, daß dem mittleren jährlichen Niederschlag zwischen 1954 - 1975 - dies betrug 779 mm - eine durchschnittliche Grundwasserspense von 235 mm entspricht. Für einen mittleren Bodenwassergehalt von 0,235 folgte daraus eine Wassergeschwindigkeit von ca. 100 cm/a.

Die resultierende dimensionslose PuO_2 Migrationsgeschwindigkeit $v_r (\text{PuO}_2)$ war:

$$v_r (\text{PuO}_2) = \frac{v (\text{PuO}_2)}{v (\text{HTO})} = 5,9 \cdot 10^{-3}$$

Das kleine Verhältnis impliziert, daß die PuO_2 -Migration nur schwach von der Wasserperkolation abhängig ist. Gleichzeitig bedeutet das aber, daß der Effekt des Wassertransports in Verbindung mit anderen Faktoren, die den Transfer beeinflussen, gesehen werden muß.

Ausblick auf den geplanten, weiteren Fortgang

Mit den erzielten Ergebnissen ist der erste Teil der vereinbarten Untersuchungen: Die Bestimmung der Migrationsgeschwindigkeit von PuO_2 abgeschlossen.

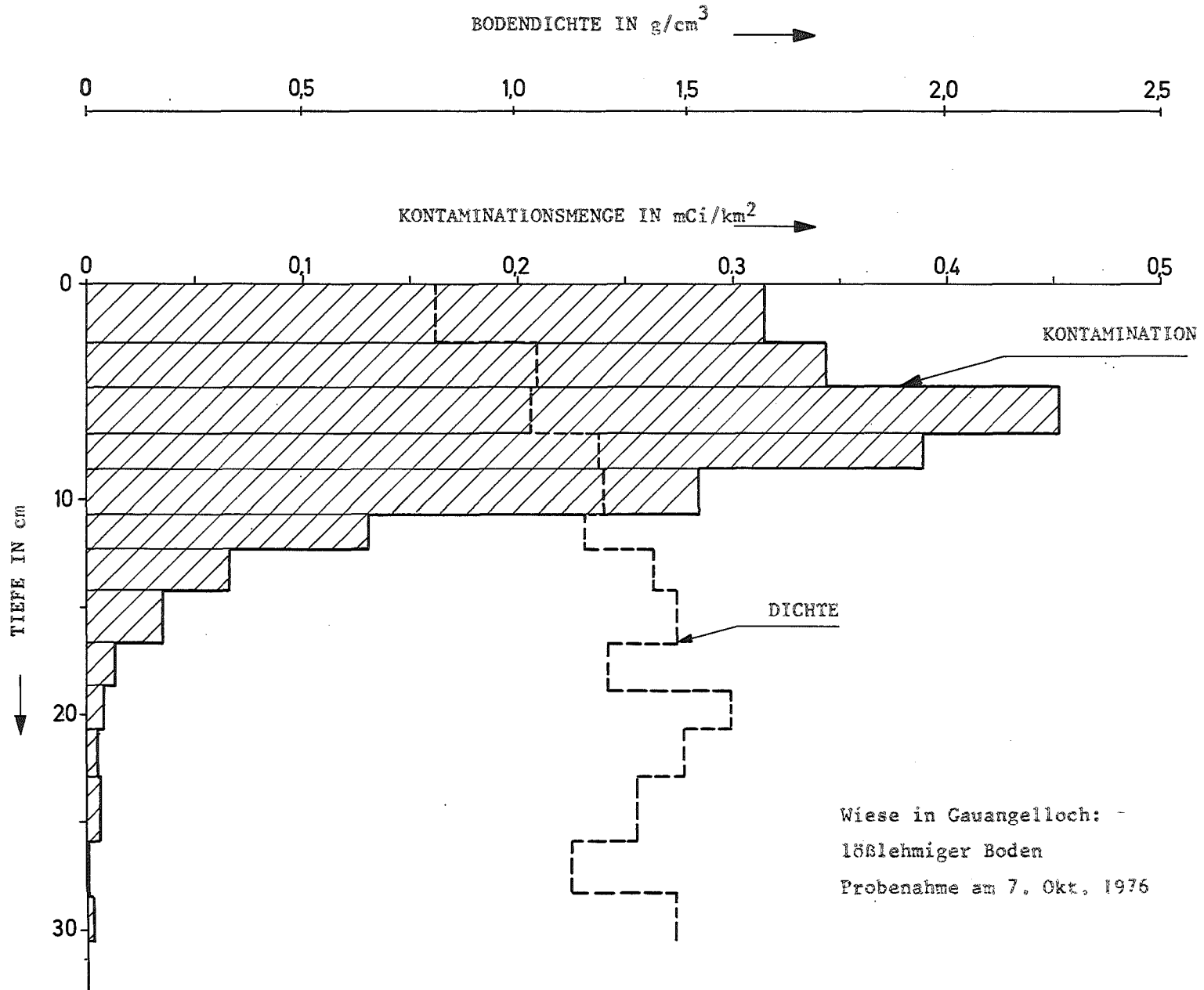
Eine Untersuchung der Abhängigkeit der PuO_2 -Mobilität von bodenphysikalischen Eigenschaften wie spezifische Oberfläche, Ionenaustauschkapazität, Porosität, Gehalt an organischem Kohlenstoff und Karbonatgehalt ist unterwegs.

Tab. 4412-1: Mittlere Verweilzeit von Pu-239,240 in einem
lößlehmigen Boden

Tiefe ^{+) (cm)}	Dicke der Bodenschicht (cm)	Porosität (%)	mittlere Verweilzeit (a)
2,75	2,75	68	6,2
4,75	2,0	59	4,2
6,87	2,12	57	5,0
8,62	1,75	53	5,2
10,50	1,88	53	5,9
13,33	1,83	55	4,2
Mittelwert	2,055	57,5	5,12
Standard-Abweichung	0,33	5,15	0,76

^{+) Die Bestimmungen unter ca. 12 cm waren nicht ausreichend genau.}

Abb. 4412-1: Tiefenverteilung von Pu 239, 240 in einem Bodenprofil SW von Heidelberg (Gauangelloch)



4420 Technik der Räum- und Demontearbeiten

4421 Entwicklung von Methoden und Verfahren zur
Stillegung und Endbeseitigung nuklearer Anlagen
(G.W. Köhler, I. Weppner, RBT/IT)

Im Rahmen der Erstellung einer Gesamtanalyse sicherer Stillegung und
Endbeseitigung von Kernkraftwerken wurde eine Reihe von Teilproblemen
bearbeitet:

1. Konditionierung von Abfällen

Für die Konditionierung von Abfällen kommen grundsätzlich die
folgenden Möglichkeiten in Betracht:

- Konditionierung im Kernkraftwerk ausschließlich mit Mitteln
des Kernkraftwerkes (nur bei kleinen, schwachaktiven Komponenten
durchführbar)
- Konditionierung im Kernkraftwerk mit Fremdunterstützung
(bevorzugt bei altersbedingten Stillegungen)
- Konditionierung am Kernkraftwerk in demontierbarer Anlage
(beim Austausch von Großkomponenten und auch bei störfall- und
altersbedingten Stillegungen)
- Konditionierung in zentraler Anlage (beim Austausch von Groß-
komponenten und auch bei der altersbedingten Stillegung;
je nach Komponentengröße ergeben sich zum Teil erhebliche
Transportprobleme).

Im einzelnen kann die Konditionierung von Abfällen die folgenden
Arbeitsschritte umfassen:

Während die räumlichen Gegebenheiten bei den Leichtwasser-Demonstrations-Reaktoren insgesamt als unzureichend zu bezeichnen sind, ist bei den modernen Leichtwasserreaktoren deutlich ein Trend zur günstigeren Anordnung von Komponenten und Armaturen festzustellen.

Den neuesten Stand diesbezüglich repräsentiert der 1300 MWe Druckwasser-Reaktor Mühlheim-Kärlich.

4. Neue Reaktorbauweise

Es wird empfohlen, bereits während der Planung eines Kernkraftwerkes die spätere Stilllegung (totale Beseitigung) stärker als dies bisher der Fall war, zu berücksichtigen.

Im einzelnen sind für eine Stilllegung folgende Probleme von übergeordneter Bedeutung:

- Relation Abmessung / zur Verfügung stehender Raum
- Relation Gewicht / Tragfähigkeit der Hebezeuge
(Reduzierung der Probleme zum Beispiel durch kleinere Komponenten, lösbare Verbindungen, Abschirmungen aus Fertigteilen)
- Erhöhte Dosisleistung
(Reduzierung der Probleme zum Beispiel durch Verwendung nickelfreier Werkstoffe, bessere Primär-Kreisreinigung, Erleichterung der System-Dekontamination, zweckmäßigere Anordnung von Armaturen, Verwendung von Abschirmungen und Fernbedienungsgeräten).

5. Typischer Arbeitsablauf

Bei der Stilllegung eines Kernkraftwerkes wird folgendes Vorgehen empfohlen:

- Entfernen aller inaktiven, für die weiteren Arbeiten unnötiger Teile
- Ausbauen und Konditionieren aller Teile mit niedriger Oberflächenleistungsleistung
- Ausbauen und Konditionieren der Großkomponenten in der Reihenfolge

Druckwasser-Reaktor:

Hauptkühlmittelpumpen, Dampferzeuger,
Reaktor-Druckbehälter-Einbauten,
Reaktor-Druckbehälter

Siedewasser-Reaktor:

Reaktor-Druckbehälter-Einbauten,
Reaktor-Druckbehälter.

Veröffentlichungen und Berichte zu Arbeiten im 1. Halbjahr 1977

9. Halbjahresbericht / 2. Halbjahr 1976

KFK 2435 (1976)

M. Fischer

Stand und zukünftige Aufgaben der nuklearen Sicherheitsforschung.
Jahreskolloquium des Projektes Nukleare Sicherheit, 1. Dezember 1977,
KFK 2570 (in Vorbereitung)

H. Albrecht et al

Behavior of LWR fuel elements under accident conditions.
International Conference on Nuclear Power and its Fuel Cycle,
Salzburg, May 2-13, 1977

M. Fischer et al

Safety aspects of LWR fuel reprocessing and mixed oxide fuel
fabrication plants.
dito

G. Hermann, C.H. Leichsenring, H. Schüttelkopf, I. Wilhelm
Emissionen und Betriebserfahrungen mit Rückhalteeinrichtungen
bei Wiederaufarbeitungsanlagen.

Reaktortagung, Mannheim, 29. März - 1. April 1977

Deutsches Atomforum E.V. (DATF) Kerntechnische Gesellschaft im DATF

R. Schützle, L. Ehnis, W. Gulden et al., IKE Stuttgart

Analyse eines Reaktorbrandstabs mit dem modularen Programmsystem
SSYST während eines Kühlmittelverluststörfalles.

dito

F. Erbacher, H.J. Neitzel, M. Reimann et al.

Out-of-pile Versuche zum Aufblähvorgang von Zircaloy-Brennstabhüllen
in der Wiederauffüll- und Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles.
dito

P. Ihle, S. Malang, K. Rust, H. Schmidt

Der Einfluß von Kühlkanalblockaden auf den Wärmeübergang während der Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles

dito

J. Furrer, J. G. Wilhelm

Das SORPTEx-Verfahren zur Head end-Abscheidung von Aerosolen und Jod aus Abgasen von Wiederaufarbeitungsanlagen.

dito

H. Deuber, J.G. Wilhelm

Bestimmung der Jodkomponenten in der Abluft von Kernkraftwerken

dito

H.G. Dillmann, A. Weinert, J.G. Wilhelm

Störfallumluftfilter in Kernkraftwerken.

Stand der Entwicklung.

dito

J.G. Wilhelm, M. Ohlmeyer

Filteranlage zum Reinigen von Gas- oder Luftströmen.

DT-OS 25 40 141 (10.3.77)

BE 845.711 (16.12.76)

H. Dilger, W. Hübschmann, D. Nagel, K. Nester, P. Thomas

Die Parameter der atmosphärischen Ausbreitung in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe.

KFK 2499 (1977)

K. Nester, W. Hübschmann, P. Thomas

The Influence of Ground Roughness on Atmospheric Diffusion.

The Forth International Clean Air Congress, Tokio 1977

A. Bayer, M. Dalle Donne

Jahreskolloquium 1975 des Projektes Nukleare Sicherheit der GfK

KFK Nachrichten 9, 1 (1977) 30-34

A. Bayer, M. Dalle Donne

Störfallverhalten von LWR-Brennelementen.

Bericht über das 4. Jahreskolloquium des Projektes Nukleare Sicherheit
(PNS) in Karlsruhe

Atomwirtschaft 22 (1977) 490 - 492

A. Skokan, H. Holleck

Tagungsband des DATF.

Reaktortagung Mannheim 29.3. - 1.4.1977

H. Holleck, S. Nazaré, G. Ondracek, A. Skokan

LWR Core Melt Down Accident - A Materials Viewpoint.

Proc. ANS-Thermal Reactor Safety Meeting, Sun Valley (1977) Log. 133

S. Nazaré, G. Ondracek, B. Schulz

Properties of Light Water Reactor Core Melts.

Nuclear Technology, Vol. 32 (1977) 239

W. Schöck

Calculation of Steam Condensation on Solid Particles after Blowdown
in a PWR-Containment.

Euromech Kolloquium 88 on "Two Phase Flow Systems with Condensation
Phenomena".

Inst. für Thermische Strömungsmaschinen, Universität Karlsruhe

30.3. - 1.4.1977

H. Schnauder, M. Cramer

Kondensationsversuche in der KWU-Großbehälteranlage in Karlstein

KFK-Ext. 8/76-1 (Feb. 1977)

R.A. Müller, G. Class, E. Frenkel, U. Simon

Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Belastung des
SWR-Druckabbausystems.

Vortrag Nr. 227, DATF-KTG-Reaktortagung Mannheim, 29.3. - 1.4.1977

R. Krieg, H. Zehlein

Coupled Problems in Transient Fluid and Structural Dynamics with
Application to Nuclear Engineering

International Symposium on Innovative Numerical Analysis in Applied
Engineering Science, CETIM, Paris, May 1977

W.J. Krause, H. Albrecht

Examination of Filter Materials and Adhesives by Activation Analysis.
Intern. J. Environ. Anal. Chem., Vol. 5 p.35 (1977)

H. Albrecht, M.F. Osborne, H. Wild

Experimental Determination of Fission and Activation Product Release
During Core Meltdown

ANS Thermal Reactor Safety Meeting, Sun Valley, Idaho,
31.7. - 5.8.1977

R.A. Müller, G. Class, E. Frenkel, U. Simon

Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Belastung des
SWR-Druckabbausystems.

Reaktortagung, Mannheim, 29.3. - 1.4.1977,

Deutsche Atomforum e.V. Kerntechnische Ges. im Dt. Atomforum e.V.
Leopoldshafen 1977

G. Class

Das Verhalten von Siedewasserreaktor-Druckabbausystemen beim Kühl-
mittelverluststörfall.

Seminar über neuere Arbeiten auf dem Gebiet der Reaktortechnik,
RWTH Aachen, 12. Mai 1977

G. Class

Übersicht über das Verhalten von SWR-Druckabbausystemen beim Kühl-
mittelverluststörfall

KFK-Nachrichten, 9(1977) Nr. 1

H. Schnauder, M. Cramer

Kondensationsversuche in der KWU-Großbehälteranlage
in Karlstein

KFK-Ext. 8/76-1 (Febr. 1977)

R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, K.-H. Scholl

Design of the HDR Experimental Program on Blowdown Loading and
Dynamic Response of PWR-Vessel Internals

Nucl. Eng. and Design 43 (1977), 419-453

A. Ludwig, R. Krieg

Dynamic Response of a Clamped/Ring-Stiffened Circular Cylindrical Shell under Non-axisymmetric Loading

Nucl. Eng. and Design 43 (1977) 437-453

R. Krieg, H. Zehlein

Coupled Problems in Transient Fluid and Structural Dynamics with Application to Nuclear Engineering

Int. Symposium of Innovative Num. Analysis in Appl. Eng. Science, Versailles, 23-27 May 1977

R. Krieg, E.G. Schlechtendahl, K.-H. Scholl, U. Schumann

Full-scale HDR Blowdown Experiments as a Tool for Investigating Dynamic Fluid-Structural Coupling

4th Conf. Structural Mech. in Reactor Technology, San Francisco, 15-19 Aug. 1977, invited paper B5/1

F. Katz, R. Krieg, A. Ludwig, E.G. Schlechtendahl, K. Stölting

2D Fluid Flow in the Downcomer and Dynamic Response of the Core Barrel during PWR Blowdown

4th Conf. Structural Mech. in Reactor Technology, San Francisco, 15-19 Aug. 1977, paper B5/2

I. Michael, C. Plog

Dünnschichtanalyse von Druckwasserkorrosionsschichten auf INCOLOY - Proben.

Metall, 31 (1977) H.3

Interne Projektberichte (beschränkter Verteiler)

D. Fömpe

Eine RELAP4-Variante zur Durchführung thermohydraulischer Interpolationsrechnungen für das Experiment PNS 4236 unter Verwendung von Versuchsmeßwerten.

Jan. 1977

A. Ludwig, R. Krieg

Dynamisches Verhalten einer einseitig eingespannten, am anderen Ende ringversteiften Zylinderschale bei nicht achsensymmetrischer Belastung.

Jan. 1977

G. Beker, R. Coenen, G. Frederichs

Risiko und Akzeptanz (unter besonderer Berücksichtigung der Kernenergie)

Jan. 1977

R.v.Ammon, K. Strauch, W. Wurster

Die Entfernung von O_2 und NO_x aus dem Abgas von Wiederaufarbeitungsanlagen durch thermische Reduktion

März 1977

B. Göhler

Dynamisches Verhalten der Außenwand der Brunsbüttel-Kondensationskammer

Jan. 1977

E. Wolf

Untersuchungen der Eigenfrequenzen eines strömenden Mediums in einer starren durchströmten Rohrgeometrie

Jan. 1977

A. Mack

Temperaturmessung der Coriumschmelze

Febr. 1977

H. Schnauder, K.D. Appelt

Messungen der elektrischen Störpegel im Reaktorgebäude des HDR unter Verwendung verschiedener Meßhobeltypen und zweier unterschiedlicher Meßprinzipien

Jan. 1977

H. Unger et al.,

Bericht über die im Auftrag des PNS geleisteten Arbeiten des
IKW Stuttgart im Berichtszeitraum Juli-Sept.'76 und Okt.-Dez.'76

K. Hain, T. Vollmer

Konzept eines elektrisch indirekt beheizten Brennstabsimulators
für Wärmerübergangsmessungen in der Blowdown-Versuchsanlage
April 1977

G. Hofmann

Some Aspects on Strain in Zircaloy Tube Burst Tests
Febr. 1977

S. Dagbjartsson

Bericht über Besuch bei Battelle Columbus Institute
Febr. 1977

S. Dagbjartsson

1. Zircaloy Cladding Review Group Meeting 11. u. 12. Jan.1977 in Oak Ridge
Febr. 1977

M. Fischer, A. Fiege

Stand und Perspektiven notwendiger Arbeitsprogramme und Versuchsanlagen
zur Brennstab- und Brennelement-Sicherheitsforschung
Febr. 1977

W. Hübschmann, S. Vogt

Ausgewählte Ergebnisse des Unfallfolgenmodells der Reaktor-Risiko-Studie
März 1977

M. Bocek et al.,

Statusbericht über die theoretischen und experimentellen Untersuchungen
des PNS zum Brennstabverhalten und zur Auswirkung von Brennstabschäden
auf die Wirksamkeit der Kernnotkühlung
März 1977

G.Enderle

Blowdown-Berechnung für KWB-B mit Yaquir und Vergleich mit LECK-Ergebnissen

A. Mack

Beschreibung der F/FA-Anlage

M. Reimann

Ein Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung einer Kernschmelze mit Beton

S. Vogt, P. Thomas

Untersuchung der atmosphärischen Ausbreitung durch radarverfolgte Tetroomflüge Flug Nr. 1 und 2 vom 24.2.77

März 1977

C. Politis

Die chemische Wechselwirkung zwischen UO_2 und Zry-4 unter Power Cooling Mismatch -(PCM) Bedingungen im Temperaturbereich zwischen 900 u. 1400°C

März 1977

H. Moesinger

Herleitung nach Interpretation der Modellgleichungen von SOLA-DF

E.G. Schlechtendahl

Kriterien für die Zulässigkeit einer entkoppelten Fluid- und Struktur-analyse

April 1977

G. Hofmann

Bericht über das Zircaloy Cladding Review Group Meeting im Oak Ridge National Laboratory am 11.12.Jan.1977

März 1977

L. Sepold, M. Prüßmann

Vermessung von frischen DWR-Brennstabhüllen

April 1977

G. Hofmann

Ergebnisse weiterer Einzelstabversuche im MRBT-Programm

Versuche SR-10 und SR-12 bis SR27

April 1977

H. Unger et al.,

Bericht über die im Auftrag des PNS geleisteten Arbeiten des IKW

Stuttgart im Zeitraum Jan.-März 1977

April 1977

D. Perinic, B. Kammerer

Versuche zur Untersuchung der Coriumschmelze/Beton-Reaktion

Mai 1977

F. Kedziur

Untersuchung einer stark beschleunigten Zweiphasenströmung

Mai 1977

R. Krieg

Zur simultanen Lösung 3-dimensionaler, gekoppelter fluid-struktur-
dynamischer Probleme

Mai 1977

P. Hofmann, C. Politis

Investigations of the influence of oxide fuel on the mechanical
properties of Zry cladding tubes under LWR-accident conditions

Mai 1977

P. Ihle, S. Malang, U. Rust, H. Schmidt

Einfluß von Kühlkanalblockaden auf den Wärmeübergang während der
Flutphase eines Kühlmittelverluststörfalles

Mai 1977

P. Ihle, S. Malang, K. Rust

Ergebnisse von Flutversuchen an einer 5-Stubreihe mit Lochplatte
als Blockade und 62% Kühlkanalversperrung

Mai 1977

A. Bayer et al.,

Risikostudie zur Sicherheitsbeurteilung von Kernkraftwerken mit DWR für
einen Standort in der BRD

Unfallfolgenmodell Phase A Zwischenbericht 1. Teil

Juni 1977

K. Stölting

Auswertung der Vorausberechnung der HDR-Blowdown-Untersuchungen
(Versuch 1) mit dem Rechencode YAQUIR

Juni 1977

E. Karb, G. Harbauer, M. Prüßmann

Teilbericht über Nuklearversuche

Vorläufige Ergebnisse

Juni 1977

F. Erbacher

Studies on Zircaloy fuel rod cladding behavior during the refilling
and reflooding phases of a LOCA, preliminary results of Burst Tests
with indirectly heated fuel rod simulators

Juni 1977

M. Cramer

Frequenzanalyse einiger Versuche von Karlstein

Juni 1977

S. Vogt, W. Hübschmann, A. Bayer

Risikostudie zur Sicherheitsbeurteilung

PNS-Bericht 2. Teil des Zwischenberichts

Juni 1977

S. Dagbjartsson

Stand des PBF Fuel Behavior Programs

Juni 1977

R.-D. Penzhorn

Alternativverfahren zur Kr-85 - Endlagerung

Juni 1977

L. Sepold

Überblick über die geplanten LOCA-Versuche (PBF-Programm Review Group Meeting May 25, 1977)

Juni 1977

S. Dagbjartsson, G. Hofmann

Bericht über das Zircaloy-Cladding Program Review Group Meeting der USNRC

Juni 1977

S. Dagbjartsson

Epri Meeting in Tuscon

Juni 1977

S. Dagbjartsson

Material Properties Modeling, Idaho Falls

Juli 1977

M. Boček, S. Dagbjartsson, et al.,

Ergebnisse der deutsch-amerikanischen Arbeitstagung 16. - 18. Mai 1977 in INEL, Idaho Falls

Juli 1977

S. Dagbjartsson

NRC/German Model Development Workshop 16. - 18. Mai 1977, Idaho Falls

Juli 1977

A. Skokan

Löslichkeit von Wasserstoff und Sauerstoff in der Coreschmelze

August 1977

E. Wolf, E. Erb, P. Philipp

Technische Beschreibung der bei den Marviken II-Versuchen eingesetzten Infrarot-Absorptionsmeßeinrichtung

Dez. 1976